

钛酸钡基多铁隧道结的理论研究*

马雪丽 吴从亮 方贺男[†]

(南京邮电大学, 电子与光学工程学院、柔性电子(未来技术)学院, 南京 210023)

由于钛酸钡具有较小的临界厚度, 且与典型的铁磁金属电极的晶格常数匹配度高, 所以钛酸钡基多铁隧道结被认为在非易失性存储器等领域具有重要的应用潜力。实验发现, 钛酸钡基多铁隧道结在高偏压区域的隧穿磁阻比值(TMR)随偏压非单调变化, 该现象的物理机制在理论上需要给予阐明。另一方面, 钛酸钡基多铁隧道结中铁磁效应和铁电效应之间的影响需要在理论上进行系统性的研究。基于上述原因, 本文以 Co/BTO/LSMO 多铁隧道结为研究对象, 利用 Airy 函数严格计算了该体系的隧穿磁阻效应和隧穿电致电阻效应, 并系统地研究了外加偏压和隧穿层厚度的影响。研究表明: Co/BTO/LSMO 多铁隧道结的 TMR 和隧穿电致电阻比值(TER)随偏压和隧穿层厚度的变化曲线均存在振荡现象。该振荡现象物理上来源于隧穿过程中的量子干涉效应。此外, 铁电隧穿层极化产生的静电势对隧穿层势结构的影响使得 Co/BTO/LSMO 多铁隧道结中的隧穿磁阻效应较弱, 进而导致铁磁电极磁取向对隧穿电致电阻效应几乎没有影响。该理论结果与实验一致, 意味着传统结构的钛酸钡基多铁隧道结难以作为四阻态器件应用在存储器领域。

关键词: 多铁隧道结, 钛酸钡, 隧穿磁阻效应, 隧穿电致电阻效应, 隧穿电导

PACS: 72.10.-d, 73.40.Gk, 73.40.Rw, 75.85.+t

基金: 国家自然科学基金(批准号: 11704197)和南京邮电大学校级自然科学基金(批准号: NY223074)资助的课题。

[†] 通信作者. E-mail: fanghn@njupt.edu.cn

1 引言

多铁隧道结的典型结构是由两个铁磁电极和中间的铁电隧穿层形成的三明治结构^[1-3]。在该结构中，隧穿电导的大小与隧穿层的极化方向和两侧电极的磁取向均密切相关^[3]，即多铁隧道结中同时存在磁性隧道结中的隧穿磁阻（TMR）效应和铁电隧道结中的隧穿电致电阻（TER）效应^[4-6]。相应地，多铁隧道结中存在四种状态：两侧电极磁取向平行且隧穿层极化方向指向屏蔽能力强的电极、两侧电极磁取向平行且极化方向指向屏蔽能力弱的电极、两侧电极磁取向反平行且极化方向指向屏蔽能力强的电极以及两侧电极磁取向反平行且极化方向指向屏蔽能力弱的电极^[7-9]。在这四种状态下，多铁隧道结的隧穿电导存在差异^[10]，从而使其具有作为四阻态器件的潜力^[4-9,11]。因此，多铁隧道结可以应用在多级非易失性存储器、可控电场和磁场传感器以及多功能电阻开关等多个领域中^[2,9,10]。

由于钛酸钡（Barium titanate, BTO）具有较小的临界厚度并且与典型铁磁金属电极的晶格常数匹配度高^[12-14]，所以常用作多铁隧道结的隧穿层材料。2014年，Mao等人在实验上制备了结构为Co/BTO/LSMO的多铁隧道结^[15]。由于高质量LSMO/BTO界面以及BTO隧穿层的强铁电性，该多铁隧道结的TER在10 K低温条件下高达10⁴%。2022年，Pawlak等人制备了结构为Fe/BTO/LSMO的多铁隧道结，该多铁隧道结在室温下也具有显著的隧穿电致电阻效应，TER可以达到270%^[16]。上述结果表明，BTO基多铁隧道结具有巨大的应用潜力。特别地，Tornos等人于2018年制备出结构为LSMO/BTO/LSMO的多铁隧道结，并测量了TMR随偏压的变化曲线^[17]。实验结果发现，在高偏压区域，TMR随偏压非单调变化，这与TMR通常在低偏压区域的单调特性不同^[11,18]。上述现象的物理机制需要在理论上给予阐明。另一方面，多铁隧道结中同时存在铁磁性和铁电性^[19]，两者之间相互影响：隧穿层极化方向的改变会影响隧穿磁阻（TMR）效应^[11]；反之，铁磁电极磁取向

的改变同样也会影响隧穿电致电阻（TER）效应^[8]。上述影响需要在理论上进行系统的研究。

基于上述两个原因，本文利用Airy函数对BTO基多铁隧道结的隧穿电导进行了严格求解，从而理论计算了该体系的TMR和TER。进一步地，本文系统地研究了BTO基多铁隧道结中外加偏压和隧穿层厚度对TMR和TER的影响，以及该体系中铁磁效应和铁电效应彼此之间的影响。

2 计算方法

本文以典型的BTO基多铁隧道结，即Co/BTO/LSMO多铁隧道结为研究对象。图1为Co/BTO/LSMO多铁隧道结在四种状态下的结构示意图。图1(a)和图1(b)分别表示两侧铁磁电极磁取向平行且极化方向分别指向Co电极和LSMO电极的情形；图1(c)和图1(d)分别表示两侧铁磁电极磁取向反平行且极化方向分别指向Co电极和LSMO电极的情形。其中，偏置电压加在LSMO电极且大小为 V ； $\mathbf{P}$ 代表BTO隧穿层的极化强度，中间箭头的指向代表极化强度的方向。下面，本文先通过量子力学散射问题的标准方法^[20-23]来得到四种状态下的透射系数，再利用Landauer-Butiker公式^[24]计算四种状态下的隧穿电导，进而得到该体系的TMR和TER。

多铁隧道结中Co电极、BTO隧穿层、LSMO电极的哈密顿^[20,21]分别表示为：

$$H_L = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2}{dx^2} - F_L - \sigma_L \Delta_L + \phi(x), \quad (1)$$

$$H_B = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2}{dx^2} + \phi(x), \quad (2)$$

$$H_R = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2}{dx^2} + F_R + \sigma_R \Delta_R + \phi(x), \quad (3)$$

