

基于石墨烯电极的 Co-Salophene 分子器件的自旋输运

陈伟 陈润峰 李永涛 俞之舟 徐宁 卞宝安 李兴鳌 汪联辉

Spin-dependent transport properties of a Co-Salophene molecule between graphene nanoribbon electrodes

Chen Wei Chen Run-Feng Li Yong-Tao Yu Zhi-Zhou Xu Ning Bian Bao-An Li Xing-Ao Wang Lian-Hui

引用信息 Citation: [Acta Physica Sinica](#), **66**, 198503 (2017) DOI: 10.7498/aps.66.198503

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.198503>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I19>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

三角形石墨烯量子点阵列的磁电子学特性和磁输运性质

[Magneto-electronic and magnetic transport properties of triangular graphene quantum-dot arrays](#)

物理学报.2017, 66(13): 138501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.138501>

功能化扶手椅型石墨烯纳米带异质结的磁器件特性

[Magnetic device properties for a heterojunction based on functionalized armchair-edged graphene nanoribbons](#)

物理学报.2016, 65(11): 118501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.118501>

基于钴和坡莫合金纳米磁体的全自旋逻辑器件开关特性研究

[Switching characteristics of all spin logic devices based on Co and Permalloy nanomagnet](#)

物理学报.2016, 65(9): 098501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.098501>

界面铁掺杂锯齿形石墨烯纳米带的自旋输运性能

[Spin transport properties for iron-doped zigzag-graphene nanoribbons interface](#)

物理学报.2016, 65(6): 068503 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.068503>

应力调制的自旋转矩临界电流

[Spin-torque critical current tuned by stress](#)

物理学报.2014, 63(13): 138501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.138501>

基于石墨烯电极的Co-Salophene分子器件的自旋输运*

陈伟¹⁾²⁾ 陈润峰¹⁾ 李永涛²⁾ 俞之舟³⁾ 徐宁⁴⁾ 卞宝安⁵⁾
李兴鳌^{1)2)†} 汪联辉^{1)‡}

1)(南京邮电大学材料科学与工程学院, 南京 210023)

2)(南京邮电大学理学院, 信息物理研究中心, 南京 210023)

3)(南京师范大学物理科学与技术学院, 南京 210023)

4)(盐城工学院数理学院, 盐城 224051)

5)(江南大学理学院, 无锡 214122)

(2017年3月16日收到; 2017年6月6日收到修改稿)

采用基于非平衡格林函数结合第一性原理的密度泛函理论的计算方法, 研究了基于锯齿型石墨纳米带电极的Co-Salophene分子器件的自旋极化输运性质. 计算结果表明, 当左右电极为平行自旋结构时, 自旋向上的电流明显大于自旋向下的电流, 自旋向下的电流在 $[-1\text{ V}, 1\text{ V}]$ 偏压下接近零, 分子器件表现出优异的自旋过滤效应. 与此同时, 在自旋向上电流中发现负微分电阻效应. 当左右电极为反平行自旋结构时, 器件表现出双自旋过滤和双自旋分子整流效应. 除此之外, 整个分子器件还表现出较高的巨磁阻效应. 通过分析器件的自旋极化透射谱、局域态密度、电极的能带结构和分子自洽投影哈密顿量, 详细解释该分子器件表现出众多特性的内在机理. 研究结果对设计多功能分子器件具有重要的借鉴意义.

关键词: 自旋输运, 分子器件, 石墨烯纳米带

PACS: 85.65.+h, 85.75.-d, 81.05.ue

DOI: 10.7498/aps.66.198503

1 引言

随着电子科学的发展, 传统硅基半导体电子学正面临着器件微型化的挑战. 近年来, 分子器件已逐步成为替代硅基电子学的有效替代品. 分子器件具有体积小、高速运转、低功率消耗等特点, 受到越来越多研究者的关注^[1-11]. 特别是以单分子为基础的自旋分子器件表现出许多有趣的物理性质, 如自旋阀^[12,13]、自旋二极管^[14,15]、自旋开关^[16,17]、自旋晶体管^[18]等. 自从2004年实验上发现石墨烯以来^[19], 由于其优异的电子结构和输运性质, 受到

了人们的广泛关注^[20,21]. 石墨烯通过裁剪可以得到一维石墨烯纳米带, 根据边缘结构可以分为扶手型石墨烯纳米带(AGNR)和锯齿型石墨烯纳米带(ZGNR). 由于边缘结构不同, AGNR不具有磁性. 而ZGNR具有三种磁性态, 即铁磁态(FM)、反铁磁态(AFM)和非磁态(NM), 其中AFM态为基态^[22]. 众所周知, 在一定的外磁场调控下, AFM态可以转变为FM态^[23,24]. 因此, ZGNR在自旋输运纳米器件中具有巨大的应用潜力.

在分子器件研究中, 研究人员提出了许多理论方法来探讨分子器件的电子输运机理. 其中, 非

* 教育部“长江学者和创新团队发展计划”创新团队(批准号: IRT1148)、国家自然科学基金(批准号: 51372119, 11404278)、江苏省高校优秀青年教师和校长赴境外研修计划和南京邮电大学科研基金(批准号: NY214130, NY214104)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: lixa@njupt.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: iamlhwang@njupt.edu.cn

平衡格林函数 (NEGF) 结合密度函数理论 (DFT) 的第一原理方法被认为是目前应用最可靠和最广泛的计算电子输运的方法^[25,26]. 基于该方法, 各种具有许多新颖输运特性的分子器件已被广泛报道^[27-34]. 最近, 采用 ZGNR 作为电极的自旋分子器件引起了广泛关注. 比如, Chen 等^[31] 研究发现夹在两个 ZGNR 电极中 Chromium porphyrin 分子出现自旋过滤、自旋整流和负微分电阻等效应. Tan 等^[32] 研究有机分子 Zinc methyl phenalenyl (ZMP) 吸附在 ZGNR 电极上的电子输运性质, 发现该器件出现自旋过滤和分子整流效应. Wu 等^[33] 研究了基于 ZGNR 电极下 Pyrene 分子器件的自旋极化输运性质, 发现该分子器件具有多重功能特性如自旋过滤、自旋整流、巨磁阻和负微分电阻等效应. Zhu 等^[34] 研究发现自旋交叉 Fe(tzpy)₂(NCS)₂ 分子在 ZGNR 电极中表现出多种自旋功能性质. 因此, 采用 ZGNR 电极并选择合适的分子来实现具有多功能的自旋电子器件具有重要的意义.

