非范德华二维材料在三明治状异质结构中的性质的混合与保持

Anastasiia Nihei [1,2] 和 Rico Friedrich [1,2,*]
[1] *Theoretical Chemistry, Technische Universität Dresden, 01062 Dresden, Germany*
[2] *Institute of Ion Beam Physics and Materials Research, Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf, 01328 Dresden, Germany*（日期：2026年11月25日）

通过堆叠二维材料形成的异质结构界面，为在纳米尺度实现先进的电子和磁功能开辟了一条颇具吸引力的途径。非范德华三明治状异质结构（HSs）由源自非层状晶体的非范德华二维材料构成，开创了实现强界面耦合的新前沿。我们采用 *ab initio* 密度泛函理论（DFT），研究了此类三层结构异质结构的两种类型：纯非范德华组装结构，以及混合范德华/非范德华/范德华堆叠结构。我们发现，非范德华夹层结构会发生显著的几何重构，形成化学键合界面，其绝对结合能高达传统范德华异质结构的一个数量级。这些强相互作用会引发广泛的电子杂化、带隙重整化以及可调控的层间磁耦合。相比之下，范德华封装在很大程度上保护非范德华片层的内禀原子结构和电子结构，使其免受环境影响，同时使范德华层能够通过电荷转移实现掺杂。因此，我们的研究确立了三明治状异质结构作为一种多功能界面设计平台，其涵盖的相互作用区域从受扰动较弱的封装到强相互作用的化学键合体系，并呈现出新兴的电子和磁性行为。

Ke关键词：二维材料、非范德华化合物、异质结构、层间耦合、电 ec-
tro子学、磁性

arXiv:2611.32723v1 [cond-mat.mtrl-sci] 24 Nov 2026

I. 引言

二维材料的快速发展与加工推动了范德华
d（二维）材料异质结构的制备，
o范德华（vdW）异质结构（HSs），其中
a原子级薄层沿垂直方向堆叠，并通过
g弱色散力结合在一起 [1, 2]。这些异质结构提供了
a 用于调控电子能带排列的多功能平台
m 以及层间电荷转移过程，包括层间激子的形成与调控 [4]。它们还能够通过扭转 [5, 6]实现莫尔′物理，同时大体保留组成层各自鲜明的特性。然而，范德华体系固有的弱层间耦合从根本上限制了电子与磁杂化的程度，使显著电荷转移、增强的磁耦合以及新兴的关联态等强耦合界面现象更难实现 [7]。

相比之下，非范德华（non-vdW）二维材料 [8, 9]，包括超薄氧化物，以及由强键合的非层状块体晶体衍生而来的其他二元和三元化合物，为界面工程提供了一种截然不同的途径。与传统范德华材料不同，非范德华化合物不具有化学饱和、由弱范德华键合但反应性更强的解理面 [10]。这使得将其剥离成原子级薄片更具挑战性，但同时也使其成为实现强界面异质结构耦合的理想前驱体。

近期的实验进展确实使得多种非范德华二维材料的制造成为可能，涉及数十种主要为离子型（氧化物）体系[11–45]，包括二维 WO_3，赤铁矿烯（二维 Fe_2O_3）和钛铁矿烯（二维 $FeTiO_3$）。此外，计算研究甚至指出，潜在的材料空间可能涵盖数千种体系 [46–55]。早期研究主要聚焦于液相剥离，后续研究则确立了更广泛的非范德华二维材料制备方法，包括化学剥离、分子束外延、化学气相沉积及其他薄膜生长技术 [8, 30, 56]。这表明，缺少传统范德华解理面并不妨碍实现原子级薄材料，反而促使人们探索替代性的制造策略。

非范德华二维材料日益具备实验可及性，以及当前对堆叠（氧化物）薄膜界面的兴趣不断增加 [57–62]，推动了将其集成到异质结构中。当两种非范德华材料相互接触时，界面处的化学键合与电荷重新分布能够产生杂化电子态和强层间磁交换，从而带来弱耦合范德华异质结构无法获得的性质 [63, 64]。

三层结构，即，夹层式异质结构尤其
这是探索界面耦合的一种颇具前景的结构。与双层结构相比，三层结构包含两个材料界面，并将中心层限制其中，从而为增强层间电子和磁相互作用提供了额外途径。下文为简便起见，分别使用“层”和“三层结构”来指代非范德华异质结构的构成片层和三片层夹心结构，尽管离散的层并非必.....

* rico.friedrich@tu-dresden.de

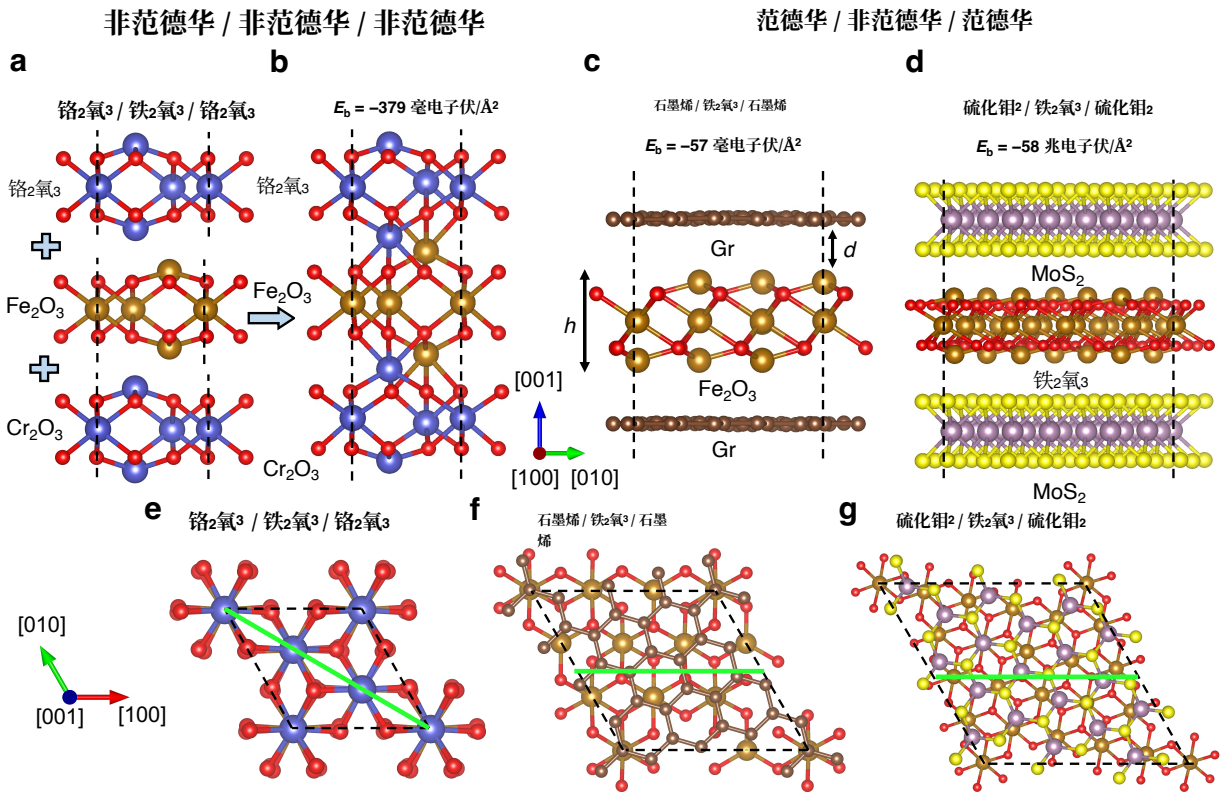


图1. **不同类型夹层式异质结构中的界面键合。(a)** 用于构建**(b)**纯非范德华夹层结构（例如 $Cr_2O_3/Fe_2O_3/Cr_2O_3$）的初始非范德华二维片层示意图。**(c,d)** 混合范德华/非范德华/范德华夹层结构（$Gr/Fe_2O_3/Gr$、$MoS_2/Fe_2O_3/MoS_2$）的优化结构。图中显示了三个体系的单位面积结合能（E_b），证实非范德华夹层结构中的键合显著强于范德华/非范德华/范德华混合结构。以 $Gr/Fe_2O_3/Gr$ 为例，**(c)**中标出了内层厚度 h 和层间距 d。Gr 代表石墨烯。上方各面板中间标示晶体方向的罗盘对应子图**(a-d)**。**(e-g)** 代表性夹层式异质结构的俯视图。绿色线条表示可视化电荷密度差的平面位置。左下方面板中标示晶体方向的罗盘对应子图**(e-g)**。原子颜色：Cr，蓝色；Fe，金色；O，红色；C，棕色；Mo，紫色；S，黄色。

非范德华材料中并不一定能得到明确界定。

在本研究中，我们对由非范德华氧化物和其他二维化合物构成的夹层式异质结构开展了系统的第一性原理研究。我们比较了纯非范德华三层结构与范德华/非范德华/范德华混合堆叠结构，重点考察结构弛豫、界面键合、电荷重分布、电子杂化以及界面磁交换耦合。优化结构已显示非范德华夹层异质结构具有很强的界面键合，而键合能的计算结果进一步对其进行了量化。其键合能是将非范德华化合物夹在范德华层之间的混合结构的三至八倍。电荷密度差分析也进一步支持了这一发现：只有前一类体系在整个界面区域都出现了显著的电荷重组。计算得到的能带结构同样体现出相互作用程度的差异：键合较强的非范德华夹层结构呈现出显著的杂化。最终，这也带来了跨界面的可观磁耦合。然而，当放置.....

