

# 通过界面功函数工程增强 $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$ 铁电隧道结中的隧穿电阻效应\*

和志坚<sup>1)2)</sup> 欧云<sup>1)†</sup> 邹代峰<sup>1)</sup> 刘运牙<sup>2)</sup>

1) (湖南科技大学物理与电子科学学院, 湘潭 411201)

2) (湘潭大学材料科学与工程学院, 低维材料及其应用技术教育部重点实验室, 湘潭 411105)

(2025年9月22日收到; 2025年10月16日收到修改稿)

实现对量子隧穿电阻的精确调控是铁电隧道结技术迈向应用的核心瓶颈. 本研究提出了一种基于界面功函数工程的策略, 其核心在于利用铁电极化翻转, 主动调控异质结界面的能带对齐, 从而在势垒层中诱导出可逆的金属-绝缘体相变, 实现对隧穿电阻的调控. 以  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  范德瓦耳斯异质结为研究对象, 通过第一性原理计算证明, 对界面功函数的策略性调控可在势垒层中诱导出可逆的金属-绝缘体转变, 从而显著地改变其隧穿电阻. 非平衡输运模拟进一步显示, 该结构实现了高达  $2.69 \times 10^6\%$  的隧穿电阻比值. 研究结果不仅凸显了  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  作为高性能铁电隧道结的潜力, 也为在低维铁电存储器件中设计超高隧穿电阻效应确定了一种普适的设计策略. 这项工作为开发多状态非易失性存储器提供了新的思路.

**关键词:** 二维铁电异质结, 能带调控, 极化, 第一性原理

**DOI:** 10.7498/aps.75.20251308

**CSTR:** 32037.14.aps.75.20251308

## 1 引言

铁电隧道结 (FTJs) 作为一种金属/铁电体/金属异质结<sup>[1-5]</sup>, 因其独特的电场可调隧穿电阻 (TER) 效应<sup>[6,7]</sup>, 被认为是实现下一代非易失性存储器的核心候选器件之一. 它的工作依赖于铁电层在外加电场作用下的极化翻转, 以非易失方式调制隧穿势垒, 从而实现高/低阻态的切换, 这使其在低功耗、高密度存储应用中展现出巨大潜力<sup>[8,9]</sup>. 然而, 传统基于钙钛矿氧化物的铁电隧道结在器件尺寸微缩至纳米量级时, 会面临严重的铁电性能退化问题, 这构成了其发展的主要瓶颈<sup>[10-12]</sup>. 为应对此挑战, 近年来发现的二维范德瓦耳斯 (vdW) 铁电材料 (如  $\alpha\text{-In}_2\text{Se}_3$  和  $\text{CuInP}_2\text{S}_6$ <sup>[13-16]</sup>) 为构建新型铁电隧道结提供了理想的材料选择. 然而, 尽管这

类材料有望实现较高的隧穿电阻比, 但当其与常规金属电极集成时, 界面处普遍存在的费米能级钉扎效应会显著抑制电荷的有效注入, 从而对器件的整体性能产生不利影响<sup>[17,18]</sup>.

为应对费米能级钉扎效应, 近期研究策略之一是采用元素掺杂的导电材料作为电极<sup>[19]</sup>. 该方法不仅有效缓解了费米能级钉扎效应, 且优化了肖特基势垒的形成及界面隧穿现象, 其核心机理在于元素的引入能够构建一个“更柔和”的电子界面, 从而削弱金属诱导的费米能级钉扎效应. 然而, 单一铁电材料的功能性相对固定, 难以满足未来信息处理对多功能集成器件日益增长的需求. 在此背景下, 由不同二维材料通过范德瓦耳斯力堆叠而成的异质结构, 因其能够在原子尺度上精确构筑人工设计界面, 为突破这一限制提供了全新的范式, 极大地拓展了材料设计的自由度<sup>[20-22]</sup>. 因此, 如何通过界

\* 国家自然科学基金 (批准号: 12572182) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: [ouyun101@hmust.edu.cn](mailto:ouyun101@hmust.edu.cn)

面工程主动设计并增强极化对异质结输运性能的调控效应,是实现超高隧穿电阻的关键.本研究聚焦于由不同铁电单层构筑的双层二维铁电异质结,系统地探究了其肖特基势垒与隧穿势垒的极化调控机制.此外,本研究进一步阐明了界面处的电荷转移机制,为下一代高性能铁电异质结器件的设计与开发提供了理论指导和可行原则.

在本研究中,设计并论证了一种基于  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  范德瓦耳斯异质结的对称型铁电隧道结.该器件通过界面功函数工程,显著提升了其隧穿电阻效应.基于第一性原理计算,揭示了铁电极化能够有效调制界面势垒,并在铁电层内诱导出可逆的金属-绝缘体相变,从而导致隧穿电阻发生数量级的剧变.进一步的非平衡格林函数输运模拟表明,该器件的隧穿电阻比高达  $2.69 \times 10^5\%$ . 本工作不仅将  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  异质结确立为构建高性能铁电隧道结的理想候选体系,更提出了一种在低维铁电器件中实现超高隧穿电阻比的普适性设计策略.通过将界面工程与二维铁电材料相结合,为开发兼具卓越开关比与低功耗特性的可扩展存储技术提供了新的物理路径.

## 2 计算方法与细节

本研究的第一性原理计算基于密度泛函理论(DFT),并采用 VASP(Vienna *ab initio* simulation package) 软件包完成<sup>[23-25]</sup>.为精确描述电子与原子核之间的相互作用,采用了 PAW(projected augmented wave) 方法<sup>[26]</sup>.在交换关联泛函方面,选用了 Perdew-Burke-Ernzerhof(PBE) 泛函.在自洽计算过程中,平面波截断能设置为 500 eV,电子能量和力的收敛标准设置为  $10^{-6}$  eV 和 0.01 eV/Å,采用  $9 \times 9 \times 1$  Monkhorst Pack 网格进行布里渊区  $k$  点采样.层间范德瓦耳斯相互作用通过 DFT-D3 方法进行校正<sup>[27,28]</sup>.铁电隧道结的量子输运性质通过结合 DFT 与非平衡格林函数的框架进行计算,在 Nanocal 模拟包中实现<sup>[29]</sup>.在保证计算精度的同时兼顾计算效率,对所有原子选用了双 zeta 基

组(DZP).在输运计算中,沿输运方向采用  $100 \times 1 \times 1$  Monkhorst-Pack 网格进行布里渊区  $k$  点采样.为了弥补 PBE 泛函对半导体和绝缘体带隙严重低估的根本性缺陷,本研究还采用 Heyd-Scuseria-Ernzerhof(HSE06)<sup>[30]</sup> 杂化泛函对电子能带结构进行了更精确地计算.