在分子自旋电子学研究中, 含有过渡金属的有机分子已经越来越多地被用来设计自旋分子器件^[35-38]. An 等^[35] 研究发现夹在金电极中的 Mn(dmit)₂ 分子表现出较好的自旋过滤效应. Zhou 等^[36] 发现 Cr-phthalocyanine 分子在石墨烯电极下呈现出优异自旋过滤效应, 效率达到 100%. Zhao 等^[37] 研究发现 Fe-oligoporphyrine 二聚体在碳纳米管电极下表现出高效磁阻、自旋过滤和负微分电阻等效应. 含有 Co 金属的有机分子 Co-Salophene 是一种类 Salen 金属配合物, 可用作氧还原催化剂和非线性光学材料^[39,40]. 最近发现, Co-Salophene 分子在分子自旋电子学具有潜在的应用价值, 被用来设计各种自旋分子器件^[41,42]. Andrew 等^[41] 用 Co-Salophene 分子组成的一维分子链沉积在金电极表面上, 发现其表现出 Kondo 效应. Bazarnik 等^[42] 通过裁剪将 Co-Salophene 分子组装成纳米级的自旋分子器件. 本文采用非平衡格林函数方法结合密度泛函理论, 研究将单个 Co-Salophene 分子嵌入在 ZGNR 电极下的自旋极化输运性质. 左右 ZGNR 电极的自旋结构可以通过外磁场进行调控, 整个器件的磁化设置为平行 (P) 和反平行 (AP) 自旋结构. P 自旋结构为左右电极具有相同的自旋方向, AP 自旋结构为左右电极具有相反的自旋方向. 当左右电极为 P 自旋结构时, 该分子器件表现出优异的自旋过滤效应, 自旋

向上还出现负微分电阻效应. 当左右电极为 AP 自旋结构时, 该分子器件表现出双自旋过滤和双自旋分子整流效应.

2 模型与计算方法

图 1 (a) 给出了 Co-Salophene 分子嵌入在 ZGNR 电极下的分子器件结构示意图, 整个分子器件分为左电极 L、中心散射区 C 和右电极 R. 选择宽度为 $N = 6$ 的 ZGNR 作为 L 和 R 电极^[43], 中心散射区 C 包含 Co-Salophene 分子以及左右电极的缓冲层, 分子两端通过两个碳原子嵌入到两侧的 ZGNR 电极, 连接方式采取五元环结构. 在输运性质计算中, 采用基于非平衡格林函数结合密度泛函理论的 ATK 软件包^[25,26] 进行计算. 交换关联势选为 Perdew-Zunger 局域自旋密度近似 (LSDA), 所有原子的轨道基函数选为双极化基组 (DZP). 垂直于电子传输的两个方向分别选择 15 Å 的真空层来屏蔽周期近邻的相互作用. 自洽计算中, 截断能 (mesh cut off) 取值为 150 Ry, Monkhorst-Pack 的 K 点选为 $1 \times 1 \times 150$, 电子温度设置为 300 K, 收敛标准设置为 1×10^{-5} eV. 在计算输运性质之前, 先对分子进行结构优化计算, 然后再将分子组成器件进行器件结构优化, 优化过程中使每个原子受力收敛达到 0.05 eV/Å.

根据 Landauer-Büttiker 公式^[44], 计算器件的自旋极化电流为

$$I_{\sigma}(V) = \frac{e}{h} \int_{-\infty}^{+\infty} dE T_{\sigma}(E, V) \times [f(E - \mu_L) - f(E - \mu_R)], \quad (1)$$

其中 σ 表示电子的自旋方向, 分别代表自旋向上和自旋向下; $\mu_{L/R}$ 为左右电极的化学势, 分别取为 $\mu_L = E_F - eV/2$ 和 $\mu_R = E_F + eV/2$, E_F 是电极的费米能级, 在计算过程中 E_F 设置为 0; $f(E - \mu_{L/R})$ 为左右电极的费米分布函数. $T_{\sigma}(E, V)$ 是能量为 E 、偏压 V 的某一种自旋的透射系数, 表达式为

$$T_{\sigma}(E, V) = \text{Tr} [\Gamma_L(E) G^R(E) \Gamma_R(E) G^A(E)], \quad (2)$$

其中 $\Gamma_{L/R}(E)$ 分别是左右电极的展宽矩阵, $G^{R/A}(E)$ 分别是中心散射区的推迟和超前格林函数.

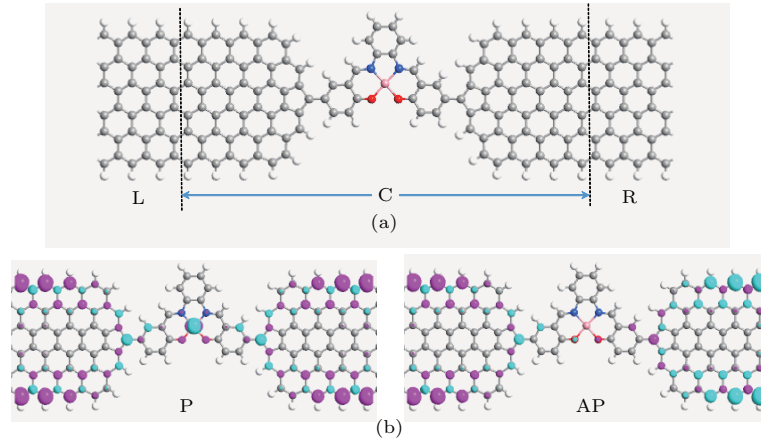


图1 (网刊彩色) (a) Co-Salophene分子嵌入在ZGNR电极下的分子器件结构示意图, L, C和R分别代表左电极, 中心散射区和右电极(灰色、白色、蓝色、粉色和红色球分别代表C, H, N, Co和O原子); (b) 零偏压下P和AP自旋极化差分密度分布(紫色代表自旋向上, 浅蓝色代表自旋向下)

Fig. 1. (color online) (a) The device of a Co-Salophene molecule attached to two ZGNR electrodes. L, C and R represents the left electrode, the central scattering region and the right electrode (C, gray; H, white; N, blue; Co, pink; O, red); (b) the spin charge density difference for the P and AP spin configurations under zero bias (the purple and light blue colors indicate the spin-up and spin-down components, respectively).

