



## 氧气分子吸附对单蒽分子器件自旋输运性质调控

崔兴倩 刘乾 范志强 张振华

## Effects of oxygen adsorption on spin transport properties of single anthracene molecular devices

Cui Xing-Qian Liu Qian Fan Zhi-Qiang Zhang Zhen-Hua

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 248501 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20201028

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20201028>

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

基于石墨烯电极的Co-Salophene分子器件的自旋输运

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

物理学报. 2017, 66(19): 198503 <https://doi.org/10.7498/aps.66.198503>

磁电势垒结构中光场辅助电子自旋输运特性

Light-field assisted spin-polarized transport properties in magnetic-electric barrier structures

物理学报. 2020, 69(10): 107201 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200237>

六方氮化硼表面石墨烯纳米带生长与物性研究

Synthesis and characterization of graphene nanoribbons on hexagonal boron nitride

物理学报. 2019, 68(16): 168102 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191036>

石墨烯纳米带电极同分异构喹啉分子结电子输运性质

Electron transport properties of isomeric quinoline molecule junction sandwiched between graphene nanoribbon electrodes

物理学报. 2019, 68(23): 237302 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191154>

局域交换场和电场调控的锗烯纳米带自旋过滤效应

Spin filter effect of germanene nanoribbon controlled by local exchange field and electric field

物理学报. 2019, 68(18): 187302 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190817>

硼或氮掺杂的锯齿型石墨烯纳米带的非共线磁序与电子输运性质

Non-collinear magnetism and electronic transport of boron or nitrogen doped zigzag graphene nanoribbon

物理学报. 2019, 68(2): 027101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181754>

# 氧气分子吸附对单萼分子器件自旋输运性质调控\*

崔兴倩 刘乾 范志强<sup>†</sup> 张振华

(长沙理工大学物理与电子科学学院, 柔性电子材料基因工程湖南省重点实验室, 长沙 410114)

(2020年6月30日收到; 2020年8月21日收到修改稿)

利用基于密度泛函理论结合非平衡格林函数的第一性原理计算方法, 开展了氧气分子吸附对以石墨烯纳米带为电极的单萼分子器件自旋极化输运性质的调控物理机理探索研究. 计算结果显示, 在未吸附氧气分子时, 单萼分子以横向方式连接石墨烯纳米带要比单萼分子以纵向方式连接石墨烯纳米带具有更优异的自旋过滤效应. 当氧气吸附单萼分子后, 两种构型器件的自旋电流都会大幅度降低, 但是自旋过滤效应会有所增强. 尤其是单萼分子以横向方式连接石墨烯纳米带的器件在 $\pm 0.5$  V区间始终保持了近100%的自旋过滤效率. 通过分析器件的自旋极化输运谱、输运本征态和自旋过滤效率等, 详细地解释了氧气分子吸附调控器件的自旋输运性质以及改善器件的自旋过滤行为的物理机理.

**关键词:** 石墨烯纳米带, 分子吸附, 自旋输运, 自旋过滤

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

**DOI:** 10.7498/aps.69.20201028

## 1 引言

1974年, Aviram和Ratner<sup>[1]</sup>首次在理论上提出分子整流的概念, 标志着分子电子学的诞生. 分子电子学的提出及其研究最终是为了实现电子器件微型化. 早期的分子器件都是以贵金属材料(主要是金)作为电极, 利用其延展性在拉伸断裂过程中形成微小间隙, 再与分子结合制成电极-分子-电极的器件<sup>[2]</sup>. 目前, 科学家们在研究分子器件电子输运行为时得到了如负微分电阻<sup>[3-6]</sup>、整流效应<sup>[7,8]</sup>、分子开关<sup>[9,10]</sup>和场效应管<sup>[11]</sup>等特性. 与以往的微电子器件有所不同的是, 分子尺度的电子器件极易受到外界因素的影响. 郭超等<sup>[12]</sup>研究了基于同一分子在改变连接端基后的四种分子器件的输运特性, 发现端基改变能明显影响分子器件的整流效果. Fan等<sup>[13]</sup>在研究中发现N-水杨酰苯胺分子的烯醇式和酮式互变异构体之间的电流变化很大, 并

具有可逆的开关行为. 当用不同的基团取代N-水杨酰苯胺分子的右端氢原子时, 可改变电流开关比. 自从2004年实验上成功制备了单层石墨烯, 石墨烯及其衍生物成为各个领域热门的研究对象<sup>[14-17]</sup>. 2012年, Cao等<sup>[18]</sup>利用虚线光刻工艺, 提出了能够制备纳米间隔电极对的石墨烯切割法, 最终得到了大小约为1—10 nm的纳米间隔石墨烯电极对. 相比于金属材料做电极, 切割法制备的石墨烯电极对更稳定.