通过在夹层结构中间加入一层抗磁片层，可以有效地解耦外层，从而实现在外部磁场下不同构型之间的切换。

II. 结果与讨论

构建与结构弛豫。三明治状（三层结构）异质结构的选择依据非范德华二维材料异质双层系统所得的结果[64]。我们主要关注铁$_2$氧$_3$ 和铬$_2$氧$_3$，等二元化合物，其相应的双层异质结构表现出显著的新兴界面性质，例如杂化界面能带和强磁耦合。三明治状异质结构按照方法部分中的详细说明构建，采用两种互补的设计策略，以研究不同的界面相互作用机制。第一种方法是构建纯非范德华三明治结构，即堆叠三层非范德华层，并由相同材料构成外层

（例如图1(a)所示的 $Cr_2O_3/Fe_2O_3/Cr_2O_3$，）。第二种方法是构建混合范德华/非范德华/范德华异质结构，将非范德华单层封装在两层范德华片层之间，具体为石墨烯或硫化钼$_2$。研究了具有不同扭转角（4°、 17°、 42°和 55°）的 $MoS_2/Fe_2O_3/MoS_2$，异质结构。所有体系最初均以 2 ˚A 的层间距（d）组装，随后采用 SCAN-rVV10泛函 [65–67] 进行弛豫，从而统一描述共价/离子键合和色散相互作用。采用两种方法获得的所有弛豫结构分别展示于补充信息中的图S1（纯非范德华异质结构）和图S2（混合范德华/非范德华/范德华异质结构）中。

结构弛豫后，这两类异质结构表现出截然不同的行为。在纯非范德华夹层结构中，最初彼此分离的层发生显著重构，趋向于类体相几何结构，并形成界面共价键和/或离子键（见图1(**b**)）。我们注意到，在弛豫结构中，每个方向上单个片层所承受的最大应变为 Rh_2氧$_3$ 在 Cr_2氧$_3$/Rh_2氧$_3$/Cr_2氧$_3$中为 2.55%。弛豫后的原子构型与相应的自由单层及初始结构存在显著差异，配位环境、键长和层间距均发生了明显变化。具体而言，界面处的阳离子–氧键长收缩至 2.1 – 2.3 ˚Å，而界面过渡金属离子的局部配位数则从三配位变为六配位。此外，与双层异质结构h相比，内层厚度增加了最多 0.6 ˚Å（标注于图1(**c**）旁），与单个二维片层 [64] 相比，则最多增加 1 ˚Å [47]，，这表明原子发生了部分类体相重组。这些结构畸变表明，堆叠非范德华片层会驱使体系趋向一个新的热力学极小值，其形态类似于强耦合的多层组装体，其中界面键合在稳定异质结构方面起主导作用。

相比之下，混合范德华/非范德华/范德华夹层结构在弛豫过程中表现出极小的结构畸变（图 1(**c,d**)）。非范德华片层基本保留了其自由状态下的几何构型，包覆它的范德华层也保留了各自特有的平面结构。然而，层间距离 d 如表I所示，较小（2.48 – 2

.84 ˚A）与范德华同质双层和异质结构的典型距离相比更小（> 3 ˚A）， [5, 6, 68]，这表明相互作用主要由色散力主导，静电作用或微弱轨道重叠效应仅有少量贡献。这种结构稳健性表明，封装可能是一种可行策略，能够在不根本改变非范德华二维材料固有原子结构及性质的情况下使其稳定。

层间键合：从弱到强的层间相互作用。计算得到的结合能定量支持了这些观察结果（图2）。结合能 E_b根据方法部分中的方程2 定义为弛豫异质结构的总能量与相应孤立且完全弛豫的二维组分能量之和之差

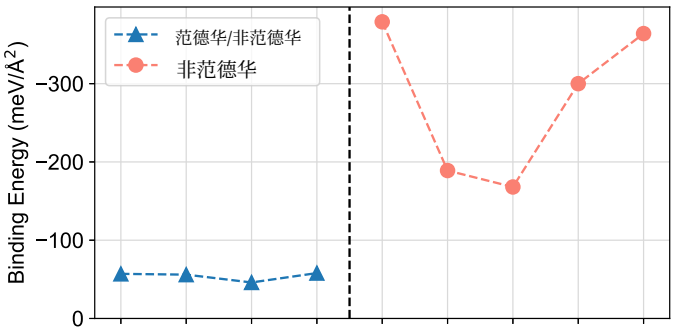


图 2. **结合能**。左侧显示混合范德华/非范德华/范德华异质结构的结合能，右侧则为纯非范德华异质结构的结合能。两类结构由一条竖直虚线分隔。

并按面积归一化。根据定义， E_b为负值，反映了异质结构键合过程中的能量增益。纯非范德华夹层结构表现出强烈的界面耦合，其绝对结合能范围为每个晶胞 168 至 380 meV/ ˚A^2 ，对应于每个界面 84–190 meV/ ˚A^2 。因此，它们的结合能最高几乎是纯范德华相互作用（ ∼20 meV/ ˚A^2 [69–71]）的一个数量级。整组计算得到的夹层式异质结构的结合能，以及层间键合类型和层间距，均列于补充信息中的表 S1。非范德华堆叠结构的数值具有化学键合界面的典型特征，其量级与已报道的强耦合非范德华异质双层的绝对结合能相当（对于 Cr_2O_3/Rh_2O_3 [64] ，在 SCAN+rVV10 水平上重新计算得到的值最高可达 232 meV/ ˚A^2 ），也与非范德华二维材料的剥离能相当 [47, 48]。

表I。所选夹层式异质结构的关键结构与能量参数汇总，包括键合类型、层间距和结合能。Cr_2O_3/Fe_2O_3 的两个数值分别对应于每个界面阳离子与相邻片层中O阴离子之间的层间距。

外层/内层	**层间键合 Type**	**层间距离 d (˚A)**	**结合能 E_b (meV/ ˚A^2)**
铬$_2$氧$_3$/铁$_2$氧$_3$	共价/离子	1.44, 1.47	−379
Gr/铁$_2$氧$_3$	范德华	2.57	−57
硫化钼$_2$/铁$_2$氧$_3$	范德华	2.47	−58

相比之下，混合范德华/非范德华/范德华夹层结构表现出明显较弱的界面键合，其绝对结合能约为 46–59 meV/ ˚A^2 每

个界面对应 23–30 meV/ $^{\circ}A^2$ 。这些数值略高于典型的范德华异质结构结合能（~20 meV/ $^{\circ}A^2$ [64]），表明这些体系处于相对略高的相互作用区间。这种中等强度的结合与这些异质结构中观察到的极小结构畸变相一致，反映出其相互作用主要源于色散相互作用，并辅以较弱的静电/共价贡献。

电荷密度差分析进一步揭示了界面键合本质的微观机制。在纯非范德华夹层结构中（图3(a)），界面附近可观察到显著的电荷重分布，其特征是氧阴离子周围交替出现电荷积累区和阳离子周围的电荷耗尽区，并延伸至界面键。这些发现表明存在强烈的化学相互作用和显著的轨道杂化，与共价键和/或离子键的形成相符。这种行为证实了较大的绝对结合能，也与弛豫过程中观察到的大规模重构一致。

相比之下，混合范德华/非范德华/范德华夹层结构中的电荷重分布要弱得多。如图3(b）所示，Gr/Fe_2O_3/Gr 的电荷密度差表现为范德华层上有少量电子积累，同时相邻非范德华层中出现相应的弥散电荷耗尽。这种重分布对应于少量电荷通过界面净转移至石墨烯，其驱动力为界面静电作用。