隧道结电导率用  $G$  表示,其定义为<sup>[31]</sup>

$$G = \frac{2e^2}{h} \sum_{k_x} T(k_x, E), \quad (1)$$

其中  $T(k_x, E)$  表示在能量  $E$  时的传输系数; $e$  和  $h$  分别代表电子电荷和普朗克常数.此外,隧穿电阻(TER)比率定义为<sup>[6]</sup>

$$\text{TER} = \frac{|G_{\uparrow\uparrow} - G_{\downarrow\downarrow}|}{\min(G_{\uparrow\uparrow}, G_{\downarrow\downarrow})}, \quad (2)$$

其中  $G_{\downarrow\downarrow}$  和  $G_{\uparrow\uparrow}$  分别代表异质结处于  $P_{\downarrow\downarrow}$  和  $P_{\uparrow\uparrow}$  状态时 FTJ 的电导率.

## 3 结果与讨论

### 3.1 $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$ 铁电异质结的结构及其电性能

首先,确定研究的二维  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  范德瓦耳斯铁电异质结的稳定几何构型.结构弛豫计算结果表明,  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  与  $\text{In}_2\text{Se}_3$  单层的面内晶格常数分别为 4.11 和 4.16 Å<sup>[19,32]</sup>, 低于 1.5% 的晶格失配率为构建稳定的异质结提供了重要保障.此外,它们的稳定性在之前的研究中得到了验证<sup>[15,32,33]</sup>.在异质结构建时,将  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  单层堆垛于  $\text{In}_2\text{Se}_3$  单层之上,并沿  $z$  方向设置 30 Å 的真空层以隔绝周期性单元间的相互作用.在本研究中,考虑了两种不同堆垛方式的构型,包括构型 1 (Te-In 堆垛) 与构型 2 (Te-Se 堆垛).如表 1 能量计算结果显示,构型 1 具有更低的能量,是热力学上更稳定的堆垛方式.因此,所有后续分析均以更稳定的构型 1 为基础.如图 1(a) 所示,由于  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  和  $\text{In}_2\text{Se}_3$  均为铁电层,该异质结呈现出 4 种不同的极化组合态,分别为  $P_{\downarrow\downarrow}$ ,  $P_{\uparrow\downarrow}$ ,  $P_{\downarrow\uparrow}$ ,  $P_{\uparrow\uparrow}$  (箭头依次代表  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  和  $\text{In}_2\text{Se}_3$

表 1 不同构型  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  异质结的形成能

Table 1. Formation energy of  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  heterostructures with different configurations.

	$P_{\downarrow\downarrow}$	$P_{\uparrow\downarrow}$	$P_{\downarrow\uparrow}$	$P_{\uparrow\uparrow}$
构型1 (Te-In堆垛)	-37.389 eV	-37.352 eV	-37.353 eV	-37.358 eV
构型2 (Te-Se堆垛)	-37.378 eV	-37.347 eV	-37.352 eV	-37.353 eV

层的极化方向). 对这 4 种极化态进行充分结构弛豫后, 其对应的层间距依次为 3.87, 3.85, 4.00 和 4.02 Å.

为了在原子尺度上理解  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  异质结的极化翻转机制, 采用 climbing-image nudged elastic band (CI-NEB) 方法研究了异质结从  $P_{\downarrow\downarrow}$  态到  $P_{\uparrow\uparrow}$  态的翻转路径. 异质结从  $P_{\downarrow\downarrow}$  态到  $P_{\uparrow\uparrow}$  态的翻转路径如图 1(b) 所示, 不同路径之间的区别在于  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  层和  $\text{In}_2\text{Se}_3$  层的极化翻转顺序. 路径 1 为两种铁电材料同时从向下极化 ( $P_{\downarrow}$ ) 翻转为向上极化 ( $P_{\uparrow}$ ), 在此过程中, 仅出现一个能量约为 2 eV 的能量峰. 路径 2 和路径 3 则为先翻转  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  层和  $\text{In}_2\text{Se}_3$  层中的其中一层以达到一个亚稳态 ( $P_{\uparrow\downarrow}$  或  $P_{\downarrow\uparrow}$ ), 然后再翻转另一层. 其中, 路径 2 先翻转  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  层, 随后翻转  $\text{In}_2\text{Se}_3$  层; 路径 3 先翻转  $\text{In}_2\text{Se}_3$  层, 随后翻转  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  层. 路径 2 和路径 3 均展现出两个能量峰值, 其中两峰之间的谷值对应于亚稳态 ( $P_{\uparrow\downarrow}$  或  $P_{\downarrow\uparrow}$ ). 亚稳态的存在降低了极化翻转的总能垒, 使得这两条路径在能量上比路径 1 更有利, 类似的现象在先前的研究中已有报道 [34–36].

随后, 研究了构建的  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  异质结在不同极化态下的电性能, 结果如图 1(c)–(f) 所示. 另外, 为了进一步理解异质界面对  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  单层和  $\text{In}_2\text{Se}_3$  单层电性能的影响, 计算了它们的能带结构, 如图 2 所示. 结果显示,  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  和  $\text{In}_2\text{Se}_3$  均展现出绝缘性, 它们的带隙值分别为 0.92 eV 和

0.71 eV, 这些数值与文献报道的结果一致 [20,32]. 与单层铁电材料的能带结构相比,  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  异质结在  $P_{\downarrow\downarrow}$ ,  $P_{\uparrow\downarrow}$ ,  $P_{\downarrow\uparrow}$  和  $P_{\uparrow\uparrow}$  四种极化态下的能带结构均发生了不同程度的变化. 在  $P_{\downarrow\downarrow}$  态下,  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  的价带顶与  $\text{In}_2\text{Se}_3$  的导带底发生重叠, 此时异质结展现出金属性. 这是由于  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  的价带与  $\text{In}_2\text{Se}_3$  的导带因层间电荷重新分布而被填充所致. 在  $P_{\uparrow\downarrow}$ ,  $P_{\downarrow\uparrow}$  和  $P_{\uparrow\uparrow}$  三种极化态下,  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  的价带与  $\text{In}_2\text{Se}_3$  的导带未发生重叠, 所对应的带隙值分别为 0.094, 0.071 和 0.721 eV. 此时, 这三种构型的异质结均展现出绝缘性, 且  $P_{\uparrow\uparrow}$  态的带隙大于  $P_{\uparrow\downarrow}$  和  $P_{\downarrow\uparrow}$  态的带隙.  $P_{\downarrow\downarrow}$  和  $P_{\uparrow\uparrow}$  是均匀极化态, 易于实现, 且电性能具有明显差异. 因此, 在后续研究中, 仅考虑由  $P_{\downarrow\downarrow}$  和  $P_{\uparrow\uparrow}$  态构成的铁电隧道结原型器件.

