

## 扰动对有机磁体器件自旋极化输运特性的影响\*

王辉 胡贵超<sup>†</sup> 任俊峰

(山东大学物理与电子科学学院, 济南 250014)

(2011年1月26日收到; 2011年8月2日收到修改稿)

基于紧束缚模型和格林函数方法,研究了有机磁体晶格扰动和侧基自旋取向扰动对金属/有机磁体/金属三明治结构有机自旋器件自旋极化输运特性的影响. 计算结果表明:晶格扰动的存在降低了器件的起始偏压,减小了导通电流,并使得电流-电压曲线的量子台阶效应不再显著,扰动不太强时电流仍呈现较高的自旋极化率;而侧基自旋取向扰动减小了体系的自旋劈裂,增加了器件的起始偏压,低偏压下随着扰动的增强器件电流及其自旋极化率明显降低. 进一步模拟了温度对器件自旋极化输运的影响.

**关键词:** 有机自旋电子学, 有机磁体, 自旋极化输运, 自旋过滤

**PACS:** 72.25.-b, 73.61.Ph, 85.75.-d

## 1. 引言

有机自旋电子学是当前凝聚态物理和功能材料与器件领域内的热门研究课题,它主要基于有机功能材料研究自旋的产生、湮没及传输等自旋电子学现象及相关自旋器件的设计. 相对于无机材料而言,有机材料可化学合成且种类丰富、尺寸多样、可大面积处理制作薄膜器件以及微尺度纳米器件. 有机器件柔韧性好、力学适应性强,可以通过自身调节与接触层形成良好的界面接触;同时,有机材料具有弱的自旋-轨道耦合及超精细相互作用,有利于自旋的传输. 目前,有机自旋器件的研究主要分为以下两类:一类为铁磁/有机/铁磁结构的有机自旋阀器件,主要研究自旋从铁磁金属向有机体的注入、输运及磁电阻等现象<sup>[1-3]</sup>;另一类是以有机磁性材料为中间层构建的自旋器件,它基于有机磁性分子自身的磁特性实现器件的功能. 有机磁性材料通常可以分为两类. 一类为非纯有机铁磁性材料,主要包括高分子金属络合物和电荷转移聚合物,如  $\{Mn(C_5H_2F_6O_2)_2\}_3 \cdot (C_{28}H_{54}N_3O_3)_2$  和  $V(C_6N_4)_x \cdot y(CH_2Cl_2)$  等<sup>[4,5]</sup>;另一类是不含金属离子的纯有机铁磁性材料,如 poly-BIPO, m-PDPC

和 pyrro-PAN等<sup>[6-9]</sup>. Korshak 等<sup>[6]</sup>在1987年首次合成了具有准一维结构的铁磁性聚合物 poly-BIPO, 1988年 Ovchinnikov 等<sup>[10]</sup>提出了一种超交换模型解释了这种聚合物的磁性机理. 该分子主链为含有  $\pi$  电子的碳原子构成的一维聚合物结构,碳原子上间隔悬挂着含有未配对电子的自由基. 假定主链上的  $\pi$  电子和自由基未配对电子自旋存在反铁磁耦合,在基态下自由基将形成铁磁序. 理论上,人们对有机磁体的磁性来源进行了广泛的研究,方忠等<sup>[11-13]</sup>基于紧束缚模型研究了  $\pi$  电子的巡游性和主链电子-晶格耦合及电子-电子关联对有机磁体磁特性的影响. 解士杰等<sup>[14,15]</sup>研究了开环和闭环不同边界条件对分子主链自旋密度波的影响.

近来,有机磁体在有机自旋器件方面的应用及其自旋极化输运特性引起了人们的广泛关注. Yoo 等<sup>[16]</sup>在实验上将有机磁性聚合物  $V(C_6N_4)_x$  与金电极相连,在外加磁场下发现器件存在明显的磁电阻效应,并研究了温度、光激发对体系输运特性的影响. Sugawara 等<sup>[17]</sup>研究了  $(C_{19}H_{19}Se_2S_4N_2O_2)_2ClO_4$  磁性分子的输运特性,在外加磁场磁感应强度为9 T时观测到其磁电阻约为70%,并研究了分子与金电极表面不同的接触方式对极化电流的影响. 王为忠<sup>[18]</sup>从理论上研究了门电压对 poly-BIPO 有机磁体

\* 国家自然科学基金(批准号:10904084, 10904083)、山东省优秀中青年科学家科研奖励基金(批准号:2009BS01009)和山东省高等学校科技奖励计划(批准号:J09LA03)资助的课题.

<sup>†</sup> 通讯联系人. E-mail: hgc@sdu.edu.cn

和量子线耦合体系自旋极化输运特性的影响. Zhu 等<sup>[19]</sup>采用第一性原理和非平衡格林函数方法研究了单分子磁体器件中的自旋极化输运及磁电阻特性. 胡贵超等<sup>[20,21]</sup>采用 Su-Schrieffer-Heeger (SSH) + Heisenberg 模型和格林函数方法,对金属/有机铁磁/金属结构器件的自旋极化输运特性进行了研究,发现基态下的有机铁磁分子器件可实现自旋过滤功能,并基于磁性/非磁结构提出一种有机自旋二极管模型.

上述理论工作主要研究了有机磁体基态下的输运特性,而在实际情况下,外界环境的温度、外场、杂质、溶液等因素会影响有机磁体的分子电子结构以及磁特性,进而影响器件的电流及其自旋极化率. 如 Yoo 等<sup>[16]</sup>在实验中发现外加磁场下有机磁体器件的磁电阻随温度的提高几乎呈线性增加. 以上各种因素导致的扰动对有机磁体器件输运特性的影响仍未被考虑. 有机磁体器件中的电子传输主要经由主链共轭  $\pi$  轨道,而  $\pi$  电子结构主要由晶格原子势场和侧基自旋关联决定. 本文在前期工作的基础上,将外界扰动的影响归结为晶格原子及侧基自旋取向相对于基态平衡位置的涨落,从这两个方面讨论了扰动对器件自旋极化输运特性的影响.

## 2. 模型和公式

图 1 所示为本文所研究的金属/有机铁磁/金属三明治结构器件,该器件的左右电极为全同半无限长金属链,中间分子为有机磁体(如 poly-BIPO),图中  $R$  表示含有一个未成键电子的自由基(侧基),箭头表示侧基自旋.