对于图$_2$3$_2$($_3$c$_2$ 中以硫化钼$_2$/铁$_2$氧$_3$/硫化钼$_2$ 为例的其他范德华/非范德华/范德华体系，电荷重新分布较小，不会导致层间区域出现显著的电荷积累，也不会形成原子间的定向电荷桥。非范德华层的内部电荷分布和成键拓扑保持完整，表明不存在轨道杂化。这些特征与一种以色散力为主、辅以微弱静电极化效应的相互作用机制相符。总的来说，范德华封装因此能够保护非范德华片层免受环境影响，尽管界面处可能存在少量电荷转移。

电子结构：性质的混合与保留。层间键合的本质决定异质结构的电子性质。与单独的单层和双层异质结构相比，夹层式异质结构通常表现出增强的层间电子耦合，这归因于两个材料界面的存在以及中心层所受到的限域作用。因此，在三层结构组装体中，电子杂化效应可能会增强，但杂化程度在很大程度上取决于界面处的化学性质和成键强度。

在具有界面耦合的纯非范德华夹层结构中，例如 Cr_2O_3/Rh_2O_3/Cr_2O_3，，如图4所示，与组成该结构的二维材料和双层能谱相比，三层结构的整个能带结构中都观察到了显著的电子杂化。投影能带

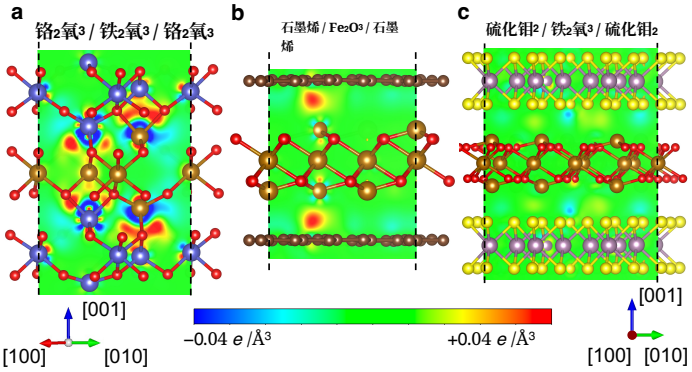


图3. 电荷密度差。(a) Cr_2O_3/Fe_2O_3/Cr_2O_3, 、(b) Gr/Fe_2O_3/Gr 和 (c) MoS_2/Fe_2O_3/MoS_2 的电荷密度差。每个用于展示数据的平面位置均显示在图1(e-g)的俯视图中。色标表示电荷获得（红色）和电荷损失（蓝色）。虚线表示晶胞的周期性边界。左侧的罗盘对应(a)，右侧的罗盘对应(b)和(c)。

结构分析揭示，源自不同二维子系统的电子态发生了广泛混合，因此，所得能带结构无法简单地描述为各组成单层的叠加，甚至也不能描述为相应双层异质结构的叠加。价带和导带均受到影响，与双层结构相比，带隙缩窄了约 0.4 eV，并出现了定性上全新的电子结构。这一行为反映了在稳固的界面键合作用驱动下，形成了强耦合的杂化电子系统。

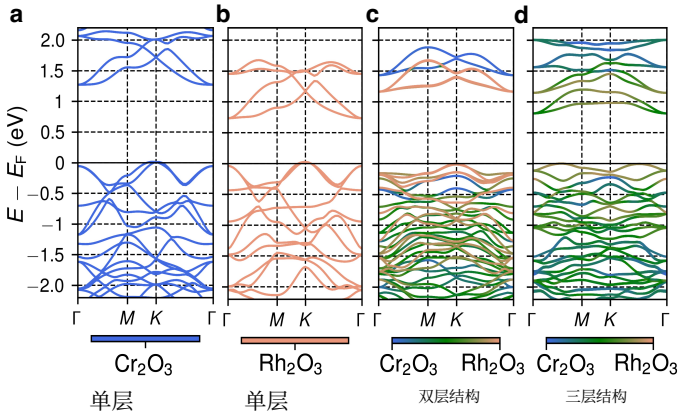


图 4. **投影能带结构的比较**。**(a,b)** 单层 Cr_2O_3 和 Rh_2O_3 的能带结构。**(c)** 双层 Cr_2O_3/Rh_2O_3 能带结构，图中标示了各子系统原子的投影贡献，并以中间色调（绿色）表示杂化态。**(d)** 三层结构 Cr_2O_3/Rh_2O_3/Cr_2O_3 的能带结构。

与此同时，并非所有纯非范德华夹层结构在整个谱

中都表现出强烈的能带杂化。在 $Cr_2O_3/Fe_2O_3/Cr_2O_3$（图5（a））中，尽管存在强烈的界面键合，带隙边缘附近的电子态仍基本保留其层分辨特征。在这种情况下，主要的电子效应是，与双层 HS 相比，带隙增加了 0.3 eV；这可以归因于封装的 Fe_2O_3所衍生表面态能带的消失。这表明，强结构耦合并不一定意味着带隙附近存在强烈的能带混合，尤其是在组成层的电子态在能量或对称性上不匹配时。

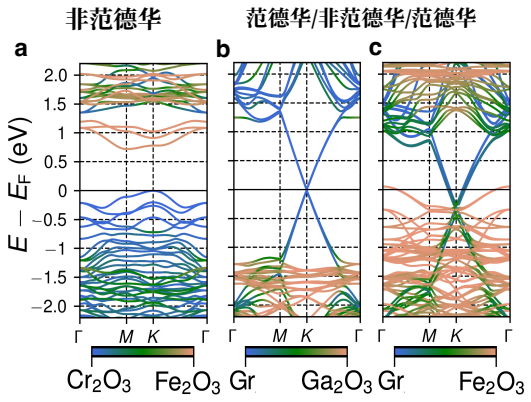


图 5. **非范德华与范德华/非范德华夹层式能带结构的比较。(a)** 非范德华异质结构（$Cr_2O_3/Fe_2O_3/Cr_2O_3$）能带结构。混合范德华/非范德华/范德华异质结构的能带结构：Gr/Ga_2O_3/Gr（**b**）和 Gr/Fe_2O_3/Gr（**c**）。

在混合范德华/非范德华/范德华夹层结构中观察到互补效应。例如，对于夹在石墨烯片层之间的 Ga_2O_3，电子杂化仍然非常微弱，且主要局限于较深的价态，而 Ga_2O_3的带边得以保留（图5(**b**)）。在此情况下，与未封装的本征二维片层相比，封装主要稳定非范德华层，并仅引起可忽略不计的带隙重整化（0.05 eV），且不会从定性上改变其内禀电子结构。

另一方面，用石墨烯封装铁$_2$氧$_3$ 会引发更显著的电子响应。电荷从铁$_2$氧$_3$ 转移至石墨烯，使石墨烯层发生 n 型掺杂；其证据是狄拉克点相对于费米能级向下移动了约 0.32 eV （图 5(**c**)）。这种掺杂使石墨烯进入金属态，而铁$_2$氧$_3$ 则变为 p 型掺杂。这些差异表明，范德华/非范德华/范德华夹层的电子行为强烈依赖于被封装非范德华层的化学和电子性质。补充信息中的图 S3 给出了另外四种三层异质结构的投影能带结构。

总体而言，这些结果已表明，夹心式异质结构为调控电子性质提供了一个多功能平台，可实现从受到微弱扰动、电子上相互解耦的层，到强烈杂化的体系，并由此产生新兴电子态。

磁性与层间交换耦合。界面化学键合介导如今，夹层结构之间也存在显著的磁耦合。通过比较界面对齐（即铁磁（FM）界面）和界面反向对齐（即反铁磁（AFM）界面）构型，研究了纯非范德华夹层异质结构中的磁相互作用。本文考察了两种不同的代表性磁性架构。