近年来, 科学家们将研究目光转移到以石墨烯纳米带为电极的分子器件, 并在这些器件中也发现了诸如负微分电阻效应<sup>[19,20]</sup>、整流效应<sup>[21,22]</sup>和分子开关效应<sup>[23]</sup>. 2010年, Ozaki等<sup>[24]</sup>研究中发现了双自旋滤波器效应. 2016年, An等<sup>[25]</sup>在石墨烯与硼氮单层异质结输运机制的研究中发现它们分别表现出了整流效应和负微分电阻效应. 同年, Jia等<sup>[26]</sup>将单二芳基乙烯夹在石墨烯电极中间, 做出了当前最高精度的完全可逆的双模单分子开关.

\* 国家自然科学基金(批准号: 11674039, 61701431)、湖南省自然科学基金(批准号: 2020JJ4597, 2020JJ4625)、湖南省教育厅自然科学基金(批准号: 18B157)和湖南省研究生科研创新项目(批准号: CX2019703)资助的课题.

<sup>†</sup> 通信作者. E-mail: zqfan@csust.edu.cn

随后, Fan 等<sup>[27]</sup>在氧化还原反应对锯齿形石墨烯纳米带电极上单个蒽醌分子磁输运性质的研究中发现, 对于两种类型的分子结构上, 由氧化还原反应引起的开关行为也存在巨大差异. 由于石墨烯具有磁性, 因此以石墨烯为电极的自旋器件也成为研究热点, 自旋极化、自旋过滤和巨磁阻等器件相继被发现<sup>[28–32]</sup>. 自旋过滤效应是指分子器件在输运过程中让一种电子的自旋状态通过, 但阻止另一种电子的自旋状态通过从而产生自旋极化电流的效应<sup>[33]</sup>. 随着分子器件的微型化, 人们可以通过控制电子的自旋状态来制作高性能的纳米器件, 因其具有能耗低、易集成和退相干时间长等优点而受到人们广泛的关注. Zhang 等<sup>[34]</sup>研究了以石墨烯和掺杂石墨烯为电极的不同种类的自旋过滤器件, 其中以石墨烯为电极分子器件的自旋过滤效率不是很稳定, 会随着电压的增加而降低, 从而影响其应用. 因此, 如何增强以石墨烯为电极分子器件的自旋过滤效率成为一比较具有科学意义的研究问题. 本文以锯齿边石墨烯纳米带为电极, 选取单蒽分子为中间分子, 利用基于密度泛函理论的非平衡格林函数第一性原理方法, 开展了其自旋电子输运的研究工作. 研究表明, 利用单个氧气分子吸附可以对该单蒽分子器件的自旋输运性质进行有效调控, 并改善器件的自旋过滤行为.

## 2 模型与方法

众所周知, 石墨烯纳米带由于边缘裁剪形状的不同可以分为锯齿型石墨烯纳米带和扶手椅型石墨烯纳米带. 其中锯齿型石墨烯纳米带表现金属性且具有磁性, 而扶手椅型石墨烯纳米带表现半导体性<sup>[35–37]</sup>. 因此, 本文选取宽度为 6 的锯齿型石墨烯

纳米带, 并用氢原子饱和其边缘悬挂键后作为电极连接单蒽分子组成单分子器件, 如图 1 所示. 器件被分为左电极、右电极和中心散射区三个部分, 中心散射区包含四个周期的石墨烯电极, 用于阻断电极与中心分子的相互作用. 为了探索单蒽分子与锯齿型石墨烯纳米带电极连接方式变化对器件自旋输运性质的影响, 建立了两种模型. 模型 M1 为单蒽分子纵向连接, 模型 M2 为单蒽分子横向连接. 吸附单个氧气分子的模型分别用 M1O 和 M2O 表示. 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. 交换关联势选为基于 Perdew-Burke-Ernzerhof 的自旋广义梯度近似, 所有原子的轨道基函数选为双极化基组. 自洽计算中, Monkhorst-Pack 的  $K$  点选为  $1 \times 1 \times 50$ , 截断能取值为 150 Ry (1 Ry = 13.606 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 0.02 eV/Å. 器件的自旋极化电流可由朗道公式 (1) 求得<sup>[38]</sup>

$$I_{\sigma}(V_b) = \frac{e}{h} \int T_{\sigma}(E, V_b) [f_L(E, V_b) - f_R(E, V_b)] dE, \quad (1)$$

式中,  $I_{\sigma}(V_b)$  为器件的自旋极化电流;  $e$  为电子电量;  $h$  为普朗克常量;  $V_b$  表示左右电极的电压差;  $f_L(E, V_b)$  和  $f_R(E, V_b)$  分别是两个电极的电子费米-狄拉克分布函数;  $\sigma$  代表  $\alpha$  自旋或  $\beta$  自旋;  $T_{\sigma}(E, V_b)$  是在偏压为  $V_b$ 、能量为  $E$  时的自旋电子透射系数,