3 结果与讨论

图1(b)给出了零偏压下两种自旋结构的自旋极化差分密度分布, 其中紫色代表自旋向上, 浅蓝色代表自旋向下. 从图中可明显看出, 自旋极化态表现出较强的边缘效应, 即主要分布在ZGNR电极中的边缘碳原子上. 对于P自旋结构下, 分子中Co原子有明显的态出现; 而对于AP自旋结构下, Co原子上几乎没有态存在. 图2给出了两种自旋结构下的自旋极化电流-电压曲线、分子整流效率、自旋极化效率和磁电阻比. 从图2(a)可见, 当左右电极采取P自旋结构时, 两种自旋的电流表现出明显不同的输运行为. 在整个偏压范围下, 自旋向上的通道始终导通, 而自旋向下的通道始终关闭. 因此, 在P自旋结构下, 分子器件表现出优异的自旋过滤效应. 从图中还可以看出, 自旋向上的电流在偏压高于 ± 0.3 V时开始出现下降, 分子器件表现出负微分电阻效应. 对于左右电极采取AP自旋结构, 从图2(b)可见分子器件的自旋极化的电流-电压曲线与P自旋结构下有所不同, 自旋电流的大小比P结构的自旋电流小一个量级左右. 对于自旋向上通道, 当分子器件加正偏压时, 其电流几乎为零, 说明自旋向上输运通道关闭. 当分子器件加上负偏压时, 电流随着偏压的升高而增加, 此时输运

通道打开. 对于自旋向下通道, 电流的变化行为与自旋向上刚好相反. 当加正偏压时, 输运通道打开. 当加负偏压时, 输运通道关闭. 因此, 对于AP自旋结构下, 该分子器件在整个偏压下表现出双重的自旋过滤效应. 对于每种自旋通道来讲, 分子器件又表现出自旋整流效应. 自旋向上表现出反向整流效应, 自旋向下表现出正向整流效应. AP自旋结构下的分子整流效率($RR = |I(+V)|/|I(-V)|$)在0.5 V时可以达到50. 为了更好地描述分子器件的自旋输运性质, 图2(c)计算了自旋极化效率($SFE = (I_{up} - I_{dn})/(I_{up} + I_{dn})$), I_{up} 代表自旋向上的电流, I_{dn} 代表自旋向下的电流. 零偏压下的自旋极化效率是采用费米能级处的自旋透射系数 T_{up} 和 T_{dn} 来计算. 从图中可见, P自旋结构下的自旋极化效率在整个偏压下达到100%. 对于AP自旋结构下, 分子器件在偏压小于0.3 V时, 自旋极化效率相对较小一些. 当偏压增加到0.3 V以上, 自旋极化效率也逐步接近100%. 另外, 我们还计算了分子器件的磁电阻比($MR = (I_P - I_{AP})/I_{AP}$), 其中 I_P 为P自旋结构的总电流, I_{AP} 为AP自旋结构的总电流. 零偏压下的磁电阻比是采用费米能级处的电导来进行计算. 从图2(d)中看出, 磁电阻比在零偏压下可以达到70000%左右, 该分子器件表现出较高的巨磁阻效应.

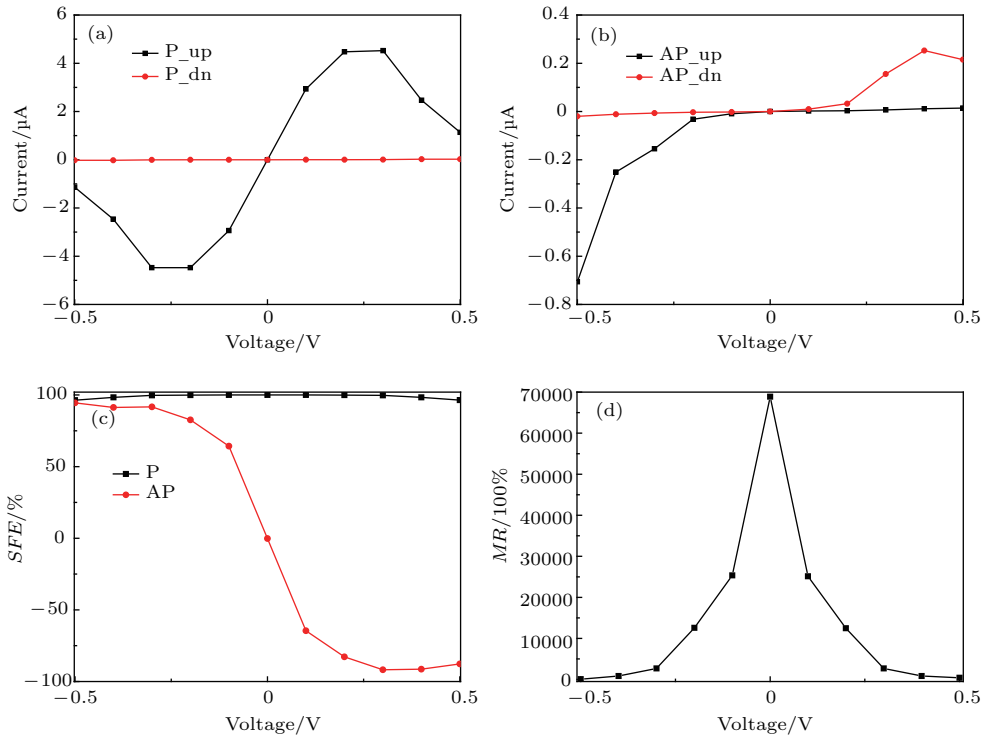


图2 (网刊彩色) (a), (b) 自旋极化电流-电压曲线; (c) 自旋极化效率; (d) 磁电阻比
 Fig. 2. (color online) (a), (b) Spin-resolved I - V curves; (c) spin filter efficiency; (d) magnetoresistance ratio.