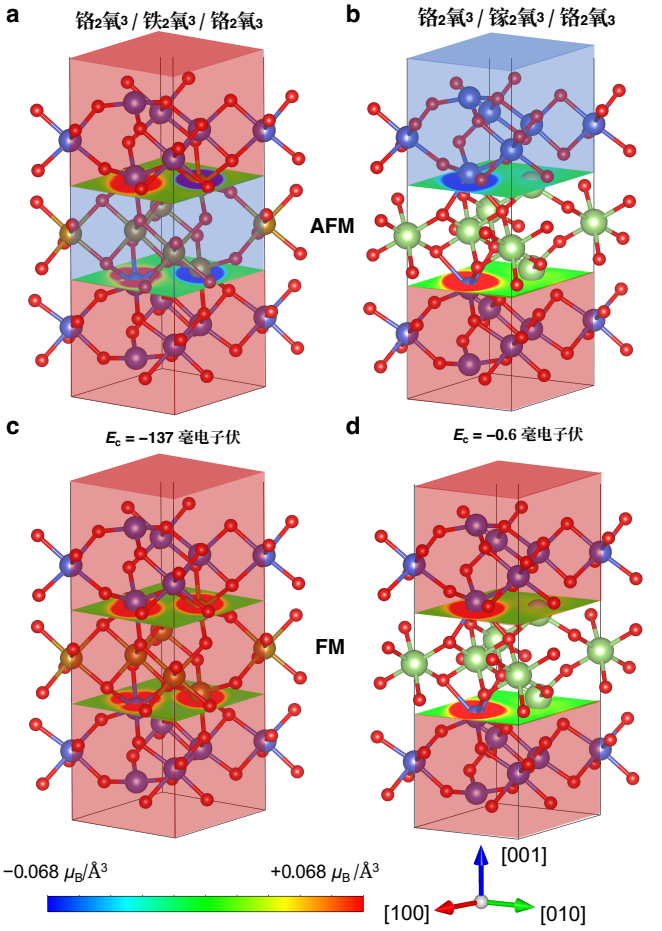


图6. 非范德华类三明治异质结构中的磁耦合。(a) 在 $Cr_2O_3/Fe_2O_3/Cr_2O_3$ 中，中心层的磁化强度相对于外层反向对齐（AFM 界面）构型。(c) 同一体系中的对齐（FM 界面）构型。(b) 和 (d) 为 $Cr_2O_3/Ga_2O_3/Cr_2O3$, *i.e.* 中的 AFM 和 FM 构型，其中以非磁性 Ga_2O_3 作为间隔层。图中还标出了磁耦合能 E_c。红色/蓝色半透明方框分别表示给定非范德华二维片层的总磁化强度正向/负向对齐。界面平面上的红色和蓝色区域分别表示自旋向上和自旋向下的磁化密度。原子颜色同图1，Ga 为浅绿色。

在第一种情况下，三个组成层均具有磁性，以 $Cr_2O_3/Fe_2O_3/Cr_2O_3$ 夹心结构为例。此处，磁构型源于磁6(**a**/**c**)的交替排列方式（AFM/FM（图

内层相对于外层的磁化方向不同。这导致化学键合界面两侧局部磁矩的排列方式不同，而每个片层内的相对排列方式保持不变。界面平面上的红色和蓝色区域分别表示正、负自旋密度贡献，揭示了界面阳离子上磁矩的空间分布及相对取向。两种磁构型之间的对比反映了磁有序的变化，以及由此产生的层间交换相互作用。

在第二种结构中，非磁性的 Ga_2O_3 薄层将两个磁性 Cr_2O_3 层分隔开来。在这种情况下，AFM 和 FM 构型分别由外层中磁矩的反平行和平行排列定义（图 6(**b**/**d**））。磁化密度分布显示，磁极化主要集中在 Cr离子 上，而 Ga_2O_3 间隔层不携带任何自旋极化。这表明，该间隔层在介导外层之间磁耦合的同时，基本保持抗磁性。

在所研究的各种体系中，反平行构型在能量上更为有利，表明反铁磁界面耦合更受偏好。然而，交换相互作用的强度很大程度上取决于结构类型和内层的化学性质。为量化这一行为，本文评估了层间磁耦合能，即两种构型之间的能量差， E_c 。在全磁性三层结构（Cr_2O_3/Fe_2O_3/Cr_2O_3）中，耦合能相当可观，达到每个晶胞 -137 meV，反映出由界面之间的直接化学键合和显著轨道杂化介导的强交换作用。如此大的耦合强度表明其具有稳健的磁有序。

相比之下，当抗磁间隔层将磁性片层分隔开时， E_c 的绝对值会降低约一至两个数量级，通常降至每个晶胞 -1 至 -10 meV；对于 Cr_2O_3/Ga_2O_3/Cr_2O_3 ，可达到 -0.6 meV（Fe_2O_3/$MgTiO_3$/Fe_2O_3 和 Cr_2O_3/Rh_2O_3/Cr_2O_3体系的耦合能见补充信息中的图 S4）。这种降低表明，间隔层有效地解耦了片层。在如此微弱的耦合下，通过外磁场切换构型——例如将这种排列应用于自旋极化隧道结——或许能够实现。

为估算切换所需的场强，可以计算外场中每个磁性层的能量，即 $E = -\mathbf{m}\cdot\mathbf{B}$，其中$\mathbf{m}$ 是给定片层的磁化强度，$\mathbf{B}$ 是外场。这一计算假设一个 Cr_2O_3 片层的磁化强度作为一个整体发生切换，而不是像在单个分子-表面杂化系统内不同磁性亚单元中已经成功实现的那样，使每个 Cr 磁矩分别发生切换 [72]。这是因为一个片层内部不同 Cr 磁矩之间的耦合远强于它们跨越夹层结构中间隔层的耦合。当评估两种构型的能量差并据此计算切换场时，利用一个 Cr片层的磁化强度为 $\sim 12\ \mu_B$ （其中 μ_B 为玻尔磁子），可得到 $B_{switch} \sim 0.43$ T。这样的中等场值很容易实现，这表明所研究的磁性夹层结构异质结构可用于在自旋电子学中实现潜在功能。

III. 结论

我们的结果强调了二维夹心结构在调控异质结构中性质混合与性质保持之间平衡方面的潜力。纯非范德华夹心结构表现出强烈的界面键合，这一点可由优化结构、结合能和电荷密度差分析得到证明。每个界面的绝对结合能最高约为 190 meV/$^{\circ}$A^2 ，表明形成了共价键/离子键，并伴随着显著的几何重构和电荷重分布。因此，它们的结合能是将非范德华片层置于两个范德华层之间时所得结构的三至八倍，且几乎是纯范德华键合的一个数量级。

相比之下，混合范德华/非范德华/范德华夹层结构表现出明显较弱的界面相互作用，每个界面的绝对结合能约为25–30 meV/$^{\circ}$A^2。它们基本保留了所封装非范德华层的固有原子结构和电子特性，同时在某些情况下能够实现石墨烯的界面驱动的电荷转移掺杂。因此，这种情形表明，范德华封装是一种可行途径，可保护非范德华材料免受环境影响，从而保持其性质。

磁性分析表明，化学键合的非范德华夹层结构倾向于反铁磁界面排列。层间磁耦合强度高度取决于夹层结构组成，在 Cr_2O_3/Fe_2O_3/Cr_2O_3, 中达到每个晶胞 -137 meV；而在 Cr_2O_3 层之间插入 Ga_2O_3 等抗磁间隔层后，耦合降低至每个晶胞约 -1 至 -10 meV。这些发现凸显了此类夹层结构作为可切换磁性结的潜力，可用于实现自旋电子学功能。

总体而言，通过选择合适的夹层式架构，可以在一系列特性上调控体系，使其在性质混合与性质保持之间转换，从而为二维异质结构的理性多功能设计开辟新的途径。因此，这些结构有望弥合强键合薄膜与弱相互作用范德华堆叠结构之间的差距。重要的是，与双层异质结构相比，三层结构几何构型能够实现更强且更多样化的电子耦合效应，为材料与界面设计提供额外的自由度。

IV. 方法

异质结构通过定制的“AFLOW-Hetbuilder”重合晶格法实现生成，该方法遵循 Koda 的工作 等人。 [73, 74] 非范德华二维片层的初始结构取自此前提出的候选材料数据集 [47, 48]。范德华层通过 aflow slab 命令生成 [75]，其基础结构为石墨烯和硫化钼的块体母结构$_2$。各组分最初沿垂直于片层的竖直方向彼此间隔 2 ˚A。夹层式异质结构通过将双层异质结构中的底层复制到被封装层上方来生成 [64]。

对于所有异质结构，均执行包括结构弛豫以及能带结构和态密度（DOS）评估在内的DFT计算。采用 AFLOW [81, 82] 调用维也纳从头算模拟软件包（VASP）[83, 84]，按照 AFLOW 标准 [85]设置，并将内部 VASP 精度设为 ACCURATE，使用交换-关联泛函 SCAN+rVV10 [65–67] 进行弛豫，使用 PBE+U [76–80] 计算电子性质。结合能与 PBE+U+D3 [80] 结果的比较见补充信息（SI）中的表 S2。计算中还包括用于能量、电势和力的静电偶极校正模型[86], ，以及投影缀加波（PAW）球内梯度校正带来的非球形贡献。

AFLOW 内部对 k点集的自动确定方法与针对二维系统的扩展结合使用，该扩展仅支持面内采样，将在未来版本中发布。静态计算中每个倒易原子的 k点数设为 2500，结构弛豫时则降至 400 [64]。

