Monolayer 1T-VSe2 has been reported as a room-temperature ferromagnet. In this work, by using first-principles calculations, we unveil that the ferromagnetism in monolayer 1T-VSe2 is originated from its intrinsic huge Stoner instability enhanced by the confinement effect, which can eliminate the interlayer coupling, and lead to a drastic increase of the density of states at the Fermi level due to the presence of Van Hove singularity. Our calculations also demonstrate that the Stoner instability is very sensitive to the interlayer distance. These results provide a useful route to modulate the nonmagnetic to ferromagnetic transition in few-layers or bulk 1T-VSe2, which also shed light on the enhancement of its Curie temperature by enlarging the interlayer distance.

Ferromagnetic order in two-dimensional (2D) materials is a highly desirable property that provides a new physical degree of freedom to manipulate spin behaviors in spintronic devices1,2. Previously, magnetism in 2D was mainly realized through depositing films onto magnetic substrates, magnetic atoms adsorption, or doping3{5. The shortcomings of these methods are obvious: (i) one does not have an ideal 2D system from depositing and it is impractical to integrate with spintronic devices, and (ii) disorder effects make the electronic properties hard to design. Due to these drawbacks, 2D materials with intrinsic magnetic order have been actively pursued. The CrI3 6 and Cr2Ge2Te6 7 are the first two experimentally reported 2D materials exhibiting long-range ferro- magnetic (FM) order with the Curie temperatures Tc \_ 45 K and 30 K, respectively6,7. These discoveries have stimulated numerous research interests on 2D magnetic materials. Very recently, several materials with higher Tc have been experimentally and theoretically explored, including MnSex 8, Fe3GeTe2 9, and 1T-VSe2 10{14. Among them, the 1T-VSe2 is of particular interest since the bulk 1T-VSe2 has a van der Waals (vdW) nature, which can be easily exfoliated to few-layers thickness. This gives 1T-VSe2 the advantage to be tailored and manipulated for nano spintronic devices at low cost. However, the nature of the ground phase of 1T-VSe2 is still under hot debate. Two groups have observed charge- density-wave (CDW) ground states and concluded that magnetic order is absent in the monolayer limit due to the CDW suppression15,16. Wong et al. claimed that a spin frustrated phase was observed and the FM phase must be attributed to extrinsic factors17. Chua et al.18 and Yu et al.12 suggested that the observed FM is not intrinsic, but caused by defects. Nevertheless, Bonilla et al.10 and many others11{14 have presented strong experimental evidences for intrinsic 2D magnetism in mono- layer 1T-VSe2, which also reported a NM to FM phase transition from bulk to the monolayer limit19. This is in contrast with other 2D magnetic materials, where the FM phase is more stable in the bulk system.

单层 1T-VSe2 被报告为室温铁磁。在本文中，通过使用第一原则计算，我们揭示单层1T-VSe2中的铁磁性源于其内在的巨大石器不稳定性，其内在的巨大石器不稳定性因禁闭效应而增强，可以消除层间耦合，并导致由于Van Hove奇点的存在而导致费尔米级状态密度的急剧增加。我们的计算还表明，石匠的不稳定性对层间距离非常敏感。这些结果为在少数层或体块1T-VSe2中调节非磁向铁磁过渡提供了一条有用的途径，这也为通过扩大层间距离来提高居里温度提供了信息。