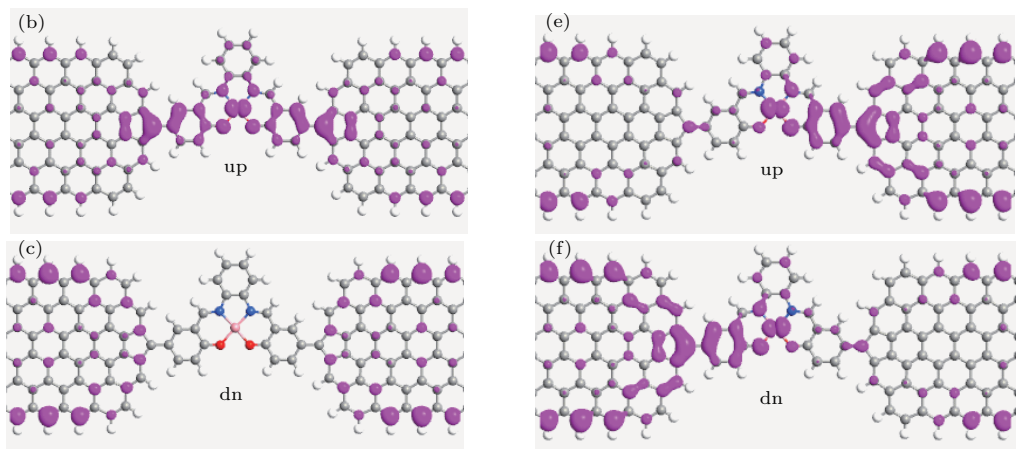
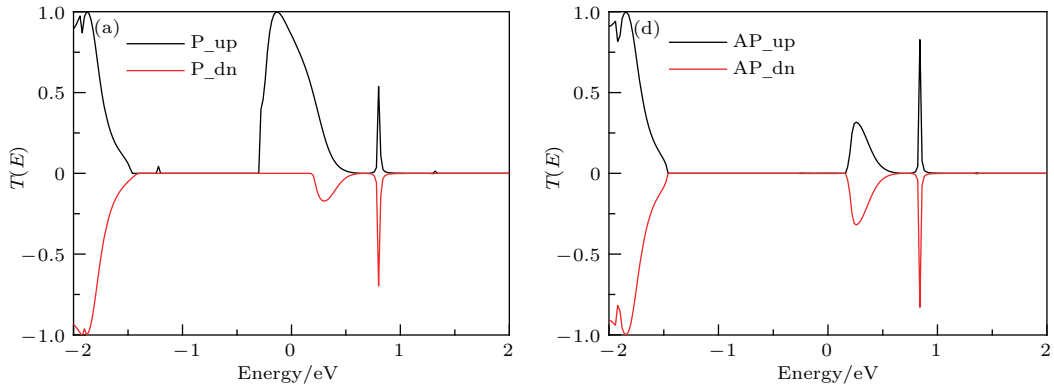


图3 (网刊彩色) 零偏压下的自旋极化透射谱和费米能级处的局域态密度 (a)–(c) P 自旋结构; (d)–(f) AP 自旋结构
 Fig. 3. (color online) The spin-resolved transmission and the local density of states (LDOS) at the Fermi level under zero bias: (a)–(c) P spin configuration; (d)–(f) AP spin configuration.

为了解释两种自旋结构下的自旋输运性质, 我们计算了在零偏压下两种自旋结构的透射谱曲线, 如图 3(a) 和图 3(d) 所示. 根据电子输运理论, 器件的电子传输能力主要取决于费米能级附近的透射峰. 对于 P 自旋结构, 从图 3(a) 中可见, 自旋向上在费米能级附近出现了一个比较宽的透射峰, 而自旋向下则没有透射峰存在. 因此, 自旋向上的电子在器件中进行传输, 而自旋向下的电子几乎被禁止传输. 这一点也可以从费米能级处的局域态密度 (LDOS) 得到解释, 如图 3(b) 和图 3(c) 所示. 从图 3(b) 可以看出, 自旋向上的 LDOS 分布整个分子和左右两侧的电极上, 给自旋向上的电子提供一个良好的通道进行传输. 而从图 3(c) 可以看出, 自旋向下的 LDOS 主要分布在左右两侧电极上, 中间

分子几乎没有态存在, 则无法给自旋向下的电子提供传输通道, 导致自旋向下的电子就无法进行传输. 因此在 P 自旋结构下, 该分子器件出现优异的自旋过滤效应. 对于 AP 自旋结构, 从图 3(d) 可以看出, 在费米能级附近, 自旋向上和自旋向下都没有透射峰的存在, 只是在远离费米能级处有透射峰出现, 导致两种自旋的电子的传输通道受到抑制, 该点可以从费米能级处的 LDOS 得到解释, 如图 3(e) 和图 3(f) 所示. 自旋向上的 LDOS 分布在器件的右半部分, 而自旋向下的 LDOS 分布在器件的左半部分. 因此, 两种自旋的电子传输受到抑制, 相应的电流值也随之变小, 可以从图 2 中的电流-电压曲线得到验证.