电荷密度差的计算公式为：

$$n_{\mathrm{diff}}(\mathbf{r}) = n_{\mathrm{HS}}(\mathbf{r}) - 2n^{\mathrm{static}}_{\mathrm{outer}}(\mathbf{r}) - n^{\mathrm{static}}_{\mathrm{inner}}(\mathbf{r}), \qquad (1)$$

其中， $n_{\mathrm{HS}}(\mathbf{r})$ 是弛豫异质结构的电荷密度，$n^{\mathrm{static}}_{\mathrm{outer/inner}}(\mathbf{r})$ 是外层/内层二维组分的电荷密度，其原子位置与异质结构中的相同，并通过一次自洽计算获得。

单位面积的结合能 E_{b} 计算公式为：

$$E_{\mathrm{b}} = \frac{E_{\mathrm{HS}} - 2E_{\mathrm{outer}} - E_{\mathrm{inner}}}{A}, \qquad (2)$$

其中， E_{HS} 为异质结构的总能量， $E_{\mathrm{outer}}/E_{\mathrm{inner}}$ 为外侧/内侧二维组分的能量， A 为弛豫异质结构的面积。因此，E_{b} 是按夹层结构中的两个界面计算的，必须除以二，才能与双层异质结构的结合能 [64]进行比较。

我们对所有体系都进行了严格的磁性检查。对于由抗磁组分构成的体系，我们分别进行了自旋极化计算和非自旋极化计算。然而，没有任何体系形成能量显著低于抗磁态的磁性基态。对于非范德华异质结构，各单层的磁构型保持不变，并按照我们此前对孤立二维组分的研究 [47, 48] 中已知的构型进行初始化。此外，我们还尝试了五种不同大小的磁矩，范围为 1 至 5 μ_{B} [87]。所得的磁耦合能 E_{c} 计算为相应反铁磁（E_{AFM}）和铁磁（E_{FM}）界面态之间的能量差：

$$E_{\mathrm{c}} = E_{\mathrm{AFM}} - E_{\mathrm{FM}}. \qquad (3)$$

因此，负的耦合能表明反铁磁排列在能量上更有利。

我们使用基于人工智能的语言模型 Chat-GPT 协助润色稿件文本。

V. 数据可用性

本研究的主要研究数据可通过 https://doi.org/10.14278/rodare.5110 [88] 从 Rossendorf 数据仓库（RODARE）获取。

VI. 作者贡献

R.F. 发起并监督了该项目。A.N. 构建了异质结构，并完成了所有 DFT 计算和所有后处理工作。A.N. 和 R.F. 分析了数据。A.N. 撰写了论文初稿，随后由 R.F. 进行了完善。两位作者均参与了最终稿的撰写和讨论。

致谢

作者感谢 Tom Barnowsky 协助技术实现，并感谢 Tom Barnowsky、Chen-Chen Er 和 Balaram Thakur 进行富有成效的讨论。R.F. 感谢德国研究联合会（DFG）资助，项目 FR 4545/2-1，项目编号：513655797；并感谢合作研究中心“合成二维材料化学”SFB-1415，项目 C08，项目编号 417590517 的支持，以及德累斯顿工业大学和亥姆霍兹-德累斯顿-罗森多夫研究中心在 DRESDEN-concept 联盟框架下开展的“自主材料热力学”（AutoMaT）项目的支持。作者感谢 HZDR 计算中心、斯图加特高性能计算中心（HAWK 集群）以及帕德博恩并行计算中心（PC2，Noctua 2 和 Otus 集群）慷慨提供 CPU 计算时间。