为了阐明  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  异质结中的电荷转移机制, 计算了异质结沿  $z$  方向的平面平均差分电荷密度差, 如图 3(a), (b) 所示, 红色和蓝色区域分别代表电子的积累与耗尽. 结果显示,  $P_{\downarrow\downarrow}$  态的异质结表现出更强的界面电荷转移, 导致其呈现金属性. 同时, 计算了  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  和  $\text{In}_2\text{Se}_3$  两种单层铁电材料的静电势, 如图 3(c), (d) 所示. 由于  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  和  $\text{In}_2\text{Se}_3$  的结构对称性破缺, 其两个表面处于不同的真空能级, 这意味着它们将具有两个不同的功函数. 功函数定义为材料的真空能级与费米能级之差, 即  $W = W = E_{\text{vacuum}} - E_{\text{F}}$ . 当两种材料形成异

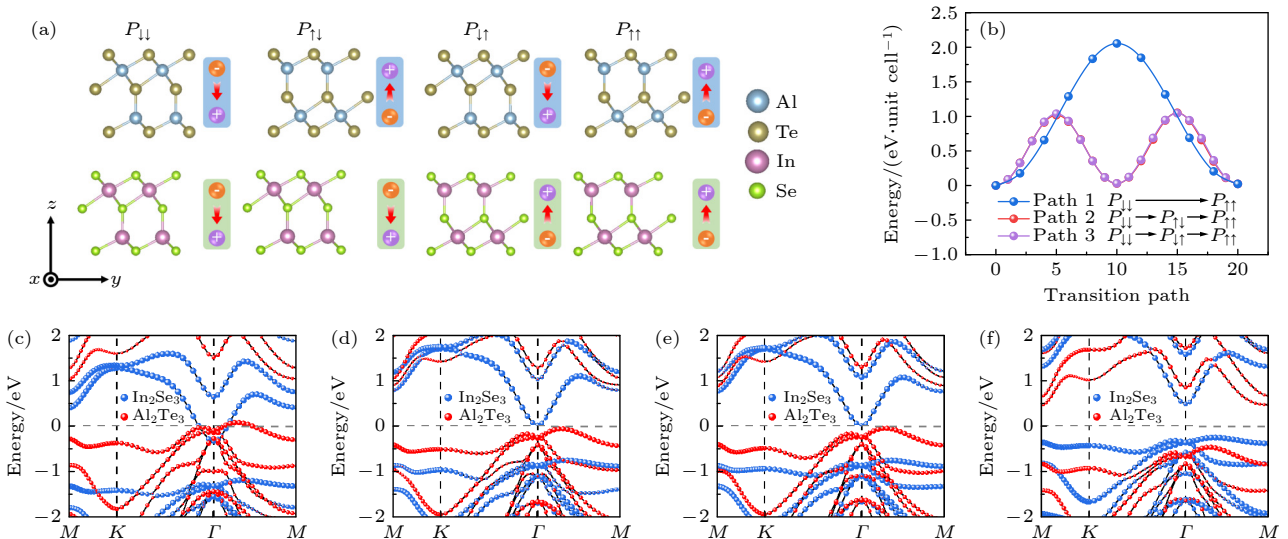


图 1 (a)  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  异质结的四种堆叠方式的结构示意图; (b) 异质结从  $P_{\downarrow\downarrow}$  到  $P_{\uparrow\uparrow}$  的翻转路径. 异质结不同极化态的能带结构 (c)  $P_{\downarrow\downarrow}$ ; (d)  $P_{\uparrow\downarrow}$ ; (e)  $P_{\downarrow\uparrow}$ ; (f)  $P_{\uparrow\uparrow}$

Fig. 1. (a) Schematic representation of the four possible stacking states for  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  heterostructure. (b) The transition pathway between  $P_{\downarrow\downarrow}$  and  $P_{\uparrow\uparrow}$ . The layer-projected band structures for the state: (c)  $P_{\downarrow\downarrow}$ , (d)  $P_{\uparrow\downarrow}$ , (e)  $P_{\downarrow\uparrow}$ , and (f)  $P_{\uparrow\uparrow}$ .

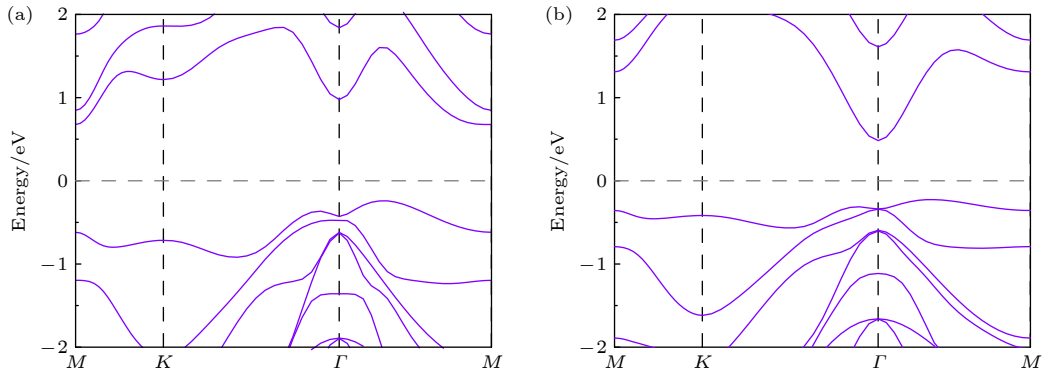

 图 2 (a)  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  和 (b)  $\text{In}_2\text{Se}_3$  的能带结构