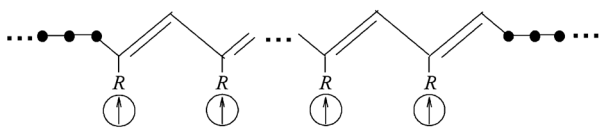


图 1 金属/有机铁磁/金属三明治结构示意图

在紧束缚近似下,体系的哈密顿量可写为

$$H = H_{\text{OF}} + H_{1(r)} + H_{\text{coup}} + H_E. \quad (1)$$

$H_{\text{OF}}$  为有机磁体 poly-BIPO 的哈密顿量,可以用扩展的 SSH + Heisenberg 模型来描述<sup>[12,14]</sup>,

$$H_{\text{OF}} = - \sum_{n,s} [t_0 - \alpha(u_{n+1} - u_n)] (c_{n,s}^+ c_{n+1,s})$$

$$+ c_{n+1,s}^+ c_{n,s}) + \frac{K}{2} \sum_n (u_{n+1} - u_n)^2 + J_f \sum_n \delta_{n,o} \mathbf{S}_{n,R} \cdot \mathbf{S}_n + U \sum_{n,s} c_{n,\uparrow}^+ c_{n,\uparrow} c_{n,\downarrow}^+ c_{n,\downarrow} + W \sum_{n,s,s'} c_{n,s}^+ c_{n,s} c_{n+1,s'}^+ c_{n+1,s'}. \quad (2)$$

这里  $t_0$  为主链晶格原子均匀排列时的电子跃迁积分,  $\alpha$  为电子-晶格耦合系数,  $u_n$  为第  $n$  个格点偏离平衡位置的位移,  $K$  为晶格原子弹性常数,  $c_{n,s}^+$  ( $c_{n,s}$ ) 表示第  $n$  个格点上自旋为  $s$  的电子的产生(湮没)算符. (2)式等号右端第三项表示主链  $\pi$  电子和侧基剩余自旋的自旋关联,  $J_f$  为自旋相互作用系数,  $\delta_{n,o}$  表示侧基悬挂在主链第奇数个碳原子上. 我们进一步采用平均场近似将侧基自旋近似为  $\langle S_{n,R}^z \rangle$ ,  $\langle \cdot \rangle = \langle G | \cdot | G \rangle$  表示基态平均值. (2)式最后两项描述  $\pi$  电子之间的电子-电子关联,  $U$  为相同格点上电子-电子相互作用,  $W$  表示相邻格点间电子-电子相互作用.

$H_{1(r)}$  为左(右)半无限长金属电极的哈密顿量,

$$H_{1(r)} = \sum_{m,s} \varepsilon_{1(r)} a_{m,s}^+ a_{m,s} + \sum_{m,s} t_{1(r)} (a_{m,s}^+ a_{m+1,s} + \text{H. C.}), \quad (3)$$

式中  $\varepsilon_{1(r)}$  为金属原子相对于碳原子的在位能,  $t_{1(r)}$  为左(右)电极最近邻格点电子跃迁积分,  $a_{m,s}^+$  ( $a_{m,s}$ ) 表示第  $m$  个格点上自旋为  $s$  的电子的产生(湮没)算符.

$H_{\text{coup}}$  为电极与有机磁体间的相互作用哈密顿量. 为简化计算我们忽略界面处的自旋相关性并假定仅分子和电极端点相邻原子间存在耦合,则哈密顿量可写为

$$H_{\text{coup}} = \sum_s t_{1M} (a_{1,s}^+ c_{1,s} + \text{H. C.}) + \sum_s t_{NM} (a_{N,s}^+ c_{r,s} + \text{H. C.}), \quad (4)$$

式中  $t_{1M} = t_{rM}$  为界面耦合系数,  $N$  为有机磁体主链碳原子总数.

当施加一外加偏压  $V_b$  时,分子空间产生一强度为  $E = V_b / [(N-1)a]$  的均匀强电场,其中  $a$  为晶格常数. 分子在电场下的势能用哈密顿量  $H_E$  来表示,即

$$H_E = - \sum_{n,s} |e| E \left[ \left( n - \frac{N+1}{2} \right) a + u_n \right] c_{n,s}^+ c_{n,s} + \sum_n |e| E \left[ \left( n - \frac{N+1}{2} \right) a + u_n \right], \quad (5)$$

式中  $e$  为电子电量. (5)式等号右端第一项表示电场下分子中  $\pi$  电子的电势能,第二项表示晶格阳离子

在电场下的电势能.

我们使用下列 Landauer-Büttiker 公式计算通过器件的自旋相关电流<sup>[22,23]</sup>:

$$I_s(V_b) = \frac{e}{h} \int_{-\infty}^{+\infty} \tau_s(E, V_b) [f(E - \mu_l) - f(E - \mu_r)] dE. \quad (6)$$

这里  $f(E - \mu_{l(r)})$  为左(右)电极的费米分布函数,  $f(E - \mu_{l(r)}) = 1 / \{1 + \exp[(E - \mu_{l(r)}) / (k_B T)]\}$ , 其中  $\mu_{l(r)}$  为左(右)电极的化学势,

$$\mu_{l(r)} = E_F \pm \frac{eV_b}{2},$$

其中  $E_F$  为零偏压下电极的费米面;  $\tau_s(E, V_b)$  为偏压  $V_b$  下能量为  $E$  的电子透射概率, 可通过 Fish-Lee 关系由晶格格林函数求得<sup>[22,23]</sup>,

$$\tau_s(E, V_b) = \text{tr}[G_l G_s(E, V_b) G_r G_s^+(E, V_b)],$$

其中  $G_s(E, V)$  为单电子自旋相关格林函数,

$$G_s(E, V_b) = \frac{1}{E - H_{OF}^s - H_E^s - \Sigma_l - \Sigma_r},$$

$H_{OF}^s$  和  $H_E^s$  为方程(1)和(5)中自旋为  $s$  的电子部分哈密顿量,  $\Sigma_l$  和  $\Sigma_r$  为同电极耦合导致的自能算符.

我们用  $I$  表示通过器件的总电流,

$$I = I_{\uparrow} + I_{\downarrow}.$$

体系的电流自旋极化率定义为

$$P = (I_{\downarrow} - I_{\uparrow}) / I.$$

我们按以下步骤进行数值计算:首先对电子-电子相互作用进行平均场处理,在 Wannier 空间求解电子本征方程,通过对分子总能量最优化使晶格弛豫,最终可自洽求解得到外电场下有机铁磁分子的稳态晶格构形和电子结构<sup>[11,12]</sup>.然后求解自旋相关的格林函数与透射率.最后,通过 Landauer-Büttiker 公式求得器件的自旋相关电流.