式中， F_L 和 F_R 表征了Co电极和LSMO电极导带底的势能差； Δ_L 和 Δ_R 分别为Co电极和LSMO电极的半交换劈裂能。 $\sigma_{L(R)} = \pm 1$ 分别表示电子上、下自旋态，

则 $\sigma_L = \sigma_R$ 表示两侧铁磁电极磁取向平行， $\sigma_L = -\sigma_R$ 表示两侧铁磁电极磁取向反平行。当两侧电极近似取为无穷远处的静电势时^[21,22]， $\phi(x)$ 可表示为：

$$\phi(x) = \begin{cases} 0 & x < 0 \\ \phi_0 \mp \left[\frac{e\sigma_s}{d\epsilon_0} \left(\frac{\delta_L}{\epsilon_L} + \frac{\delta_R}{\epsilon_R} \right) \pm \frac{eV}{d} \right] x \pm \frac{e\sigma_s \delta_L}{\epsilon_0 \epsilon_L} & 0 < x < d \\ -eV & x > d \end{cases}, \quad (4)$$

式中， $\pm$ 和 $\mp$ 中上方符号代表的是隧穿层极化方向指向 Co 电极的情形，下方符

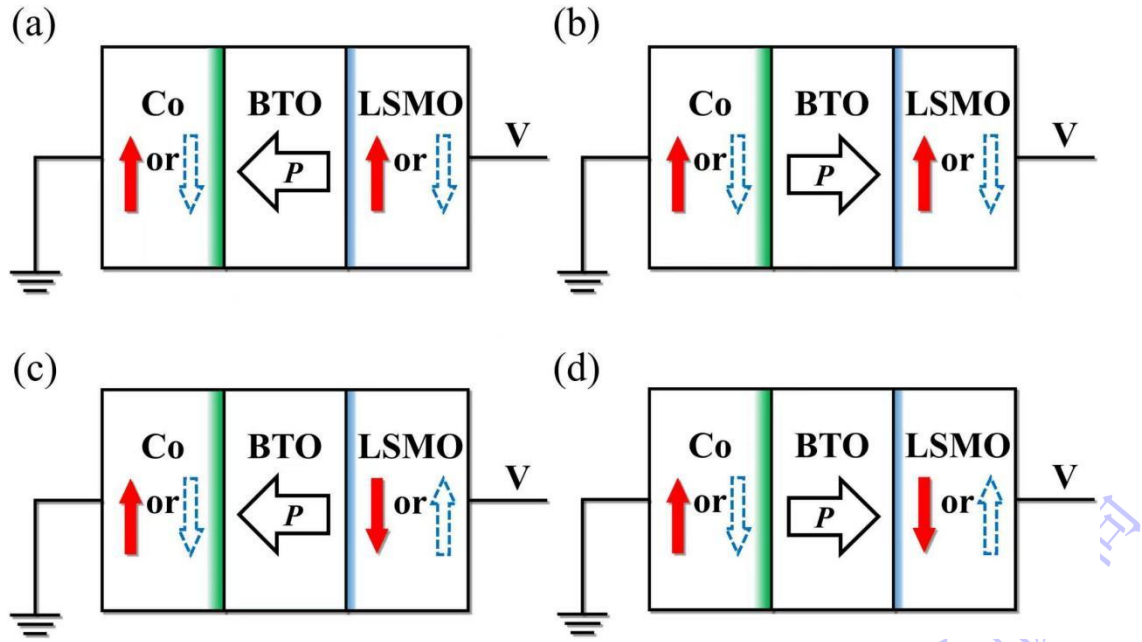


图1 BTO基多铁隧道结四种状态下的结构示意图 (a) 磁取向平行且极化方向指向Co电极的情形；(b) 磁取向平行且极化方向指向LSMO电极的情形；(c) 磁取向反平行且极化方向指向Co电极的情形；(d) 磁取向反平行且极化方向指向LSMO电极的情形

Fig.1. The diagrams of the structure of BTO-based multiferroic tunnel junction under four different states: (a) The case where the magnetic arrangement is parallel and the polarization direction points to the Co electrode; (b) The case where the magnetic arrangement is parallel and the polarization direction points to the LSMO electrode; (c) The case where the magnetic arrangement is anti-parallel and the polarization direction points to the Co electrode; (d) The case where the magnetic arrangement is anti-parallel and the polarization direction points to the LSMO electrode.

号代表的是隧穿层极化方向指向 LSMO 电极的情形； ϕ_0 代表铁电隧穿层的势垒大小； e 代表单位电子电荷； d 代表隧穿层厚度； δ_L 和 ε_L 分别表示 Co 电极屏蔽长度和相对介电常数， δ_R 和 ε_R 分别表示 LSMO 电极屏蔽长度和相对介电常数； σ_s 代表单位面积屏蔽电荷的大小，可表示为：

$$\sigma_s = \frac{dP}{\varepsilon \left(\frac{\delta_L}{\varepsilon_L} + \frac{\delta_R}{\varepsilon_R} \right) + d}, \quad (5)$$

式中， ε 为相对介电常数， P 为极化强度。

接下来，通过求解定态薛定谔方程可得到四种状态下的透射系数 $T_{\leftarrow(\rightarrow)}^{P(AP)}$ [22,23]：

$$\begin{aligned} T_{\leftarrow(\rightarrow)}^{P(AP)} = & \frac{4k_{\sigma_R}}{\pi^2 k_{\sigma_L}} \left\{ \left[\frac{z'_{\leftarrow(\rightarrow)}}{k_{\sigma_L}} Ai'(z_{0\leftarrow(\rightarrow)}) Bi'(z_{d\leftarrow(\rightarrow)}) + \frac{k_{\sigma_R}}{z'_{\leftarrow(\rightarrow)}} Ai(z_{0\leftarrow(\rightarrow)}) Bi(z_{d\leftarrow(\rightarrow)}) \right. \right. \\ & - \frac{z'_{\leftarrow(\rightarrow)}}{k_{\sigma_L}} Ai'(z_{d\leftarrow(\rightarrow)}) Bi'(z_{0\leftarrow(\rightarrow)}) - \frac{k_{\sigma_R}}{z'_{\leftarrow(\rightarrow)}} Ai(z_{d\leftarrow(\rightarrow)}) Bi(z_{0\leftarrow(\rightarrow)}) \Big]^2 \\ & + [-Ai(z_{0\leftarrow(\rightarrow)}) Bi'(z_{d\leftarrow(\rightarrow)}) + \frac{k_{\sigma_R}}{k_{\sigma_L}} Ai'(z_{0\leftarrow(\rightarrow)}) Bi(z_{d\leftarrow(\rightarrow)}) \\ & - \frac{k_{\sigma_R}}{k_{\sigma_L}} Ai(z_{d\leftarrow(\rightarrow)}) Bi'(z_{0\leftarrow(\rightarrow)}) + Ai'(z_{d\leftarrow(\rightarrow)}) Bi(z_{0\leftarrow(\rightarrow)})] \Big\}^{-1} \end{aligned}, \quad (6)$$