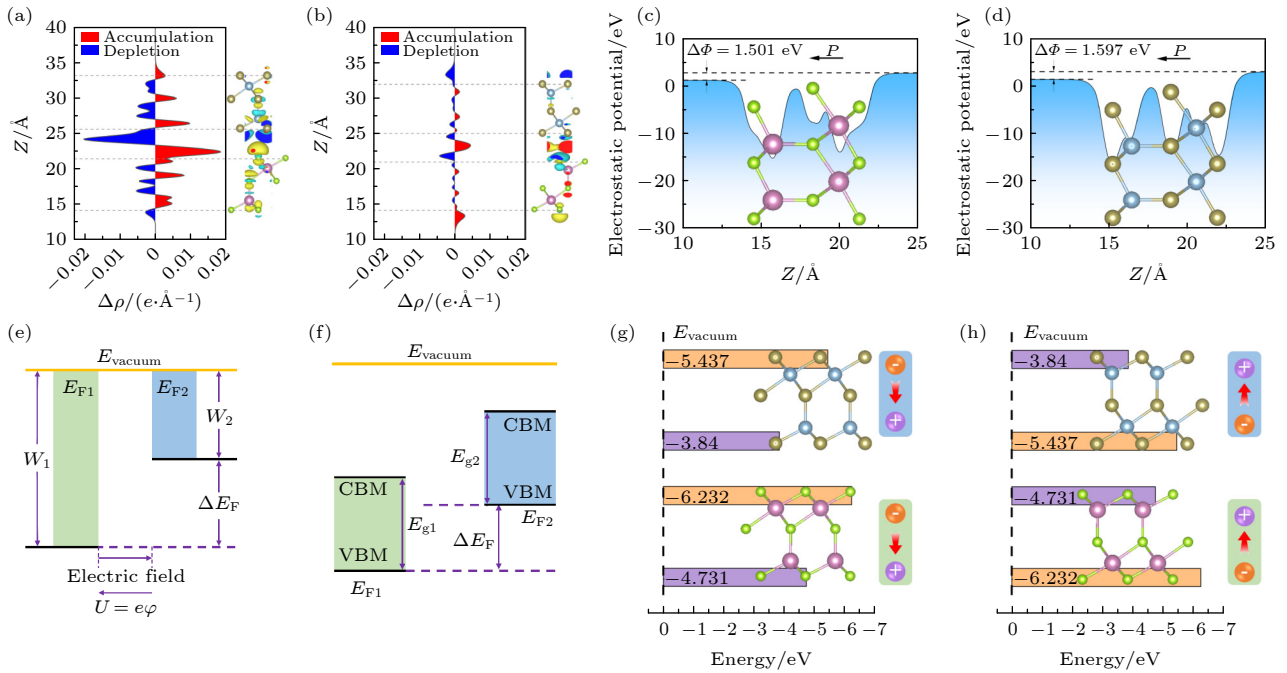
 Fig. 2. The band structures of (a)  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  and (b)  $\text{In}_2\text{Se}_3$ .

 图 3 (a)  $P_{\downarrow}$  极化态和 (b)  $P_{\uparrow}$  极化态下  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  异质结沿  $z$  方向的平面平均电荷密度差; (c)  $\text{In}_2\text{Se}_3$  和 (d)  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  的静电势; (e) 异质结界面接触电势差形成机理示意图; (f) 两种半导体在接触前 (达到平衡前) 的能带对齐示意图; (g)  $P_{\downarrow}$  极化态和 (h)  $P_{\uparrow}$  极化态下  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  异质结中  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  和  $\text{In}_2\text{Se}_3$  单层的功函数

 Fig. 3. The differential charge density diagrams along the  $z$  direction of  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  heterostructures with (a)  $P_{\downarrow}$  and (b)  $P_{\uparrow}$  states; plane-averaged electrostatic potential of (c)  $\text{In}_2\text{Se}_3$  and (d)  $\text{Al}_2\text{Te}_3$ ; (e) schematic diagram of the formation of contact potential and (f) band alignment between two different materials for two-dimensional van der Waals heterostructure; the work functions of  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  and  $\text{In}_2\text{Se}_3$  in the (g)  $P_{\downarrow}$  state and the (h)  $P_{\uparrow}$  state for  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  heterostructures.

质结时, 它们之间的费米能级 (功函数) 差异将导致能带的相对移动. 如图 3(e) 所示, 假设两种材料 (M1 和 M2) 的功函数分别为  $W_1$  和  $W_2$  ( $W_1 > W_2$ ), 费米能级分别为  $E_{F1}$  和  $E_{F2}$  ( $E_{F1} < E_{F2}$ ). 当 M1 和 M2 接触形成异质结时, 其初始费米能级的差异会产生一个能级差 ( $\Delta E_F$ ). 为达到热力学平衡, 两种材料的费米能级必须在界面处对齐, 形成一个统一的费米能级. 在图 3(e) 中, 内建电场的方向自左向右, 它会对电子产生一个自右向左的梯度势, 导致

它们的能带向相反方向运动 [20,37]. 功函数较高 (初始费米能级较低) 的 M1, 其能带整体下移; 反之, 功函数较低 (初始费米能级较高) 的 M2, 其能带整体上移. 能带的最大相对移动量可达  $\Delta E_F$ , 最终使两种材料的费米能级相同. 若能带对齐后, M1 的导带底低于 M2 的价带顶, 则表明 M1 的导带与 M2 的价带在能量上发生重叠. 在此条件下, 电子将自发地从 M2 的价带转移到 M1 的导带, 导致显著的界面电荷转移. 对于材料 M1, 其费米能级从其自

身的价带顶移动至 M2 的导带底, 跨越了其带隙  $E_{g1}$ , 如图 3(f) 所示. 因此, 电荷转移发生的条件是  $\Delta E_F$  需大于  $E_{g1}$ . 如图 3(g) 所示, 在  $P_{\downarrow}$  态下,  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  的功函数分别为 5.437 eV (负电荷端) 和 3.84 eV (正电荷端),  $\text{In}_2\text{Se}_3$  的功函数分别为 6.232 eV (负电荷端) 和 4.731 eV (正电荷端), 接触界面的功函数差为 2.392 eV. 在此情况下,  $\text{In}_2\text{Se}_3$  较高的功函数使其能带相对于  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  整体下移. 同时, 由于  $\text{In}_2\text{Se}_3$  的带隙 (0.71 eV) 远小于 2.392 eV, 其导带底降至  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  的价带顶之下, 如图 1(c) 所示. 如图 3(h) 所示, 在  $P_{\uparrow}$  态下, 接触界面的功函数差为 0.706 eV, 该值小于  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  的带隙 (0.92 eV), 因此  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  的导带底并未移动至  $\text{In}_2\text{Se}_3$  的价带顶之下, 如图 1(f) 所示.