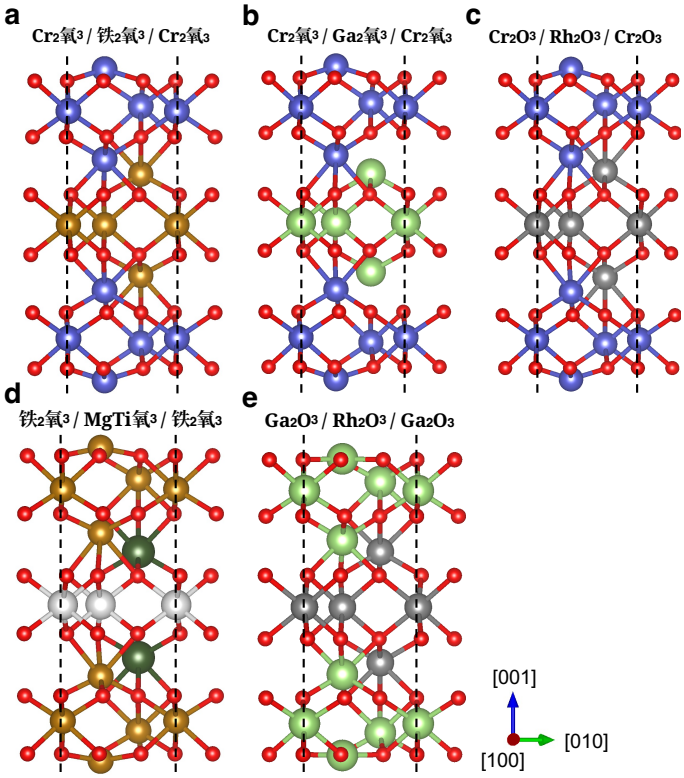
[1] A. K. Geim 和 I. V. Grigorieva，《自然》499，419（2013）。[2] K. S. Novoselov、A. Mishchenko、A. Carvalho 和 A. H. Castro Neto，《科学》353，aac9439（2016）。[3] Y. Liu、N. O. Weiss、X. Duan、H.-C. Cheng、Y. Huang 和 X. Duan，《自然·材料评论》1，16042（2016）。[4] P. Rivera、H. Yu、K. L. Seyler、N. P. Wilson、W. Yao 和 X. Xu，《自然·纳米技术》13，1004（2018）。[5] Y. Cao、V. Fatemi、S. Fang、K. Watanabe、T. Taniguchi、E. Kaxiras 和 P. Jarillo-Herrero，《自然》556，43（2018）。[6] F. M. Arnold、A. Ghasemifard、A. Kuc 和 T. Heine，《今日材料》73，96（2024）。[7] M. Gibertini、M. Koperski、A. F. Morpurgo 和 K. S. Novoselov，《自然·纳米技术》14，408（2019）。[8] A. P. Balan、A. B. Puthirath、S. Roy、G. Costin、E. F. Oliveira、M. A. S. R. Saadi、V. Sreepal、R. Friedrich、P. Serles、A. Biswas、S. A. Iyengar、N. Chakingal、S. Bhat-tacharyya、S. K. Saju、S. C. Pardo、L. M. Sassi、T. Filleter、A. Krasheninnikov、D. S. Galvao、R. Vajtai、R. R. Nair 和 P. M. Ajayan，《今日材料》58，164（2022）。[9] H. Kaur 和 J. N. Coleman，《先进材料》34，2202164（2022）。[10] T. Barnowsky、S. Curtarolo、A. V. Krasheninnikov、T. Heine 和 R. Friedrich，《纳米快报》24，3874（2024）。[11] G. Guan、J. Xia、S. Liu、Y. Cheng、S. Bai、S. Y. Tee、Y.-W. Zhang 和 M.-Y. Han，《先进材料》29，1700326（2017）。[12] Z. Tai、C. M. Subramaniyam、S. Chou、L. Chen、H. Liu 和 S. Dou，《先进材料》29，1700605（2017）。[13] H. Li、L. Jing、W. Liu、J. Lin、R. Y. Tay、S. H. Tsang 和 E. H. T. Teo，《ACS纳米》12，1262（2018）。[14] A. Puthirath Balan、S. Radhakrishnan、C. F. Woell-ner、S. K. Sinha、L. Deng、C. d. l. Reyes、B. M. Rao、M. Paulose、R. Neupane、A. Apte、V. Kochat、R. Vajtai、A. R. Harutyunyan、C.-W. Chu、G. Costin、D. S. Gal-vao、A. A. Mart´ı、P. A. van Aken、O. K. Varghese、C. S. Tiwary、A. Malie Madom Ramaswamy Iyer 和 P. M. Ajayan，《自然·纳米技术》13，602（2018）。[15] A. Puthirath Balan、S. Radhakrishnan、R. Kumar、R. Ne-upane、S. K. Sinha、L. Deng、C. A. de los Reyes、A. Apte、B. M. Rao、M. Paulose、R. Vajtai、C. W. Chu、G. Costin、A. A. Mart´ı、O. K. Varghese、A. K. Singh、C. S. Tiwary、M. R. Anantharaman 和 P. M. Ajayan，《化学材料》30，5923（2018）。[16] T. P. Yadav、S. N. Shirodkar、N. Lertcumfu、S. Radhakr-ishnan、F. N. Sayed、K. D. Malviya、G. Costin、R. Vajtai、B. I. Yakobson、C. S. Tiwary 和 P. M. Ajayan，《先进材料界面》5，1800549（2018）。[17] A. Puthirath Balan、S. Radhakrishnan、R. Neupane、S. Yazdi、L. Deng、C. de los Reyes、A. Apte、A. B. Puthi-rath、B. M. Rao、M. Paulose、R. Vajtai、C.-W. Chu、A. A. Mart´ı、O. K. Varghese、C. S. Tiwary、M. R. A. 和 P. M. Ajayan，《ACS应用纳米材料》1，6427（2018）。[18] Y. Wang、R. Cai、J. Zhang、J. Cui、Y. Qin、Y. Zhang、J. Wu、K. Chatterjee、P. M. Ajayan 和 Y. Wu，《物理化学快报》11，8668（2020）。[19] C. Zhang、Y. Xu、P. Lu、C. Wei、C. Zhu、H. Yao、F. Xu 和 J. Shi，《应用化学国际版》58，8814（2019）。[20] Z. Xie、S. Chen、Y. Duo、Y. Zhu、T. Fan、Q. Zou、M. Qu、Z. Lin、J. Zhao、Y. Li、L. Liu、S. Bao、H. Chen、D. Fan 和 H. Zhang，《ACS应用材料与界面》11，22129（2019）。[21] S. Liu, L. Xie, H. Qian, G. Liu, H. Zhong, and H. Zeng，《材料化学杂志A》7, 15411 (2019). [22] C. Feng, J. Ouyang, Z. Tang, N. Kong, Y. Liu, L. Fu, X. Ji, T. Xie, O. C. Farokhzad, and W. Tao，《Matter》3, 127 2020( ). [23] A. B. Puthirath, S. N. Shirodkar, G. Gao, F. C. R. Hernandez, L. Deng, R. Dahal, A. Apte, G. Costin, N. Chakingal, A. P. Balan, L. M. Sassi, C. S. Tiwary, R. Vajtai, C.-W. Chu, B. I. Yakobson, and P. M. Ajayan，《Small》16, 2004208 (2020). [24] Y. Guo, A. Gupta, M. S. Gilliam, A. Debnath, A. Yousaf, S. Saha, M. D. Levin, A. A. Green, A. K. Singh, and Q. H. Wang，《Nanoscale》13, 1652 (2021). [25] J. Ouyang, L. Zhang, L. Li, W. Chen, Z. Tang, X. Ji, C. Feng, N. Tao, N. Kong, T. Chen, Y.-N. Liu, and W. Tao，《纳米-微米快报》13, 90 (2021). [26] C.-X. Hu, Z. Tian, Q. Xiao, Z.-T. Zhu, X.-Y. Li, G.-H. Dun, H.-R. Wu, Y.-L. Tang, Q. Wang, and H.-L. Zhang，《Small Structures》2, 2100039 (2021). [27] S. G¨oktuna and N. Ta¸saltın，《Physica E》134, 114833 (2021). [28] J. Peng, Y. Liu, H. Lv, Y. Li, Y. Lin, Y. Su, J. Wu, H. Liu, Y. Guo, Z. Zhuo, X. Wu, C. Wu, and Y. Xie，《自然·化学》13, 1235 (2021). [29] A. N. Toksumakov, G. A. Ermolaev, A. S. Slavich, N. V. Doroshina, E. V. Sukhanova, D. I. Yakubovsky, A. V. Syuy, S. M. Novikov, R. I. Romanov, A. M. Markeev, A. S. Oreshonkov, D. M. Tsymbarenko, Z. I. Popov, D. G. Kvashnin, A. A. Vyshnevyy, A. V. Arsenin, D. A. Ghaz- aryan, and V. S. Volkov，npj《二维材料与应用》6, 85 (2022). [30] K. Jiang, J. Ji, W. Gong, L. Ding, J. Li, P. Li, B. Li, and F. Geng，《自然·合成》2, 58 (2023). [31] P. L. Mahapatra, C. C. de Oliveira, G. Costin, S. Sarkar, P. A. S. Autreto, and C. S. Tiwary，《二维材料》11, 015019 (2023). [32] S. Chattopadhyay, P. L. Mahapatra, M. N. Mattur, A. Pra manik, S. Gupta, T. S. Pieshkov, S. Saju, G. Costin, R. Vajtai, C. S. Tiwary, B. I. Yakobson, and P. M. Ajayan，《纳米快报》24, 7284 (2024). [33] W. Su, A. Kuklin, L. h. Jin, D. Engelgardt, H. Zhang, H. ˚Agren, and Y. Zhang，《先进科学》11, 2402875 (2024). [34] H. Kaur, R. Tian, A. Roy, M. McCrystall, D. V. Horvath, G. Lozano Onrubia, R. Smith, M. Ruether, A. Griffin, C. Backes, V. Nicolosi, and J. N. Coleman，《ACS纳米》14, 13418 (2020). [35] A. B. Puthirath, A. P. Balan, E. F. Oliveira, V. Sreepal, F. C. Robles Hernandez, G. Gao, N. Chakingal, L. M. Sassi, P. Thibeorchews, G. Costin, R. Vajtai, D. S. Galvao, R. R. Nair, and P. M. Ajayan，《物理化学杂志C》125, 18927 2021( ). [36] M. G. Moinuddin, S. Srinivasan, and S. K. Sharma，《先进电子材料》7, 2001116 (2021). [37] L. Hu, L. Cao, L. Li, J. Duan, X. Liao, F. Long, J. Zhou, Y. Xiao, Y.-J. Ze ng, and S. Zhou，《材料视野》8, 1286 (2021). [38] A. Yousaf, M. S. Gilliam, S. L. Y. Chang, M. Augustin, Y. Guo, F. Tahir, M. Wang, A. Schwindt, X. S. Chu, D. O. Li, S. Kale, A. Debnath, Y. Liu, M. D. Green, E. J. G. Santos, A. A. Green, and Q. H. Wang，《物理化学杂志C》125, 6787 (2021).

[39] C. Gibaja, D. Rodr´ıguez-San-Miguel, W. S. Paz, I. Tor- res, E. Salagre, P. Segovia, E. G. Michel, M. Asseb- ban, P. Ares, D. Hern´andez-Maldonado, Q. Ramasse, G. Abell´an, J. G´omez-Herrero, M. Varela, J. J. Palacios, and F. Zamora, 《先进材料》33, 2006826 (2021). [40] J. Xu, W. Li, B. Zhang, L. Zha, W. Hao, S. Hu, J. Yang, S. Li, S. Gao, and Y. Hou, 《化学科学》13, 203 (2021). [41] S. Homkar, B. Chand, S. S. Rajput, S. Gorantla, T. Das, R. Babar, S. Patil, R. Klingeler, S. Nair, M. Kabir, and A. Bajpai, 《ACS应用纳米材料》4, 9313 (2021). [42] S. Chahal, S. M. Kauzlarich, and P. Kumar, 《ACS材料快报》3, 631 (2021). [43] B. Y. Zhang, K. Xu, Q. Yao, A. Jannat, G. Ren, M. R. Field, X. Wen, C. Zhou, A. Zavabeti, and J. Z. Ou, 《自然·材料》20, 1073 (2021). [44] T. Chen, H. Kaur, M. McCrystall, R. Tian, A. Roy, R. Smith, D. V. Horvath, J. Maughan, B. Konkena, M. Venkatesan, K. Synnatschke, T. Carey, J. Liu, J. Pep- per, R. Zhang, C. Backes, V. Nicolosi, H. Xia, and J. N. Coleman, 《FlatChem》33, 100360 (2022). [45] A. Puthirath Balan, E. F. Oliveira, G. Costin, T. Gray, N. Chakingal, A. Biswas, and A. B. Puthirath, 《牛津开放材料科学》3, 1 (2023). [46] X. Jia, Q. Shao, Y. Xu, R. Li, K. Huang, Y. Guo, C. Qu, and E. Gao, npj计算材料学7, 211 (2021). [47] R. Friedrich, M. Ghorbani-Asl, S. Curtarolo, and A. V. Krasheninnikov, 《纳米快报》22, 989 (2022). [48] T. Barnowsky, A. V. Krasheninnikov, and R. Friedrich, 《先进电子材料》9, 2201112 (2023). [49] Y. Hu, J. Jiang, P. Zhang, Z. Ma, F. Guan, D. Li, Z. Qian, X. Zhang, and P. Huang, 《自然·通讯》14, 6555 (2023). [50] M. Bagheri, E. Berger, and H.-P. Komsa, 《物理化学快报》14, 7840 (2023). [51] J. Bj¨ork, J. Zhou, P. O. A. Persson, and J. Rosen, 《科学》383, 1210 (2024). [52] Y. Zhong, Y. Xiao, Z. Qian, W. Xiong, and P. Huang, npj计算材料学11, 383 (2025). [53] S. Ono, 《物理评论B》112, 075403 (2025). [54] M. Bagheri, E. Berger, H.-P. Komsa, and P. Koskinen, 《化学材料》38, 2395 (2026). [55] T. Barnowsky, C. Timm, and R. Friedrich, 《自然·通讯》17, 8977 (2026). [56] H. Ren and G. Xiang, 《今日材料：电子学》6, 100074 2023( ). [57] Y. Li, C. Xiang, F. M. Chiabrera, S. Yun, H. Zhang, D. J. Kelly, R. T. Dahm, C. K. R. Kirchert, T. E. Le Cozannet, F. Trier, D. V. Christensen, T. J. Booth, S. B. Simonsen, S. Kadkhodazadeh, T. S. Jespersen, and N. Pryds, 《先进材料》34, 2203187 (2022). [58] J. Shen, Z. Dong, M. Qi, Y. Zhang, C. Zhu, Z. Wu, and D. Li, 《ACS应用材料与界面》14, 50386 (2022). [59] G. S´anchez-Santolino, V. Rouco, S. Puebla, H. Aram- berri, V. Zamora, M. Cabero, F. A. Cuellar, C. Munuera, F. Mompean, M. Garcia-Hernandez, A. Castellanos- Gomez, J. Í˜niguez, C. Leon, and J. Santamaria, 《自然》626, 529 (2024). [60] H. Sha, Y. Zhang, Y. Ma, W. Li, W. Yang, J. Cui, Q. Li, H. Huang, and R. Yu, 《自然·通讯》15, 10915 (2024). [61] H. Wang, V. Harbola, Y.-J. Wu, P. A. van Aken, and J. Mannhart, 《先进材料》36, 2405065 (2024). [62] M. Schmidbauer, J. Maltitz, F. St¨umpel, M. Hanke, C. Richter, J. Schwarzkopf, and J. Martin, 《应用物理学快报》126, 101902 (2025).