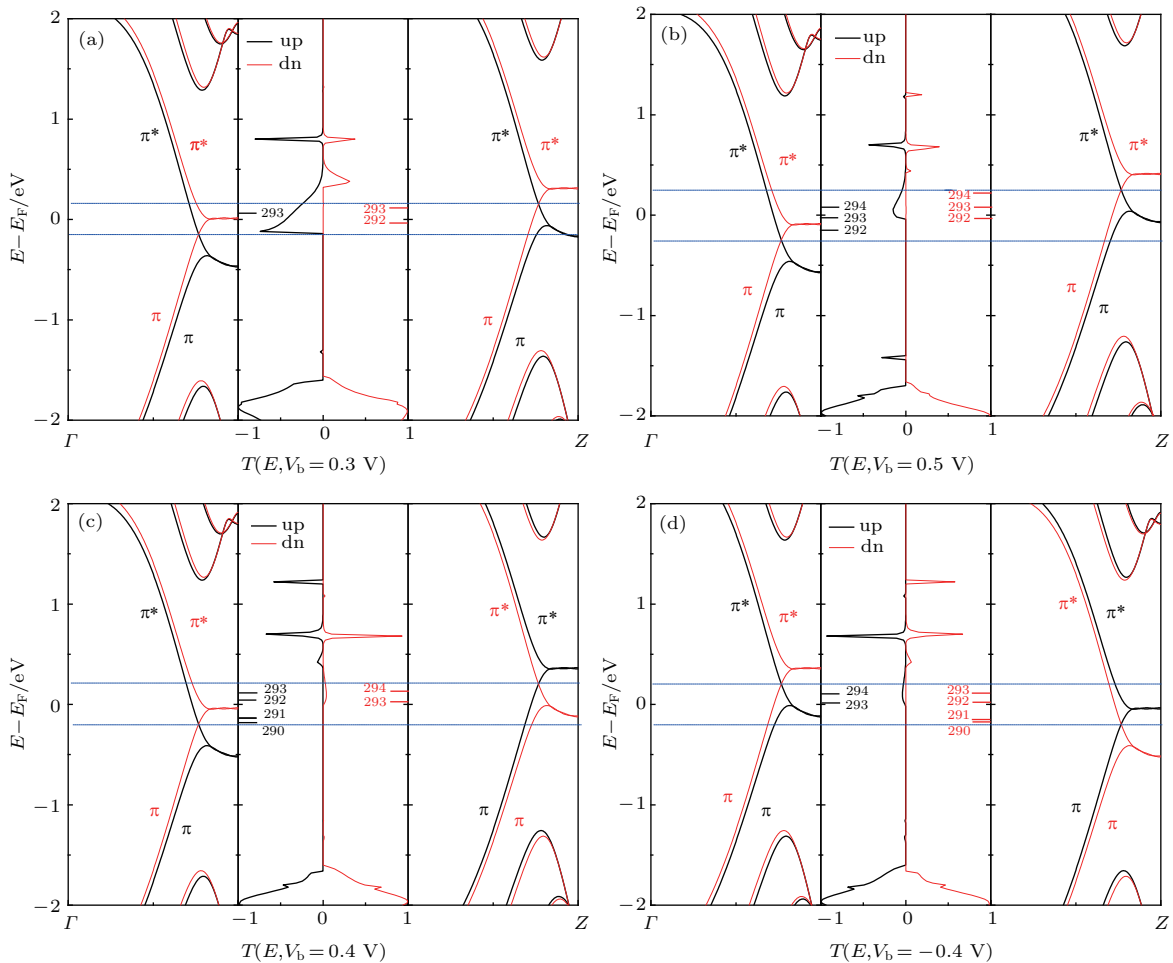


图 4 (网刊彩色) 不同偏压下的左电极能带, 透射谱线和右电极能带 (两条蓝色点线之间是偏压窗口, 黑短线代表自旋向上分子轨道, 红短线代表自旋向下分子轨道) (a), (b) P 自旋结构; (c), (d) AP 自旋结构

Fig. 4. (color online) The band structure of left electrode (left panel), right electrode (right panel), and the transmission (middle panel) at different bias (the region between two dotted blue lines is the bias window, the short black line represents the spin_up molecular orbital and the red short line represents spin_down molecular orbital): (a), (b) P spin configuration; (c), (d) AP spin configuration.

