

专题: 应用磁学

基于双层 VSi_2P_4 多铁隧道结的隧穿磁阻和电致电阻*张海涛^{1)2)#} 马文轩^{3)#} 桑胜波¹⁾ 杨维⁴⁾张昆⁴⁾ 韩江朝^{3)†} 高国营⁵⁾

1) (山西省能源互联网研究院, 太原 030006)

2) (综合能源系统山西省重点实验室, 太原 030024)

3) (太原理工大学集成电路学院, 太原 030024)

4) (北京航空航天大学集成电路科学与工程学院, 北京 100191)

5) (华中科技大学物理学院, 国家脉冲强磁场科学中心, 武汉 430074)

(2026 年 3 月 17 日收到; 2026 年 5 月 8 日收到修改稿)

新型二维材料 MA_2Z_4 体系因其结构和材料的多样性受到了很大的关注. 其中, 双层 VSi_2P_4 在 AB 和 BA 堆叠情形下同时具有面外铁电极化和层间反铁磁耦合, 具有广泛的应用前景. 本文基于密度泛函理论和非平衡格林函数研究了双层 VSi_2P_4 范德瓦耳斯多铁器件在不同电极、界面耦合以及结构不对称情况下自旋输运特性. 结果表明, 双层 VSi_2P_4 的自旋过滤特性导致了 $\text{Au-VSi}_2\text{P}_4\text{-Au}$ 器件和 $\text{TiSe}_2\text{-VSi}_2\text{P}_4\text{-TiSe}_2$ 器件相对较大的隧穿磁阻, 电极和势垒层的界面耦合造成了相对较小的电致电阻. 通过引入 MoTe_2 插层, $\text{Au-MoTe}_2\text{-VSi}_2\text{P}_4\text{-MoTe}_2\text{-Au}$ 器件的电致电阻达到 17.35% 和 17.90%, $\text{TiSe}_2\text{-MoTe}_2\text{-VSi}_2\text{P}_4\text{-MoTe}_2\text{-TiSe}_2$ 器件电致电阻达到 46.25% 和 49.30%. 在不对称电极 $\text{Au-MoTe}_2\text{-VSi}_2\text{P}_4\text{-MoTe}_2\text{-TiSe}_2$ 器件中, 电致电阻进一步扩大至 95.3% 和 94.0%, 同时隧穿磁阻保持相对较大. 这些研究成果有望推动二维本征多铁隧道结以及相关存算一体器件发展.

关键词: 第一性原理计算, 二维铁磁, 多铁, 隧道结

DOI: 10.7498/aps.75.20260376

CSTR: 32037.14.aps.75.20260376

1 引言

多铁隧道结 (multiferroic tunnel junctions, MFTJs) 为铁磁/铁电/铁磁三明治结构, 可以通过外加电场和磁场分别实现中间铁电材料的极化方向和两边铁磁电极的磁化方向的转变^[1,2], 从而产生 4 种不同的电阻状态^[3-5]. 该类型器件将铁电和铁磁功能集合到单个纳米器件, 为存算一体提供了新的路径. 传统的多铁隧道结通常为钙钛矿结构, 较厚铁电势垒中的氧空位缺陷会在高温下导致热激活非弹性跳变^[6], 另外其电阻-面积乘积 (resistance-area product, RA) 也较大^[7,8], 最终导致其很难满足未来小型化多功能电子器件的非易失性高密度存储、逻辑运算功能以及低功耗等要求.

二维范德瓦耳斯 (van der Waals, vdW) 材料因具有原子级厚度、无悬挂键洁净表面、层间随意堆垛性以及优异的外场调控能力, 使其在自旋电子学器件研究中极具潜力^[9-11]. Yang 等^[12] 利用双层 $\alpha\text{-In}_2\text{Se}_3$ 构造了反铁电多铁隧道结, 隧穿磁阻 (tunneling magnetoresistance, TMR) 和电致电阻 (tunneling electroresistance, TER) 分别达到 $7.6 \times 10^3\%$ 和 $6.8 \times 10^5\%$, 并且实现了 6 种非易失性阻态. Yu 等^[13] 构造了石墨烯/ $\text{CrI}_3\text{-AgBiPSe}_6$ /石墨烯

* 国家自然科学基金 (批准号: 12004021) 和山西省应用基础研究 (批准号: 202403021221033) 资助的课题.

同等贡献作者.

† 通信作者. E-mail: jiangchao_han@buaa.edu.cn

烯和石墨烯/Cr₂Ge₂Te₆-In₂Se₃/石墨烯两种多铁隧道结,通过铁电材料的极化翻转,成功实现了磁性材料的磁化方向转变,即所谓的多铁隧道结全电控.然而这些多铁隧道结仍然需要外界电场去翻转铁电材料的极化方向;其次这种堆垛引入了过多的界面,加大了实验复杂性^[14].

最近,二维材料中的 MA₂Z₄(M代表金属, A代表 Si 和 Ge, Z代表 N, P, As) 系列引起了广泛的关注^[15-17].除了已经合成的 MoSi₂N₄ 和 WSi₂N₄,已有超过 100 种 MA₂Z₄ 材料及其衍生物被预测了出来,由于该系列材料的元素和结构的多样性,这些材料特性涵盖了金属、半导体、铁电体和铁磁体等. Li 等^[18]发现单层 VSi₂P₄ 倾向于铁磁基态,并且在考虑自旋-轨道耦合的时候,导带的能谷简并被破坏,在 K 与 K' 处形成电子的能谷极化. Zhang 等^[19]利用两层 VSi₂P₄ 材料进行堆叠,该结构的面外铁电性和 A 型反铁磁性之间的相互作用能够产生层锁定的贝里曲率,通过层间滑移可以同时实现电极化和谷极化的翻转.本文首先利用双层 VSi₂P₄ 构造了 5 种 vdW MFTJs,随后利用密度泛函理论和非平衡格林函数相结合研究了这些器件的自旋输运特性.发现双层 VSi₂P₄ 的自旋过滤特性产生了相对较大的 TMR, TER 在随着界面耦合减小以及引入不对称电极情况下获得较大数值.这些研究结果将有利于促进二维多铁材料在自旋电子学器件的发展.

2 计算模型与理论方法

本文计算采用 VASP(Vienna *ab-initio* simulation package) 中的投影缀加波方法 (projected augmented-wave, PAW) 进行电子结构特性计算和器件优化,广义梯度近似 (generalized gradient approximation, GGA) 中的 Perdew-Burke-Ernzerhof (PBE) 被用来处理交换关联相互作用^[20,21].截断能和 Monkhorst 网格采样分别选用 500 eV 和 15×15×1, 能量和力的收敛标准分别为 10⁻⁵ eV 和 0.01 eV/Å.为了修正局域电子间的库仑排斥作用, V 原子的 d 轨道 U 值为 2.8 eV; 同时在计算中也考虑了 vdW 相互作用 DFT-D3.在此基础上,本文利用 ATK 软件包基于密度泛函理论与非平衡格林函数相结合进行输运计算^[22-24],电子自洽的截断能选择为 150 Ry, 器件和输运系数的 k 点网

格抽样分别选取为 15 × 15 × 100 和 101 × 101, 这些 MFTJs 器件的中心散射区域进行了完整的原子弛豫处理,真空层厚度为 30 Å.自旋相关的电流由郎道尔-巴蒂克 (Landauer-Buttiker) 公式计算得到:

$$I^{\uparrow(\downarrow)} = \frac{e}{h} \int_{-\infty}^{\infty} \{T^{\uparrow(\downarrow)}(E, V) [f_L(E - u_L) - f_R(E - u_R)]\} dE, \quad (1)$$

其中, e 为电子电荷, h 为普朗克常数, $\uparrow(\downarrow)$ 表示自旋方向, f_L 和 f_R 为费米-狄拉克 (Fermi-Dirac) 分布函数, $u_{L/R} = E_F \pm \frac{eV}{2}$ 为左/右电极的化学势.自旋相关的透射系数 $T^{\uparrow(\downarrow)}$ 定义如下:

$$T^{\uparrow(\downarrow)}(E_F) = \text{Tr}[\Gamma_L G^R \Gamma_R G^A]_{\uparrow(\downarrow)}, \quad (2)$$

其中, $\Gamma_{L(R)}$ 描述左(右)电极与散射区之间的耦合强度, $G^{R(A)}$ 为中心区域的推迟(超前)格林函数.

自旋注入效率 (spin injection efficiency, SIE) P_S 可定义为

$$P_S = \left| \frac{G_{\uparrow} - G_{\downarrow}}{G_{\uparrow} + G_{\downarrow}} \right|, \quad (3)$$

其中 $G_{\uparrow}$ 和 $G_{\downarrow}$ 表示自旋向上与自旋向下的电导.

在平衡状态下, TMR 可通过以下公式计算:

$$\text{TMR} = \frac{G_{\text{PC}} - G_{\text{APC}}}{G_{\text{APC}}}, \quad (4)$$

其中 G_{PC} 和 G_{APC} 表示器件在平行磁化情形 (parallel configuration, PC) 和反平行磁化情形 (anti-parallel configuration, APC) 下的电导.

在平衡状态下, TER 比值定义为

$$\text{TER} = \frac{|G_{\rightarrow} - G_{\leftarrow}|}{\min(G_{\rightarrow}, G_{\leftarrow})}, \quad (5)$$

其中 $G_{\rightarrow}$ 和 $G_{\leftarrow}$ 表示不同铁电极化状态下的器件电导.

平衡状态下的 RA 可通过电导计算得出:

$$\text{RA} = A/G, \quad (6)$$

其中 A 为垂直器件输运方向的截面积.

3 计算结果与分析

3.1 双层 VSi₂P₄ 的多铁特性

单层 VSi₂P₄ 是具有 $P-6m2$ 空间群的六方晶格结构,由七原子层 P-Si-P-V-P-Si-P 按特定的顺序排列,其可视为由两层弯曲的 SiP 包裹一层 1H

相 VP_2 构成^[25,26], 该结构与实验合成的 MoSi_2N_4 一致. 对于双层 VSi_2P_4 , 其结构属于 $P3m1$ 空间群, 研究了 AB 堆叠构型和 BA 堆叠构型, 如图 1(a), (d) 所示, 优化后的晶格常数为 3.46 Å, 层间距为 3.21 Å. 在 AB(BA) 堆叠构型中, 上层的 Si(V) 原子正好位于下层的 V(Si) 原子正上方, 而上层的 P(Si) 原子则直接位于下层的 Si(P), 这种堆叠构型会导致中心对称性破缺, 从而沿 z 轴方向自发产生垂直铁电极化. 我们通过计算差分电荷密度证实了这一铁电现象. 图 1(b), (e) 分别展示了 AB 堆叠和 BA 堆叠的差分电荷密度, 清晰地显示了上下层积累区与耗尽区之间电荷分布有着显著差异, 由于差分电荷密度分布的不对称性, 导致上下层之间

会产生净电荷转移. 平面平均电荷密度差的计算结果揭示了极化方向与层间电荷转移的对应关系, 如图 1(c) 所示, AB 堆叠中电荷从下层向上传递, 这导致沿 $-z$ 方向自发产生铁电极化. 相反, 在图 1(f) 所示的 BA 堆叠中, 电荷从上层向下传递, 从而沿 $+z$ 方向自发形成铁电极化.