其中， $T_{\leftarrow}^P$ 表示两侧铁磁电极平行且隧穿层极化方向指向 Co 电极情形的透射系数， $T_{\rightarrow}^P$ 表示两侧铁磁电极平行且隧穿层极化方向指向 LSMO 电极情形的透射系数， $T_{\leftarrow}^{AP}$ 表示两侧铁磁电极反平行且隧穿层极化方向指向 Co 电极情形的透射系数， $T_{\rightarrow}^{AP}$ 表示两侧铁磁电极反平行且隧穿层极化方向指向 LSMO 电极情形的透射系数。Co 电极和 LSMO 电极波矢分别为 k_{σ_L} 和 k_{σ_R} ，其分别表示为：

$$k_{\sigma_L} = \left(\frac{2m}{\hbar^2} \right)^{\frac{1}{2}} \sqrt{E_x + F_L + \sigma_L \Delta_L}, \quad (7)$$

$$k_{\sigma_R} = \left(\frac{2m}{\hbar^2} \right)^{\frac{1}{2}} \sqrt{E_x + eV - F_R + \sigma_R \Delta_R}, \quad (8)$$

式中， E_x 是电子在隧穿方向上的能量。 $Ai(z)$ 和 $Bi(z)$ 是 Airy 函数^[25]； $Ai'(z)$ 和 $Bi'(z)$ 是 Airy 函数的导函数； z_0 和 z_d 是 Airy 函数的无量纲自变量，定义如下：

$$z'_{\leftarrow(\rightarrow)} = \left(\left(\frac{2m}{\hbar^2 d} \right) \left(\frac{eV}{d} \pm \frac{e\sigma_s}{d\varepsilon_0} \left(\frac{\delta_L}{\varepsilon_L} + \frac{\delta_R}{\varepsilon_R} \right) \right) \right)^{\frac{1}{3}}, \quad (9)$$

$$z_{0\leftarrow(\rightarrow)} = -z'_{\leftarrow(\rightarrow)} \left(\frac{E_x - \phi_0 \mp \frac{e\sigma_s \delta_L}{\varepsilon_0 \varepsilon_L}}{\frac{eV}{d} \pm \frac{e\sigma_s}{d\varepsilon_0} \left(\frac{\delta_L}{\varepsilon_L} + \frac{\delta_R}{\varepsilon_R} \right)} \right), \quad (10)$$

$$z_{d\leftarrow(\rightarrow)} = -z'_{\leftarrow(\rightarrow)} \left(d + \frac{E_x - \phi_0 \mp \frac{e\sigma_s \delta_L}{\varepsilon_0 \varepsilon_L}}{\frac{eV}{d} \pm \frac{e\sigma_s}{d\varepsilon_0} \left(\frac{\delta_L}{\varepsilon_L} + \frac{\delta_R}{\varepsilon_R} \right)} \right), \quad (11)$$

式中， $\leftarrow$ 代表的是隧穿层极化强度指向Co电极，对应上方的正负号； $\rightarrow$ 代表的是隧穿层极化强度指向LSMO电极，对应下方的正负号。

根据Landauer-Butiker公式，四种不同状态下的电导可表示为：

$$G_{\leftarrow}^p = \frac{em}{4V\pi^2\hbar^3} \int dE_x \int dE_t T_{\leftarrow}^p [f(E_x + E_t) - f(E_x + E_t + eV)], \quad (12)$$

$$G_{\rightarrow}^p = \frac{em}{4V\pi^2\hbar^3} \int dE_x \int dE_t T_{\rightarrow}^p [f(E_x + E_t) - f(E_x + E_t + eV)], \quad (13)$$

$$G_{\leftarrow}^{AP} = \frac{em}{4V\pi^2\hbar^3} \int dE_x \int dE_t T_{\leftarrow}^{AP} [f(E_x + E_t) - f(E_x + E_t + eV)], \quad (14)$$

$$G_{\rightarrow}^{AP} = \frac{em}{4V\pi^2\hbar^3} \int dE_x \int dE_t T_{\rightarrow}^{AP} [f(E_x + E_t) - f(E_x + E_t + eV)], \quad (15)$$

其中， $G_{\leftarrow}^p$ 是两侧电极磁取向平行且隧穿层极化方向指向Co电极情形的隧穿电导， $G_{\rightarrow}^p$ 是两侧电极磁取向平行且隧穿层极化方向指向LSMO电极情形的隧穿电导， $G_{\leftarrow}^{AP}$ 是两侧电极磁取向反平行且隧穿层极化方向指向Co电极情形的隧穿电导， $G_{\rightarrow}^{AP}$ 是两侧电极磁取向反平行且隧穿层极化方向指向LSMO电极情形的隧穿电导； E_t 是电子在垂直隧穿方向平面内的能量。利用上述四种不同状态下的电导，隧穿层极化方向指向Co电极时的TMR可表示为 $\text{TMR}_{\leftarrow} = (G_{\leftarrow}^p - G_{\leftarrow}^{AP}) / G_{\leftarrow}^{AP}$ ；隧穿层极化方向指LSMO电极时的TMR可表示为 $\text{TMR}_{\rightarrow} = (G_{\rightarrow}^p - G_{\rightarrow}^{AP}) / G_{\rightarrow}^{AP}$ ；两侧电极磁取向平行的TER可表示为 $\text{TER}^p = (G_{\rightarrow}^p - G_{\leftarrow}^p) / G_{\leftarrow}^p$ ；两侧电极磁取向反平行的TER可表示为 $\text{TER}^{AP} = (G_{\rightarrow}^{AP} - G_{\leftarrow}^{AP}) / G_{\leftarrow}^{AP}$ 。