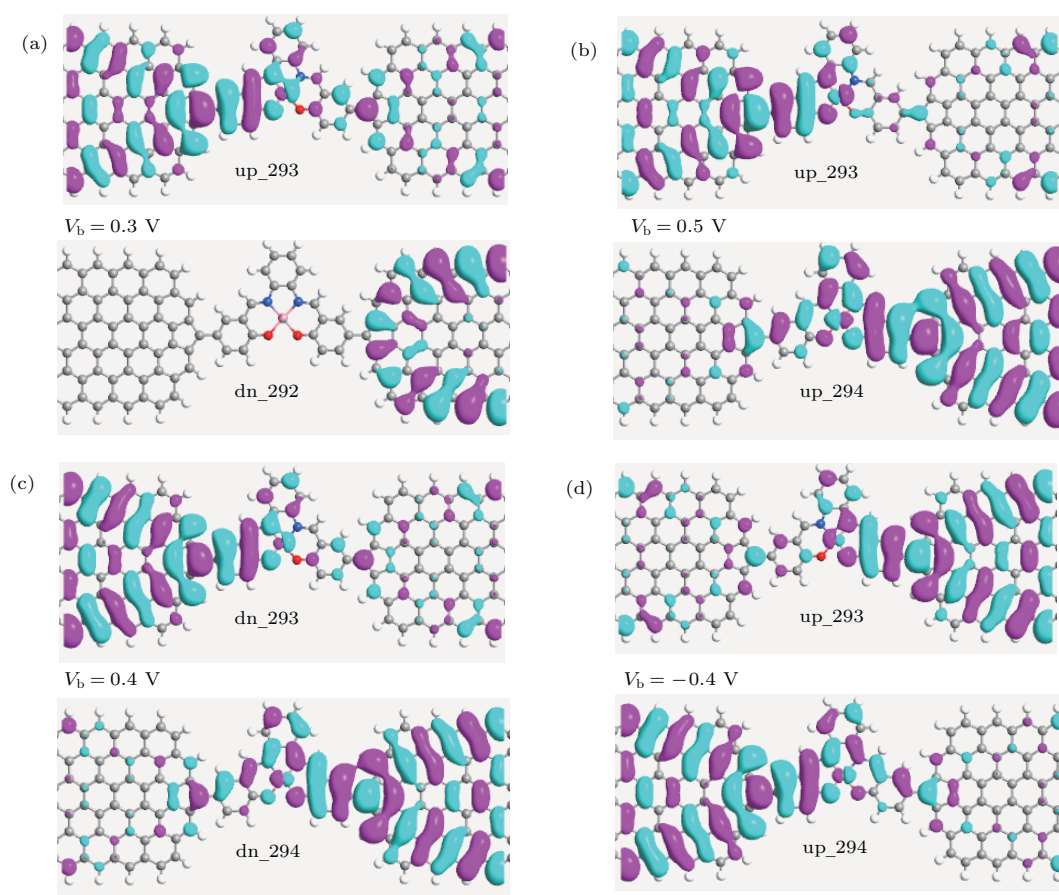


图5 (网刊彩色) 不同偏压下的分子轨道 MPSH 态 (a), (b) P 自旋结构; (c), (d) AP 自旋结构

Fig. 5. (color online) The spatial distribution of MPSH molecular orbitals at different bias: (a), (b) P spin configuration; (c), (d) AP spin configuration.

为了进一步阐明上述的自旋过滤和负微分电阻效应, 图4分别给出偏压分别为0.3 V和0.5 V时P自旋结构的ZGNR能带结构和散射区的透射谱, 偏压为 ± 0.4 V时AP自旋结构的ZGNR能带结构和散射区的透射谱. 当器件加正偏压时, 左右电极的能带移动方向相反, 即左(右)电极能带向下(上)移动. 当器件加负偏压时, 左右电极能带移动方向与正偏压下的情况刚好相反. 对于P自旋结构, 零偏压下左右电极的能带结构具有相同形式, 左右电极能带发生自旋极化产生 π^* 能带和 π 能带^[13,45]. π^* 能带为偶宇称对称, π 能带为奇宇称反对称^[46,47]. 由于 π^* 和 π 能带具有不同的对称性, 电子在两者之间传输被禁止. 但是电子可以在相同对称性的能带之间传输, 即电子从一个电极的 π^* (π)带可以传输到另一个电极的 π^* (π)带. 从图4(a)可见, 当器件加上0.3 V偏压后, 左电极的能带向下移动, 而右电极的能带向上移动. 左电极的自旋向上的 π^* 带与右电极的自旋向上的 π^* 带发生匹配, 并且在偏压窗口内出现一个自旋向上的

293级分子轨道, 导致在偏压窗口内出现自旋向上的透射峰. 同时, 在偏压窗口内出现两个自旋向下的分子轨道即292和293. 由于自旋向下的293级分子轨道出现在左电极的自旋向下 π^* 带和右电极的自旋向下 π 带之间, 根据 π^* 带和 π 带具有相反宇称对称性, 自旋向下的293级分子轨道对电子传输没有贡献. 图5给出了偏压窗口内的分子轨道的投影自洽哈密顿量(MPSH)本征态^[48]. MPSH态可以直观地描述分子轨道对透射的贡献, 并且也可以直观地说明分子和电极的耦合强度. 如果MPSH态离域分布在整个分子器件中, 说明分子与电极耦合强度强, 则有利于电子传输. 反之, 如果MPSH态局域在分子器件的某个区域, 说明分子与电极耦合强度弱, 则不利于电子传输. 从图5(a)可以看出, 自旋向上的293级分子轨道的MPSH态离域分布在整个分子器件中, 为自旋向上的电子提供一个传输通道, 在偏压窗口内产生一个宽且强的透射峰. 根据Landauer-Büttiker公式, 自旋向上出现较大的电流. 虽然, 自旋向下的292级分子轨道出

现在左电极的自旋向下 π 带与右电极的自旋向下 π 带之间,但是自旋向下的292级分子轨道的MPSH态局域分布在右电极区域,导致该自旋通道关闭.因此,自旋向上的电流远大于自旋向下的电流,器件表现出优异的自旋过滤效应.如图4(b)所示,当偏压增加到0.5 V后,左(右)电极的能带继续向下(上)移动.在偏压窗口内,三个自旋向下的分子轨道(292, 293和294)由于出现在左电极的自旋向下 π^* 带和右电极的自旋向下 π 带之间.由于 π^* 带和 π 带的对称性不匹配,导致自旋向下通道关闭.而在左电极自旋向上 π^* 带和右电极 π^* 带匹配之间出现两个自旋向上的分子轨道(293和294)提供通道来传输电子.同时从图5(b)看出,自旋向上293分子轨道的MPSH态主要分布在左电极和分子上,右电极分布相对较少.自旋向上的294分子轨道的MPSH态主要分布在右电极和分子上,左电极分布相对较少.这两个MPSH态分布比图4(a)中的自旋向上293级分子轨道的分布相对局域一些,引起较小的自旋向上的透射峰,使得自旋向上的电流变小,导致负微分电阻效应出现.负微分电阻效应在半导体器件领域具有潜在的应用前景,包括快速开关、高频震荡和放大器^[49-51]等.

对于AP自旋结构,从图4(c)可以看出,当器件加上0.4 V偏压后,左电极的能带向下移动,而右电极的能带向上移动.有四个自旋向上的分子轨道(290, 291, 292和293)出现在偏压窗口内,并且四个分子轨道出现在左电极的自旋向上 π^* 带和右电极的自旋向上 π 带之间.根据自旋向上 π^* 带和右电极的自旋向上 π 带的对称性不匹配,因此这四个分子轨道无法给电子提供运输通道.对于自旋向下,两个分子轨道(293和294)出现在偏压窗口之间,而且该两个分子轨道出现在匹配的左电极的自旋向下 π^* 带和右电极的自旋向下 π^* 带之间.同时,从图5(c)可见,两个分子轨道的MPSH态都离域分布在整个分子器件中,导致在偏压窗口内出现自旋向下的透射峰.因此,自旋向下的电流远大于自旋向上的电流.从图4(d)可见,当器件加上-0.4 V偏压后,左电极的能带向上移动,而右电极的能带向下移动.对于自旋向上,有两个分子轨道(293和294)出现在偏压窗口之间,且这两个分子轨道出现在匹配的左电极的自旋向上 π^* 带和右电极的自旋向上 π^* 带之间,图5(d)中相应的分子轨道的MPSH态离域分布在整个分子器件中,因此自旋

向上的通道打开.而对于自旋向下,四个自旋向下的分子轨道(290, 291, 292和293)出现在不匹配的左电极的自旋向下 π 带和右电极的自旋向下 π^* 带之间,导致自旋向下的通道关闭.在偏压窗口中只有自旋向上的透射峰而无自旋向下的透射峰,使得自旋向上电流远大于自旋相下的电流.因此,在AP自旋结构下该分子器件表现出双自旋过滤和双自旋分子整流效应.