为了进一步分析双层 VSi_2P_4 材料的本征铁电性, 对 AB(BA) 堆叠双层 VSi_2P_4 的平面平均静电势进行了计算. 如图 2(a) 所示, AA 堆叠构型中上下层的静电势分布对称, 这种对称性保护结构导致铁电极化缺失. 相比之下, 如图 2(b) 和图 2(c) 所示, AB 和 BA 堆叠构型在上下两层真空区域之间存在电位跃迁, 其不连续值分别为 -11.5 meV 和

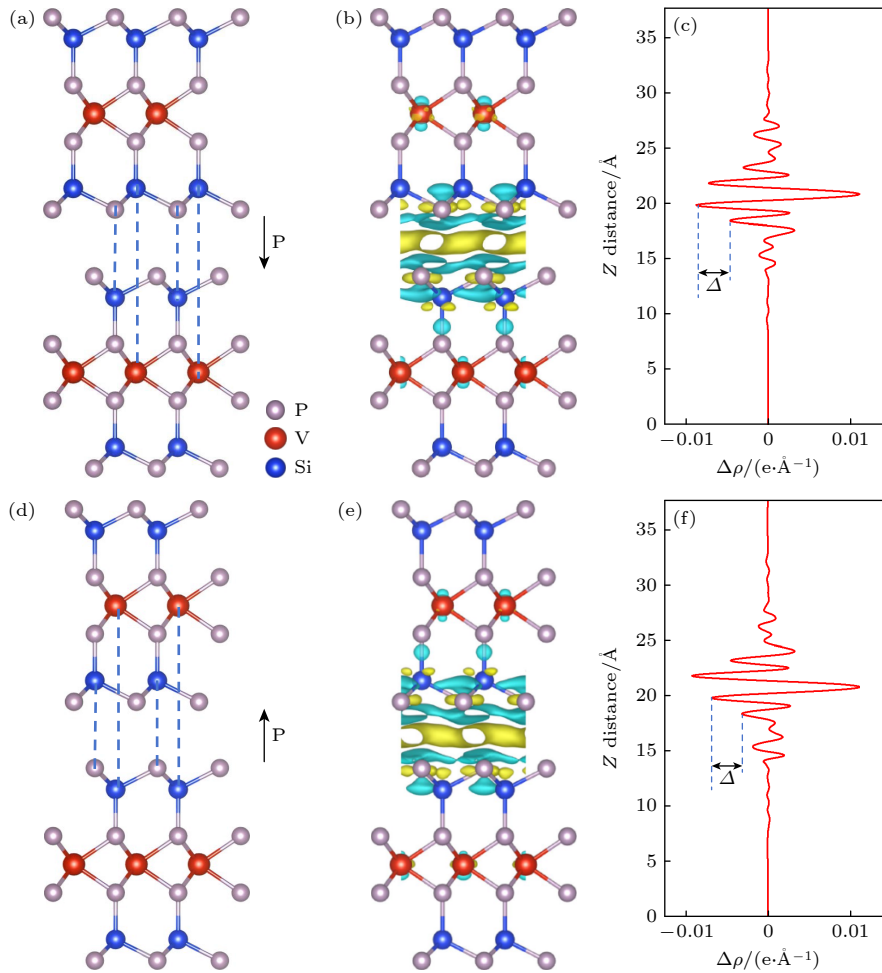


图 1 双层 VSi_2P_4 在 AB (a)–(c) 与 BA (d)–(f) 堆叠下的结构侧视图 (a), (d)、沿 z 方向的差分电荷密度图 (b), (e), 以及平面平均电荷密度差 (c), (f); 银色、红色和蓝色球体分别表示 P, V 和 Si 原子, 黑色箭头指示铁电极化方向, 黄色和绿色区域分别代表电子积累区和耗尽区, 等值面数值设定为 $0.0001 \text{ e}/\text{\AA}^3$

Fig. 1. Side views (a), (d), differential charge density maps along the z -direction (b), (e), and plane-averaged charge density differences (c), (f) of bilayer VSi_2P_4 with AB (a)–(c) and BA (d)–(f) stackings. The silver, red, and blue spheres represent P, V, and Si atoms, respectively. The black arrows indicate the ferroelectric polarization direction. The yellow and cyan regions denote electron accumulation and depletion regions, respectively, with an isosurface value of $0.0001 \text{ e}/\text{\AA}^3$.

11.5 meV, 这表明存在自发的垂直铁电极化. 基于贝里相位法^[27], 我们测得 AB 堆叠和 BA 堆叠的铁电极化强度分别为 -0.46 pC/m 和 0.46 pC/m. 如图 2(d), (e) 所示, 由于存在 C_{3z} 旋转对称性, AB 堆叠可通过层间滑移切换为 BA 堆叠, 其中路径 I 对应 $[1/3, 2/3, 0]$, $[-2/3, -1/3, 0]$ 或 $[1/3, -1/3, 0]$ 方向, 路径 II 对应 $[-2/3, -4/3, 0]$, $[4/3, 2/3, 0]$ 或 $[-2/3, 2/3, 0]$ 方向. 为了探究双层 VSi_2P_4 材料在 AB 堆叠与 BA 堆叠之间实现滑移铁电的可行性, 采用微弹性带 (nudged elastic band, NEB) 方法计算了两种堆叠之间的铁电切换路径的能量势垒^[28]. 如图 2(f) 所示, 其中路径 I 的能垒为 16.2 meV/f.u., 较低的势垒导致有利于沿路径 I 实现低能耗的铁电相变.

随后研究了层间铁磁性 (FM) 和反铁磁性 (AFM) 两类磁性构型, 后者比前者能量低 0.28 meV, 表明双层 VSi_2P_4 的磁性基态为 A 型反铁磁. 由于层内 V 原子的最近距离为 $d_{\text{AA}} = 3.46$ Å, 而层间 V 原子的最近距离为 $d_{\text{AB}} = 12.61$ Å, 导致层内铁磁耦合占主导, 而层间耦合较弱. 层间反铁磁构型有四种能量简并的铁电/反铁磁结构, 即 $\text{P}\downarrow\text{M}\downarrow\uparrow$, $\text{P}\downarrow\text{M}\uparrow\downarrow$, $\text{P}\uparrow\text{M}\downarrow\uparrow$ 和 $\text{P}\uparrow\text{M}\uparrow\downarrow$, 如图 3 所示. 其中 $\text{P}\uparrow$ 和 $\text{P}\downarrow$ 分别代表朝向 $+z$ 轴和 $-z$ 轴方向的铁电极化, $\text{M}\uparrow$ 与 $\text{M}\downarrow$ 则表示沿

z 轴正负方向的磁有序排列. 在传统铁电双稳态中, 电子能带结构简并且无法区分. 但由于双层 VSi_2P_4 中时间反演对称性和空间反演对称性的破缺诱发了谷极化现象的出现, 这使得电子能带结构变得可区分. 图 4(a), (e) 展示了 4 种铁电/反铁磁构型在未考虑自旋-轨道耦合 (spin-orbit coupling, SOC) 下的能带结构, 前者表示 $\text{P}\downarrow\text{M}\downarrow\uparrow$ 和 $\text{P}\uparrow\text{M}\uparrow\downarrow$, 后者表示 $\text{P}\downarrow\text{M}\uparrow\downarrow$ 和 $\text{P}\uparrow\text{M}\downarrow\uparrow$. 在图 4(a) 中, 价带顶 (valence band maximum, VBM) 来自的自旋向下通道, 而导带底 (conduction band minimum, CBM) 来自的自旋向上通道, 形成带隙为 0.22 eV 的双极磁性半导体, 图 4(e) 中刚好相反. 在计算考虑 SOC 后, K 和 K' 点的简并性被打破, 导致能级出现差异, 产生了自发谷极化. 如图 4(b)—(d) 所示, 对于 $\text{P}\downarrow\text{M}\downarrow\uparrow$ 和 $\text{P}\uparrow\text{M}\uparrow\downarrow$ 构型, VBM 位于 K 点且能量高于 K' 点, 产生 2.6 meV 的自发谷极化, CBM 位于 K' 点且能量低于 K 点, 导致 13.6 meV 的显著谷极化. 与此同时, 对于 $\text{P}\downarrow\text{M}\uparrow\downarrow$ 和 $\text{P}\uparrow\text{M}\downarrow\uparrow$ 构型, 如图 4(f)—(h) 所示, VBM 与 CBM 的谷极化刚好与前者相反. 值得注意的是, 当双层 VSi_2P_4 的铁电极化发生切换时, 上层与下层磁矩的方向反转 180° , 能带结构能保持稳定, 这表明铁电材料可以通过铁谷耦合实现磁性调控.

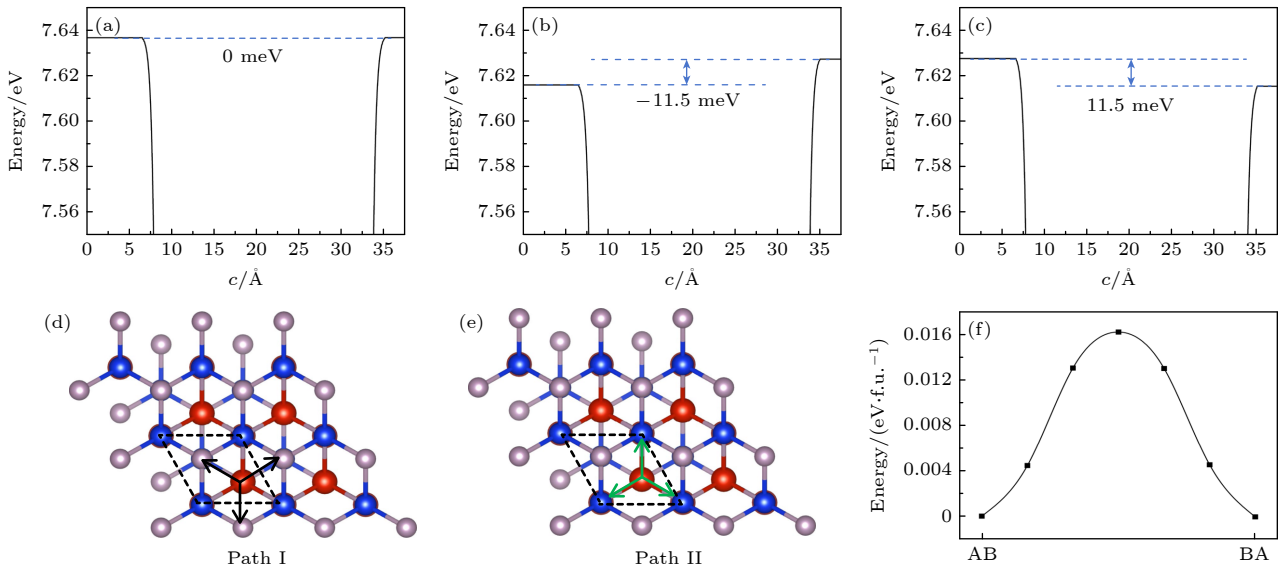


图 2 双层 VSi_2P_4 在 z 轴方向上分别为 AA 堆叠 (a)、AB 堆叠 (b) 及 BA 堆叠 (c) 时的平面平均静电势分布; 双层 VSi_2P_4 在 AB 堆叠与 BA 堆叠情况下的铁电切换路径 I (d) 与路径 II (e) 以及路径 I 的层间滑移能垒 (f)

Fig. 2. Plane-averaged electrostatic potential profiles of bilayer VSi_2P_4 with AA stacking (a), AB stacking (b), and BA stacking (c) along the z -direction; ferroelectric switching paths I (d) and II (e) for bilayer VSi_2P_4 in AB and BA stackings, along with the inter-layer sliding energy barrier for path I (f).