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

其中  $G^R(E)$  和  $G^A(E)$  分别为散射延迟和超前格林函数;  $\Gamma_{L,R} = i \left( \sum_{L,R}^R(E) - \sum_{L,R}^A(E) \right)$  为展宽函数,  $\sum_{L,R}^R(E)$  和  $\sum_{L,R}^A(E)$  是左右电极对散射区的自能. 本文中器件的几何结构优化、电子结构和电流-电

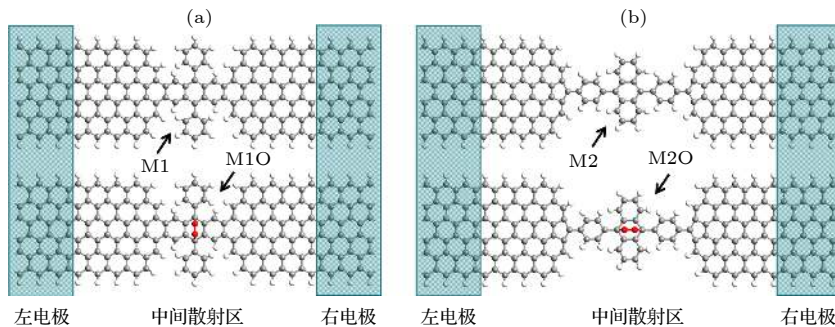


图 1 以锯齿型石墨烯纳米带为电极的单蒽分子器件模型 (a) 模型 M1; (b) 模型 M2

Fig. 1. Schematic views of the single anthracene molecular device based on nanoribbon electrode: (a) Model M1; (b) model M2.

压特性的计算全部都是由基于非平衡格林函数和密度泛函理论相结合的第一性原理计算方法 (ATK 软件) 所完成<sup>[39,40]</sup>.

### 3 结果与讨论

为了研究氧气分子吸附对单萘分子纵向连接器件自旋输运性质的影响, 图 2 分别给出了器件 M1 和 M1O 的自旋输运谱和费米能级处的自旋输运本征态. 众所周知, 器件在低偏压下的电子输运能力主要取决于费米能级附近的输运峰分布以及输运峰的透射系数. 如图 2(a) 所示, 器件 M1 在费米能级两侧分布着透射系数很大的输运透射峰. 然而, 在费米能级处的  $\alpha$  和  $\beta$  自旋的输运透射系数都很小.  $\alpha$  自旋输运透射系数会略大于  $\beta$  自旋输运透射系数. 这个可以由图 2(b) 费米能级处的自旋输运本征态进行解释. 从图 2(b) 可以清楚地看到, 两种自旋的输运本征态都主要局域在左半部分的石墨烯电极和单萘分子的中间区域. 右半部分的石墨烯电极几乎没有输运本征态分布. 因此, 两种自旋态的输运透射系数都很小. 但是通过细致地对比, 可以发现  $\alpha$  自旋输运本征态分布在单萘分子的中间区域并延伸到了右电极, 相比  $\beta$  自旋输运本征态具有更好的空间扩展性. 因此,  $\alpha$  自旋输运透射系数会略大于  $\beta$  自旋输运透射系数. 当氧气分子吸附在单萘分子的中间苯环上, 器件 M1O 在费米能级两侧仅有两个透射系数很小的输运峰分布, 如图 2(c) 所示. 更重要的是, 费米能级处的  $\alpha$  自旋和  $\beta$  自旋的输运透射系数相比于器件 M1 大幅度降低. 也就是说, 氧气分子吸附有效地抑制了器件 M1 两种自旋态的输运能力. 图 2(d) 明确地显示氧

气分子吸附导致费米能级处的两种自旋输运本征态被阻断在氧气分子处, 导致对应的输运透射系数减小.