### 3.2 $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$ 铁电隧道结的输运性质

$\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  二维范德瓦耳斯异质结具有一个显著特征: 其能带结构可被铁电极化有效调控, 从而实现从绝缘态到金属态的可逆转变. 这一优异特性使其成为构建下一代存储与逻辑器件 (如铁电隧道结与铁电场效应晶体管) 的理想候选材料. 为

了方便进行隧道结的设计, 采用虚拟晶格近似方法<sup>[38]</sup> 做虚拟电极代替真实的电极, 具体掺杂方式为: 在 Te 位掺杂 50% 的 Sb, 在 Se 位掺杂 50% 的 As, 形成低电阻的金属电极  $\text{Al}_2(\text{Te}_{0.5}\text{Sb}_{0.5})_3/\text{In}_2(\text{Se}_{0.5}\text{As}_{0.5})_3$ . 图 4 展示了对单层  $\text{Al}_2\text{Te}_3$  和  $\text{In}_2\text{Se}_3$  进行掺杂以及不同极化态下金属电极  $\text{Al}_2(\text{Te}_{0.5}\text{Sb}_{0.5})_3/\text{In}_2(\text{Se}_{0.5}\text{As}_{0.5})_3$  的能带结构. 结果显示, 异质结费米能级附近的能带较多, 能够提供充足的载流子.

在确定了隧道结电极之后, 本研究设计了一种基于该异质结的铁电隧道结, 其原子结构侧视图如图 5(a), (b) 所示, 分别对应  $P_{\downarrow}$  与  $P_{\uparrow}$  两种极化态, 左右两侧的橙色阴影区域代表电极, 中间区域为势垒层. 在该器件中, 电流沿面内方向流动, 铁电极化的翻转通过面外电场进行控制, 隧穿势垒的厚度可通过改变堆叠的正交原胞数量  $N$  进行精确调控. 具体而言, 隧道结面外极化可通过两种方式实现翻转: 一是通过施加面内电压, 经由面内极化的翻转来间接调控; 二是通过施加顶栅电压, 进行直接切换. 图 5(c) 展示了势垒厚度  $N = 7$  的铁电隧道结在电子能量  $E$  下的透射函数, 直观地反映了其隧穿输运行为. 在费米能级 ( $E = 0$ ) 处, 其隧穿电阻

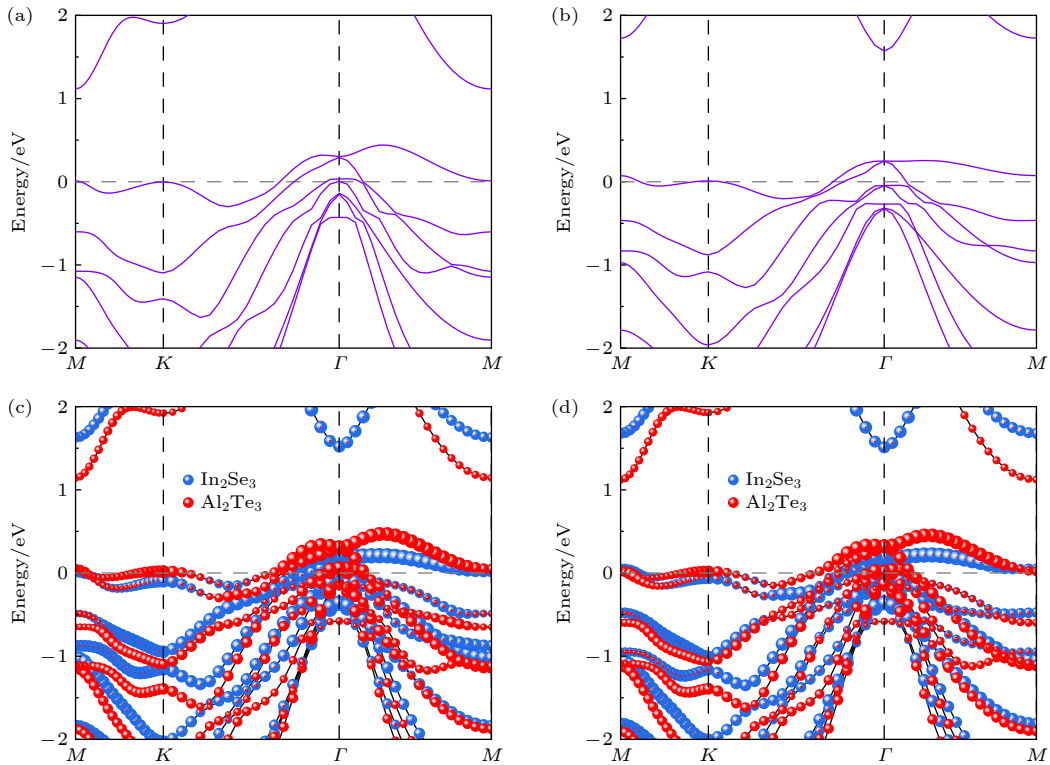


图 4 (a)  $\text{Al}_2(\text{Te}_{0.5}\text{Sb}_{0.5})_3$  和 (b)  $\text{In}_2(\text{Se}_{0.5}\text{As}_{0.5})_3$  的能带结构; (c)  $P_{\downarrow}$  极化态和 (d)  $P_{\uparrow}$  极化态下  $\text{Al}_2(\text{Te}_{0.5}\text{Sb}_{0.5})_3/\text{In}_2(\text{Se}_{0.5}\text{As}_{0.5})_3$  的能带结构

Fig. 4. The band structures of (a)  $\text{Al}_2(\text{Te}_{0.5}\text{Sb}_{0.5})_3$ , (b)  $\text{In}_2(\text{Se}_{0.5}\text{As}_{0.5})_3$ ; the (c)  $P_{\downarrow}$  and (d)  $P_{\uparrow}$  states of  $\text{Al}_2(\text{Te}_{0.5}\text{Sb}_{0.5})_3/\text{In}_2(\text{Se}_{0.5}\text{As}_{0.5})_3$ .