3 讨论部分

接下来, 本文分别计算了 Co/BTO/LSMO 多铁隧道结在不同铁电层极化方向下 TMR 随偏压和隧穿层厚度的变化曲线以及在不同铁磁电极磁取向 TMR 随偏压和隧穿层厚度的变化曲线。计算参数选取如下^[26-28]: 势垒高度 $\phi_0 = 0.65$ eV, BTO 隧穿层的极化强度 $P = 0.3$ C/m²; Co 电极屏蔽长度 $\delta_L = 0.5$ nm, 介电常数 $\varepsilon_L = 2.4$, 半交换劈裂能 $\Delta_L = 1.1$ eV; LSMO 电极屏蔽长度 $\delta_R = 1$ nm, 介电常数 $\varepsilon_R = 9.6$, 半交换劈裂能 $\Delta_R = 0.7$ eV。

图 2(a)、2(b)和 2(c)分别为铁电层极化强度指向 Co 电极情形时 TMR、平行隧穿电导、反平行隧穿电导在不同隧穿层厚度下 (1-4 nm) 随偏压的变化曲线。图 2(d)、2(e)和 2(f)分别为铁电层极化强度指向 LSMO 电极情形时 TMR、平行隧穿电导、反平行隧穿电导在不同隧穿层厚度下 (1-4 nm) 随偏压的变化曲线。由图 2(a)和图 2(d)可知, 无论铁电层极化强度指向 Co 电极还是 LSMO 电极, TMR 均随偏压振荡衰减。该现象与磁性隧道结中的理论结果和实验结果均一致^[20,29]。在本文的理论中, 根据公式(11)可知, 随着偏压的增大, $z_{d\leftarrow(\rightarrow)}$ 会由正转负。又由 Airy 函数图像^[23]可知, 当 $z_{d\leftarrow(\rightarrow)}$ 为负值时, $Ai(z_{d\leftarrow(\rightarrow)})$ 等 Airy 函数随 $z_{d\leftarrow(\rightarrow)}$ 振荡, 则透射系数也会随之振荡, 从而导致隧穿电导和 TMR 均随偏压振荡。物理上, 随着偏压的增大, 费米面附近的电子将会进入隧穿层的导带, 并在右电极与隧穿层界面处发生反射, 从而使得入射波与反射波产生干涉效应, 进而导致了 TMR 振荡现象。因此, TMR 随偏压的振荡物理上来源于隧穿过程中的量子干涉效应^[20]。TMR 振荡幅度的衰减是由于相比于平行电导与反平行电导的差, 反平行电导随偏压增大得更快^[23]。与磁性隧道结不同的是, 在图 2(a)和图 2(d)中, 即使在零偏压或小偏压情形下, TMR 数值也较小, 即隧穿磁阻效应也较弱^[16,30]。这是因为: 对于当前的多铁隧道结而言, 铁电隧穿层极化强度在隧穿层区域会产

生线性的静电势。这导致在零偏压的情形下，隧穿层的势函数为梯形势垒，而非方形势垒。物理上，偏压效应来源于其对势结构的影响，即使得隧穿层的势函数由方形势垒变为梯形

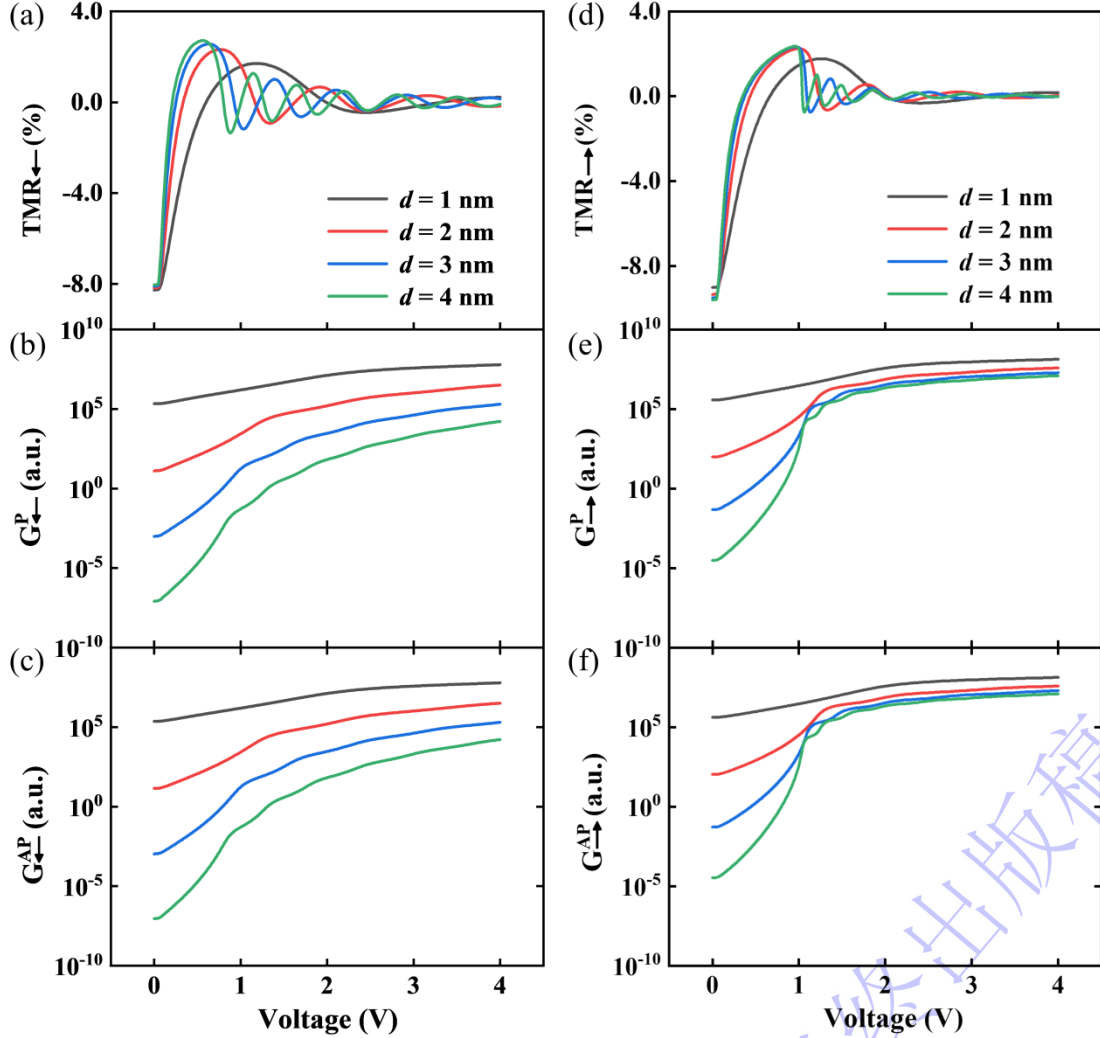


图 2 不同隧穿层厚度下(1-4 nm) (a) $TMR_{\leftarrow}$; (b) $G_{\leftarrow}^P$; (c) $G_{\leftarrow}^{AP}$; (d) $TMR_{\rightarrow}$; (e) $G_{\rightarrow}^P$; (f) $G_{\rightarrow}^{AP}$ 随偏压的变化曲线