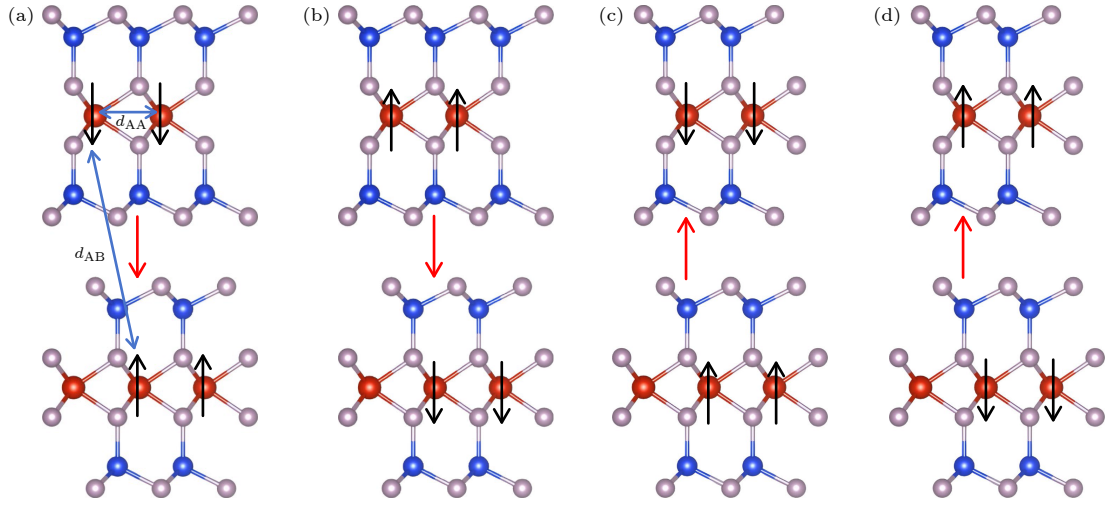


图3 双层 VSi_2P_4 的4种不同铁电/反铁磁 (FE/AFM) 构型 (a) $\text{P}\downarrow\text{M}\downarrow\uparrow\uparrow$ 构型; (b) $\text{P}\downarrow\text{M}\uparrow\downarrow\uparrow$ 构型; (c) $\text{P}\uparrow\text{M}\downarrow\uparrow\uparrow$ 构型; (d) $\text{P}\uparrow\text{M}\uparrow\downarrow\uparrow$ 构型; 红色和黑色箭头分别代表铁电极化方向和自旋极化方向

Fig. 3. Four different FE/AFM configurations of bilayer VSi_2P_4 : (a) $\text{P}\downarrow\text{M}\downarrow\uparrow\uparrow$; (b) $\text{P}\downarrow\text{M}\uparrow\downarrow\uparrow$; (c) $\text{P}\uparrow\text{M}\downarrow\uparrow\uparrow$; (d) $\text{P}\uparrow\text{M}\uparrow\downarrow\uparrow$. Red and black arrows represent FE polarization and spin polarization directions, respectively.

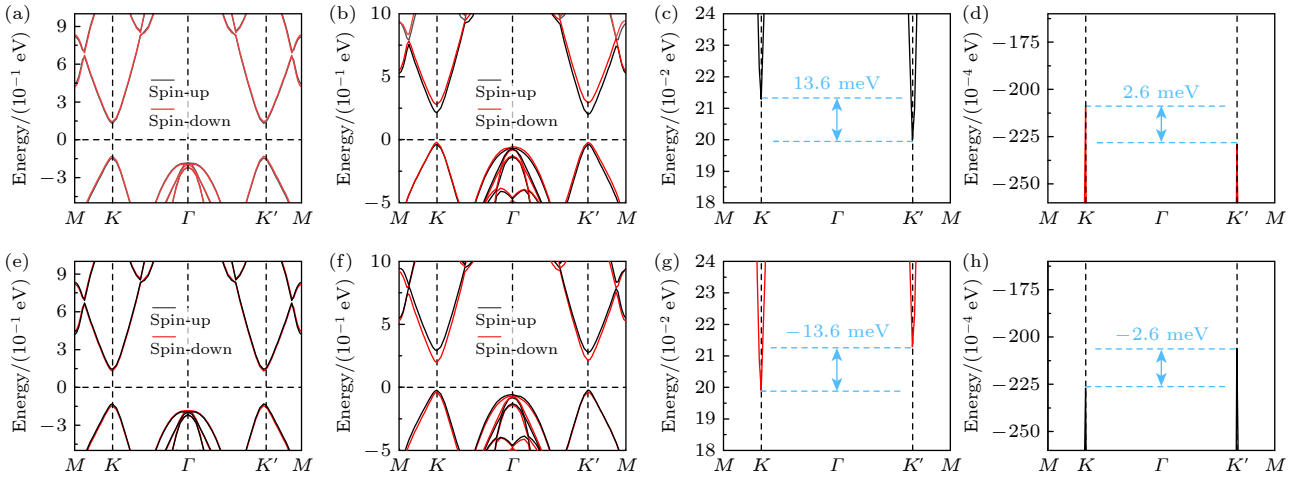


图4 不考虑 SOC (a), (e) 与考虑 SOC (b)–(d), (f)–(h) 的能带结构 (a), (b) 代表 $\text{P}\downarrow\text{M}\downarrow\uparrow\uparrow$ 和 $\text{P}\uparrow\text{M}\uparrow\downarrow\uparrow$ 构型; (e), (f) 代表 $\text{P}\downarrow\text{M}\uparrow\downarrow$ 和 $\text{P}\downarrow\text{M}\uparrow\downarrow$ 构型; (c), (d) 图 (b) 的能带放大部分; (g), (h) 图 (f) 的能带放大部分

Fig. 4. Band structures without SOC (a), (e) and with SOC (b)–(d), (f)–(h). Panel (a), (b) represent the $\text{P}\downarrow\text{M}\downarrow\uparrow\uparrow$ and $\text{P}\uparrow\text{M}\uparrow\downarrow\uparrow$ configurations, respectively, while (e), (f) represent the $\text{P}\downarrow\text{M}\uparrow\downarrow$ and $\text{P}\downarrow\text{M}\uparrow\downarrow$ configurations, respectively. Panel (c), (d) are enlarged views of the band structures in (b), and (g), (h) are enlarged views of the band structures in (f).

3.2 多铁隧道结的输运特性

3.1 节研究确定了双层 VSi_2P_4 材料具有多铁性, 我们基于该材料构建了本征多铁性隧道结, 接下来研究不同电极对自旋输运特性的影响. 首先选取了两种对称电极对: 块体金属电极 (Au) 和 vdW 非磁性金属电极 (1T-TiSe₂). 采用双层 VSi_2P_4 的面内晶格常数 3.46 Å 为所有器件的面内晶格常数, Au(111) 方向和 TiSe₂ 优化面内晶格常数分别为 2.88 Å 和 3.55 Å. 所以对于 Au- VSi_2P_4 -Au 器件, 电极和势垒层的最小匹配超胞尺寸为 2×2 和

$\sqrt{3}\times\sqrt{3}$, 失配率为 2.61%; 对于 TiSe₂- VSi_2P_4 -TiSe₂ 器件, 电极和势垒层的最小匹配超胞尺寸为 $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$ 和 $\sqrt{3}\times\sqrt{3}$, 失配率为 1.81%. 接下来, 需要确定这两种 MFTJs 不同界面处的最佳堆叠构型. 这两种 MFTJs 中有两种异质结界面类型, 即 Au- VSi_2P_4 和 TiSe₂- VSi_2P_4 . 在 Au- VSi_2P_4 中, 存在 3 种堆叠构型: Au-V, Au-Si 和 Au-P, 图 5(a) 展示了这 3 种堆叠构型的能量, 其中最低能量堆叠构型为 Au-V. 异质结界面 TiSe₂- VSi_2P_4 同样存在 3 种堆叠构型 (Ti-V, Ti-Si 和 Ti-P), 如图 5(b) 所示, 最低能量堆叠构型为 Ti-V. 最后, 基于上述界

面堆叠序列, 构建了两种不同的 MFTJs, 如图 5(c), (d) 所示.

翻转双层 VSi_2P_4 的磁化方向可产生平行和反平行两种磁化状态, 而滑移双层 VSi_2P_4 同样会产生两种不同的极化, 这表明基于双层 VSi_2P_4 的

MFTJs 中可以诱导出四重电阻态. 在本文中, 首先研究了这两种本征 MFTJs 在平衡态下的 TMR 效应和 TER 效应. 如表 1 所列, Au- VSi_2P_4 -Au MFTJ 铁电 $\text{P} \leftarrow$ 和 $\text{P} \rightarrow$ 态的 TMR 分别为 596.68% 和 594.80%. 对于 TiSe_2 - VSi_2P_4 - TiSe_2 MFTJ, 其铁电

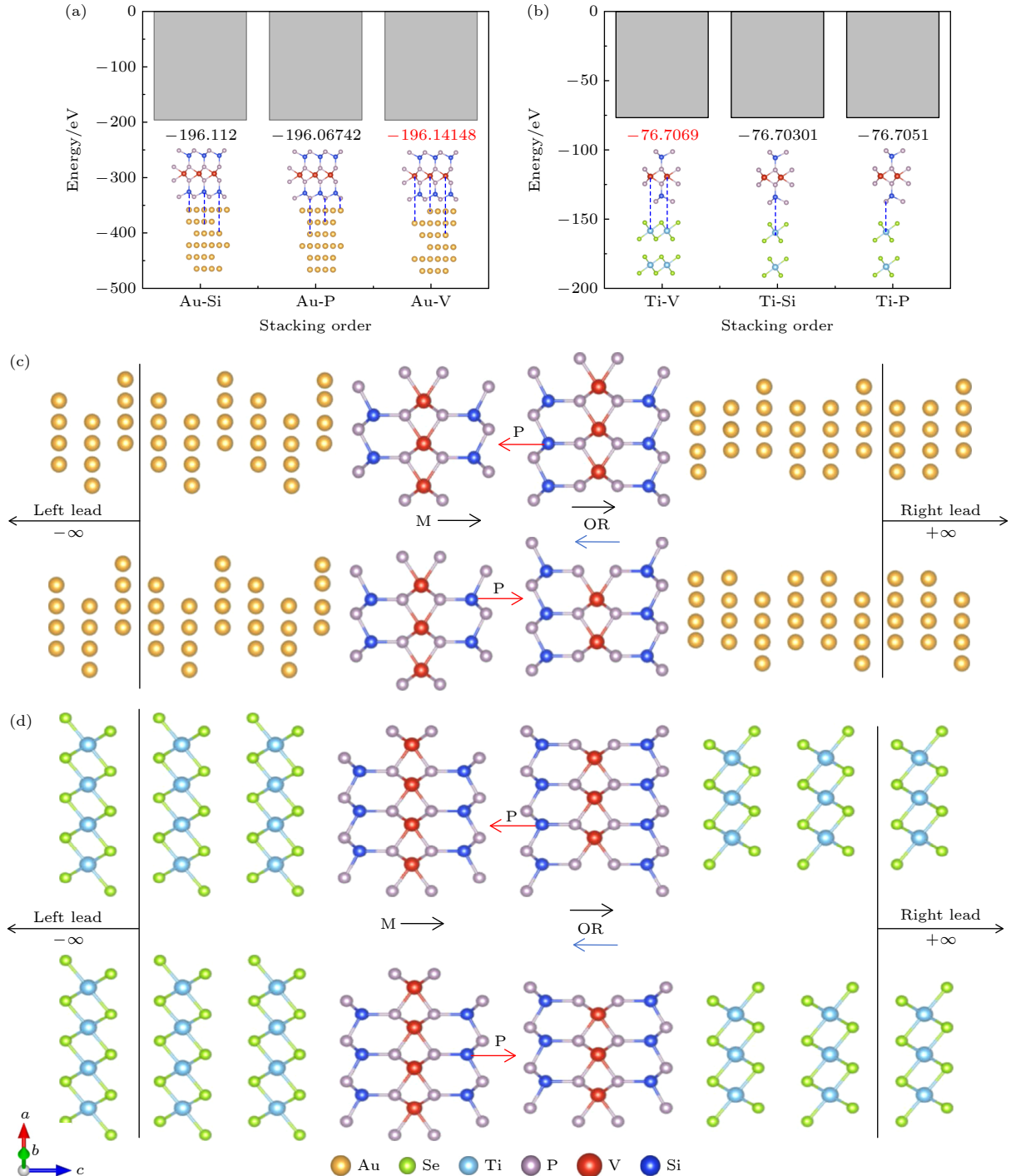


图 5 Au- VSi_2P_4 界面 (a) 与 TiSe_2 - VSi_2P_4 界面 (b) 的拼接情况; Au- VSi_2P_4 -Au 器件 (c) 与 TiSe_2 - VSi_2P_4 - TiSe_2 器件 (d) 的结构示意图; 左右电极延伸至 $\pm\infty$, 这些器件在 xy 平面上呈周期性排列, 电流沿 z 方向流动

Fig. 5. Stacking configurations of the Au- VSi_2P_4 interface (a) and the TiSe_2 - VSi_2P_4 interface (b); schematic device structures of the Au- VSi_2P_4 -Au junction (c) and the TiSe_2 - VSi_2P_4 - TiSe_2 junction (d); the left and right electrodes extend to $\pm\infty$, these devices are arranged periodically in the xy -plane, with current flowing along the z -direction.