4 结 论

本文采用非平衡格林函数结合密度泛函理论的第一性原理方法,系统研究了Co-Salophene分子器件的自旋极化运输性质.计算结果表明,当左右电极采取P自旋结构时,自旋向上的电流远大于自旋向下的电流,器件表现出优异的自旋过滤效应,其自旋极化效率达到100%.自旋向上的电流在正负偏压下表现出负微分电阻效应.当左右电极采取AP自旋结构时,自旋向下的电流在正偏压下远大于自旋向上的电流.自旋向上的电流在负偏压下远大于自旋向下的电流,器件表现出双自旋过滤效应.同时,自旋向上表现出反向分子整流,自旋向下表现出正向分子整流.除此之外,整个分子器件还表现出较高的巨磁阻效应.因此,这些结果对未来构造具有多功能的分子器件提供了设计思路.

参考文献

- [1] Rocha A R, Garcia-Suarez V M, Bailey S W, Lambert C J, Ferrer J, Sanvito S 2005 *Nature Mater.* **4** 335
- [2] Bogani L, Wernsdorfer W 2008 *Nature Mater.* **7** 179
- [3] Simpson G J, Hogan S W, Caffio M, Adams C J, Früchtl H, van Mourik T, Schaub R 2014 *Nano Lett.* **14** 634
- [4] Cui A, Dong H, Hu W 2015 *Small* **11** 6115
- [5] Perrin M L, Frisenda R, Koole M, Seldenthuis J S, Gil J A C, Valkenier H, Hummelen J C, Renaud N, Grozema F C, Thijssen J M, Dulić D, van der Zant H S 2014 *Nature Nanotech.* **9** 830
- [6] Fan Z Q, Zhang Z H, Xie F, Deng X Q, Tang G P, Yang C H, Chen K Q 2015 *Org. Electron.* **18** 101
- [7] Staykov A, Watanabe M, Ishihara T, Yoshizawa K 2014 *J. Phys. Chem. C* **118** 27539
- [8] Cui L L, Yang B C, Li X M, Cao C, Long M Q 2014 *J. Appl. Phys.* **116** 033701
- [9] Malenfant P R L, Dimitrakopoulos C D, Gelorme J D, Kosbar L L, Graham T O, Curioni A, Andreoni W 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 2517

- [10] Nakabayashi J, Yamamoto D, Kurihara S 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 066803
- [11] Staykov A, Watanabe M, Ishihara T, Yoshizawa K 2014 *J. Phys. Chem. C* **118** 27539
- [12] Cui B, Xu Y Q, Ji G M, Wang H, Zhao W K, Zhai Y X, Li D M, Liu D S 2014 *Org. Electron.* **15** 484
- [13] Zeng M, Shen L, Zhou M, Zhang C, Feng Y 2011 *Phys. Rev. B* **83** 115427
- [14] Deng X Q, Zhang Z H, Yang C H, Zhu H, Liang B 2013 *Org. Electron.* **14** 3240
- [15] Wu T T, Wang X F, Zhai M X, Liu H, Zhou L, Jiang Y J 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 052112
- [16] Jiang C, Wang X F, Zhai M X 2014 *Carbon* **68** 406
- [17] Ren H, Li Q X, Luo Y, Yang J 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 173110
- [18] Ferreira G J, Leuenberger M N, Loss D, Egues J C 2011 *Phys. Rev. B* **84** 125453
- [19] Novoselov K S, Geim A K, Morozov S V, Jiang D, Zhang Y, Dubonos S V, Grigorieva I V, Firsov A A 2004 *Science* **306** 666
- [20] Long M Q, Tang L, Wang D, Wang L, Shuai Z 2009 *J. Am. Chem. Soc.* **131** 17728
- [21] Geim A K, Novoselov K S 2007 *Nature Mater.* **6** 183
- [22] Yazyev O V, Katsnelson M I 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 047209
- [23] Kim W Y, Kim K S 2008 *Nature Nanotech.* **3** 408
- [24] Son Y W, Cohen M L, Louie S G 2006 *Nature* **444** 347
- [25] Taylor J, Guo H, Wang J 2001 *Phys. Rev. B* **63** 245407
- [26] Brandbyge M, Mozos J L, Ordejón P, Taylor J, Stokbro K 2002 *Phys. Rev. B* **65** 165401
- [27] Wang Z F, Li Q X, Shi Q W, Wang X, Yang J, Hou J G, Chen J 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 133114
- [28] Deng X Q, Zhang Z H, Tang G P, Fan Z Q, Yang C H 2014 *Carbon* **66** 646
- [29] Zeng J, Chen K Q 2015 *J. Mater. Chem. C* **3** 5697
- [30] Deng X Q, Zhang Z H, Tang G P, Fan Z Q, Sun L, Li C X 2016 *Org. Electron.* **35** 1
- [31] Chen T, Wang L L, Li X F, Luo K W, Xu L, Li Q, Zhang X H, Long M Q 2014 *RSC Adv.* **4** 60376
- [32] Tan C M, Zhou Y H, Chen C Y, Yu J F, Chen K Q 2016 *Org. Electron.* **28** 244
- [33] Wu Q H, Zhao P, Liu D S 2016 *RSC Adv.* **6** 16634
- [34] Zhu L, Zou F, Gao J H, Fu Y S, Gao G Y, Fu H H, Wu M H, Lü J T, Yao K L 2015 *Nanotechnology* **26** 315201
- [35] An Y P, Yang Z Q 2012 *J. Appl. Phys.* **111** 043713
- [36] Zhou Y H, Zeng J, Tang L M, Chen K Q, Hu W P 2013 *Org. Electron.* **14** 2940
- [37] Zhao P, Liu D, Chen G 2016 *Org. Electron.* **36** 160
- [38] Niu P B, Shi Y L, Sun Z 2015 *Chin. Phys. Lett.* **32** 117201
- [39] Bella D S, Fragala I, Ledoux I, Diaz-Garcia M A, Marks T J 1995 *J. Am. Chem. Soc.* **117** 9481
- [40] Ortiz B, Park S M 2000 *Bull. Korean Chem. Soc.* **21** 4405
- [41] DiLullo A, Chang S H, Baadji N, Clark K, Klöckner J P, Prosenic M H, Sanvito S, Wiesendanger R, Hoffmann G, Hla S W 2012 *Nano Lett.* **12** 3174
- [42] Bazarnik M, Bugenhagen B, Elsebach M, Sierda E, Frank A, Prosenic M H, Wiesendanger R 2016 *Nano Lett.* **16** 577
- [43] Fujita M, Wakabayashi K, Nakada K, Kusakabe K J 1996 *Phys. Soc. Jpn.* **5** 1920
- [44] Büttiker M, Imry Y, Landauer R, Pinhas S 1985 *Phys. Rev. B* **31** 6207
- [45] Zeng M G, Shen L, Zhang C, Feng Y P 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 053101
- [46] Li Z, Qian H, Wu J, Gu B, Duan W 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 206802
- [47] Wang Z F, Li Q X, Shi Q W, Wang X P 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 133114
- [48] Stokbro K, Taylor J, Brandbyge M, Mozos J L, Ordejon P 2003 *Comput. Mater. Sci.* **27** 151
- [49] Brown E R, Söderström J R, Parker C D, Mahoney L J, Molvar K M, McGill T C 1991 *Appl. Phys. Lett.* **58** 2291
- [50] Broekaert T P E, Brar B, van der Wagt J P A, Seabaugh A C, Morris F J, Moise T S, Beam E A, Frazier G A 1998 *IEEE J. Solid-St. Circ.* **33** 1342
- [51] Mathews R H, Sage J P, Sollner T G, Calawa S D, Chen C L, Mahoney L J, Maki P A, Molvar K M 1999 *Proc. IEEE* **87** 596