我们采取以下参数进行数值计算<sup>[12,14]</sup>:对于有机磁体 poly-BIPO,  $t_0 = 2.5$  eV,  $\alpha = 41$  eV/nm,  $K = 2100$  eV/nm<sup>2</sup>,  $U = 1.0$  eV,  $W = U / 3$ ,  $J_f = 0.5 t_0$ ,  $\langle S_{n,R}^z \rangle = \frac{1}{2}$ . 电极参数取为  $\varepsilon_{l(r)} = 0$ ,  $t_l = t_r = 2.5$  eV,  $E_F = 1.5$  eV. 界面耦合参数取为  $t_{lM} = t_{rM} = 0.5$  eV.

### 3. 结果及讨论

在基态下,有机铁磁分子主链碳原子由于电子-晶格相互作用呈二聚化排列,侧基自旋指向同一方向( $z$ 轴)呈铁磁序排列,侧基自旋与主链  $\pi$  电子自

旋的关联使不同自旋的  $\pi$  电子能级发生自旋劈裂<sup>[11]</sup>. 在外加偏压下,隧穿电流可呈现较高的自旋极化从而实现自旋过滤功能<sup>[20]</sup>. 而外界温度、外场、杂质、溶液等因素可能对有机磁体晶格原子构型及侧基自旋取向产生扰动. 下面我们分别考虑有机磁体晶格原子位置涨落和侧基自旋取向涨落对器件输运特性的影响.

#### 3.1. 晶格扰动对器件自旋极化输运特性的影响

考虑在扰动下晶格原子相对于其平衡位置上产生一微小的偏移,我们采用广泛应用的方形随机分布模拟晶格原子相对于平衡位置的涨落<sup>[24,25]</sup>. 假定扰动后原子偏离平衡位置的位移为

$$u'_n = u_n + \delta u_n = u_n + (2R_n - 1)\sigma u_0.$$

这里  $R_n$  为  $[0,1]$  范围内满足方形随机分布的一组随机数;  $\sigma$  为扰动系数,表征扰动强度;  $u_0$  为晶格二聚化偏移量,对于一维有机磁体,  $u_0 = 0.004$  nm<sup>[24]</sup>. 选取 1000 组随机数抽样,计算每组的电子透射概率并进行统计平均,进而计算体系的电流和自旋极化率. 我们首先计算了基态下体系的电流及其自旋极化率,结果如图 2 实线所示. 从图 2 可以看出:当偏压大于 0.5 V 时器件导通,随偏压增大电流呈阶梯形增加,这是由分子器件能级分立导致;当偏压为 0.7—1.0 V 时,电流的自旋极化率可以达到近 100%. 考虑晶格扰动,图 2 同时也给出了扰动系数  $\sigma = 1$  和  $\sigma = 4$  时的结果. 从图 2 还可以看出:随扰动强度的增强,器件的起始偏压降低,电流随电压变化曲线由阶梯形向线性过渡,表明扰动的存在使得分子器件的量子效应不再显著. 当扰动不太强时( $\sigma = 1$ ),器件的电流自旋极化率仍可在某些偏压下达到近 100%,而当扰动增强到  $\sigma = 4$  时,自旋极化率将达不到 100%,在偏压为 0.4 V 下最大值约为 48%,此时器件将不再实现自旋过滤的功能. 注意到在某些偏压下器件的自旋极化率为负值,表明该偏压下自旋向下的电流小于自旋向上的电流.

为理解扰动对体系输运特性的影响,我们计算了  $V_b = 0.8$  V 时不同扰动下体系的自旋相关电子透射谱,结果如图 3 所示. 从图 3 可以看出:当无晶格扰动时,只有自旋向下的最低未占据分子轨道(LUMO)进入偏压窗对电流有贡献,使体系电流自旋极化率达到近 100%. 当扰动系数  $\sigma = 1$  时,虽然仍只有自旋向下的 LUMO 在偏压窗内,但

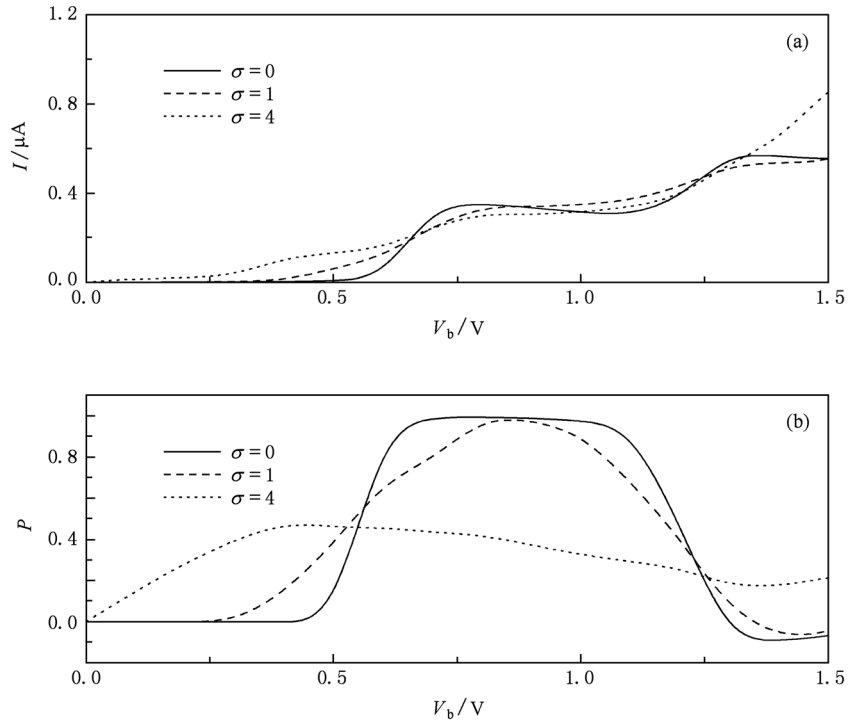


图2 扰动系数  $\sigma = 0, 1, 4$  时电流  $I$  及其自旋极化率  $P$  随偏压  $V_b$  的变化 (a) 电流随偏压的变化, (b) 自旋极化率随偏压的变化