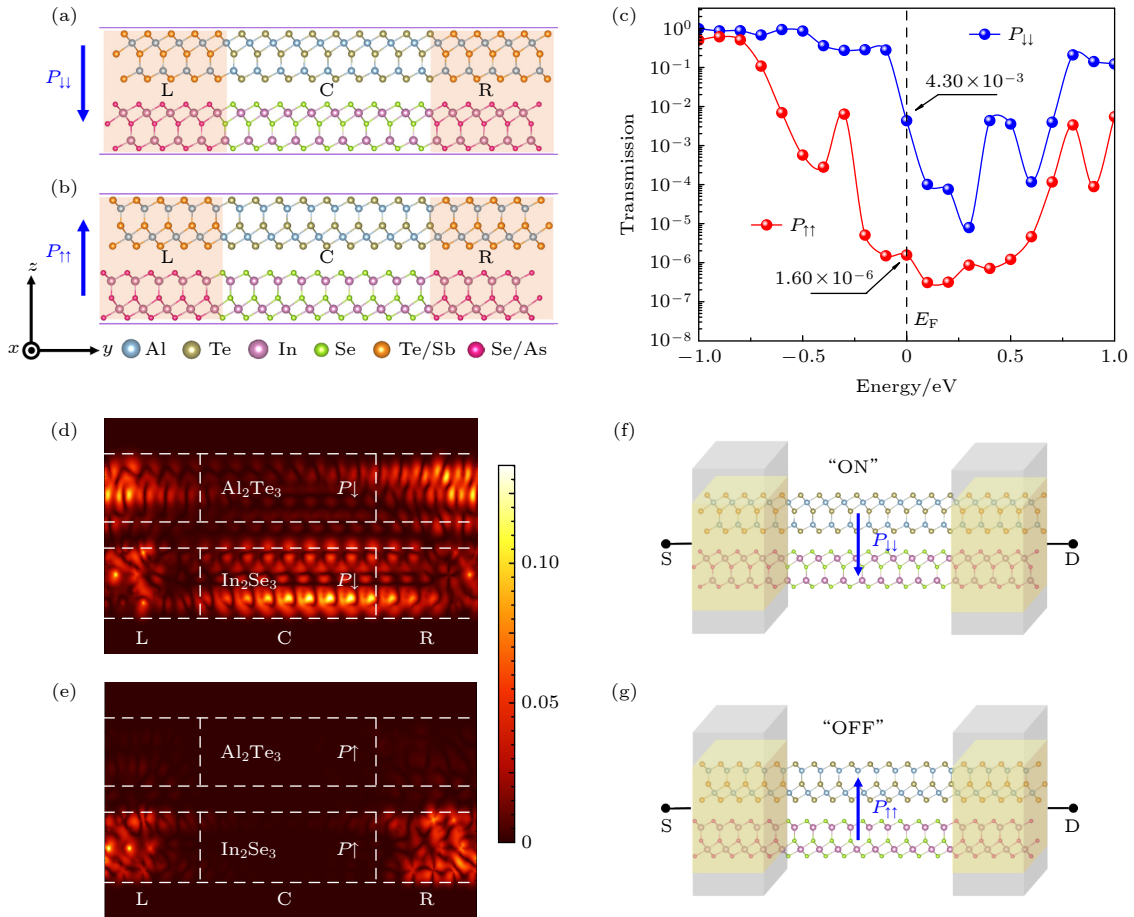


图 5 (a)  $P_{\downarrow}$  极化态和 (b)  $P_{\uparrow}$  极化态下基于  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  异质结的场效应晶体管的原子结构侧视图; (c)  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  隧道结透射函数; 在费米能级处, (d)  $P_{\downarrow}$  极化态和 (e)  $P_{\uparrow}$  极化态下基于  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  异质结的场效应晶体管的散射态; 铁电隧道结原型器件结构 (f) “ON” 态和 (g) “OFF” 态

Fig. 5. The side views of atomic structures of  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$ -based FTJs with  $N=7$  for the (a)  $P_{\downarrow}$  and (b)  $P_{\uparrow}$  states. (c) The transmission function of the FTJs in  $P_{\downarrow}$  and  $P_{\uparrow}$  states as a function of energy. The scattering states at Fermi level for  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$ -based FTJs when  $N=7$  for the (d)  $P_{\downarrow}$  and (e)  $P_{\uparrow}$  states. The (f) “ON” state and (g) “OFF” state of the device prototype for FTJs applications.

比约为  $2.69 \times 10^5\%$ 。为了阐明  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  基铁电隧道结中显著的隧穿电阻效应, 分析了费米能级处的散射态, 如图 5(d), (e) 所示。在  $P_{\downarrow}$  极化态下, 观察到显著的透射本征态, 电极间存在明显的电子运输, 对应“ON”态。相比之下,  $P_{\uparrow}$  极化态下几乎无透射本征态, 电子运输被强烈抑制, 对应“OFF”态。为实现可控的电学性能, 图 5(f), (g) 中展示了基于  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  异质结的铁电隧道结原型器件, 其核心在于利用极化方向的调控来改变电性能, 为发展下一代非易失性存储器提供了一种可行的解决方案。

为了进一步探究金属电极引入方式对  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  隧道结隧穿电阻比的影响, 本研究还设计了一种基于  $\text{PdTe}_2/\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3/\text{PtTe}_2$  结构的铁电隧道结, 其结构示意图如图 6(a), (b) 所示, 分别选

用与  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  异质结晶格常数相匹配的二维金属  $\text{PdTe}_2$  和  $\text{PtTe}_2$  作为器件的底电极和顶电极。如图 6(c) 所示, 通过计算该结在不同电子能量下的透射谱, 发现其在费米能级 ( $E = 0$ ) 处的隧穿电阻比约为  $2.57 \times 10^3\%$ 。该数值相较于图 5 所示的模型有显著降低, 表明金属电极的引入方式对器件的隧穿电阻比具有关键的调控作用。

由于铁电隧道结的隧穿电阻比取决于异质结两种极化状态下的金属和绝缘特性。因此, 需要使用 HSE06 泛函对  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  异质结的能带结构进行更精确的计算, 当异质结极化从  $P_{\downarrow}$  变为  $P_{\uparrow}$  时, 仍应发生从金属到绝缘体的过渡。如图 7 所示, HSE06 计算结果与 PBE 计算结果相同, 即  $P_{\downarrow}$  极化态下的异质结仍然具有金属性质,  $P_{\uparrow}$  极化态的异质结仍然具有绝缘性质。