Spin-dependent transport properties of a Co-Salophene molecule between graphene nanoribbon electrodes*

Chen Wei¹⁾²⁾ Chen Run-Feng¹⁾ Li Yong-Tao²⁾ Yu Zhi-Zhou³⁾ Xu Ning⁴⁾ Bian Bao-An⁵⁾
Li Xing-Ao^{1)2)†} Wang Lian-Hui^{1)‡}

1) (School of Materials Science and Engineering, Nanjing University of Posts and Telecommunications, Nanjing 210023, China)

2) (Information Physics Research Center, School of Science, Nanjing University of Posts and Telecommunications, Nanjing 210023, China)

3) (School of Physics and Technology, Nanjing Normal University, Nanjing 210023, China)

4) (School of Mathematical and Physical Sciences, Yancheng Institute of Technology, Yancheng 224051, China)

5) (School of Science, Jiangnan University, Wuxi 214122, China)

(Received 16 March 2017; revised manuscript received 6 June 2017)

Abstract

Molecular spintronics has attracted much attention because of many novel functionalities at the single molecule level over the past decades. Recently, much research has focused on organic molecules containing transition metals in the field of molecular spintronics, which possesses desired spin-dependent transport properties for spintronic device applications. In this paper, based on non-equilibrium Green's function formalism combined with the first-principles density functional theory, the spin-dependent transport properties of an organic Co-Salophen molecule sandwiched between two zigzag graphene nanoribbon (ZGNR) electrodes are investigated. By applying an external magnetic field, the spin directions of the left and right ZGNR electrodes may be switched to two different configurations: the parallel (P) and antiparallel (AP) spin configurations. It is found that for the P spin configuration, the spin-up current is significantly larger than the spin-down one which is nearly zero in a bias range from -1.0 V to 1.0 V, exhibiting a nearly perfect spin filtering effect (up to 100%). Moreover, the spin-up current shows negative differential resistance behavior at ± 0.3 V. For the AP spin configuration, the spin-down current is much larger than the spin-up one at the positive bias. On the contrary, the spin-up current is much larger than the spin-down one at the positive bias. Therefore, the device exhibits bipolar spin filtering effect. It is also found that the spin-up current at the negative bias is much larger than that at the corresponding positive bias, while the spin-down current at the negative bias is much smaller than that at the corresponding positive bias, which shows the outstanding spin rectifying effect. Besides, a significant giant magnetoresistance effect is also obtained in the device when the spin directions of the left and right ZGNR electrodes switch between P and AP spin configurations. The spin transport properties of the device under P and AP spin configurations are attributed to the different orbital symmetries of spin subbands (π^* and π) of the electrodes and the spatial distribution of molecular orbitals within the bias window. By analyzing the spin-polarization transmission spectrum, the local density of states, the band structures and symmetries of the ZGNR electrodes and the projected self-consistent Hamiltonian states of molecular orbitals, the internal mechanism for multiple functional characteristics of the device is explained in detail. Our results indicate the Co-Salophen molecule can be a promising candidate for future applications in molecular spintronics device, and also provide a theoretical reference for designing the next-generation molecular nano-devices.

Keywords: spin transport, molecular device, graphene nanoribbon

PACS: 85.65.+h, 85.75.-d, 81.05.ue

DOI: 10.7498/aps.66.198503

* Project supported by the Program for Changjiang Scholars and Innovative Research Team in University of Ministry of Education of China (Grant No. IRT1148), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 51372119, 11404278), Jiangsu Overseas Research & Training Program for University Prominent Young & Middle-aged Teachers and Presidents, and by the Natural Science Foundation of NJUPT, China (Grant Nos. NY214130, NY214104).

† Corresponding author. E-mail: lixia@njupt.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: iamlhwang@njupt.edu.cn