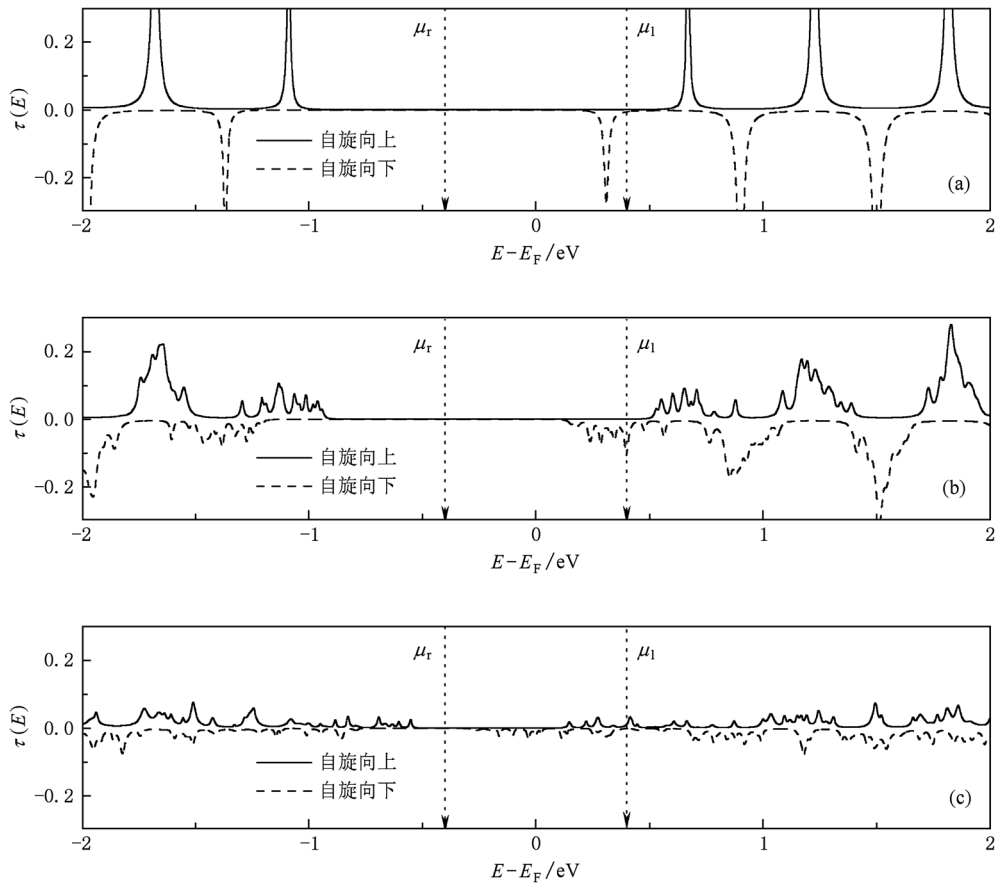


图3 扰动系数  $\sigma = 0, 1, 4$  时体系的自旋相关电子透射谱  $V_b = 0.8 \text{ V}$ . (a)  $\sigma = 0$ , (b)  $\sigma = 1$ , (c)  $\sigma = 4$

扰动的出现使得电子透射峰展宽,透射峰最高值降低.同时由于扰动减弱了分子晶格原子的二聚化,分子的派尔斯能隙减小,使得自旋向下的 LUMO 向费米能级移动,降低了器件的起始偏压.当扰动系数增加到  $\sigma = 4$  时,电子透射峰进一步展宽,此时透射峰分立现象不再明显,导致电流随电压不再呈阶梯形变化.而透射峰的明显降低则导致体系电流下降,同时分子的派尔斯能隙进一步减小,使得自旋向上的 LUMO 部分进入偏压窗,电流自旋极化率降低.

我们进一步计算了固定偏压下通过器件的电流  $I$  及其自旋极化率  $P$  随扰动系数  $\sigma$  的变化关系,结果如图 4 所示.图 4(a) 给出了偏压为 0.8 V 时的结果.从图 4(a) 可以看出,随扰动增强电流先出现一微小的起伏,当扰动系数  $\sigma > 3$  后,电流值迅速降低.在  $\sigma = 5.5$  时,电流值由原来的 0.35  $\mu\text{A}$  左右降至约 0.18  $\mu\text{A}$ ,电流的自旋极化率也由近 100% 下降到 35% 左右.由电子透射谱可以发现,  $\sigma < 3$  时电流的起伏是由于扰动导致的电子透射峰展宽使得部分电子透射谱移出或进入偏压窗,而  $\sigma > 3$  后电流的迅速下降则源于电子透射谱峰值在扰动下大幅降低.分子轨道的导电性能和轨道波函数的空间延展性相关联.原子位置的涨

落会破坏晶格周期性,使晶格无序并改变电子波函数的空间延展性.由 Anderson 局域理论可知,无序系统中电子波函数随无序程度的增加存在一临界值,超过该临界值电子波函数的定域度  $\xi$  将呈指数形式增加.这与我们所计算的电流随扰动的变化规律是一致的.图 4(b) 给出了费米面附近的自旋向下和自旋向上的 LUMO 轨道的定域度  $\xi$  随扰动系数  $\sigma$  的变化.在偏压下分子本征态的定域度定义为<sup>[25]</sup>

$$\xi_{\mu,s}(V) = \sum_n |\varphi_{n,\mu,s}|^4,$$

其中  $\varphi_{n,\mu,s}$  表示自旋为  $s$  的本征态  $\mu$  在瓦尼尔表象的电子波函数.  $\xi_{\mu,s}$  的大小反映了电子态的定域性强弱,完全定域态  $\xi_{\mu,s} = 1$ ,  $\xi_{\mu,s} = 1/N$  则表示完全扩展态.如图 4(b) 所示,扰动的增强使得这两条对导电起主要作用的轨道定域性明显增加,导电性能减弱.扰动强度对自旋极化率的影响如上所述,随扰动增强,体系的能隙逐渐减小且透射峰进一步展宽,使得越来越多自旋向上的电子透射谱进入偏压窗,从而降低了电流的自旋极化率.这里需要注意,由于电流自旋极化率是偏压的函数,在该偏压下得到的不一定是体系最大自旋极化率.