$P \leftarrow$ 和 $P \rightarrow$ 态的 TMR 分别为 489.65% 和 490.44%, 这两种 MFTJs 都表现出了较大的 TMR. 为了探究这两种 MFTJs 的输运机理, 首先从器件中心区的投影态密度图 (projected density of states, PDOS) 进行分析, 如图 6 所示. 对于 $\text{Au-VSi}_2\text{P}_4\text{-Au}$ 器件的 PC 态, 由于 VSi_2P_4 的导带下移, 导致自旋向下方向费米能级处的电子数大于自旋向上费米能级处的电子数, 最终导致自旋向下方向相对较大的电导和较高的 P_S . 而对于 APC 态, 因为自旋向下和自旋向上的 PDOS 分布对称, 所以 APC 态自旋向下和自旋向上费米能级处的电子数基本相同且数量介于 PC 态自旋向下和自旋向上费米能级处的

电子数之间, 这导致这两个自旋方向相差较小的电导以及 APC 态较低的 P_S . 最终由于 PC 态和 APC 态电阻变化大, 导致 TMR 较大. 类似的现象发生在 $\text{TiSe}_2\text{-VSi}_2\text{P}_4\text{-TiSe}_2$ 器件, PC 自旋向下方向的费米面附近分布较少的势垒, 造成相对较大的电导; PC 自旋向上方向和 APC 的两个自旋方向, 由于存在较大的势垒层, 最终造成较小的电导, 同样导致较大的 TMR, 如图 6(b) 所示. 然而, 这两种 MFTJs 的 TER 存在显著差异, $\text{TiSe}_2\text{-VSi}_2\text{P}_4\text{-TiSe}_2$ MFTJ 在 PC 和 APC 态的 TER 分别为 18.38% 和 18.70%, 远大于 $\text{Au-VSi}_2\text{P}_4\text{-Au}$ MFTJ 在 PC 态和 APC 态的 TER (0.61% 和 0.71%). 考虑 Au-

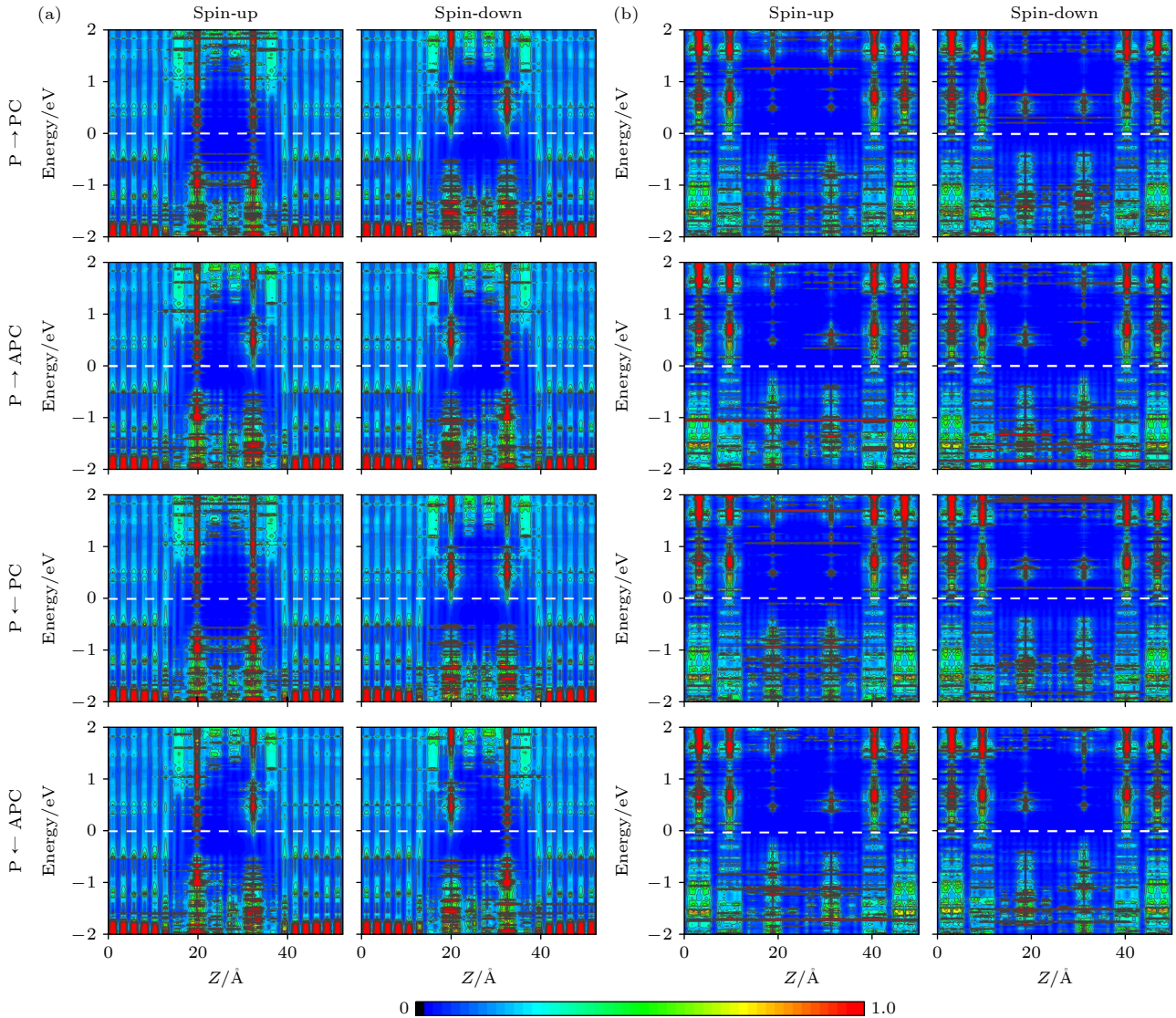


图 6 平衡状态下, $\text{Au-VSi}_2\text{P}_4\text{-Au}$ 器件 (a) 与 $\text{TiSe}_2\text{-VSi}_2\text{P}_4\text{-TiSe}_2$ 器件 (b) 的自旋分辨投影态密度 (PDOS), 其中白色虚线标记费米能级位置

Fig. 6. PDOS for the $\text{Au-VSi}_2\text{P}_4\text{-Au}$ device (a) and the $\text{TiSe}_2\text{-VSi}_2\text{P}_4\text{-TiSe}_2$ device (b) at equilibrium. The white dashed line marks the Fermi level.

表 1 平衡态下 5 种 MFTJs 的自旋相关 $G_{\uparrow}$ 和 $G_{\downarrow}$, TMR, TER, P_S 及 RA
Table 1. Spin-dependent conductances $G_{\uparrow}$ and $G_{\downarrow}$, TMR, TER, P_S , and RA for the five MFTJs at equilibrium.

MFTJs	Polarization and ratio	PC state ($M \uparrow \uparrow$)				APC state ($M \uparrow \downarrow$)				TMR
		$G_{\uparrow}$	$G_{\downarrow}$	$G_{\text{tot}} = G_{\uparrow} + G_{\downarrow}$	P_S	RA	$G_{\uparrow}$	$G_{\downarrow}$	$G_{\text{tot}} = G_{\uparrow} + G_{\downarrow}$	
Au-VSi ₂ P ₄ -Au	P←	6.01×10^{-8}	4.86×10^{-6}	4.92×10^{-6}	0.975	0.0632	3.50×10^{-7}	3.56×10^{-7}	7.07×10^{-7}	596.68%
	P→	6.00×10^{-8}	4.89×10^{-6}	4.95×10^{-6}	0.976	0.0628	3.6×10^{-7}	3.52×10^{-7}	7.12×10^{-7}	594.80%
	TER			0.61%					0.71%	
Au-MoTe ₂ -VSi ₂ P ₄ -MoTe ₂ -Au	P←	6.33×10^{-10}	4.50×10^{-9}	5.13×10^{-9}	0.753	60.624	8.86×10^{-10}	5.71×10^{-10}	1.45×10^{-9}	253.56%
	P→	7.02×10^{-10}	5.32×10^{-9}	6.02×10^{-9}	0.767	51.661	5.47×10^{-10}	1.16×10^{-9}	1.71×10^{-9}	252.00%
	TER			17.35%					17.90%	
TiSe ₂ -VSi ₂ P ₄ -TiSe ₂	P←	8.72×10^{-10}	1.35×10^{-7}	1.36×10^{-7}	0.986	2.2868	1.49×10^{-8}	8.13×10^{-9}	2.30×10^{-8}	489.65%
	P→	1.03×10^{-9}	1.60×10^{-7}	1.61×10^{-7}	0.987	1.9317	9.38×10^{-9}	1.79×10^{-8}	2.73×10^{-8}	490.44%
	TER			18.38%					18.70%	
TiSe ₂ -MoTe ₂ -VSi ₂ P ₄ -MoTe ₂ -TiSe ₂	P←	4.49×10^{-9}	4.24×10^{-8}	4.68×10^{-8}	0.810	6.6452	2.60×10^{-9}	2.07×10^{-7}	2.09×10^{-7}	346.60%
	P→	6.66×10^{-10}	3.14×10^{-8}	3.20×10^{-8}	0.960	9.7188	5.74×10^{-9}	1.34×10^{-7}	1.40×10^{-7}	337.50%
	TER			46.25%					49.30%	
Au-MoTe ₂ -VSi ₂ P ₄ -MoTe ₂ -TiSe ₂	P←	9.88×10^{-11}	4.68×10^{-10}	5.67×10^{-10}	0.651	548.50	1.28×10^{-9}	1.70×10^{-9}	2.99×10^{-9}	427.30%
	P→	1.41×10^{-11}	1.09×10^{-9}	1.10×10^{-9}	0.978	282.72	9.37×10^{-10}	4.90×10^{-9}	5.84×10^{-9}	430.90%
	TER			94.00%					95.30%	

VSi₂P₄-Au MFTJ 铁电滑移, 可以看到 $P \rightarrow$ 态和 $P \leftarrow$ 态的 PDOS 图基本一致, 特别是多铁层 VSi₂P₄ 的电子结构特性显示了类金属特性, 最终造成 $P \rightarrow$ 态和 $P \leftarrow$ 态阻态几乎无变化, 导致 TER 很低. 对于 TiSe₂-VSi₂P₄-TiSe₂ 器件, 中间多铁层 VSi₂P₄ 的磁性半导体特性得以保存, 以及界面结构在两种铁电极化状态下的相对不对称, 最终造成了相对较大的 TER.