为了研究氧气分子吸附对单萘分子横向连接器件自旋输运性质的影响, 图 3 分别给出了器件 M2 和 M2O 的零偏压自旋输运谱和费米能级处的自旋输运本征态. 如图 3(a) 所示, 器件 M2 在费米能级及其两侧分布着透射系数很大且连续的  $\alpha$  自旋输运谱. 然而, 在费米能级及其两侧的  $\beta$  自旋输运谱的透射系数几乎为零, 仅在 0.3 eV 能量位置分布了一个透射系数很小的透射峰. 这个现象可以由图 3(b) 费米能级处的自旋输运本征态进行解释. 从图 3(b) 可以清楚地看到,  $\alpha$  自旋输运本征态分布在整个器件上且空间扩展性非常优秀, 而  $\beta$  自旋输运本征态仅仅局域在器件的左边石墨烯电极上. 这说明  $\beta$  自旋态的输运能力在器件 M2 中被明显抑制. 因此,  $\alpha$  自旋和  $\beta$  自旋之间巨大的传输能力差异导致 M2 可以表现明显的自旋过滤行为. 当氧气分子吸附在单萘分子的中间苯环上, 器件 M2O 在费米能级及其两侧的  $\beta$  自旋输运谱的透射系数仍然很小, 但是费米能级及其两侧的  $\alpha$  自旋输运透射系数相比于器件 M2 大幅度降低, 如图 3(c) 所示. 也就是说, 氧气分子吸附仍然起到了抑制器件 M2 自旋输运能力的效果. 此外, 图 3(c) 在 0.8 eV 能量位置出现了一组由氧气分子吸附导致的  $\alpha$  和  $\beta$  自旋对称输运峰. 尽管两个输运峰具有很大的透射系数, 但是由于其距离费米能级的位置较远, 因此对器件低偏压下的自旋输运性质没有帮助. 图 3(d) 给出了器件 M2O 在费米能级处的自旋输运本征态. 如图 3(d) 所示, 氧气分子吸附将  $\alpha$  自旋输运本征态局域在器件的左侧, 右电极的贡献几乎为零.

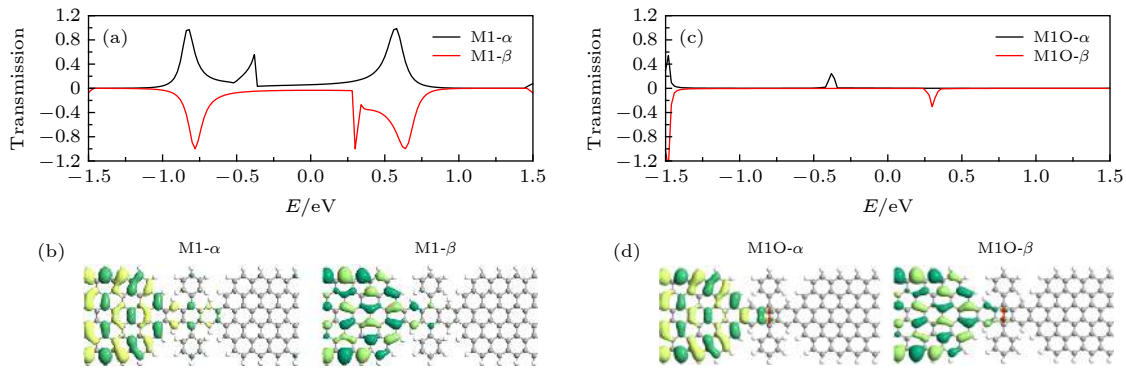


图 2 (a) 和 (c) 分别表示 M1 和 M1O 的零偏压自旋输运谱; (b) 和 (d) 分别表示 M1 和 M1O 费米能级处的自旋输运本征态  
Fig. 2. (a), (c) The zero-bias spin-resolved transmission spectra of M1 and M1O; (b), (d) the transmission eigenstate of M1 and M1O on Fermi energy.

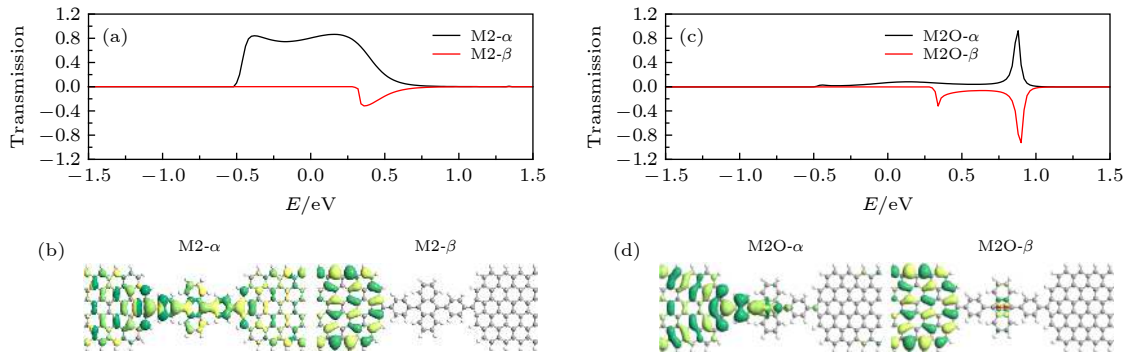


图 3 (a) 和 (c) 分别表示 M2 和 M2O 的零偏压自旋输运谱; (b) 和 (d) 分别表示 M2 和 M2O 费米能级处的自旋输运本征态  
Fig. 3. (a), (c) The zero-bias spin-resolved transmission spectra of M2 and M2O; (b), (d) the transmission eigenstate of M2 and M2O on Fermi energy.