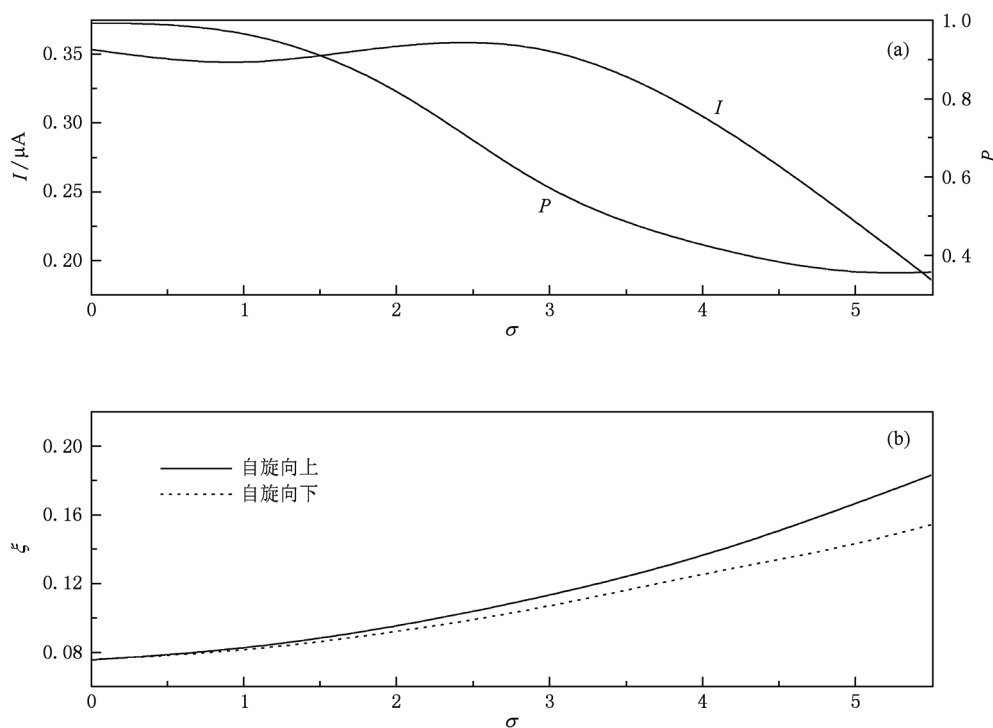


图 4 电流  $I$  及其自旋极化率  $P$  和自旋相关的 LUMO 电子定域度  $\xi$  随晶格扰动系数  $\sigma$  的变化  $V_b = 0.8 \text{ V}$ . (a) 电流及其自旋极化率随晶格扰动系数的变化, (b) 自旋相关的 LUMO 电子定域度随晶格扰动系数的变化

### 3.2. 侧基自旋取向扰动对器件自旋极化输运特性的影响

磁场、光激发和温度等扰动的影响会使得有机磁体侧基自旋偏离基态铁磁序,进而影响  $\pi$  电子的能级结构及输运特性. 我们用扰动下侧基自旋取向偏离基态的最大角度  $\theta_0$  表征扰动的强度. 假定第  $n$  个侧基偏离基态的角度  $\theta_n$  在  $[0, \theta_0]$  范围内满足方形随机分布, 则扰动后侧基自旋在  $z$  轴的投影为  $\langle S_{n,R}^z \rangle' = \langle S_{n,R}^z \rangle [1 - R_n(1 - \cos\theta_0)]$ . 取 1000 组随

机数抽样计算然后统计平均, 我们首先分别计算了  $\theta_0 = 45^\circ, 90^\circ, 135^\circ$  时通过器件的电流  $I$  及其自旋极化率  $P$  随偏压  $V_b$  的变化, 结果如图 5 所示. 从图 5 可以看出: 随扰动强度的增强, 电流-电压曲线仍保持阶梯形变化, 但起始偏压增加, 且导通后的电流值增大. 扰动较弱 ( $\theta_0 < 90^\circ$ ) 时, 体系的电流自旋极化率仍可达到近 100%, 但保持高自旋极化的偏压范围减小. 在强扰动下 ( $\theta_0 = 135^\circ$ ), 自旋极化率不能达到 100%, 其最大值在  $V_b = 0.8$  V 时降至 70% 左右.

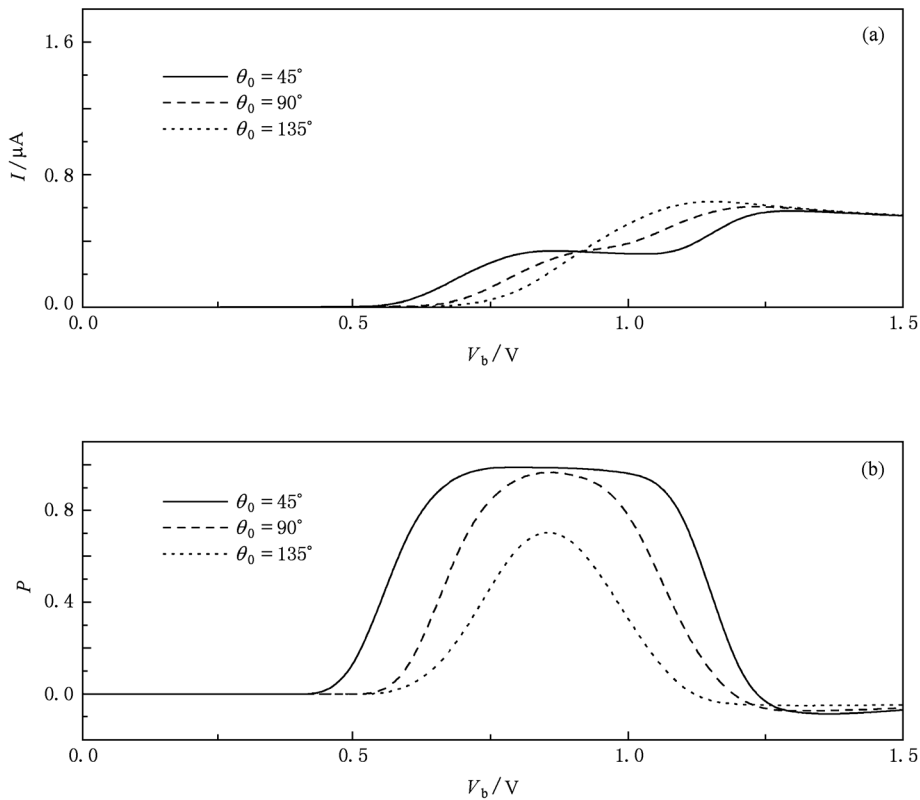


图 5 最大偏离角  $\theta_0 = 45^\circ, 90^\circ, 135^\circ$  时电流  $I$  及其自旋极化率  $P$  随偏压  $V_b$  的变化 (a) 电流随偏压的变化, (b) 自旋极化率随偏压的变化