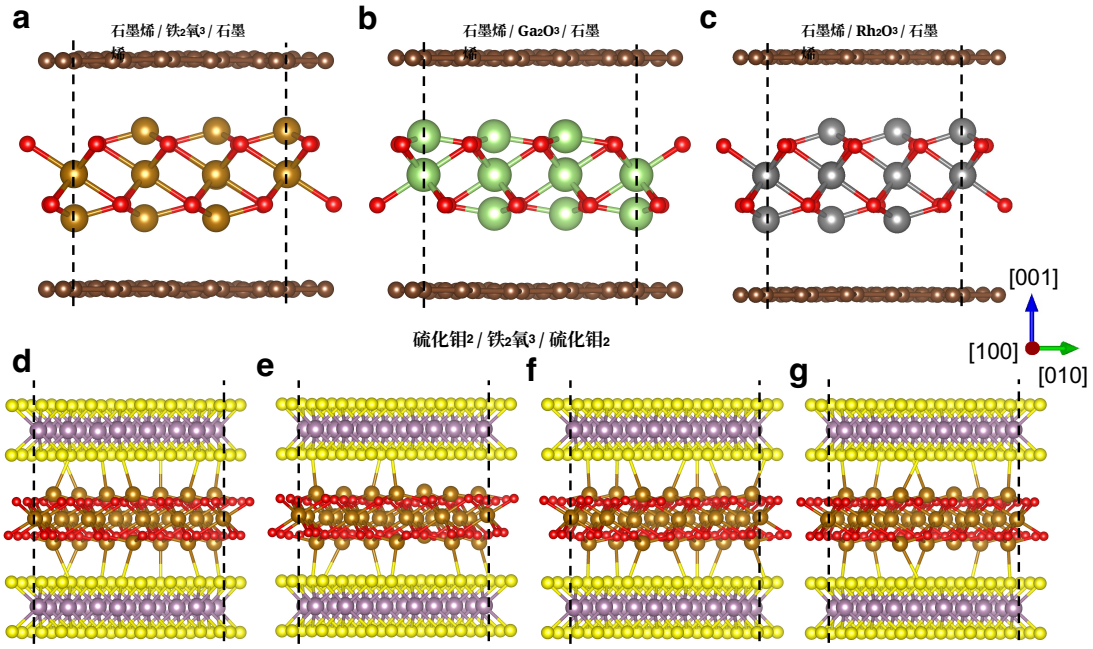
[63] L. Kou、Y. Ma、Z. Sun、T. Heine 和 C. Chen, 《物理化学快报》8，1905（2017）。[64] A. Nihei、T. Barnowsky 和 R. Friedrich, 《材料学报》315，122370（2026）。[65] J. Sun、A. Ruzsinszky 和 J. P. Perdew, 《物理评论快报》115，036402（2015）。[66] R. Sabatini、T. Gorni 和 S. de Gironcoli, 《物理评论B》87，041108(R)（2013）。[67] H. Peng、Z.-H. Yang、J. P. Perdew 和 J. Sun, 《物理评论X》6，041005（2016）。[68] S. Pakdel、A. Rasmussen、A. Taghizadeh、M. Kruse、T. Olsen 和 K. S. Thygesen, 《自然·通讯》15，932（2024）。[69] R. Zacharia、H. Ulbricht 和 T. Hertel, 《物理评论B》69，155406（2004）。[70] N. Mounet、M. Gibertini、P. Schwaller、D. Campi、A. Merkys、A. Marrazzo、T. Sohier、I. E. Castelli、A. Ce-pellotti、G. Pizzi 和 N. Marzari, 《自然·纳米技术》13，246（2018）。[71] J. H. Jung、C.-H. Park 和 J. Ihm, 《纳米快报》18，2759（2018）。[72] V. Heß、R. Friedrich、F. Matthes、V. Caciuc、N. Atodire-sei、D. E. B¨urgler、Stefan Bl¨ugel 和 C. M. Schneider, 《新物理学杂志》19，053016（2017）。[73] D. S. Koda、F. Bechstedt、M. Marques 和 L. K. Teles, 《物理化学杂志C》120，10895（2016）。[74] R. Kempt, “romankempt/hetbuilder：Zenodo 发布版”，Zenodo（2021）。[75] R. V. Chepulskii 和 S. Curtarolo, 《应用物理学快报》97，221908（2010）。[76] J. P. Perdew、K. Burke 和 M. Ernzerhof, 《物理评论快报》77，3865（1996）。[77] V. I. Anisimov、J. Zaanen 和 O. K. Andersen, 《物理评论B》44，943（1991）。[78] A. I. Liechtenstein、V. I. Anisimov 和 J. Zaanen, 《物理评论B》52，R5467（1995）。[79] S. L. Dudarev、G. A. Botton、S. Y. Savrasov、C. J. Humphreys 和 A. P. Sutton, 《物理评论B》57，1505（1998）。[80] S. Grimme、J. Antony、S. Ehrlich 和 H. Krieg, 《化学物理学杂志》132，154104（2010）。[81] S. Divilov、H. Eckert、S. D. Thiel、S. D. Griesemer、R. Friedrich、N. H. Anderson、M. J. Mehl、D. Hicks、M. Es-ters、N. Hotz、X. Campilongo、A. Calzolari 和 S. Cur-tarolo, 《高熵合金材料》3，178（2025）。[82] M. Esters、C. Oses、S. Divilov、H. Eckert、R. Friedrich、D. Hicks、M. J. Mehl、F. Rose、A. Smolyanyuk、A. Calzo-lari、X. Campilongo、C. Toher 和 S. Curtarolo, 《计算材料科学》216，111808（2023）。[83] G. Kresse 和 D. Furthm¨uller, 《物理评论B》54，11169（1996）。[84] G. Kresse 和 D. Joubert, 《物理评论B》59，1758（1999）。[85] C. E. Calderon、J. J. Plata、C. Toher、C. Oses、O. Levy、M. Fornari、A. Natan、M. J. Mehl、G. L. W. Hart、M. Buongiorno Nardelli 和 S. Curtarolo, 《计算材料科学》108（A辑），233（2015）。[86] J. Neugebauer 和 M. Scheffler, 《物理评论B》46，16067（1992）。[87] R. Friedrich、D. Usanmaz、C. Oses、A. Supka、M. Fornari、M. Buongiorno Nardelli、C. Toher 和 S. Curtarolo，npj计算材料学5，59（2019）。[88] A. Nihei 和 R. Friedrich，“ 数据出版：非范德华二维材料在三明治状异质结构中的性质的混合与保持”，Rodare（2026）。