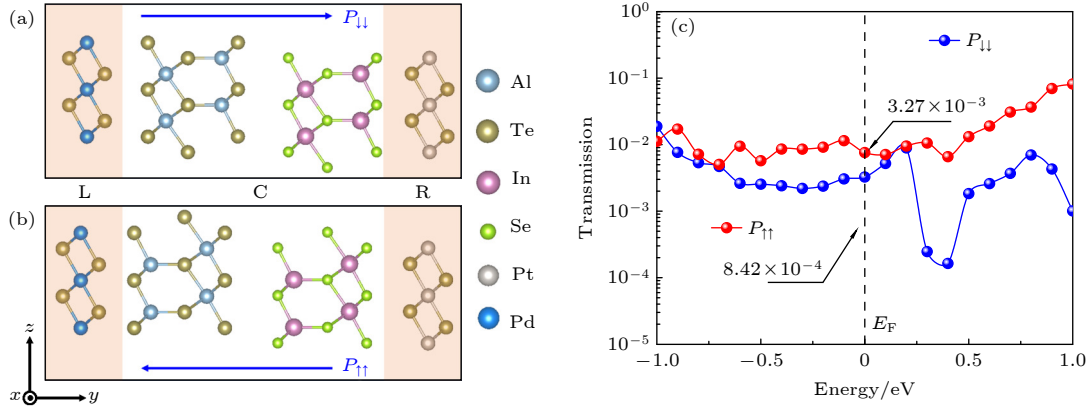


图 6 (a)  $P_{1\downarrow}$  极化态和 (b)  $P_{1\uparrow}$  极化态下基于  $\text{PdTe}_2/\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3/\text{PtTe}_2$  的隧道结结构; (c)  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  隧道结透射函数  
Fig. 6. The atomic structures of  $\text{PdTe}_2/\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3/\text{PtTe}_2$ -based FTJs for the (a)  $P_{1\downarrow}$  and (b)  $P_{1\uparrow}$  states; (c) the transmission function of the FTJs in  $P_{1\downarrow}$  and  $P_{1\uparrow}$  states as a function of energy.

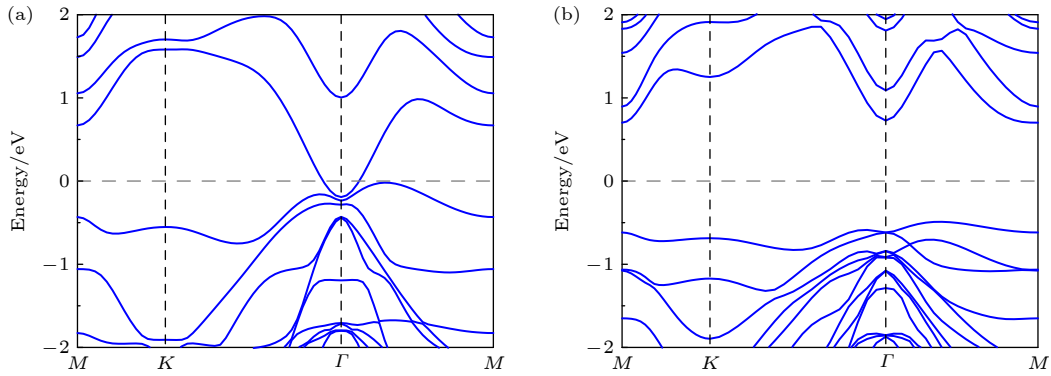


图 7 (a)  $P_{1\downarrow}$  极化态和 (b)  $P_{1\uparrow}$  极化态下基于 Heyd-Scuseria-Ernzerhof(HSE06) 杂化泛函计算获得的  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  异质结的能带结构  
Fig. 7. The band structures of  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  heterostructure with HSE06 functional for the (a)  $P_{1\downarrow}$  and (b)  $P_{1\uparrow}$  states.

## 4 结 论

第一性原理计算表明, 在  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  范德瓦耳斯异质结构中, 通过界面功函数工程, 实现了由铁电极化调控的金属-绝缘体转变. 本研究所提出的场效应隧穿晶体管具有独特的传输机制: 高阻态 (“OFF”态) 下可实现量子隧穿, 低阻态 (“ON”态) 下可实现金属导电, 具有高达  $2.69 \times 10^5\%$  的隧穿电阻比. 通过元素掺杂有效克服了费米能级钉扎效应, 并增强了肖特基势垒. 本工作为开发兼具卓越开关比与低功耗特性的可扩展存储技术提供了新的路径, 未来的工作可侧重于实验研究以及在相关范德瓦耳斯异质结中探索类似效应. 这一成果不仅确立了  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  体系作为高性能 FTJ 候选材料的巨大潜力, 更重要的是, 该设计范式可推广至其他具有类似功函数可调特性的二维异质结体系, 为开发下一代低功耗、高密度非易失性存储器提供了普适性的理论指导和新的物理路径.

## 参考文献

- [1] Luo K F, Ma Z, Sando D, Zhang Q, Valanoor N 2025 *ACS Nano* **19** 6622
- [2] Tsymbal E Y, Kohlstedt H 2006 *Science* **313** 181
- [3] Zheng N, Li J, Sun H, Zang Y, Jiao P, Shen C, Jiang X, Xia Y, Deng Y, Wu D, Pan X, Nie Y 2025 *Sci. Adv.* **11** eads0724
- [4] Bai X, Zou D, Lei C, He Z, Liu Y 2025 *Appl. Phys. Lett.* **126** 162902
- [5] Berdan R, Marukame T, Ota K, Yamaguchi M, Saitoh M, Fujii S, Deguchi J, Nishi Y 2020 *Nat. Electron.* **3** 259
- [6] Zhuravlev M Y, Sabirianov R F, Jaswal S S, Tsymbal E Y 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 246802
- [7] Yu X, Zhang X, Ma L, Wang J 2024 *Adv. Funct. Mater.* **34** 2409281
- [8] Kim D J, Lu H, Ryu S, Bark C W, Eom C B, Tsymbal E Y, Gruverman A 2012 *Nano Lett.* **12** 5697
- [9] Li Y, Yang Y, Zhao H, Duan H, Yang C, Min T, Li T 2025 *Nano Lett.* **25** 1680
- [10] Junquera J, Ghosez P 2003 *Nature* **422** 506
- [11] Yang Q, Tao L, Zhang Y, Li M, Jiang Z, Tsymbal E Y, Alexandrov V 2019 *Nano Lett.* **19** 7385
- [12] Jia Y, Yang Q, Fang Y W, Lu Y, Xie M, Wei J, Tian J, Zhang L, Yang R 2024 *Nat. Commun.* **15** 693
- [13] Liu F, You L, Seyler K L, Li X, Yu P, Lin J, Wang X, Zhou