为理解侧基自旋扰动对电子自旋极化输运的影响, 我们计算得到了不同扰动强度下费米面附近的自旋相关电子透射谱, 图 6 给出了  $V_b = 0.8$  V 时的结果. 从图 6 可以看出: 扰动较弱 ( $\theta_0 = 45^\circ$ ) 时, 电子透射谱和无扰动时非常接近, 只有自旋向下的 LUMO 进入偏压窗. 当扰动增强到  $\theta_0 = 90^\circ$  时, 由于侧基自旋取向的变化减弱了侧基自旋与  $\pi$  电子之间的自旋关联, 使得主链  $\pi$  电子轨道自旋劈裂减小, 相应的不同自旋的透射峰之间的劈裂随之减小, 在  $\theta_0 = 135^\circ$  时可以看出体系的自旋劈裂几乎消

失. 自旋劈裂减小使得自旋向下的 LUMO 远离费米面, 增大了器件的起始偏压. 同时使得自旋向下的透射峰移出偏压窗, 而自旋向上的透射峰靠近偏压窗, 因此器件自旋极化率随扰动强度的增加而降低, 但由于自旋向上的透射峰的贡献使器件的导通电流增大. 从图 6 还可以看出, 侧基自旋取向扰动也使得电子透射峰展宽, 峰值降低, 但其变化幅度远小于晶格扰动引起的变化.

我们进一步计算了低偏压下通过器件的电流及其自旋极化率随侧基自旋取向扰动强度的变化

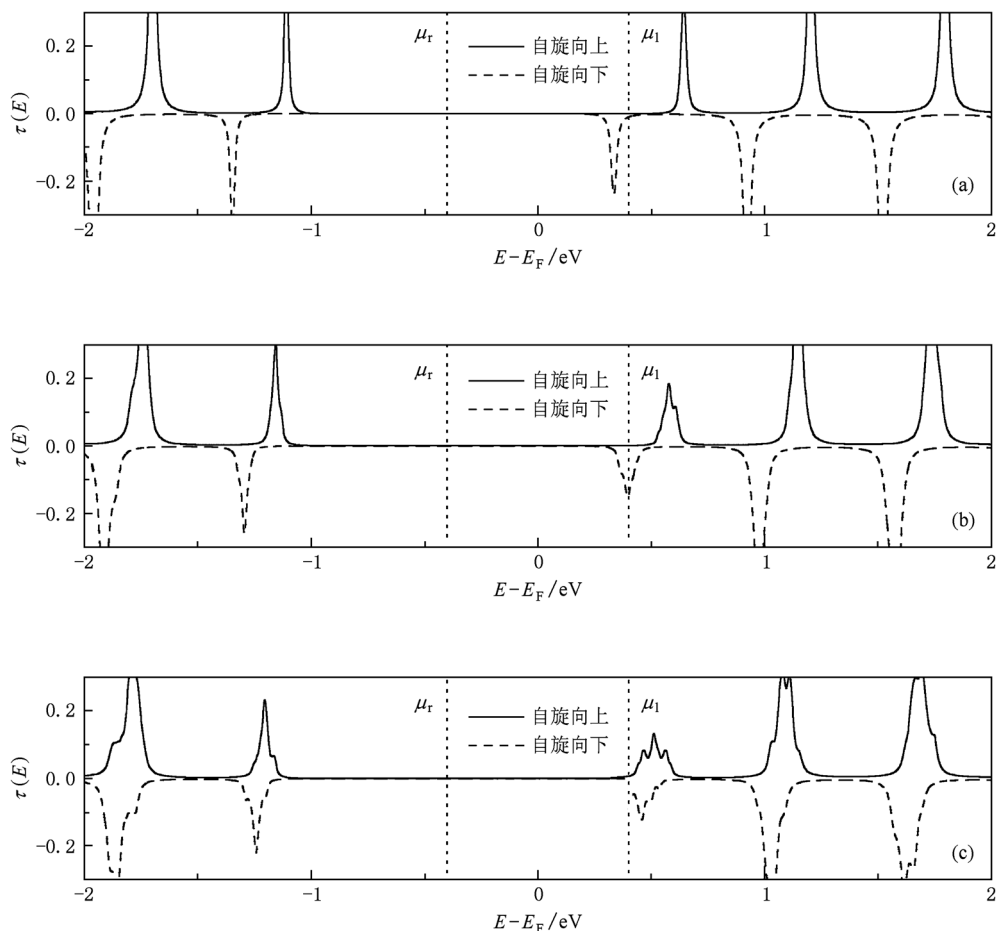


图6  $\theta_0 = 45^\circ, 90^\circ, 135^\circ$  时体系自旋相关的电子透射谱  $V_b = 0.8\text{V}$ . (a)  $\theta_0 = 45^\circ$ , (b)  $\theta_0 = 90^\circ$ , (c)  $\theta_0 = 135^\circ$

关系. 图 7(a) 给出了  $V_b = 0.8\text{V}$  下的计算结果. 从图 7(a) 可以明显看出, 随着侧基自旋扰动的增强电流迅速减小, 在  $\theta_0 = 170^\circ$  左右电流减小到近于零 ( $I = 0.05\ \mu\text{A}$ ). 弱扰动下电流自旋极化率变化较小, 当  $\theta_0 > 100^\circ$  时自旋极化率才开始迅速降低并降至不足 10%. 这表明, 当侧基自旋取向扰动不是太强时仍可得到较高的电流自旋极化率. 图 7(b) 给出了费米面附近自旋相关的 LUMO 轨道定域性随侧基自旋扰动强度的变化. 从图 7(b) 可以看出, 与晶格位形扰动不同, 侧基自旋的扰动基本不改变前沿分子轨道的定域性, 因此通过器件电流值的减小主要是由于扰动减小了轨道自旋劈裂, 使得最前沿的分子轨道自旋向下的 LUMO 远离费米面, 对电流贡献减小.

### 3.3. 温度扰动对器件自旋极化输运特性的影响

最后, 我们同时考虑晶格扰动和侧基自旋扰动, 模拟了温度对器件自旋极化输运特性的影响.