Fig.2. (a) $TMR_{\leftarrow}$; (b) $G_{\leftarrow}^P$; (c) $G_{\leftarrow}^{AP}$; (d) $TMR_{\rightarrow}$; (e) $G_{\rightarrow}^P$; (f) $G_{\rightarrow}^{AP}$ as functions of the bias voltages under different thicknesses of tunneling layer (1-4 nm).

势垒。换言之，尽管静电势对两侧电极势结构的影响与偏压不同，但是它们对隧穿层势结构的影响本质上没有区别。因此，即使在零偏压或小偏压下，隧穿层的势结构与磁性隧道结中大偏压的情形类似。又因为如前所述，在磁性隧道结中

TMR 会随着偏压衰减,即在大偏压情形下隧穿磁阻较弱^[20],所以即使在零偏压或小偏压情形下,Co/BTO/LSMO 多铁隧道结的隧穿磁阻效应也较弱。从图 2(a)和图 2(d)中还可以看出,TMR 的振荡周期随隧穿层厚度的增大而减小。这是因为,由公式(11)可知,隧穿层厚度越大, $z_{d\leftarrow(\rightarrow)}$ 随偏压变化得越显著,则在 Airy 函数中, $z_{d\leftarrow(\rightarrow)}$ 变化一个周期所需偏压的改变越小。

此外,由图 2 可知,铁电隧穿层极化强度的指向会影响隧穿电导的大小:当极化强度指向 LSMO 电极时,隧穿电导显著强于极化强度指向 Co 电极时的情形。该现象的物理原因与隧穿电致电阻效应的物理机制相同,即铁电隧穿层极化强度方向的翻转会改变隧穿层的平均势垒高度。由于 Co 电极的屏蔽能力强于 LSMO 电极,所以,当极化强度指向 Co 电极时平均势垒更高^[10],从而导致隧穿电导较小。

图 3(a)、3(b)和 3(c)分别为铁电层极化强度指向 Co 电极情形时的 TMR、平行隧穿电导、反平行隧穿电导在不同偏压下(1-4 V)随隧穿层厚度的变化曲线。图 3(d)、3(e)和 3(f)分别为铁电层极化强度指向 LSMO 电极情形时的 TMR、平行隧穿电导、反平行隧穿电导在不同偏压下(1-4 V)随隧穿层厚度的变化曲线。由图 3(a)和图 3(d)可知,当偏压大于 1 V 时,无论极化强度指向 Co 电极还是 LSMO 电极,TMR 均随隧穿层厚度振荡。由公式(11)可知,与图 2 中随偏压振荡类似,该振荡在数学上来自 Airy 函数在负半轴的振荡特性,在物理上来源于量子干涉效应。从图 3(a)和图 3(d)中还可以看出,TMR 的振荡周期随偏压的增大而减小。这是因为,由公式(11)可知,偏压越大, $z_{d\leftarrow(\rightarrow)}$ 随隧穿层厚度变化得越显著,则在 Airy 函数中, $z_{d\leftarrow(\rightarrow)}$ 变化一个周期所需隧穿层厚度的改变越小。值得注意的是,对于极化强度指向 LSMO 电极的情形,当偏压等于 1 V 时,TMR 不随隧穿层厚度振荡。这是因为:对于极化强度指向 LSMO 电极的情形,当偏压等于 1 V 时,

$z_{d\rightarrow}$ 始终为正值。由 Airy 函数图像可知, 此时透射系数不随隧穿层厚度振荡。物理上, 当极化强度指向 LSMO 电极时, 由于静电势对隧穿层势结构的影响, 费米面附近的电子不会进入隧穿层的导带, 则不存在入射波与反射波的干涉效应, 从而导致 TMR 不会产生振荡现象。