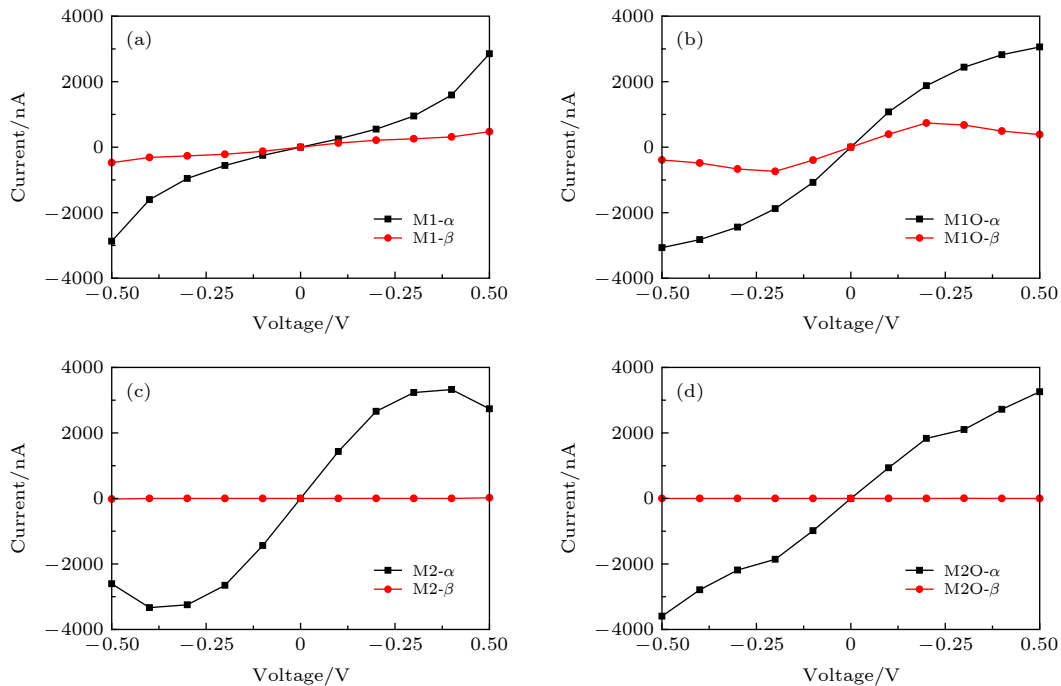


图 4 (a) — (d) 分别表示 M1, M1O, M2 和 M2O 的自旋极化电流-电压特性  
Fig. 4. (a)–(d) The spin-resolved  $I$ - $V$  characteristics of M1, M1O, M2 and M2O, respectively.

因此, 氧气分子吸附强烈地抑制了  $\alpha$  自旋输运. 对于  $\beta$  自旋态来说, 氧气分子吸附导致单萘分子的中间局域地分布了很小区域的输运本征态. 但是与石墨烯电极相连的两个苯环仍然无输运本征态分布. 因此, 器件 M2O 在费米能级处的  $\beta$  自旋态输运谱系数仍然非常小.

为了进一步研究氧气分子吸附对单萘分子器件自旋输运性质的影响, 图 4 给出了四种器件的自旋极化电流-电压特性曲线. 如图 4(a) 所示, 器件 M1 的  $\alpha$  自旋电流在  $\pm 0.5$  V 的范围内随着电压增大而逐渐增大, 但是  $\beta$  自旋电流随着电压增大而增长非常缓慢. 这说明器件 M1 的两种自旋态电流

传输能力存在一定差异, 表现出不明显的自旋过滤行为. 当氧气分子吸附在单萘分子的中间苯环上, 器件 M1O 的自旋电流相比器件 M1 的自旋电流有近两个数量级的大幅度降低, 如图 4(b) 所示. 此外,  $\alpha$  自旋电流在  $\pm 0.5$  V 的范围内随着电压增大而逐渐增大, 但是  $\beta$  自旋电流随着电压变化的增长幅度非常小, 且在  $\pm 0.2$  V 之后随着电压的增大而逐渐减小. 这说明器件 M1O 的自旋极化电流-电压特性曲线仍然存在不明显的自旋过滤效应. 图 4(c) 给出了器件 M2 的自旋极化电流-电压特性曲线. 器件 M2 的  $\alpha$  自旋电流在  $\pm 0.3$  V 的范围内随着电压的增加而快速增加. 但是在电压从  $\pm 0.3$  V 变