二维 （2D） 材料中的铁磁顺序是一种非常理想的属性，它为在自旋电子器件中操作自旋行为提供了新的物理自由度1，2。以前，2D 中的磁性主要通过将薄膜沉积到磁性基材、磁原子吸附或掺杂物3+5上实现。这些方法的缺点是显而易见的.（i） 一个人没有理想的 2D 系统从沉积和它是不切实际的与自旋电子设备集成， 和 （ii） 无序效应使电子属性难以设计.由于这些缺点，积极追求具有内在磁性顺序的二元材料。CrI3 6 和 Cr2Ge2Te6 7 是前两个实验报告的 2D 材料，分别与居里温度 Tc \_ 45 K 和 30 K 一起显示远程铁磁 （FM） 顺序，分别是 6，7。这些发现激发了对二D磁性材料的众多研究兴趣。最近，在实验和理论上对一些具有更高 Tc 的材料进行了探索，包括 MnSex 8、Fe3GeTe2 9 和 1T-VSe2 10=14。其中，1T-VSe2 特别令人感兴趣，因为体块 1T-VSe2 具有 van der Waals （vdW） 性质，可轻松去角质到几层厚度。这为 1T-VSe2 提供了低成本为纳米自旋电子器件进行定制和操作的优势。然而，1T-VSE2的地面阶段的性质仍在激烈争论之中。两组观测到电荷密度波（CDW）接地状态，并得出结论认为，由于CDW抑制15，16，单层限值中不存在磁阶。Wong等人声称观察到了自旋挫败阶段，FM阶段必须归因于外在因素17。Chua等人18和Yu等人认为，观察到的调频不是内在的，而是由缺陷引起的。然而，Bonilla等人等11+14为单层1T-VSe2中固有的2D磁性提供了强有力的实验证据，该层还报告了从体块到单层限值的NM到FM相向过渡19。这与其他 2D 磁性材料不同，在体块系统中 FM 相更稳定。

本文通过第一原理计算，对1T-VSe2的地状态特性进行研究。通过对体块和多层1T-VSe2状态（DOS）和波段结构的密度进行综合研究，我们发现单层系统具有最强的FM不稳定性，因为Van Hove奇异度（VHS）的存在源自费米级别的鞍点。我们还发现，在少数层的情况下，dz2轨道在层际V原子之间的耦合将鞍点从费米水平分离开来，并削弱FM的稳定性。单层中最强的调频不稳定性由NM和FM相之间的最大能量差得到确认，并通过使用现象石匠理论20+23得到验证。因此，我们得出结论，单层1T-VSe2中的室温调频顺序是固有的，因为它独特的电子结构。最后，我们研究与层间距离d的FM不稳定性[见图1（a）]，并预测通过扩大层间距离d，可以调整NM到FM相变的跨频段。我们的研究解释了单层 1T-VSe2 中 FM 顺序的来源，并提出了一种在多层 1T-VSe2 中调整 NM 到 FM 相变的机制。

VSe2 通常采用 2H 和 1T 结构。虽然 2H-VSe2 显示了半导体行为，但 1T-VSe2 是一种金属 24+26，在少数层限制 10 中为 FM 排序提供了强有力的实验证据。1T-VSe2 与 2H 结构中的三角形棱镜晶体场不同，它具有八面体晶体结构，属于 P\_3 m1 空间群，其中 V 原子形成三角晶格，每个 V 原子占据被六个 Se 原子包围的八角体的中心，如图 1（a）、1（b）和 1（c） 所示。因此，VSe2 的每一层都是三位一流计量的 27。体块晶体由 VSe2 三明治的 AA 堆叠组成。利用维也纳 ab initio 仿真包 （VASP）28 进行基于密度函数理论的第一原则计算。Perdew-Burke-Ernzerhof 函数 29 用于处理交换相关性相互作用。波函数膨胀的截止能量设置为 500 eV。我们使用 19\_19\_9 和 21\_21\_1 以伽马为中心的 k 网格分别对体块和板算中 BZ 的布里卢因区 （BZ） 进行采样。结构得到优化，直到每个原子上的力小于 0.001 eV/\_A。设置了 15 个\_A层，以最大限度地减少板计算中层之间的人工相互作用。对于批量计算，使用晶格常数 a = b = 3.356 \_A，c = 6.105 \_A。