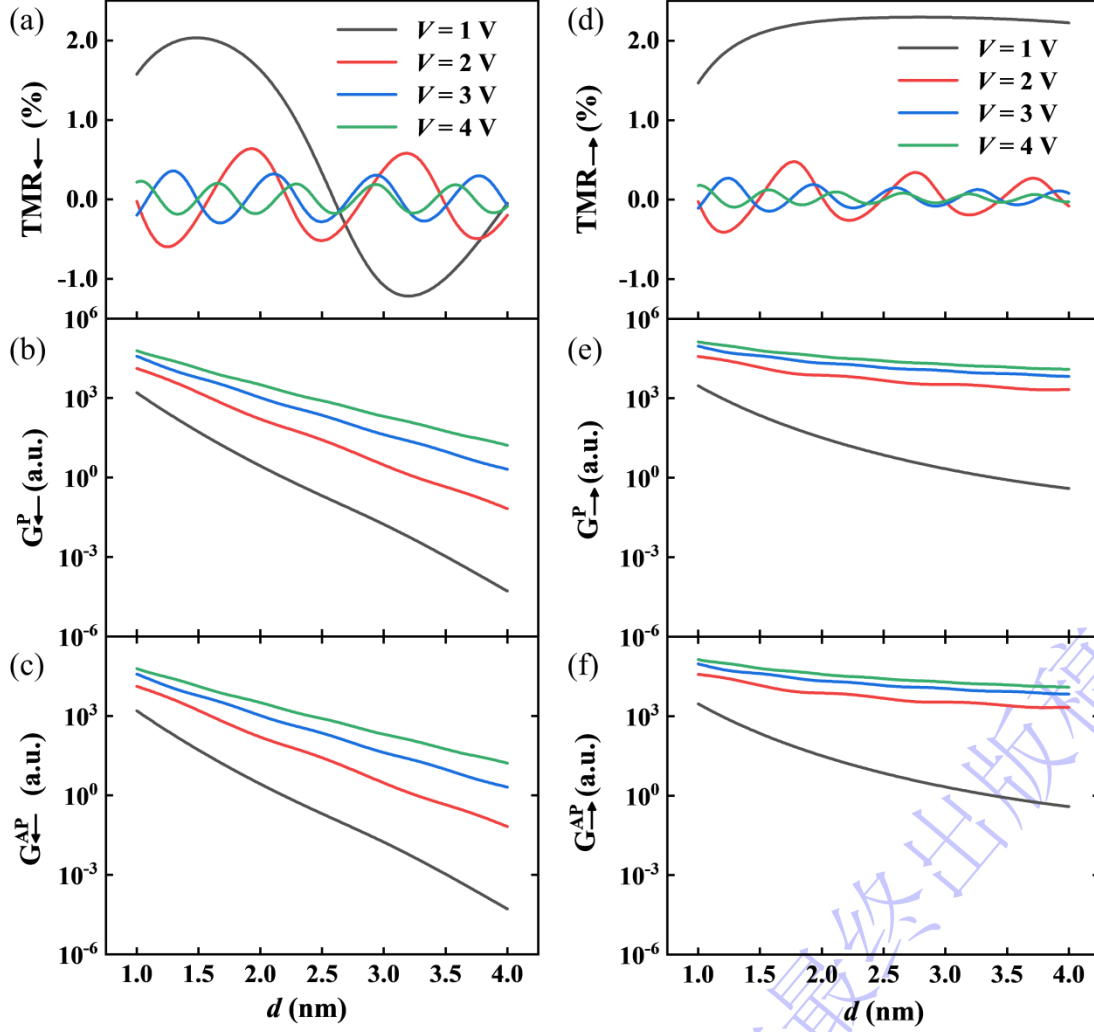


图 3 不同偏压下(1-4 V) (a) $\text{TMR}_{\leftarrow}$; (b) $G_{\leftarrow}^P$; (c) $G_{\leftarrow}^{AP}$; (d) $\text{TMR}_{\rightarrow}$;

(e) $G_{\rightarrow}^P$; (f) $G_{\rightarrow}^{AP}$ 随隧穿层厚度的变化曲线

Fig.3. (a) $\text{TMR}_{\leftarrow}$; (b) $G_{\leftarrow}^P$; (c) $G_{\leftarrow}^{AP}$; (d) $\text{TMR}_{\rightarrow}$; (e) $G_{\rightarrow}^P$; (f) $G_{\rightarrow}^{AP}$ as functions of the thicknesses of tunneling layer under different bias voltages (1-4 V).

此外, 由图 3 可知, 相比于极化强度指向 Co 电极的情形, 极化强度指向 LSMO 电极时隧穿层厚度的变化对隧穿电导的影响较弱。如所周知, 在势垒散射问题中,

透射系数会随着隧穿层厚度指数衰减，所以隧穿电导会随着隧穿层厚度显著衰减。因此，图 3 中隧穿电导会随着隧穿层厚度衰减。除隧穿层厚度外，势垒高度也会显著影响透射系数：透射系数会随势垒高度的增大指数衰减。在铁电隧道结中，隧穿层极化强度指向屏蔽能力较强的电极时，静电势会提升平均势垒高度；隧穿层极化强度指向屏蔽能力较弱的电极时，静电势会降低平均势垒高度^[21]。另一方面，根据公式(4)和公式(5)可知，静电势的强度与屏蔽电荷密度呈线性正比关系，屏蔽电荷密度随隧穿层厚度单调递增，则静电势的强度随隧穿层的厚度增大而增大。相应地，当隧穿层极化强度指向屏蔽能力较强的 Co 电极时，平均势垒高度的提升会随隧穿层厚度的增大而增大。反之，当隧穿层极化强度指向 LSMO 电极时，平均势垒高度的降低也会随隧穿层厚度的增大而增大。换言之，在铁电隧道结中平均势垒高度会随隧穿层厚度而改变。由上可知，当隧穿层厚度增大时，极化强度指向 Co 电极情形的平均势垒高度会随之增大，而指向 LSMO 电极情形的平均势垒高度会随之减小。因此，当极化强度指向 LSMO 电极时，隧穿层厚度的增大导致平均势垒高度的降低部分地抵消了透射系数的衰减，从而导致隧穿层厚

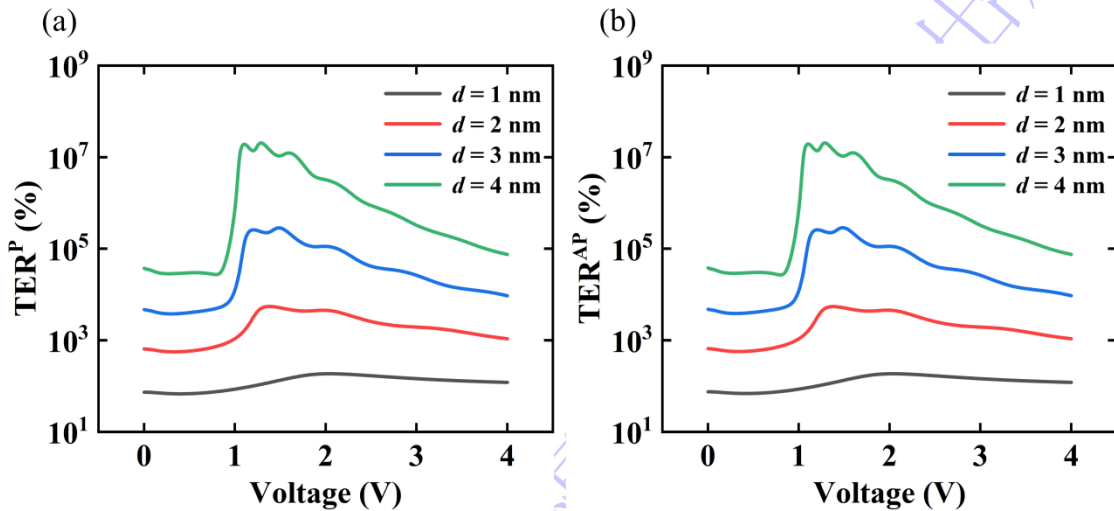


图 4 不同隧穿层厚度下(1-4 nm) (a) TER^P ; (b) TER^{AP} ; 随偏压的变化曲线

Fig.4. (a) TER^P ; (d) TER^{AP} ; as functions of the bias voltages under different thicknesses of tunneling layer (1-4 nm).