为了进一步阐明这两种器件的输运机理, 计算了自旋相关的输运谱在二维布里渊区的分布, 如图 7 所示. 对于 Au-VSi₂P₄-Au 器件的 PC 态, Au 电极的入射波函数位于图 8(a) 的红色区域, 经过双层 VSi₂P₄ 的自旋向上与自旋向下通道之后, 最终产生了图 7(a) 中 $P \rightarrow$ PC 态和 $P \leftarrow$ PC 态 4 个

输运谱. 由于 VSi₂P₄ 自旋向下输运通道分布较广, 所以入射波函数衰减较少, 导致了较大的电导. 对于器件的 APC 态, 由于波函数衰减通道介于 PC 的两个自旋通道数量之间, 最终导致电导介于二者之间. 然而我们发现, VSi₂P₄ 的中心具有输运通道, 在输运谱中却发现该区域具有较小的数值分布, 这是由于电极 Au 和多铁层 VSi₂P₄ 之间层间距离较小, 产生了较强的界面耦合, 使 VSi₂P₄ 的电子结构特性发生变化, 从而造成了其金属化. 图 9(a) 计算了 Au-VSi₂P₄-Au 器件的差分态密度, 电荷在积累区与耗尽区的分布极度不均衡, 表明 Au/VSi₂P₄ 两层之间产生了很大电荷转移, 使 VSi₂P₄ 表现出了类金属特性, 其铁电极化受到了很大的影响, 最终也造成了较小的 TER. 接下来研究 TiSe₂-VSi₂P₄-

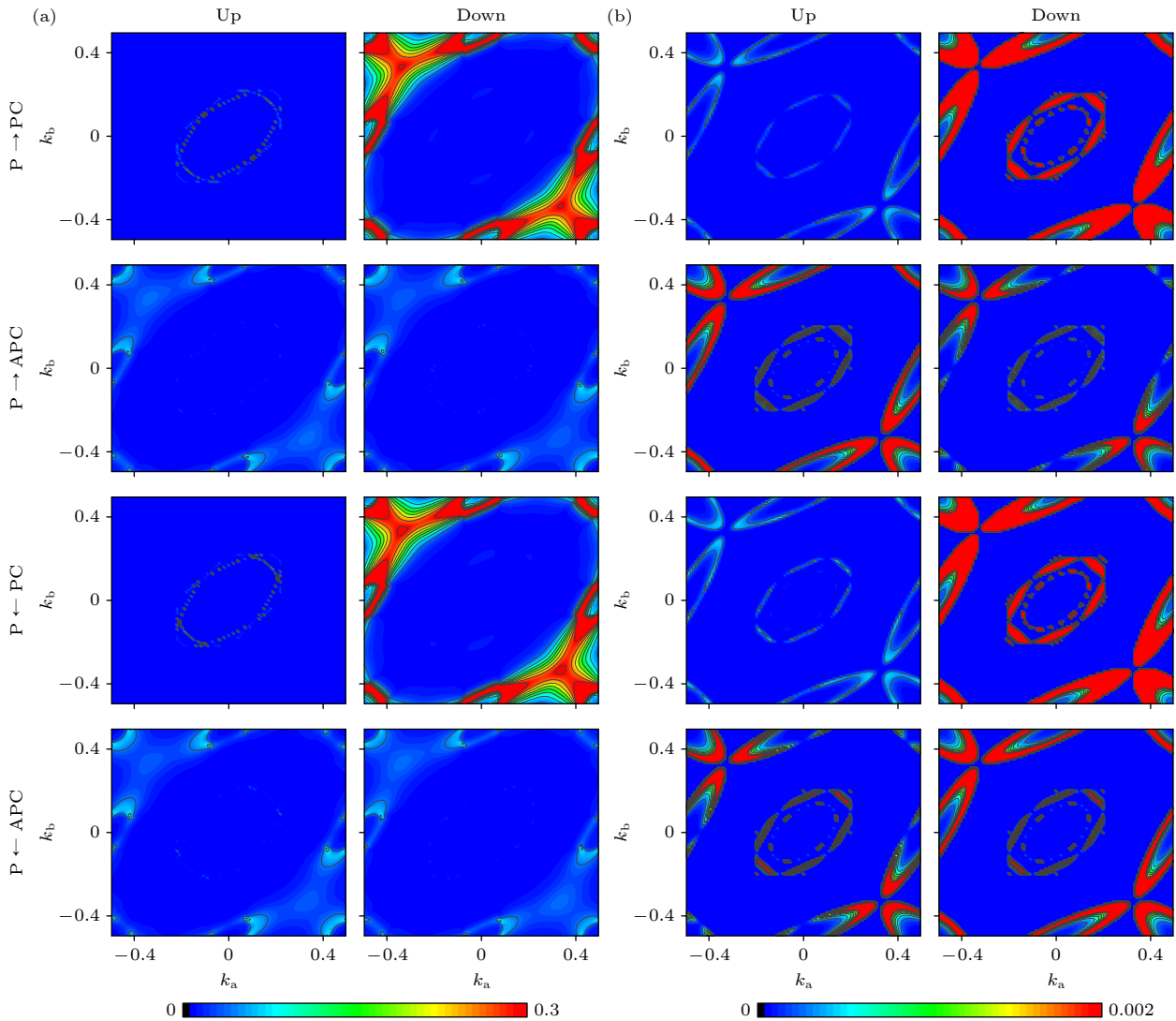


图 7 Au-VSi₂P₄-Au 器件 (a) 与 TiSe₂-VSi₂P₄-TiSe₂ 器件 (b) 输运谱在二维布里渊区的分布

Fig. 7. Transmission spectra in the two-dimensional Brillouin zone for (a) the Au-VSi₂P₄-Au device and (b) the TiSe₂-VSi₂P₄-TiSe₂ device.

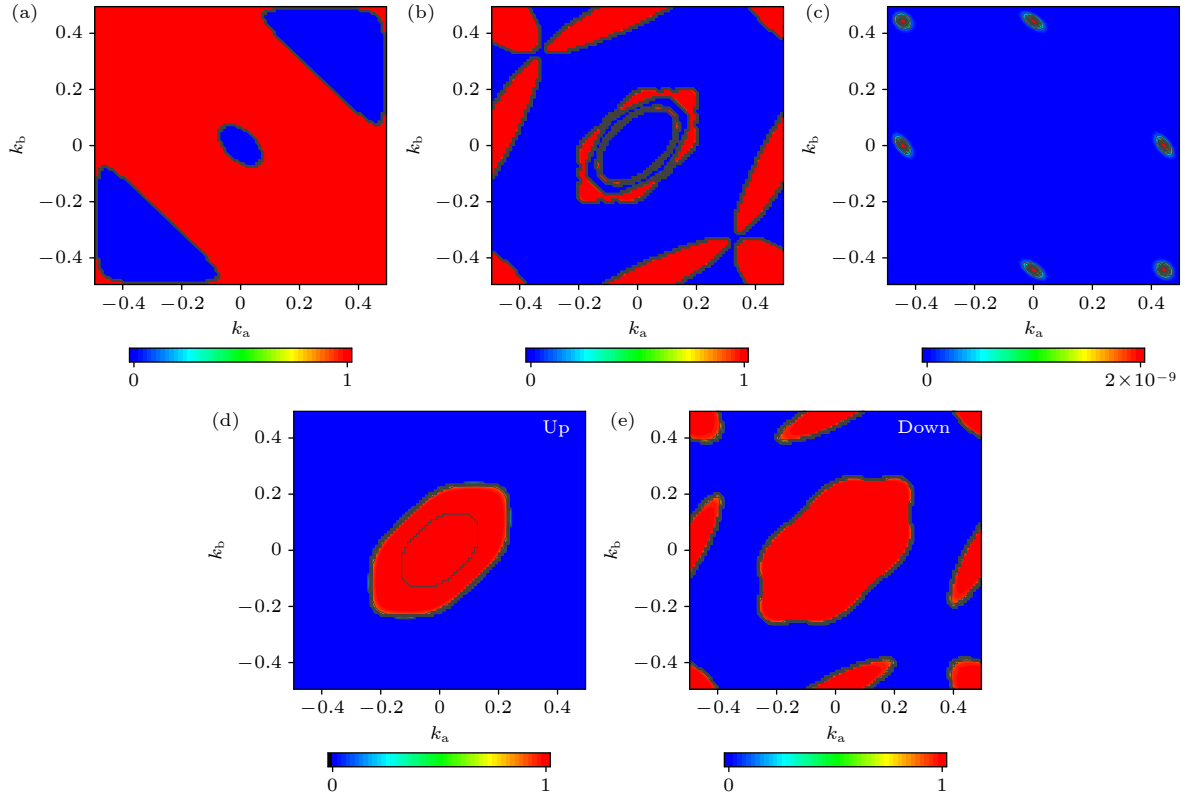


图 8 Au 电极 (a) 与 TiSe_2 电极 (b) 的 k 空间入射波函数分布; MoTe_2 (c) 与单层 VSi_2P_4 (d), (e) 在 k 空间最低衰减率

Fig. 8. Distribution of incoming wave functions in k -space for the Au electrode (a) and the TiSe_2 electrode (b); the lowest decay rate in k -space for MoTe_2 (c) and monolayer VSi_2P_4 (d), (e).

TiSe_2 MFTJ 输运机理, TiSe_2 的入射波函数分布于二维布里渊区的四角以及镂空的中心区, 如图 8(b) 所示. 对于 PC 态, 经过 VSi_2P_4 自旋向上的输运通道, 边界波函数进行了两次衰减, 中心区不衰减, 最终形成了如图 7(b) 所示的 PC 态自旋向上的透射系数分布. 而对于 PC 态自旋向下通道, 由于 TiSe_2 的入射波函数和 VSi_2P_4 自旋向下的输运通道分布类似, 所以不经过衰减就可以到达另一端电极. 因此, 自旋向下的输运谱分布与自旋向上输运谱分布虽然类似, 但是数值要大, 也即电导和 P_S 要大. 对于 APC 态, 自旋向上和自旋向下的透射系数分布基本相同且热点数介于 PC 态自旋向上和自旋向下之间, 都由 TiSe_2 的入射波函数经一次衰减形成, 所以导致 TMR 比较大. 此外, 由于 TiSe_2 - VSi_2P_4 界面耦合影响较小, 双层 VSi_2P_4 的双极半导体特性和铁电极化得以保留, 因此 TiSe_2 - VSi_2P_4 - TiSe_2 MFTJ 的 TER 略大于 Au - VSi_2P_4 - Au MFTJ.

从图 9(c) TiSe_2 - VSi_2P_4 - TiSe_2 MFTJ 的差分态密度可以看出, TiSe_2 / VSi_2P_4 之间的电荷转移小于

$\text{Au}/\text{VSi}_2\text{P}_4$ 之间的电荷, 所以 TiSe_2 - VSi_2P_4 - TiSe_2 MFTJ 的 VSi_2P_4 电子结构特性变化小.

为了降低界面的影响, 在 $\text{Au}/\text{VSi}_2\text{P}_4$ 以及 $\text{TiSe}_2/\text{VSi}_2\text{P}_4$ 之间插入 2H 相的 MoTe_2 , 该材料与 VSi_2P_4 的晶格失配仅为 1.1%, 因此产生了 3 种新的界面, 即 VSi_2P_4 - MoTe_2 , Au - MoTe_2 及 TiSe_2 - MoTe_2 . 为确定这些界面的堆叠构型, 计算了不同堆叠方式的能量, 如图 10 所示. VSi_2P_4 - MoTe_2 界面的 3 种堆叠方式为 P-Mo, V-Mo 及 Si-Mo, 其中 Si-Mo 是最佳堆叠构型. Au - MoTe_2 界面和 TiSe_2 - MoTe_2 界面的最低能量堆叠构型分别为 Au -Mo 及 Ti -Te. 基于此, 构造出图 11(a), (b) 所示的两种新 MFTJs 器件, 分别标记为 Au - MoTe_2 - VSi_2P_4 - MoTe_2 - Au , TiSe_2 - MoTe_2 - VSi_2P_4 - MoTe_2 - TiSe_2 . 将 Au - MoTe_2 - VSi_2P_4 - MoTe_2 - Au 器件与未加插层的 Au - VSi_2P_4 - Au 器件进行对比, 电导明显下降, 但 TER 却得到了明显提高, 如表 1 所列. 分析图 12(a) PDOS 可知, 金属电极 Au 与 VSi_2P_4 之间出现宽泛的蓝色区域且在费米能级处的双层 VSi_2P_4 之间蓝色区域扩大, 表明两者间的波函数耦合明显隔离.