我们首先计算和绘制图 1（a） 中 NM 体块 1T-VSe2 的总计和预测 DOS，这些 DOS 与之前的结果非常一致。费米水平的密度约为2.9状态/eV，证实了其金属性质。预测的 DOS 表明，0.9 eV 和 3.5 eV 之间的状态主要由 V-3d 轨道贡献。在八角电子晶体场中，五个三维轨道分为下 t2g 和上部（如歧管），它们主要在 0.9 ~ 1.4 eV 和 1.9 ~ 3.5 eV 左右贡献 DOS。此外，由于存在三角形场，t2g歧管分裂成下一个1g（dz2）和上e0 g（dxy和dx2􀀀y2）轨道。此图还从图 1（e） 中的投影波段结构中验证，其中 dz2 是跨越 Fermi 水平并主导体块 1T-VSe2 的低能物理的最低 3D 轨道。我们进一步绘制图2（a）中NM单层1T-VSe2的总和预计的 DOS。与图 1（d） 中的体块 DOS 相比，我们注意到这两个 DOS 绘图有许多相似之处。例如，它们都有 1 eV 左右的高密度，并且都具有 1.4 eV 的能量间隙。这是合理的，因为 1T-VSe2 是分层 vdW 材料。层间耦合不会显著改变电子结构。然而，形状峰值出现在费米级 EF 的单层情况下，如图 2（a） 所示。EF 的 DOS 大约为 N（EF ） \_ 6.4 状态eV，远高于大容量值。如此高的 DOS 表明频带结构上存在 VHS。因此，我们绘制沿图2（b）中的高对称k路径的波段结构，并观察到只有dz2波段穿过费米水平。在 M 路径上，在 K 路径上显示最小值。这些特征表示存在鞍点。为了显示更多细节，我们在图 2（c） 中绘制了整个 BZ 上的带，其中 K 和 K0 路径上有六个鞍点。图 2（d） 放大鞍点 S 周围的波段结构。红色和蓝色实线是沿􀀀􀀀K及其正交方向的带散射，分别表示孔状和电子色散射。这些分散体明显显示了鞍点35的拓扑结构。因此，我们已经证明，高 DOS 及其不同行为是由于带结构上存在鞍点 VHS。我们建议，在单层1T-VSe2的VHS可能会导致FM不稳定根据现象学石匠理论20，其中指出，FM相是青睐时，石器标准N（\_f）\_I> 1是满意的。这里N（\_f） 是NM状态的Fermi级的 DOS，I 是测量磁交换相互作用强度的 Stoner 参数，它通过以下公式与FM相中旋转和旋转状态之间的能量分裂有关。这里E0（k）是NM相的能量，E\_（k）和n\_是FM相中自旋的电能和电子数量。电子总数为 n = n" = n#。由于只有 dz2 频段负责单层 1T- VSe2、n" 和 n# 中的石器不稳定性，因此可以估计为 1。因此，我们有 n = 2。最后，Stoner 参数 I 可以估计为 E#（k） 􀀀 E"（k）。图 3（a） 显示单层 1T-VSe2 的 FM 阶段中自旋和自旋状态的 DOS。通过与图2（a）中的NM结果进行比较，我们观察到尖锐的VHS峰值分裂成两个峰值，这是FM交换交互的典型特征。我们假设交换交互是 k - 独立的，并使用 VHS 峰值的能量差来评估其平均幅度 36，这给出了 I = 0.68 eV。与N（EF） = 6.4状态/eV一起在NM相中，我们得到一个石匠标准N（EF ）I = 4.3。此大值表示单层 1T-VSe2 中具有很强的 FM 不稳定性。