度的变化对隧穿电导的影响较弱。

图 4(a)和图 4(b)分别为磁取向平行和磁取向反平行情形的 TER 在不同隧穿层厚度下（1-4 nm）随偏压的变化曲线。由图 4 可知，当偏压增大到 1 V 附近时，TER 开始随偏压振荡。该现象与铁电隧道结中的理论结果和实验结果均一致^[22,31]。与图 2 类似，振荡来自 $z_{d\leftarrow(\rightarrow)}$ 随偏压的增大由正转负，而物理上源于量子干涉效应。从图 4 中还可以看出，与图 2 中 TMR 随偏压的变化曲线类似的是，隧穿层厚度越大，TER 随偏压的振荡周期越小，其原因也相同。

此外，由图 4 可知，铁磁电极磁取向对隧穿电导和 TER 几乎没有影响。这是因为：如前所述，由于铁电极化强度会使隧穿层产生静电势，使得隧穿层在零偏压或小偏压情形下也呈现梯形势垒结构，从而导致隧穿磁阻效应较弱，即铁磁电极磁取向对隧穿电导几乎没有影响。换言之，此现象的物理机制来源于隧穿层的梯形势垒结构。该理论结果与实验一致^[16,30]，意味着传统结构的钛酸钡基多铁隧道结难以作为四阻态器件应用在存储器领域。

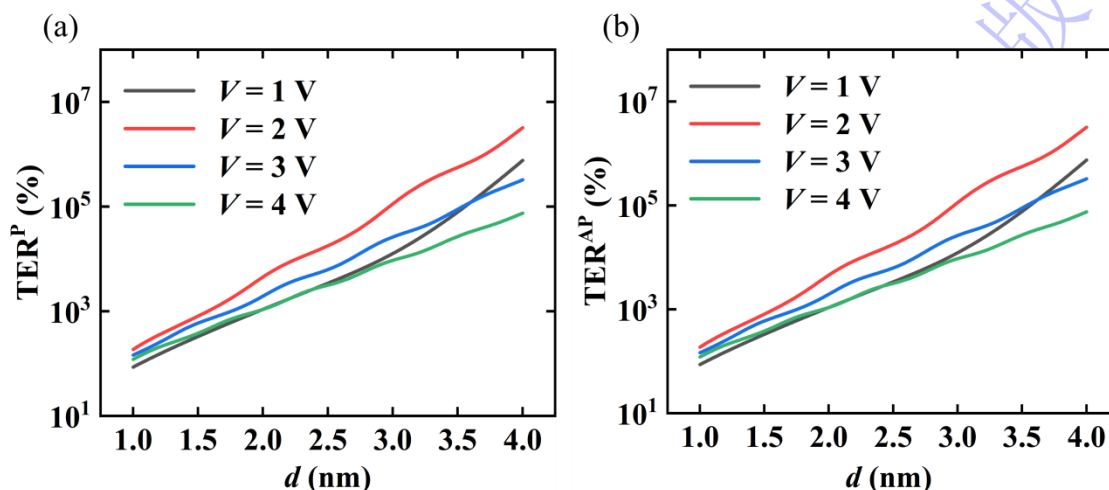


图 5 不同偏压下(1-4 V) (a) TER^P ; (d) TER^{AP} ; 随隧穿层厚度的变化曲线

Fig.5. (a) TER^P ; (d) TER^{AP} as functions of the thicknesses of tunneling layer under different bias voltages (1-4 V).

图 5(a)和图 5(b)和分别为磁取向平行和磁取向反平行情形的 TER 在不同偏压

下(1—4 V)随隧穿层厚度的变化曲线。由图 5 可知, TER 随隧穿层厚度振荡增强。TER 振荡的原因与图 3 中 TMR 随隧穿层厚度振荡的原因相同, 即量子干涉效应。TER 增强的原因如下: 如前所述, 静电势的强度会随隧穿层厚度的增大而增强, 从而使得极化强度分别指向两个电极时平均势垒高度的差别也随着增大, 进而导致隧穿电致电阻效应增强。

4 结论

本文基于量子力学散射理论, 利用 Airy 函数严格求解了 Co/BTO/LSMO 多铁隧道结的 TMR 和 TER, 并系统地研究了外加偏压和隧穿层厚度对 TMR 和 TER 的影响。研究表明, Co/BTO/LSMO 多铁隧道结的 TMR 和 TER 随偏压和隧穿层厚度的变化曲线均存在振荡现象。该振荡现象的物理机制如下: 由于隧穿层的势结构为梯形势垒, 费米面附近的电子会进入隧穿层导带并在电极与隧穿层界面处发生反射, 从而产生量子干涉效应。此外, 铁电隧穿层极化产生的静电势使得隧穿层在零偏压或小偏压下的势结构呈现梯形势垒, 使得 Co/BTO/LSMO 多铁隧道结中的隧穿磁阻效应较弱, 进而导致铁磁电极磁取向对隧穿电致电阻效应几乎没有影响。本文在理论上阐明了 BTO 基多铁隧道结实验现象的物理机制, 并系统地研究了 BTO 基多铁隧道结中外加偏压和隧穿层厚度对 TMR 和 TER 的影响, 以及该体系中铁磁效应和铁电效应彼此之间的影响。上述研究结果为 BTO 基多铁隧道结的应用奠定了理论基础。

参考文献

- [1] Velev J P, Duan C G, Burton J D, Smogunov A, Niranjana M K, Tosatti E, Jaswal S S, Tsymbal E Y 2009 *Nano Lett.* **9** 427
- [2] Tsymbal E Y, Gruverman A, Garcia V, Bibes M, Barthélémy A 2012 *Mrs. Bull.* **37** 138