- J, Wang H, He H, Pantelides S T, Zhou W, Sharma P, Xu X, Ajayan P M, Wang J, Liu Z 2016 *Nat. Commun.* **7** 12357
- [14] Qi J, Han H, Yang S, Kang L, Yin H, Zhao G 2024 *Appl. Phys. Lett.* **125** 042903
- [15] Ding W, Zhu J, Wang Z, Gao Y, Xiao D, Gu Y, Zhang Z, Zhu W 2017 *Nat. Commun.* **8** 14956
- [16] Zheng C, Yu L, Zhu L, Collins J L, Kim D, Lou Y, Xu C, Li M, Wei Z, Zhang Y, Edmonds M T, Li S, Seidel J, Zhu Y, Liu J Z, Tang W X, Fuhrer M S 2018 *Sci. Adv.* **4** eaar7720
- [17] Kim C, Moon I, Lee D, Choi M S, Ahmed F, Nam S, Cho Y, Shin H J, Park S, Yoo W J 2017 *ACS Nano* **11** 1588
- [18] Popov I, Seifert G, Tománek D 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 156802
- [19] Liu Z, Hou P, Sun L, Tsymbal E Y, Jiang J, Yang Q 2023 *npj Comput. Mater.* **9** 6
- [20] Xie A, Hao H, Liu C S, Zheng X, Zhang L, Zeng Z 2023 *Phys. Rev. B* **107** 115427
- [21] Li J H, Cao S G, Han J N, Li Z H, Zhang Z H 2024 *Acta Phys. Sin.* **73** 137102 (in Chinese) [李景辉, 曹胜果, 韩佳凝, 李占海, 张振华 2024 物理学报 **73** 137102]
- [22] Li Y N, Xie Y Q, Wang Y 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 227701 (in Chinese) [李永宁, 谢逸群, 王音 2021 物理学报 **70** 227701]
- [23] Kresse G, Furthmüller J 1996 *Phys. Rev. B* **54** 11169
- [24] Kresse G, Joubert D 1999 *Phys. Rev. B* **59** 1758
- [25] Kresse G, Furthmüller J 1996 *Comput. Mater. Sci.* **6** 15
- [26] Blöchl P E 1994 *Phys. Rev. B* **50** 17953
- [27] Grimme S 2006 *J. Comput. Chem.* **27** 1787
- [28] Vydrov O A, Heyd J, Krukau A V, Scuseria G E 2006 *J. Chem. Phys.* **125** 074106
- [29] Taylor J, Guo H, Wang J 2001 *Phys. Rev. B* **63** 245407
- [30] Monkhorst H J, Pack J D 1976 *Phys. Rev. B* **13** 5188
- [31] Soni R, Petraru A, Meuffels P, Vavra O, Ziegler M, Kim S K, Jeong D S, Pertsev N A, Kohlstedt H 2014 *Nat. Commun.* **5** 5414
- [32] Chen Y, Guo J T, Li M X, Wang G Z, Yuan H K, Chen H 2024 *Surf. Interfaces* **51** 104597
- [33] Fu C-F, Sun J, Luo Q, Li X, Hu W, Yang J 2018 *Nano Lett.* **18** 6312
- [34] Fan A, Zhang Q, Yang Z, Li L, Li M, Zhang K, Gao J, Wu F, Wu M, Geng D, Hu W 2025 *Sci. Adv.* **11** eadx8192
- [35] Meng P, Wu Y, Bian R, Pan E, Dong B, Zhao X, Chen J, Wu L, Sun Y, Fu Q, Liu Q, Shi D, Zhang Q, Zhang Y W, Liu Z, Liu F 2022 *Nat. Commun.* **13** 7696
- [36] Ding J, Shao D F, Li M, Wen L W, Tsymbal E Y 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 057601
- [37] Lu H L, Yang M, Xie Z Y, Geng Y, Zhang Y, Wang P F, Sun Q Q, Ding S J, Wei Zhang D 2014 *Appl. Phys. Lett.* **104** 161602
- [38] Fang Z, Solovyev I V, Terakura K 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 3169

# Enhanced tunneling electroresistance through interfacial work function engineering in $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$ ferroelectric tunnel junctions\*

HE Zhijian<sup>1)2)</sup> OU Yun<sup>1)†</sup> ZOU Daifeng<sup>1)</sup> LIU Yunya<sup>2)</sup>

1) (*School of Physics and Electronic Science, Hunan University of Science and Technology, Xiangtan 411201, China*)

2) (*Key Laboratory of Low Dimensional Materials and Application Technology of Ministry of Education, School of Materials Science and Engineering, Xiangtan University, Xiangtan 411105, China*)

( Received 22 September 2025; revised manuscript received 16 October 2025 )

## Abstract

In recent years, two-dimensional (2D) ferroelectric materials have attracted widespread interest due to their ultrathin geometry, high stability, and switchable polarization states. Ferroelectric tunnel junctions (FTJs) made from 2D ferroelectric materials exhibit exceptionally high tunnel electroresistance (TER) ratios, making them leading candidates for next-generation non-volatile memory and logic devices. However, advancing FTJ technology depends on overcoming the critical challenge of precisely controlling quantum tunneling resistance. Therefore, this study proposes a strategy of interfacial work function engineering, which actively modulates the band alignment of a heterostructure through ferroelectric polarization switching, induces a reversible metal-insulator transition in the barrier layer, and modulates TER. Using a van der Waals heterostructure composed of  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  as a model system, we demonstrate through first-principles calculations that the strategic manipulation of interfacial work functions can induce a reversible metal-insulator transition in the barrier, thereby drastically changing the tunneling conductance. Further analysis indicates that a work function mismatch between the two ferroelectric materials causes varying degrees of interfacial charge transfer, thereby triggering a metal-insulator transition in the van der Waals ferroelectric heterostructure as the external electric field is reversed. Non-equilibrium transport simulations reveal an unprecedented TER ratio of  $2.69 \times 10^5\%$ . Our findings not only highlight  $\text{Al}_2\text{Te}_3/\text{In}_2\text{Se}_3$  as a promising platform for high-performance FTJs but also establish a universal design strategy for engineering ultrahigh TER effects in low-dimensional ferroelectric memory devices. This work opens new avenues for developing energy-efficient, non-volatile memory with enhanced scalability and switching characteristics.

**Keywords:** two-dimensional ferroelectric heterostructure, band modulation, polarization, first-principle calculations

DOI: [10.7498/aps.75.20251308](https://doi.org/10.7498/aps.75.20251308)

CSTR: [32037.14.aps.75.20251308](https://cstr.net.cn/32037.14.aps.75.20251308)

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12572182).

† Corresponding author. E-mail: [ouyun101@hmust.edu.cn](mailto:ouyun101@hmust.edu.cn)