最近的实验表明，单层1T-VSe2显示FM顺序，而体块1T-VSe2显示NM属性10+14。为了研究这一过渡，我们显示了石器标准N（EF ） \_ I 对图 3（b） 中 N 层数的演变，从该层中观察到从单层到双层的 N（EF ） \_ I 急剧减少，表明双层 1T-VSe2 中 FM 不稳定性的降低。我们进一步绘制了图3（c）中N（EF）和一与N的演变，这清楚地表明，急剧下降是由于N（EF）的减少，因为我对N不敏感[见图3（c）]中的红色曲线。我们注意到，当N \_ 2 时，石器标准 N（EF ） \_ I、密度 N（EF ） 和 Stoner 参数围绕其饱和值略有波动。这些结果表明，当系统从单层转换为体块时，只有单层表现出很强的调频不稳定性。我们的结果很好地解释了Bonilla等人的重分实验，在单层中检测到了强调频信号，而双层具有与体块10相当的明显弱的调频信号。这一趋势也表现在调频和NM相之间的能量差\_E = EFM 􀀀 ENM，如图3（d）所示，我们观察到最大能量差发生在单层情况下，从单层到双层发生\_E的急剧下降。为了理解从单层到双层的N（EF）急剧下降，我们绘制了图4（a）中双层1T-VSe2的NM总 DOS。由于 vdW 性质，双层 DOS 与单层非常相似，只不过在 E1 = 􀀀0.03 和 E2 = 0.08 eV 的 Fermi 水平附近出现两个峰值 [参见图 4（a） 中的插图] 。这两个峰值也源自带结构上的鞍点，如图 4（b） 所示。我们注意到，两个波段正在跨越费米水平。它们由双层单元单元中两个V原子的dz2轨道贡献。上部和下部 dz2 波段分别是抗粘结和粘合状态。在上一个系统，这两个dz2频 􀀀段的能量差约为0.44eV，从而估计了层间耦合强度。S 点的 VHS 分割由 􀀀􀀀K 路径上的两个最小值（约为 0.11 eV）确定，与图 4（a） 中 DOS 上的两个峰值一致。这种分裂比典型的vdW材料37+39中更大的。这是因为1T-VSe2中的VHS峰值主要由dz2轨道贡献，其来自层V原子的叶沿z方向对头对齐，形成相对强的dd\_键。因此，VHS 不再存在于费米级别，N （EF ） 显著减少。最后，石器标准N（EF）\_I严重降低，FM不稳定性减弱。总之，从体块 NM 相到 1T-VSe2 中单层 FM 相的过渡可以低于以下要求。在体块系统中，dz2轨道在层际V原子之间的耦合将VHS从费米水平分离开来。特别是从双层到单层，增强的夹层效应消除了层间dz2耦合。因此，VHS被推到费米水平，这导致N（EF） 和石匠标准N（EF）\_I的急剧增强。最终，这种增强的N（EF）在单层中引起强烈的FM不稳定性。换句话说，单层1T-VSe2中的禁闭效应可防止V原子的dz2轨道之间的层间耦合，并推动在Fermi级的鞍点VHS，从而产生较大的石器标准，并导致稳定的FM地面状态。我们的数值结果可以很好地解释最近的实验。

基于这一理解，我们预计几层1T-VSe2的磁性可以由层间距离d40调整[见图1（a）]。VHS 分裂 \_Ed = E2 􀀀 E1 在双层 1T-VSe2 中的两个峰值之间与比率 "= （d􀀀 d0）=d0"，如图 4（c） 所示。这里 d0 = 3.067 \_A 是体块的层间距离。图中还显示了N（EF）与"的对应演化。我们观察到，\_Ed随着d的增加而单调地减少。这意味着当相邻dd\_的dz2轨道的叶分开时，基束键会减弱。在这个过程中，N（EF）单调上升，反映了石纳FM的增强稳定性。图4（d）中FM和NM相\_E能量差异也证实了石器不稳定性的增强。我们发现，\_E单调地减少与"，这表明FM相位变得越来越稳定，当d增加。此效果提供了一条有用的路径，通过扩大层间距离 d，在多层 1T-VSe2 中控制 NM 到 FM 过渡。它还揭示了通过纳米工程调谐1T-VSe2的居里温度。进一步的实验研究是非常可取的，以验证这些猜测。