- [3] Fang M, Zhang S J, Zhang W C, Jiang L, Vetter E, Lee H N, Xu X S, Sun D L, Shen J 2019 *Phys. Rev. Appl.* **12** 044049
- [4] Yin Y W, Li Q 2017 *J. Materiomics* **3** 245
- [5] Pantel D, Goetze S, Hesse D, Alexe M 2012 *Nat. Mater.* **11** 289
- [6] Zhu X L, Liu Y L 2025 *Acta. Phys. Sin.* **74** 207501 (in Chinese) [朱小龙, 刘雨林 2025 物理学报 **74** 207501]
- [7] Zhang L G, Wang Y C, Liu X Y, Liu F 2022 *Npj. Comput. Mater.* **8** 197
- [8] Jiang L N, Tao L L, Yang B S, Wang J, Han X F 2016 *Appl. Phys. Lett.* **109** 192902
- [9] Borisov V S, Ostanin S, Achilles S, Henk J, Mertig I 2015 *Phys. Rev. B* **92** 075137
- [10] Yin Y W, Raju M, Hu W J, Burton J D, Kim Y M, Borisevich A Y, Pennycook S J, Yang S M, Noh T W, Gruverman A, Li X G, Zhang Z D, Tsymbal E Y, Li Q 2015 *J. Appl. Phys.* **117** 172601
- [11] Useinov A, Kalitsov A, Velez J, Kioussis N 2014 *Appl. Phys. Lett.* **105** 102403
- [12] Cao D, Cai M Q, Hu W Y, Xu C M 2011 *J. Appl. Phys.* **109** 114107
- [13] Jiang L N 2019 *Ph. D. Dissertation* (Beijing: University of Chinese Academy of Sciences) (in Chinese) [姜雷娜 2019 博士学位论文 (北京:中国科学院大学)]
- [14] Pawlak J, Zywczyk A, Szwachta G, Kanak J, Gajewska M, Przybylski M 2018 *Acta. Phys. Po. A* **133** 548
- [15] Mao H J, Miao P X, Cong J Z, Song C, Cui B, Peng J J, Li F, Wang G Y, Zhao Y G, Sun Y, Xiao L R, Pan F 2014 *J. Appl. Phys.* **116** 053703
- [16] Pawlak J, Skowroński W, Zywczyk A, Przybylski M 2022 *Adv. Electron. Mater.* **8** 2100574
- [17] Tornos J, Gallego F, Valencia S, Liu Y H, Rouco V, Lauter V, Abrudan R, Luo C, Ryll H, Wang Q, Hernandez-Martin D, Orfila G, Cabero M, Cuellar F, Arias D, Mompean J, Garcia-Hernandez M, Radu F, Charlton T R, Rivera-Calzada A, Sefrioui Z, te Velthuis S G E, Leon C, Santamaria J 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 037601
- [18] Gajek M, Bibes M, Fusil S, Bouzehouane K, Fontcuberta J, Barthelémy A E,

- Fert A 2007 *Nat. Mater.* **6** 296
- [19] Tsymbal E Y, Kohlstedt H 2006 *Science* **313** 181
- [20] Ren Y, Li Z Z, Xiao M W, Hu A. 2005 *J. Phys. Condens. Matter.* **17** 4121
- [21] Zhuravlev M Y, Sabirianov R F, Jaswal S S, Tsymbal E Y 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 246802
- [22] Yin Y T, Fang H N, Ma X L, Wu J C, Xiao M W 2025 *Electron. Compo. Mater.* **44** 1137 (in Chinese) [殷玉婷, 方贺男, 马雪丽, 吴奖承, 肖明文 2025 电子元件与材料 **44** 1137]
- [23] Li F F, Li Z Z, Xiao M W, Du J, Xu W, Hu A 2004 *Phys. Rev. B* **69** 054410
- [24] Burstein E, Lundqvist S 1969 *Tunneling phenomena in solids* (New York: Plenum Press) pp33—35
- [25] Vallée O, Soares M 2010 *Airy functions and applications to physics* (London: Imperial College Press) pp6—7
- [26] Eastman D E, Himpsel F J, Knapp J A 1980 *Phys. Rev. Lett.* **44** 95
- [27] Daqiq R 2020 *Phys. Scripta.* **95** 055810
- [28] Chang S C, Naeemi A, Nikonov D E, Gruverman A 2017 *Phys. Rev. Appl.* **7** 024005
- [29] Kim P D, Zidanic J, Volkov N V, Patrin G S, Song Y Y, Yu S C, Kim C G, Yun J H 2007 *J. Magn. Magn. Mater.* **316** 236
- [30] Pawlak J, Skowronski W, Kuswik P, Gajewska M, Casanova F, Przybylski M 2023 *Adv. Electron. Mater.* **9** 2300122
- [31] Tian B B, Wang J L, Fusil S, Liu Y, Zhao X L, Sun S, Shen H, Lin T, Sun J L, Duan C G, Bibes M, Barthélemy A, Dkhil B, Garcia V, Meng X J, Chu J H 2016 *Nat. Commun.* **7** 11502

Theoretical study of barium titanate-based multiferroic tunnel junctions^{*}

MA Xueli WU Congliang FANG Henan[†]

(College of Electronic and Optical Engineering & College of Flexible Electronics (Future Technology),
Nanjing University of Posts and Telecommunications, Nanjing 210023, China)

Owing to small critical thickness and high lattice matching with typical ferromagnetic metal electrodes, barium titanate is often employed as the tunneling layer of multiferroic tunnel junctions, and barium titanate-based multiferroic tunnel junctions are considered to possess significant application potential in the field of non-volatile memory. It was found experimentally that the tunneling magnetoresistance (TMR) of barium titanate-based multiferroic tunnel junctions does not monotonically vary with the bias voltage. The physical mechanism of the above phenomenon needs to be clarified theoretically. On the other hand, the interplay between the ferromagnetic effect and the ferroelectric effect in the barium titanate-based multiferroic tunnel junction needs to be investigated systematically. In this paper, we have calculated the tunneling magnetoresistance and the tunneling electroresistance of Co/BTO/LSMO multiferroic tunnel junctions by using the Airy function, and systematically study the influences of bias voltage and the thickness of tunneling layer. The results show that there exist oscillations in the curves of the TMR and tunneling electroresistance (TER) versus both bias voltage or the thickness of tunneling layer. Physically, the oscillations originate from the quantum interference effect in the tunneling process. In

addition, the tunneling magnetoresistance effect in Co/BTO/LSMO multiferroic tunnel junction is quite weak, which arises from the influence of the polarization on the potential structure of the tunneling layer. This will lead that the magnetic arrangement of ferromagnetic electrode has little influence on the tunneling electroresistance effect, which agrees with the experiments. It indicates that the traditional barium titanate-based multiferroic tunnel junctions are unfavorable to serve as four-resistance state devices in the field of memory.

Keywords: multiferroic tunnel junction, barium titanate, tunneling magnetoresistance effect, tunneling electroresistance effect, tunneling conductance

* Project supported by the Special Funds of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 17704197) and the National Science Foundation of Nanjing University of Posts and Telecommunications, China (Grant No. NY223074).

† Corresponding author. E-mail: fanghn@njupt.edu.cn