化到  $\pm 0.4$  V 时,  $\alpha$  自旋电流的增加幅度非常小. 更重要的是在  $\pm 0.4$  V 之后,  $\alpha$  自旋电流会随着电压的增大而降低显示出负微分电阻效应. 器件 M2 的  $\beta$  自旋电流在整个测量电压区间几乎不随电压的增加而发生变化, 始终为很小的数值. 换句话说, 器件 M2 的两种自旋态电流传输能力存在巨大的差异, 表现出非常显著的自旋过滤行为. 当氧气分子吸附在单萘分子的中间苯环上, 器件 M2O 的自旋电流相比器件 M2 的自旋电流同样出现了近两个数量级的大幅度降低, 如图 4(d) 所示. 此时, 器件 M2O 的  $\alpha$  自旋电流几乎伴随着电压的增大呈现线性的增长, 而  $\beta$  自旋电流仍然在整个测量电压区间保持很小的数值. 由此可知, 器件 M2O 的自旋过滤行为要优于器件 M2 的自旋过滤行为.

为了详细地分析氧气分子吸附对单萘分子器件自旋过滤效应的影响, 图 5 给出了器件的自旋过滤效率 (SFE =  $(I_\alpha - I_\beta)/(I_\alpha + I_\beta) \times 100\%$ )<sup>[33]</sup>. 从图 5(a) 可见, 器件 M1 的自旋过滤效率随着正负电压的增加而逐渐增大, 但是在电压为  $\pm 0.5$  V 时也仅仅上升到 72%. 尽管器件 M1O 的自旋电流数值较器件 M1 的自旋电流数值有大幅度降低, 但是自旋过滤效率却相比器件 M1 在  $\pm 0.3$  V 之后有所增加. 在电压为  $\pm 0.5$  V 时, 器件 M1O 的自旋过滤效率接近 80%. 如图 5(b) 所示, 器件 M2 的自旋过滤效率从  $\pm 0.1$  V 开始就几乎为 100% 并一直保持到  $\pm 0.4$  V. 由于器件 M2 的  $\alpha$  自旋电流在  $\pm 0.4$  V 之后随着电压的增加而下降, 从而导致其自旋过滤效率在  $\pm 0.5$  V 时降低到 95%. 尽管器

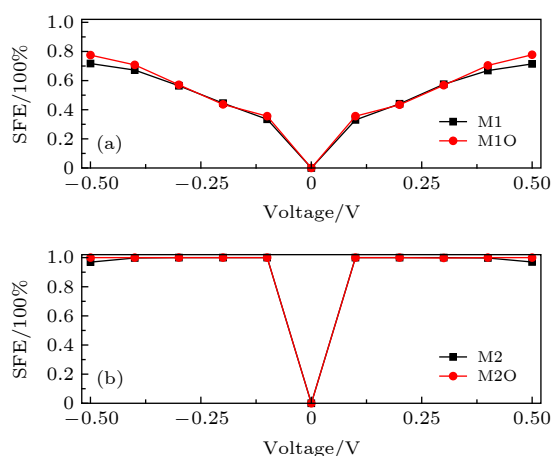


图 5 (a) 器件 M1 和 M1O 的自旋过滤效率; (b) 器件 M2 和 M2O 的自旋过滤效率

Fig. 5. (a) SFE of M1 and M1O device; (b) SFE of M2 and M2O device.

件 M2O 的自旋电流数值较器件 M2 的自旋电流数值有大幅度降低, 但是却表现出更加优异的自旋过滤效率. 在电压从  $\pm 0.1$  V 变化到  $\pm 0.5$  V 时, 器件 M2O 的自旋过滤效率始终保持几乎接近 100%. 以上的结果表明, 尽管氧气分子吸附大幅度地降低了单萘分子器件自旋电流数值, 但是却明显地提高了器件的自旋过滤效率, 增强了器件应用性能.

## 4 结 论

本文利用基于密度泛函理论结合非平衡格林函数的第一性原理计算方法, 开展了氧气分子吸附对以石墨烯纳米带为电极的单萘分子器件自旋极化输运性质的调控物理机理探索研究. 计算结果显示, 在未吸附氧气分子时, 单萘分子以横向方式连接石墨烯纳米带要比单萘分子以纵向方式连接石墨烯纳米带具有更优异的自旋过滤效应. 当氧气吸附单萘分子后, 由于氧气分子吸附导致的输运本征态局域程度加重, 从而使两种构型器件的自旋电流都有近两个数量级的大幅度降低. 但是氧气吸附却明显地提高了器件的自旋过滤效率, 增强了器件应用性能. 尤其是单萘分子以横向方式连接石墨烯纳米带的器件在  $\pm 0.5$  V 区间始终保持了近 100% 的自旋过滤效率. 以上研究结论为今后实际制备自旋分子器件以及调控其自旋输运性能提供了更多的理论指导.