在一定的温度  $T$  下, 根据热力学公式可知, 温度引起的分子激发能  $\Delta E \approx \frac{N}{2} k_B T$ . 假定晶格扰动和侧基自旋扰动分别导致体系能量的变化为  $\Delta E_1 = \Delta E_2 = \frac{1}{2} \Delta E$ , 通过计算两种扰动下分子能量变化与扰动强度的关系, 可确定不同温度下对应的晶格扰动系数  $\sigma$  和侧基自旋扰动强度. 我们分别计算了  $T = 100\text{K}$  ( $\sigma = 0.35, \theta = 45^\circ$ ),  $T = 200\text{K}$  ( $\sigma = 0.6, \theta = 73^\circ$ ) 和  $T = 300\text{K}$  ( $\sigma = 0.8, \theta = 127^\circ$ ) 时电流  $I$  和自旋极化率  $P$  随偏压  $V_b$  的变化情况, 计算结果如图 8 所示. 从图 8 可以看出: 在室温范围内电流-电压曲线仍大致保持阶梯形, 随温度的增加器件的起始偏压略微提升, 低偏压 ( $V_b < 1.0\text{V}$ ) 下电流值随温度的升高而减小. 当  $T = 200\text{K}$  时电流仍能保持较高的自旋极化率, 当  $T = 300\text{K}$  时自旋极化率减小到 70% 左右. 这表明室温下有机磁体器件仍能实现有效的自旋极化输运.

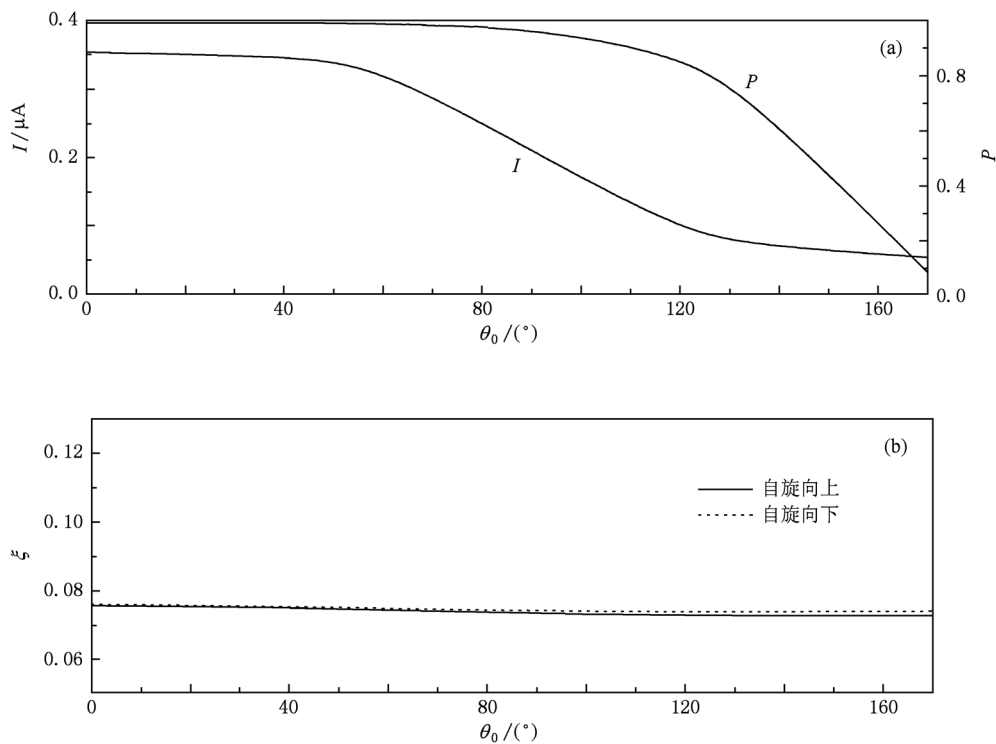


图7 电流  $I$  及其自旋极化率  $P$  和自旋相关的 LUMO 电子定域度  $\xi$  随最大偏离角  $\theta_0$  的变化  $V_b = 0.8 \text{ V}$ . (a) 电流及其自旋极化率随最大偏离角的变化, (b) 自旋相关的 LUMO 电子定域度随最大偏离角的变化

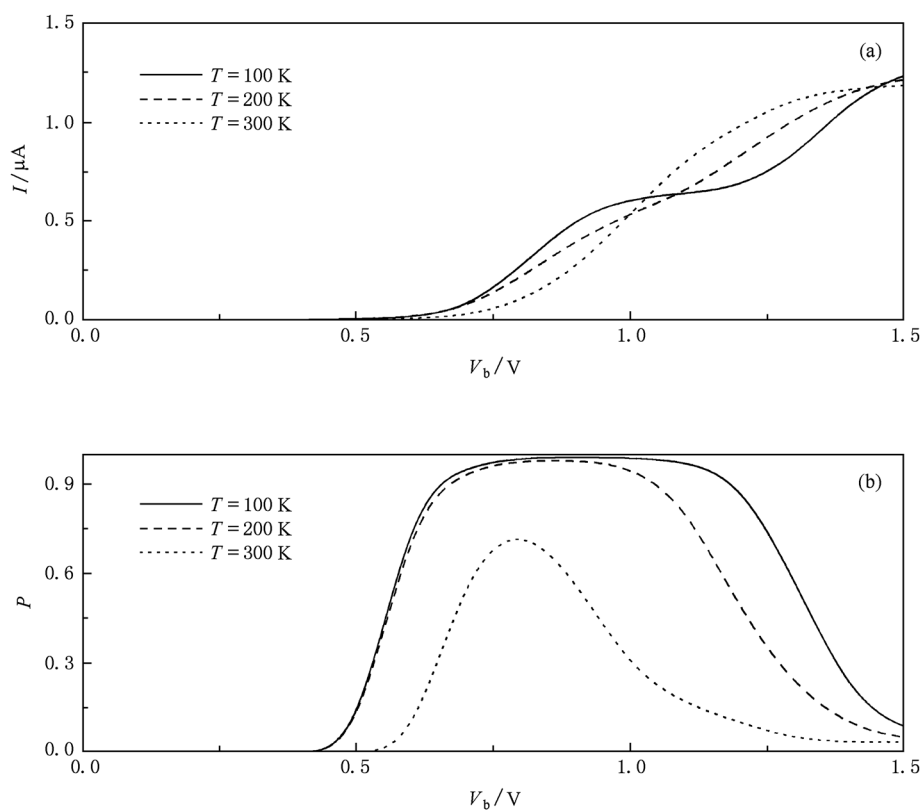


图8 不同温度下电流  $I$  及其自旋极化率  $P$  随偏压  $V_b$  的变化 (a) 电流随偏压的变化, (b) 自旋极化率随偏压的变化



## 4. 结 论

本文讨论了一维有机磁体器件中分子晶格扰动和侧基自旋取向扰动对器件自旋极化输运特性的影响. 研究发现: 晶格扰动的存在减小了分子的能隙, 局域了费米面附近的电子态, 进而使器件的起始偏压降低, 电流值减小. 在扰动强度不是太高时电流仍可保持近 100% 的自旋极化, 实现自旋过滤功能. 侧基自旋取向扰动对分子轨道的定域性影响较小, 但减小了分子轨道的自旋劈裂, 在一定强