补充信息

补充信息。弛豫结构、关键结构和能量性质、能带结构比较，以及类三明治非范德华和混合范德华/非范德华/范德华异质结构的磁耦合



图S1. **非范德华类三明治异质结构的优化结构。**（a）$Cr_2O_3/Fe_2O_3/Cr_2O_3$,、（b）$Cr_2O_3/Ga_2O_3/Cr_2O_3$,、（c）$Cr_2O_3/Rh_2O_3/Cr_2O_3$,、（d）$Fe_2O_3/MgTiO_3/Fe_2O_3$, 和（e）$Ga_2O_3/Rh_2O_3/Ga_2O_3$的弛豫结构。表示晶体方向的罗盘适用于所有子图。



图S2. **混合范德华/非范德华/范德华三明治状异质结构的优化结构。** （a）石墨烯/Fe_2O_3/石墨烯、（b）石墨烯/Ga_2O_3/石墨烯、（c）石墨烯/Rh_2O_3/石墨烯以及硫化钼$_2$/Fe_2O_3/硫化钼$_2$ 的弛豫结构，其扭转角分别为 4°（d）、 17°（e）、 42°（f）和 55°（g）。罗盘所示的晶体方向适用于所有子图。

表SI. 三明治状异质结构的关键结构和能量参数汇总。硫化钼$_2$/Fe_2O_3/硫化钼$_2$ 体系方括号中的数字表示各二维片层之间的扭转角。

外层/内层	层间键合 Type	层间距 d (Å)	结合能 (毫电子伏/ ˚埃^2)
铬$_2$氧$_3$/铁$_2$氧$_3$	共价/离子	1.44–1.47	−379
Cr_2氧$_3$/Ga_2氧$_3$	共价/离子	1.6–1.66	−189
Cr_2氧$_3$/Rh_2氧$_3$	共价/离子	1.6–1.62	−168
铁$_2$氧$_3$/MgTi氧$_3$	共价/离子	1.47–1.67	−300
Ga_2氧$_3$/Rh_2氧$_3$	共价/离子	1.37	−364
石墨烯/铁$_2$氧$_3$	范德华	2.57	−57
石墨烯/镓$_2$氧$_3$	范德华	2.82	−56
石墨烯/铑$_2$氧$_3$	范德华	2.9	−46
硫化钼$_2$/铁$_2$氧$_3$ (4°)	范德华	2.47	−58
硫化钼$_2$/铁$_2$氧$_3$ (17°)	范德华	2.48	−59
硫化钼$_2$/铁$_2$氧$_3$ (42°)	范德华	2.47	−59
硫化钼$_2$/铁$_2$氧$_3$ (55°)	范德华	2.47	−58

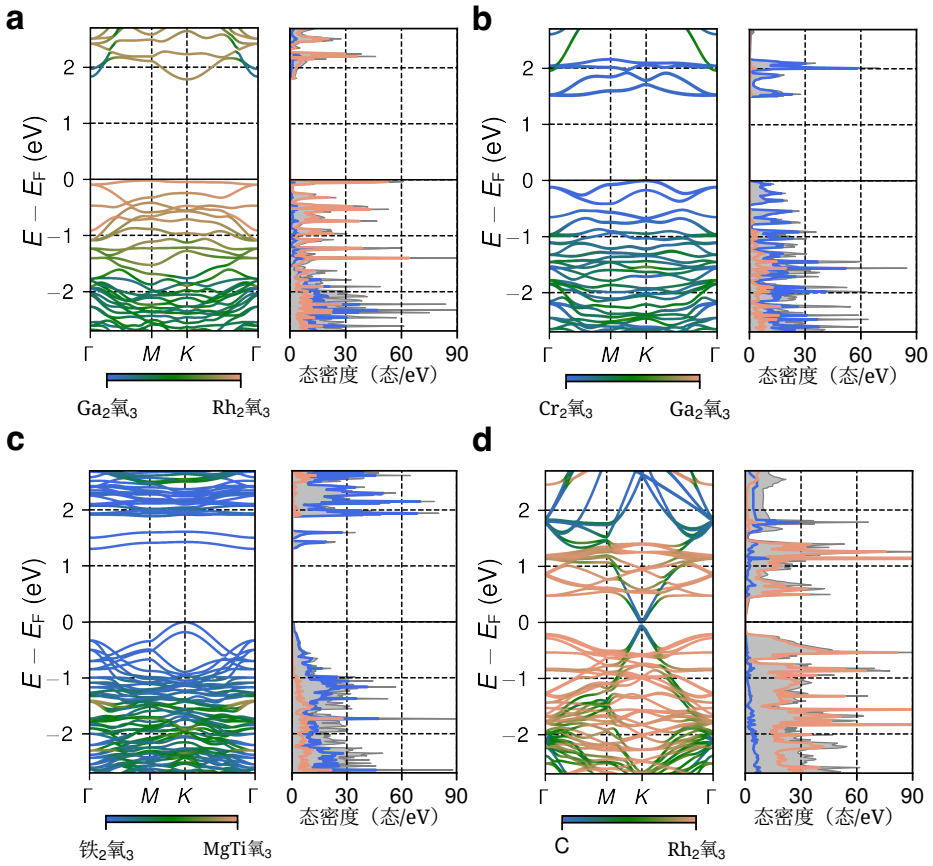


图 S3。**非范德华和范德华/非范德华类夹层能带结构的比较。**(a-c) 非范德华异质结构能带结构（$Ga_2O_3/Rh_2O_3/Ga_2O_3$, $Cr_2O_3/Ga_2O_3/Cr_2O_3$ 和 $Fe_2O_3/MgTiO_3/Fe_2O_3$）。（d）混合范德华/非范德华/范德华异质结构（$Gr/Rh_2O_3/Gr$）的能带结构。C 表示石墨烯。

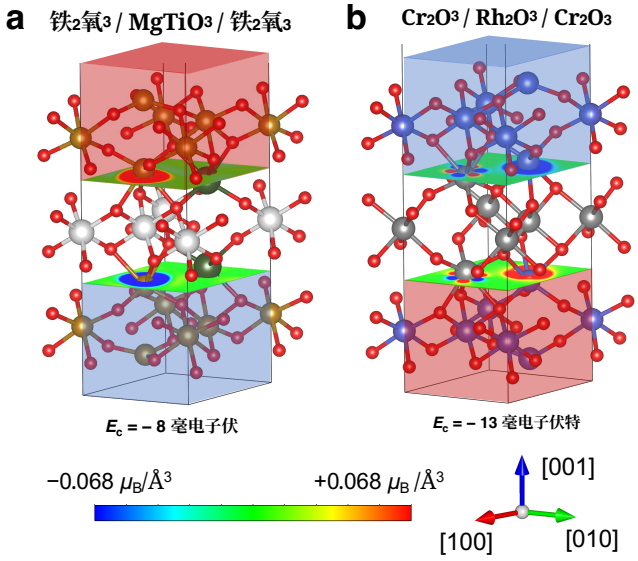


图 S4. **非范德华类三明治异质结构中的磁耦合。** (a) $Fe_2O_3/MgTiO_3/Fe_2O_3$中磁矩的反铁磁界面排列。(b) $Cr_2O_3/Rh_2O_3/Cr_2O_3$的反铁磁界面构型。图中还标出了磁耦合能 E_c。界面平面上的红色和蓝色区域分别表示自旋向上和自旋向下的磁化密度。表示晶体方向的罗盘适用于两个子图。

SII. 理论水平基准测试

表 SII. 不同体系的界面结合能比较 E_{b} 使用 PBE 计算得到+U 其中包括色散校正（D3） [80] 以及使用 SCAN+rVV10 计算得到的结果。MoS_2/Fe_2O_3 体系括号中的数字表示各二维片层之间的扭转角。

外层/内层	**PBE+U+D3**	**SCAN+rVV10**
铬$_2$氧$_3$/铁$_2$氧$_3$	−343	−379
Cr_2O_3/Ga_2O_3	−167	−189
Cr_2O_3/Rh_2O_3	−144	−168
铁$_2$氧$_3$/$MgTiO_3$	−238	−300
Ga_2氧$_3$/Rh_2氧$_3$	−364	−364
石墨烯/铁$_2$氧$_3$	−44	−57
石墨烯/Ga_2氧$_3$	−42	−56
石墨烯/Rh_2氧$_3$	−34	−46
硫化钼$_2$/铁$_2$氧$_3$ (4°)	−66	−58
硫化钼$_2$/铁$_2$氧$_3$ (17°)	−67	−59
硫化钼$_2$/铁$_2$氧$_3$ (42°)	−67	−59
硫化钼$_2$/铁$_2$氧$_3$ (55°)	−66	−58