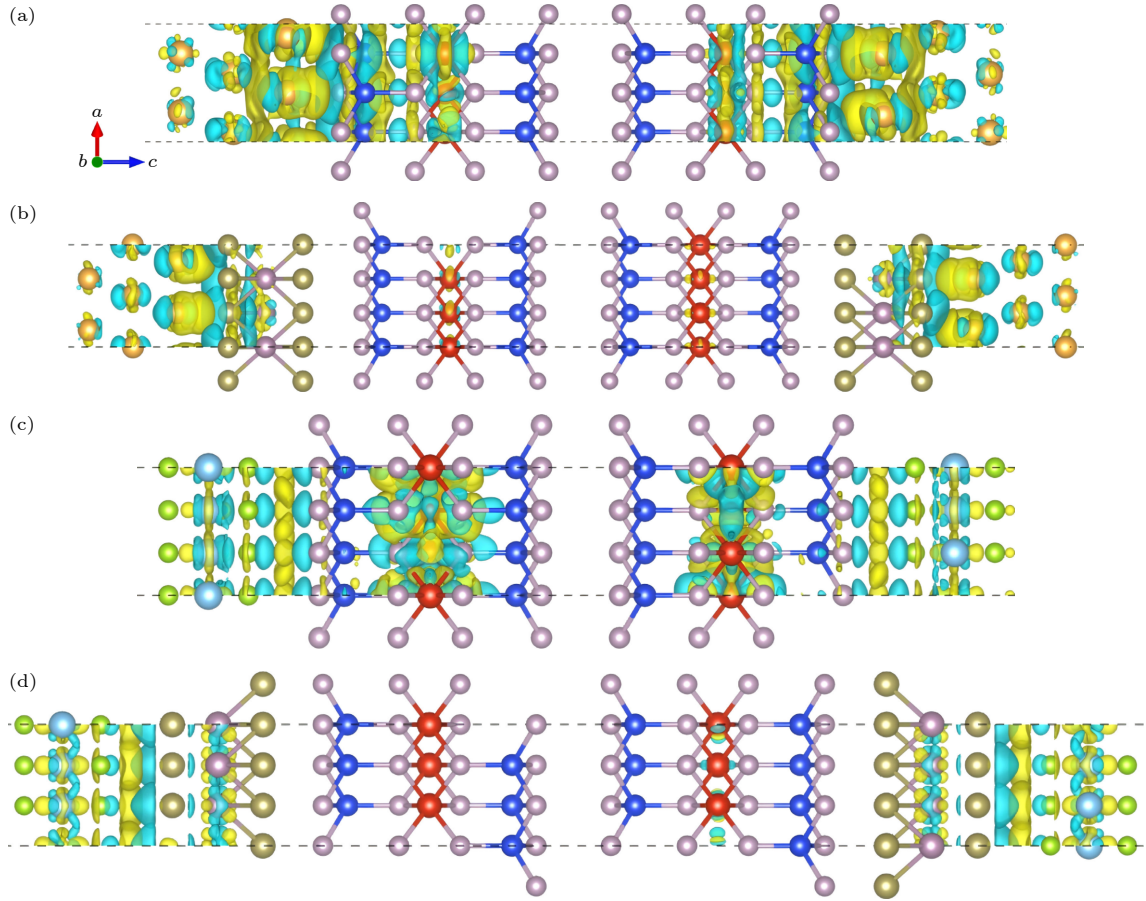


图9 4种不同MFTJs器件中心散射区域的差分电荷密度 (a) Au-VSi₂P₄-Au; (b) Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-Au; (c) TiSe₂-VSi₂P₄-TiSe₂; (d) TiSe₂-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂; 黄色和绿色区域分别表示电荷积累与耗尽区域

Fig. 9. Differential charge density of the central scattering region for four different MFTJs devices: (a) Au-VSi₂P₄-Au MFTJ; (b) Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-Au MFTJ; (c) TiSe₂-VSi₂P₄-TiSe₂ MFTJ; (d) TiSe₂-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂ MFTJ. The yellow and green regions represent charge accumulation and depletion regions, respectively.

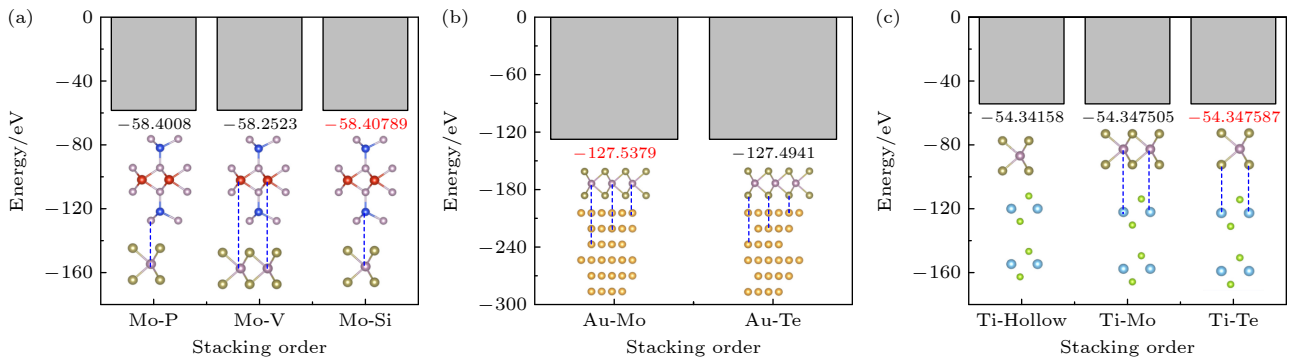


图10 3种不同界面总能量随不同堆叠顺序变化的对比图 (a) VSi₂P₄-MoTe₂; (b) Au-MoTe₂; (c) TiSe₂-MoTe₂

Fig. 10. Comparison of the total interface energy for three different interfaces under different stacking orders: (a) VSi₂P₄-MoTe₂; (b) Au-MoTe₂; (c) TiSe₂-MoTe₂.

为了进一步探明 MoTe₂ 层保留了双层 VSi₂P₄ 的固有特性, 计算了两种新器件的差分态密度 (如图 9(b), (d) 所示), 比较图 9(b) 与图 9(a), 双层 VSi₂P₄ 左右的电荷远远减小, 从而很好地保留了其多铁特性, 导致 TER 明显增大. 类似的现象发

生在 TiSe₂-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂ 器件, 这里不再进行叙述.

为了进一步提升器件的 TER, 构造了一种新的不对称电极 MFTJ 器件 Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂, 如图 11 所示. PC 态与 APC 态下的 TER

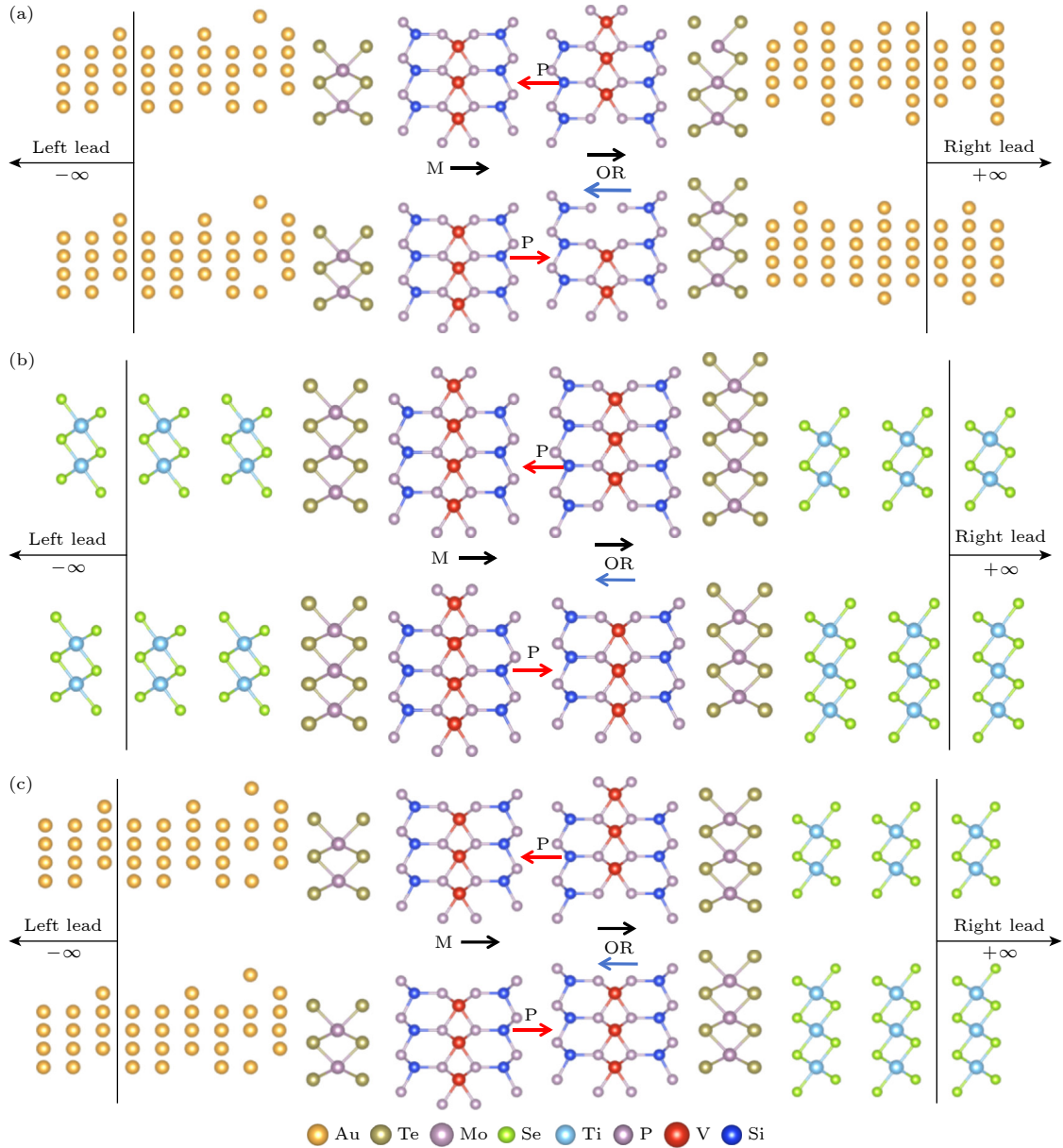


图 11 Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-Au 器件 (a)、TiSe₂-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂ 器件 (b) 和 Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂ 器件 (c) 的结构示意图

Fig. 11. Schematic diagrams of the (a) Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-Au device, (b) TiSe₂-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂ device, and (c) Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂ device.

分别达到 94.0% 和 95.3%. 为了分析 TER 增大的原因, 图 13(c) 给出了该器件在二维布里渊区的输运谱. 对于 PC 态, 可以观察到 P→态与 P←态的输运谱在布里渊区的分布范围基本一致, 而自旋向下热点数在 P→态中明显大于 P←态, 这导致较高的 TER. 对于 Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-Au 和 TiSe₂-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂ MFTJs, 如图 13(a), (b) 所示, P→态与 P←态相比较, 透射系数的热点数差异不大且布里渊区的分布范围基本一致, 这导致 TER 较小, 此外, 类似情况也出现在 APC 态.