度下使得电流自旋极化率明显降低. 同时, 侧基自旋取向扰动使分子前沿轨道远离费米面, 增大了器件的起始偏压, 并使得低偏压下器件的电流值降低. 同时考虑晶格扰动和侧基自旋取向扰动情况下进一步模拟了温度对器件自旋极化输运特性的影响, 发现在室温下有机磁体器件仍然可以实现较高的电流自旋极化率. 最后, 需要提及的是高斯随机分布也是人们常用来模拟系统涨落的一种方法, 为此, 我们还采用高斯随机分布模拟了晶格原子或侧基自旋相对平衡位置的涨落, 得到了与本文类似的结论.

- [1] Dediu V, Murgia M, Maticotta F C, Taliani C, Barbanera S 2002 *Solid State Commun.* **122** 181
- [2] Xiong Z H, Wu D, Vardeny Z V, Shi J 2004 *Nature* **427** 821
- [3] Xie S J, Ahn K H, Smith D L, Bishop A R, Saxena A 2003 *Phys. Rev. B* **67** 125202
- [4] Inoue K, Hayanizu T, Iwamura H, Hashizume D, Ohashi Y 1996 *J. Am. Chem. Soc.* **118** 1803
- [5] Epstein A J, Miller J S 1996 *Synth. Met.* **80** 231
- [6] Korshak Y V, Medvedeva T V, Ovchinnikov A A, Spector V N 1987 *Nature* **326** 370
- [7] Cao Y, Wang P, Hu Z Y, Li S Z, Zhang L Y, Zhao J G 1988 *Synth. Met.* **27** B625
- [8] Iwamura H, Sugawara T, Itoh K, Takui T 1985 *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **125** 379
- [9] Katuluvskii Y A, Magrupov M A, Muminov A A 1991 *Phys. Stat. Sol. A* **127** 223
- [10] Ovchinnikov A A, Spector V N 1988 *Synth. Met.* **27** B615
- [11] Fang Z, Liu Z L, Yao K L 1994 *Phys. Rev. B* **49** 3916
- [12] Fang Z, Liu Z L, Yao K L, Li Z G 1995 *Phys. Rev. B* **51** 1304
- [13] Fang Z, Liu Z L, Yao K L, Li Z G 1994 *Acta Phys. Sin.* **43** 1866 (in Chinese)[方 忠、刘祖黎、姚凯伦、李再光 1994 物理学报 **43** 1866]
- [14] Xie S J, Zhao J Q, Wei J H, Wang S G, Mei L M, Han S H 2000 *Europhys. Lett.* **50** 635
- [15] Zhao J Q, Wei J H, Wang S G, Xie S J, Mei L M 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 1163 (in Chinese)[赵俊卿、魏建华、王守国、解士杰、梅良模 1999 物理学报 **48** 1163]
- [16] Yoo J W, Edelstein R S, Lincoln D M 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 247205
- [17] Sugawara T, Matsushita M M 2009 *J. Mater. Chem.* **19** 1738
- [18] Wang W Z 2006 *Phys. Rev. B* **73** 235325
- [19] Zhu L, Yao K L, Liu Z L 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 082115
- [20] Hu G C, Guo Y, Wei J H, Xie S J 2007 *Phys. Rev. B* **75** 165321
- [21] Hu G C, He K L, Xie S J, Saxena A 2008 *J. Chem. Phys.* **129** 234708
- [22] Datta S 1995 *Electronic Transport in Mesoscopic Systems* (New York: Oxford University Press) p148
- [23] Ferry D, Goodnick S M 1997 *Transport in Nanostructures* (Cambridge: Cambridge University Press) p169
- [24] Wang L X, Liu D S, Wei J H, Xie S J, Han S H, Mei L M 2002 *J. Chem. Phys.* **116** 9606
- [25] Gao X T, Fu X, Song J, Liu D S, Xie S J 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 952 (in Chinese)[高绪团、傅 雪、宋 骏、刘德胜、解士杰 2006 物理学报 **55** 952]

# Effect of disturbance on spin polarized transport through an organic ferromagnetic device<sup>\*</sup>

Wang Hui Hu Gui-Chao<sup>†</sup> Ren Jun-Feng

(College of Physics and Electronics, Shandong Normal University, Jinan 250014, China)

(Received 26 January 2011; revised manuscript received 2 August 2011)

## Abstract

Based on the tight-binding model and the Green's function method, the effects of atomic disorder of lattice configuration and the orientation disorder of side radical spins on the spin polarized transport through a metal/organic-ferromagnet/metal structure are investigated. The results show that the atomic disorder reduces the threshold voltage of the device and suppresses the conducting current. The staircase structure of the current-voltage curve for a molecular device is eliminated when the disorder is enhanced. The current keeps a high spin polarization if the atomic disorder is not strong. The orientation disorder of side radical spins reduces the spin splitting of molecular energy levels, which increases the threshold voltage of the device. The current and its spin polarization are reduced apparently at a low bias when the strength of disorder is enhanced. We further simulate the effect of temperature on the spin polarized transport through the device by taking into account two kinds of disorders.

**Keywords:** organic spintronics, organic ferromagnet, spin polarized transport, spin filtering

**PACS:** 72.25.-b, 73.61.Ph, 85.75.-d

---

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10904084, 10904083), the Distinguished Middle-aged and Young Scientist Encourage and Reward Foundation of Shandong Province, China (Grant No. 2009BS01009), and the Science and Technology Reward Program of Institution of Higher Education of Shandong Province, China (Grant No. J09LA03).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: hgc@sdu.edu.cn