## 参考文献

- [1] Aviram A, Ratner M A 1974 *Chem. Phys. Lett.* **29** 277
- [2] Reed M A, Zhou C, Muller C J, Burgin T P, Tour J 1997 *Science* **278** 252
- [3] Fan Z Q, Chen K Q 2010 *Physica E* **42** 1492
- [4] Fan Z Q, Xie F 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 077303 (in Chinese) [范志强, 谢芳 2012 物理学报 **61** 077303]
- [5] Fan Z Q, Chen K Q, Wan Q, Zhang Y 2010 *J. Appl. Phys.* **107** 113713
- [6] Wan H Q, Xu Y, Zhou G H 2012 *J. Chem. Phys.* **136** 184704
- [7] Zhang Z H, Guo C, Kwong D J, Li J, Deng X Q, Fan Z Q 2013 *Adv. Funct. Mater.* **23** 2765
- [8] Fan Z Q, Sun W Y, Jiang X W, Luo J W, Li S S 2017 *Org. Electron.* **44** 20
- [9] Yi X Y, Long M Q, Liu A H, Li M J, Xu H 2018 *J. Appl. Phys.* **123** 204303
- [10] 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
- [11] Fan Z Q, Zhang Z H, Yang S Y 2020 *Nanoscale* **12** 21750
- [12] Guo C, Zhang Z H, Pan J B, Zhang J J 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 117303 (in Chinese) [郭超, 张振华, 潘金波, 张俊俊 2011 物理学报 **60** 117303]

- [13] Fan Z Q, Zhang Z H, Deng X Q, Tang G P, Chen K Q 2012 *Org. Electron.* **13** 2954
- [14] Wu J B, Lin M L, Cong X, Liu H N, Tan P H 2018 *Chem. Soc. Rev.* **47** 1822
- [15] Zhu C, Wei D H, Wu Y L, Zhang Z, Zhang G H, Duan J F, Li L J, Zhu H L, Zhu Z Y, Chen Z Y 2019 *J. Alloys Compd.* **778** 731
- [16] Yankowitz M, Chen S W, Polshyn H, Zhang Y X, Watanabe K, Taniguchi T, Graf D, Young A F, Dean C R 2019 *Science* **363** 1059
- [17] Wu N N, Xu D M, Wang Z, Wang F L, Liu J R, Liu W, Shao Q, Liu H, Gao Q, Guo Z H 2019 *Carbon* **145** 433
- [18] Cao Y, Dong S H, Liu S, He L, Gan L, Yu X M, Steigerwald M L, Wu X S, Liu Z F, Guo X F 2012 *Angew. Chem. Int. Ed.* **51** 12228
- [19] Zuo M, Liao W H, Wu D, Lin L E 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 237302 (in Chinese) [左敏, 廖文虎, 吴丹, 林丽娥 2019 物理学报 **68** 237302]
- [20] Xie F, Fan Z Q, Liu K, Wang H Y, Yu J H, Chen K Q 2015 *Org. Electron.* **27** 41
- [21] Zu F X, Zhang P P, Xiong L, Yin Y, Liu M M, Gao G Y 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 098501 (in Chinese) [祖凤霞, 张盼盼, 熊伦, 殷勇, 刘敏敏, 高国营 2017 物理学报 **66** 098501]
- [22] Zeng J, Chen K Q, Tong Y X 2018 *Carbon* **127** 611
- [23] Wan H, Zhou B H, Chen X, Sun C Q, Zhou G H 2012 *J. Phys. Chem. C* **116** 2570
- [24] Ozaki T, Nishio K, Weng H M, Kino H 2010 *Phys. Rev. B* **81** 075422
- [25] An Y P, Zhang M J, Wu D P, Wang T X, Jiao Z Y, Xia C X, Fu Z M, Wang K 2016 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **18** 27976
- [26] Jia C C, Migliore A, Xin N, Huang S Y, Wang J Y, Yang Q, Wang S P, Chen H L, Wang D M, Feng B Y, Liu Z R, Zhang G Y, Qu D H, Tian H, Ratner M A, Xu H Q, Nitzan A, Guo X F 2016 *Science* **352** 1443
- [27] Fan Z Q, Sun W Y, Jiang X W, Zhang Z H, Deng X Q, Tang G P, Xie H Q, Long M Q 2017 *Carbon* **113** 18
- [28] Zhu Z, Zhang Z H, Wang D, Deng X Q, Fan Z Q, Tang G P 2015 *J. Mater. Chem. C* **3** 9657
- [29] Cao C, Long M Q, Zhang X J, Mao X C 2015 *Phys. Lett. A* **379** 1527
- [30] Hu R, Li Y H, Zhang Z H, Fan Z Q, Sun L 2019 *J. Mater. Chem. C* **7** 7745
- [31] Hu R, Fan Z Q, Zhang Z H 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 138501 (in Chinese) [胡锐, 范志强, 张振华 2017 物理学报 **66** 138501]
- [32] Sun W Y, Cui X Q, Fan Z Q, Nie L Y, Zhang Z H 2019 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **52** 155102
- [33] Cui X Q, Liu Q, Fan Z Q, Zhang Z H 2020 *Org. Electron.* **84** 105808
- [34] Zhang D, Long M Q, Zhang X J, Ouyang F P, Li M J, Xu H 2015 *J. Appl. Phys.* **117** 014311
- [35] Barone V, Hod O, Scuseria G E 2006 *Nano Lett.* **6** 2748
- [36] Li X L, Wang X R, Zhang L, Lee S, Dai H J 2008 *Science* **319** 1229
- [37] Yan S L, Long M Q, Zhang X J, Xu H 2014 *Phys. Lett. A* **378** 960
- [38] Büttiker M, Imry Y, Landauer R, Pinhas S 1985 *Phys. Rev. B* **31** 6207
- [39] Smidstrup S, Markussen T, Vancraeyveld P, Wellendorff J, Schneider J, Gunst T, Verstiche B, Stradi D, Khomyakov P A, Vej-Hansen U G, Lee M E, Chill S T, Rasmussen F, Penazzi G, Corsetti F, Ojanper A, Jensen K, Palsgaard M L N, Martinez U, Blom A, Brandbyge M, Stokbro K 2020 *J. Phys. Condens. Matter* **32** 015901
- [40] Quantum ATK, version P-2013.08 <https://www.synopsys.com> [2013-8-1]