为了更加深入地研究 TER 变化机理, 对 5 种器件在输运方向的平均静电势与电压降进行了研究. 首先比较器件 Au-VSi₂P₄-Au 与 TiSe₂-VSi₂P₄-TiSe₂. 如图 14(a), (b) 所示, 虽然两种器件的势函数在电极和势垒区域分布均匀, 但是电极和势垒层之间界面处的势函数降幅相差较大, 分别为 3.68 eV 和 5.81 eV; 对于电压降而言, 前者界面处的变化相对较小, 后者变化幅度大于前者. 这是由于前者的电极与势垒层之间的界面耦合强, 电荷转移相对较多, 从而造成相对较低势垒和较好的导电

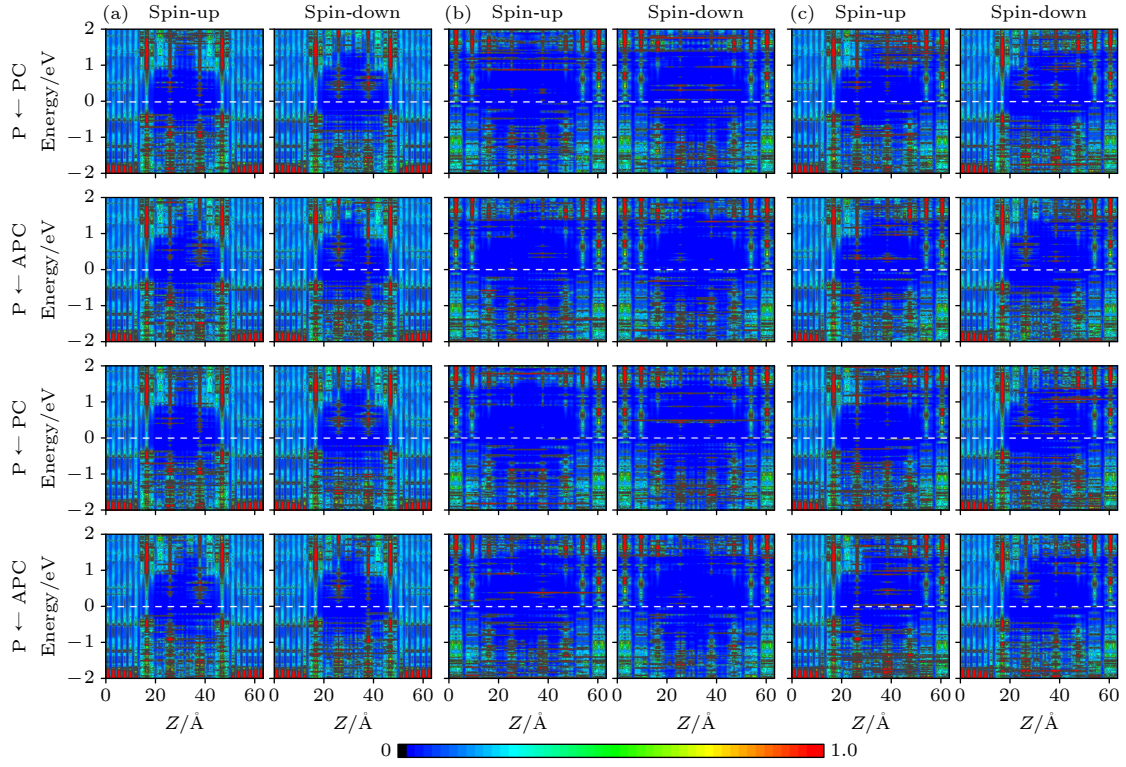


图 12 Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-Au 器件 (a)、TiSe₂-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂ 器件 (b) 和 Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂ 器件 (c) 中心区沿着输运方向 (z 轴) 的自旋分辨投影态密度 (PDOS)

Fig. 12. PDOS along the transport direction (z -axis) in the central region of the (a) Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-Au device, (b) TiSe₂-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂ device, and (c) Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂ device.

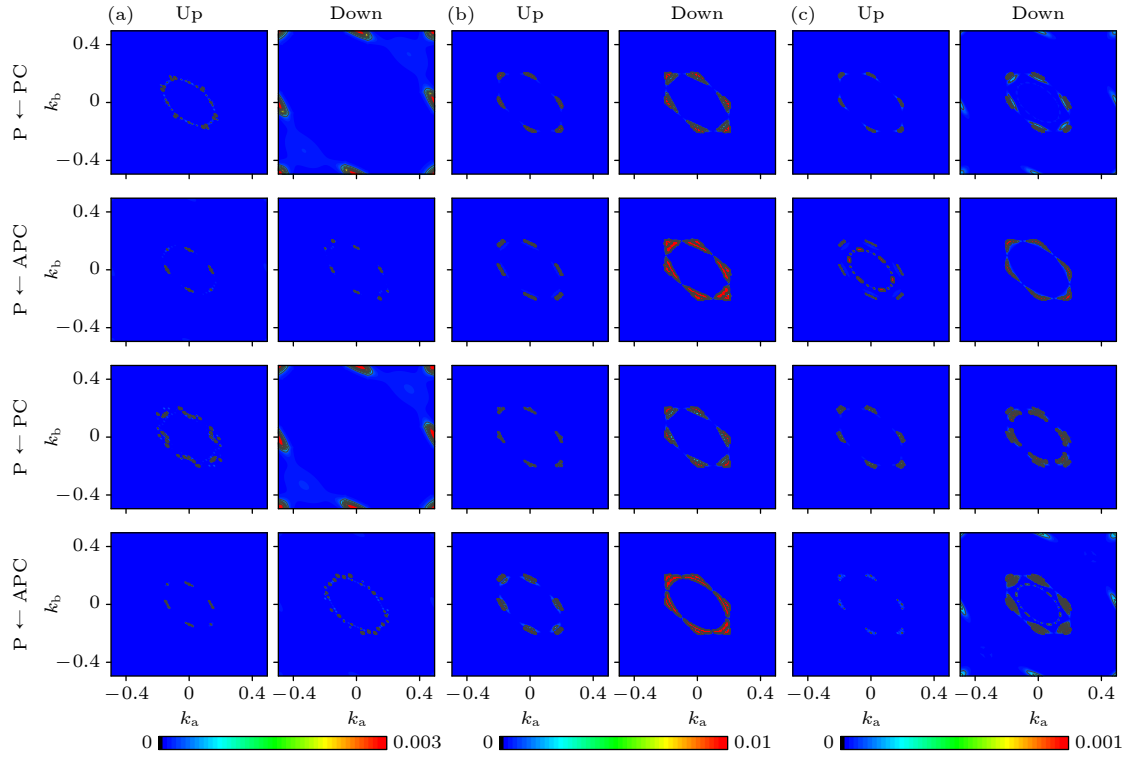


图 13 Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-Au 器件 (a)、TiSe₂-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂ 器件 (b) 和 Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂ 器件 (c) 输运谱在二维布里渊区的分布

Fig. 13. Transmission spectra in the two-dimensional Brillouin zone for (a) the Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-Au device, (b) the TiSe₂-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂ device, and (c) the Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂ device.

特性. 后者电压降较大不对称性和势函数的相对较大振幅造成了偏大的 TER. 对于具有插层的对称性器件, Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-Au 器件界面的势函数降幅为 7.88 eV, 中间势垒层的势函数表现出明显的不对称, 特别是 MoTe₂ 与 VSi₂P₄ 的连接处, 和器件 Au-VSi₂P₄-Au 相比表现出明显的差异, 所以造成了 TER 的增大, 如图 14(a), (c) 所示. 从电压降分析可以看到, 由于插层 MoTe₂ 与电极之间较大的电荷转移造成了较小的电压降, 插层 MoTe₂ 与 VSi₂P₄ 之间较少的电荷转移造成相对较大的势垒和压降, 而且其电压降表现出了较大的

不对称性. 相似的现象发生在器件 TiSe₂-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂ 与器件 TiSe₂-VSi₂P₄-TiSe₂ 中的对比中, 这里不再进行叙述.

最后对具有插层的不对称器件 Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂ 进行分析, 发现插层左右两端与电极的势函数分布都存在明显差别, 不仅降幅相差较大, 而且完全不对称, 最终造成了 TER 的急剧增大. 从电压降分析可以看到, 其在插层 MoTe₂ 与电极区域变化相对较小, 在插层 MoTe₂ 与 VSi₂P₄ 之间变化幅度较大, 特别是右端的压降较为明显, 即势垒较大. 为了更加直观地展示电子波函数在

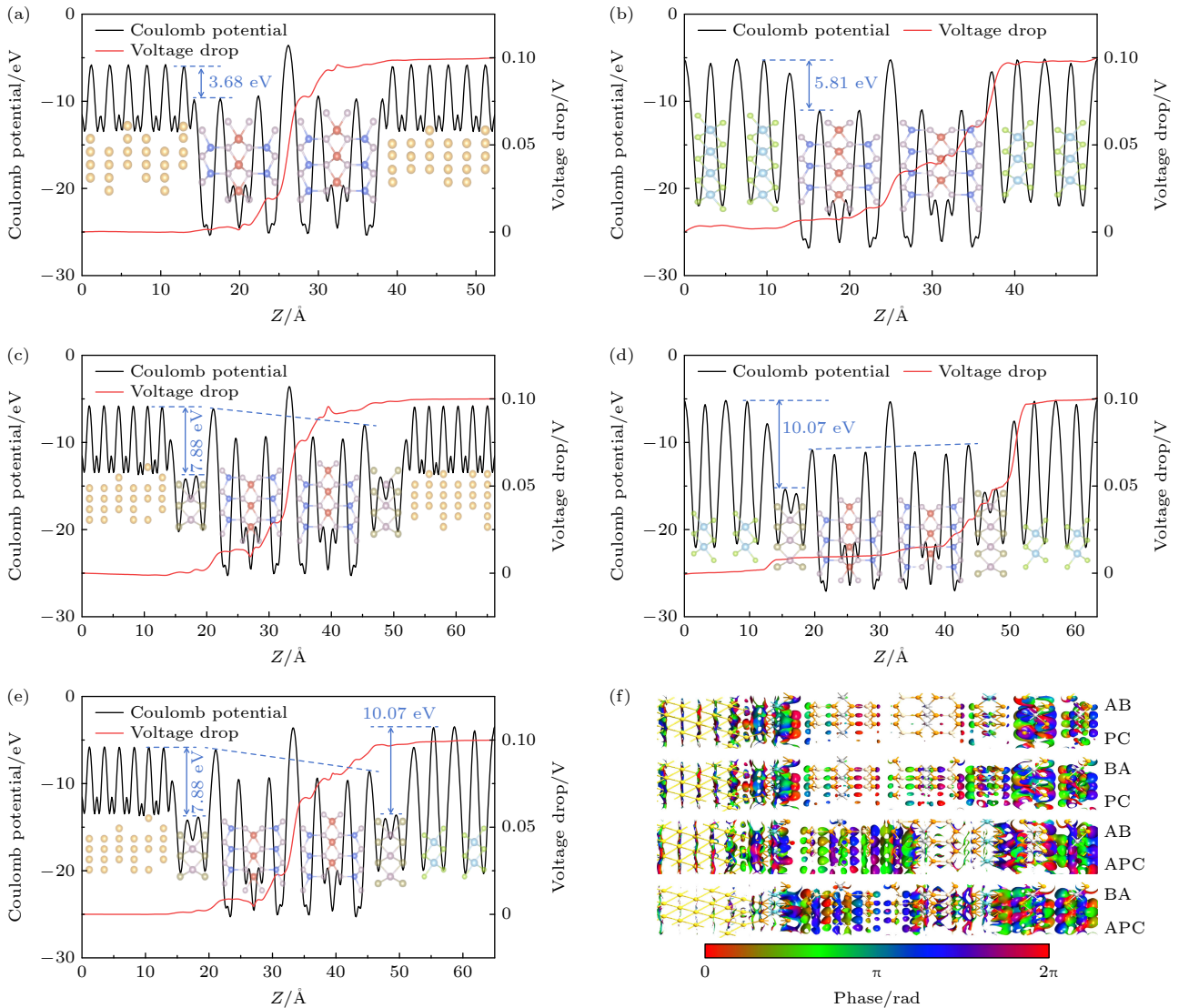


图 14 (a)–(e) Au-VSi₂P₄-Au 器件 (a)、TiSe₂-VSi₂P₄-TiSe₂ 器件 (b)、Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-Au 器件 (c)、TiSe₂-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂ 器件 (d)、Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂ 器件 (e) 的平均静电势和电压降; (f) Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂ 器件 AB 和 BA 堆叠在 PC 及 APC 磁化情形下自旋向下方向输运谱热点的本征态电子波函数

Fig. 14. (a)–(e) Average electrostatic potentials and voltage drops for (a) Au-VSi₂P₄-Au, (b) TiSe₂-VSi₂P₄-TiSe₂, (c) Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-Au, (d) TiSe₂-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂ and (e) Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂; (f) the spin down electronic eigenstates of hot spots for Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂ under AB and BA stacking configurations with PC and APC.

传输过程中的受阻情况, 图 14(f) 给出了器件 Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂ 在 AB 和 BA 堆叠两种磁化情形下自旋向下方向输运热点的本征态电子波函数图. 对于 PC 磁化情形, AB 堆叠器件的电子波函数主要分布在两端的电极中, 在中间势垒层的分布则相对较少, 这表明电子波函数的传输在势垒层受阻. 而当铁电极化方向反转时, 电子波函数在右端 VSi₂P₄ 与 MoTe₂ 的界面处分布大大增加, 在两端电极中的分布基本不变, 导致电子波函数的传输在 BA 堆叠器件得到了显著增强, 因此造成了较大的 TER. 相似的现象发生在 APC 磁化情形下的两种铁电极化状态, 这里不再进行叙述.

上述结果表明, 引入不对称电极可显著提升 TER 比值并保持可观的 TMR(427.3% 与 430.9%), 如表 1 所列. 此外, 还计算了这 5 种 MFTJs 的 RA, 其数值小于先前计算的钙钛矿-氧化物 MFTJs 的 RA(约数 kΩ·μm²)^[29]. 低的 RA 可使器件具备更快的响应速度, 同时也可直接降低器件的焦耳热损耗与工作电压, 从而显著降低功耗并提高数据传输速率^[30,31]. 此外, 更小的 RA 能带来更大的电导绝对变化量, 从而增强信号可分辨性与读取可靠性, 避免因电阻过高而导致性能虚高^[32], 这一特性可让 MFTJ 满足高密度存储单元的要求. 我们构造的器件在保持 TMR 相对较大的情况下, 取得了较大的 TER 数值, 该研究成果在由无磁电极组成的范德瓦耳斯多铁隧道结研究中相对优异^[17,33].

4 结 论

本文通过第一性原理密度泛函理论计算, 发现双层 VSi₂P₄ 在 AB 和 BA 堆叠情况下具有自发垂直铁电极化和层间反铁磁性, 即本征多铁性. 随后利用双层 VSi₂P₄ 构造了 5 种 MFTJs, 基于密度泛函理论与非平衡格林函数相结合的方法, 研究了不同电极、界面耦合以及非对称器件结构对电子输运特性的影响. Au-VSi₂P₄-Au 器件和 TiSe₂-VSi₂P₄-TiSe₂ 器件, 由于双层 VSi₂P₄ 的自旋过滤特性, 表现出了较大的 TMR. 然而由于 Au 电极与 VSi₂P₄ 有较强的界面耦合, 导致 Au-VSi₂P₄-Au 器件中的 VSi₂P₄ 电子结构特性发生显著变化, 趋于金属特性, 导致 TER 非常小. 为了减小界面电荷转移, 在 Au-VSi₂P₄ 界面和 TiSe₂-VSi₂P₄ 界面之间引入 MoTe₂ 插层, 使得双层 VSi₂P₄ 的铁电极化得以保存, Au-VSi₂P₄-Au 器件的 TER 从 0.61% 和 0.71% 提升到 Au-MoTe₂-VSi₂P₄-

MoTe₂-Au 器件的 17.35% 和 17.90%, TiSe₂-VSi₂P₄-TiSe₂ 器件的 TER 从 18.38% 和 18.70% 提升到 TiSe₂-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂ 器件的 46.25% 和 49.30%. 为了进一步提高 TER, 采用不对称电极器件 Au-MoTe₂-VSi₂P₄-MoTe₂-TiSe₂, TER 进一步扩大至 95.3% 和 94.0%, 同时 TMR 保持相对较大. 另外发现这 5 种器件的 RA 相对较小, 远低于钙钛矿氧化物 MFTJs. 这些研究结果表明了 vdW 多铁材料 VSi₂P₄ 应用于新一代自旋电子学器件的巨大潜力.

参考文献

- [1] Wang M X, Cai W L, Cao K H, et al. 2018 *Nat. Commun.* **9** 671
- [2] Meng D H, Ma X Z, Shen Z Z, Xu L, Peng L M, Qiu C G 2026 *Sci. Adv.* **12** eaca5020
- [3] Su Y R, Li X L, Zhu M, Zhang J, You L 2021 *Nano Lett.* **21** 1175
- [4] Dong X L, Shen X M, Sun X W, Bai Y H, Yan Z, Xu X H 2023 *Phys. Rev. B* **108** 085427
- [5] Wen Z, Wu D 2020 *Adv. Mater.* **32** 1904123
- [6] Yin Y W, Li Q 2017 *J. Materiomics* **4** 245
- [7] Borisov V S, Ostanin S, Achilles S, Henk J, Mertig I 2015 *Phys. Rev. B* **92** 075137
- [8] Pantel D, Goetze S, Hesse D, Alexe M 2012 *Nat. Mater.* **11** 289
- [9] Wang H Y, Wu H, Zhang J, et al. 2023 *Nat. Commun.* **14** 5173
- [10] Zhang P Y, Chung T F, Li Q W, et al. 2022 *Nat. Mater.* **21** 1373
- [11] Bonilla M, Kolekar S, Ma Y, et al. 2018 *Nat. Nanotech.* **13** 289
- [12] Yang W, Xu Y B, Li S, Han J C, Chen J Y, Rojas-Sanchez J C, Mangin S, Lin X Y, Zhao W S 2025 *ACS Nano* **19** 38573
- [13] Yu X, Zhang X W, Wang J L 2024 *ACS Nano* **17** 25348
- [14] Zhang L S, Zhou J, Li H, Shen L, Feng Y P 2021 *Appl. Phys. Rev.* **8** 021308
- [15] Zhou T Y, Xu C, Ren W C 2025 *Nat. Rev. Mater.* **12** 907
- [16] Latychevskaia T, Bandurin D A, Novoselov K S 2024 *Nat. Rev. Phys.* **6** 426
- [17] Feng Y L, Han J C, Zhang K, Lin X Y, Gao G Y, Yang Q, Meng S 2024 *Phys. Rev. B* **109** 085433
- [18] Li S, Wang Q Q, Zhang C M, Guo P, Yang S A 2021 *Phys. Rev. B* **104** 085149
- [19] Zhang T, Xu X L, Huang B B, Dai Y, Kou L Z, Ma Y D 2022 *Mater. Horiz.* **10** 483
- [20] Perdew J P, Burke K, Ernzerhof M 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 3865
- [21] Hammer B, Hansen L B, Nørskov J K 1999 *Phys. Rev. B* **59** 7413
- [22] Smidstrup S, Stradi D, Wellendorff J, et al. 2017 *Phys. Rev. B* **96** 195309
- [23] Smidstrup S, Markussen T, Vancraeyveld P, et al. 2020 *J. Phys.: Condens. Mat.* **32** 015901.
- [24] Xi R J, Feng Y L, Zhang K, et al. 2025 *Appl. Phys. Lett.* **127** 112404
- [25] Zhu Y J, Su M, Ye H S, Bai D M, Wang J L 2023 *Phys. Rev. B* **108** 125413
- [26] Han J C, Zhou D M, Yang W, et al. 2024 *J. Mater. Chem. C*

- 12 696
- [27] Fukui T, Hatsugai Y, Suzuki H 2005 *J. Phys. Soc. Jpn.* **74** 1674
- [28] Henkelman G, Uberuaga B P, Jónsson H, 2000 *J. Chem. Phys.* **113** 9901
- [29] Velev J P, Duan G G, Burton J, Smogunov A, Niranjani M K, Tosatti E, Jaswal S, Tsymbal E Y 2009 *Nano Lett.* **9** 427
- [30] Li H J, Bai H, Hu S Q, Zeng C H 2026 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **18** 12029
- [31] Li X L, Zhu M, Dong J T, Wu K, Zheng F X, Zhang J 2025 *Chin. Phys. Lett.* **42** 100701
- [32] Guo X H, Zhang J, Yao K L, Zhu L 2025 *Adv. Funct. Mater.* **35** 2423855
- [33] Yan Z, Yang R X, Fang C, Lu W T, Xu X H 2024 *Phys. Rev. B* **109** 205409

SPECIAL TOPIC—Applied magnetism

Tunneling magnetoresistance and electroresistance in multiferroic tunnel junctions based on bilayer VSi_2P_4 *

ZHANG Haitao^{1)2)#} MA Wenxuan^{3)#} SANG Shengbo¹⁾ YANG Wei⁴⁾

ZHANG Kun⁴⁾ HAN Jiangchao^{3)†} GAO Guoying⁵⁾

¹⁾ (Shanxi Energy Internet Research Institute, Taiyuan 030006, China)

²⁾ (Shanxi Key Laboratory of Integrated Energy System, Taiyuan 030024, China)

³⁾ (College of Integrated Circuits, Taiyuan University of Technology, Taiyuan 030024, China)

⁴⁾ (School of Integrated Circuit Science and Engineering, Beihang University, Beijing 100191, China)

⁵⁾ (School of Physics and Wuhan National High Magnetic Field Center, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China)

(Received 17 March 2026; revised manuscript received 8 May 2026)

Abstract

The novel two-dimensional MA_2Z_4 family has attracted significant attention due to its diverse structures and material properties. Among these, the bilayer VSi_2P_4 exhibits simultaneous out-of-plane ferroelectric polarization and interlayer antiferromagnetic coupling in both AB and BA stacking configurations, offering promising prospects for various applications. In this work, based on density functional theory combined with non-equilibrium Green's functions, we investigate the spin transport properties of van der Waals multiferroic devices based on bilayer VSi_2P_4 , considering different electrodes, interfacial coupling, and structural asymmetry. The results show that the spin-filtering effect of bilayer VSi_2P_4 leads to relatively large tunneling magnetoresistance in both Au- VSi_2P_4 -Au and TiSe_2 - VSi_2P_4 - TiSe_2 devices, while the interfacial coupling between electrodes and the barrier layer results in relatively small tunneling electroresistance. By introducing a MoTe_2 interlayer, the tunneling electroresistance of the Au- MoTe_2 - VSi_2P_4 - MoTe_2 -Au device reaches 17.35% and 17.90%, and that of the TiSe_2 - MoTe_2 - VSi_2P_4 - MoTe_2 - TiSe_2 device reaches 46.25% and 49.30%. In the Au- MoTe_2 - VSi_2P_4 - MoTe_2 - TiSe_2 device with asymmetric electrodes, the tunneling electroresistance is further enhanced to 95.3% and 94.0%, while the tunneling magnetoresistance remains relatively large. These findings are expected to advance the development of two-dimensional intrinsic multiferroic tunnel junctions and related in-memory computing devices.

Keywords: first-principles calculations, two-dimensional ferromagnetism, multiferroics, tunnel junctions

DOI: 10.7498/aps.75.20260376

CSTR: 32037.14.aps.75.20260376

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12004021) and the Application Basic Research Project of Shanxi Province, China (Grant No. 202403021221033).

These authors contributed equally.

† Corresponding author. E-mail: jiangchao_han@buaa.edu.cn



基于双层 VSi_2P_4 多铁隧道结的隧穿磁阻和电致电阻

张海涛 马文轩 桑胜波 杨维 张昆 韩江朝 高国营

Tunneling magnetoresistance and electroresistance in multiferroic tunnel junctions based on bilayer VSi_2P_4

ZHANG Haitao MA Wenxuan SANG Shengbo YANG Wei ZHANG Kun HAN Jiangchao GAO Guoying

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 75, 150704 (2026) DOI: 10.7498/aps.75.20260376

CSTR: 32037.14.aps.75.20260376

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.75.20260376>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于滑移铁电 VTe_2 多铁隧道结的输运性质

Transport properties of multiferroic tunnel junctions based on sliding ferroelectric VTe_2

物理学报. 2025, 74(20): 207501 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250734>

基于交错磁自旋劈裂的简化双层隧道结隧穿磁阻

Tunneling magnetoresistance in a simplified bilayer tunnel junction based on altermagnetic spin splitting

物理学报. 2026, 75(8): 207501 <https://doi.org/10.7498/aps.75.20251642>

一维 MoI_3 原子链磁性隧道结的巨隧穿磁阻效应及局域自旋调控

Giant tunneling magnetoresistance and localized spin manipulation in one-dimensional MoI_3 atomic chain magnetic tunnel junctions

物理学报. 2026, 75(14): 207501 <https://doi.org/10.7498/aps.75.20260297>

多铁异质结构中电场调控磁性及磁性隧道结的研究进展

Research progress of electric-field control of magnetism and magnetic tunnel junctions in multiferroic heterostructures

物理学报. 2026, 75(6): 207501 <https://doi.org/10.7498/aps.75.20251656>

铁电 PbTiO_3 中的多铁性Aurivillius型界面的第一性原理研究

First-principles study of multiferroic Aurivillius-type interfaces in ferroelectric PbTiO_3

物理学报. 2025, 74(11): 116301 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250406>

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

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

物理学报. 2026, 75(2): 116301 <https://doi.org/10.7498/aps.75.20251308>