# Effects of oxygen adsorption on spin transport properties of single anthracene molecular devices<sup>\*</sup>

Cui Xing-Qian   Liu Qian   Fan Zhi-Qiang<sup>†</sup>   Zhang Zhen-Hua

(*Hunan Provincial Key Laboratory of Flexible Electronic Materials Genome Engineering, School of Physics and Electronic Science, Changsha University of Science and Technology, Changsha 410114, China*)

( Received 30 June 2020; revised manuscript received 21 August 2020 )

## Abstract

With the miniaturization of molecular devices, high-performance nano devices can be fabricated by controlling the spin states of electrons. Because of their advantages such as low energy consumption, easy integration and long decoherence time, more and more attention has been paid to them. So far, the spin filtration efficiency of molecular device with graphene electrode is not very stable, which will decrease with the increase of voltage, and thus affecting its applications. Therefore, how to enhance the spin filtration efficiency of molecular device with graphene electrode becomes a scientific research problem. Using the first principle calculations based on density functional theory combined with non-equilibrium Green's function, the physical mechanism of regulating the spin polarization transport properties of single anthracene molecule device with graphene nanoribbon as electrode is investigated by molecular oxygen adsorption. In order to explore the effect of the change of the connection mode between single anthracene molecule and zigzag graphene nanoribbon electrode on the spin transport properties of the device, we establish two models. The first model is the model M1, which is the single anthracene molecule longitudinal connection, and the second model is the model M2, which is the single anthracene molecule lateral connection. The adsorption model of single oxygen molecule is denoted by M1O and M2O respectively. The results show that when none of oxygen molecules is adsorbed, the spin filtering effect of single anthracene molecule connecting graphene nanoribbons laterally (M2) is better than that of single anthracene molecule connecting graphene nanoribbons longitudinally (M1). After oxygen molecules are adsorbed on single anthracene molecule, the enhanced localized degree of transport eigenstate will make the spin current of the two kinds of devices decrease by nearly two orders of magnitude. However, molecular oxygen adsorption significantly improves the spin filtering efficiency of the device and enhances the application performance of the device. The maximal spin filtering efficiency of single anthracene molecule connecting graphene nanoribbons longitudinal (M1O) can be increased from 72% to 80%. More importantly, the device with single anthracene molecule connecting graphene nanoribbons laterally (M2) maintains nearly 100% spin filtering efficiency in a bias range from  $-0.5$  V to  $+0.5$  V. These results provide more theoretical guidance for practically fabricating spin molecular devices and regulating their spin transport properties.

**Keywords:** graphene nanoribbons, molecular adsorption, spin transport, spin filtering

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

**DOI:** [10.7498/aps.69.20201028](https://doi.org/10.7498/aps.69.20201028)

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11674039, 61701431), the Natural Science Foundation of Hunan Province, China (Grant Nos. 2020JJ4597, 2020JJ4625), the Science Foundation of Education Bureau of Hunan Province, China (Grant No. 18B157), and the Postgraduate Scientific Research Innovation Program of Hunan Province, China (Grant No. CX2019703).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [zqfan@csust.edu.cn](mailto:zqfan@csust.edu.cn)