

УДК 669.255:537.312.6:537.312.8

ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ И МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА ПОЛУМЕТАЛЛИЧЕСКОГО ФЕРРОМАГНЕТИКА Co_2FeSi

¹Перевозчикова Ю.А., ¹Семянникова А.А., ¹Доможирова А.Н.,
¹Чистяков В.В., ¹Емельянова С.М., ^{1,2}Марченков В.В.

¹Институт физики металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН, Екатеринбург,
e-mail: yu.perevozchikova@imp.uran.ru;

²Уральский федеральный университет, Екатеринбург

Полуметаллический ферромагнитный сплав Гейслера Co_2FeSi является перспективным материалом для использования его в области спиновой электроники – спинтроники, так как в нем может быть реализована высокая, близкая к 100%, поляризация электронов по спину в области комнатных температур из-за наличия особенности в электронном энергетическом спектре данного сплава. Известно, что вблизи уровня Ферми полуметаллического ферромагнетика существует широкая энергетическая щель для одного направления спина электронов, а для другого направления спина носителей заряда – щели нет. Такие «щелевые» особенности должны проявляться в электронном транспорте. Поэтому в данной работе исследованы электрические транспортные и магнитные свойства сплава Гейслера Co_2FeSi : температурная зависимость электросопротивления в интервале температур (4,2–1100) К и полевые зависимости намагниченности, сопротивления Холла и магнитосопротивления при температуре $T = 4,2$ К и в полях до 7 Т. Установлено, что температурная зависимость электросопротивления, вплоть до температуры Кюри, в основном определяется процессами рассеяния носителей заряда со спином «вверх». Определены величина спонтанного магнитного момента μ_s , коэффициенты нормального R_0 и аномального R_s эффектов Холла. Оценены концентрация, подвижность и тип носителей заряда, которые оказались типичными для металлов. Магнитосопротивление сплава Co_2FeSi по величине не превышает десятых процента и имеет положительный знак.

Ключевые слова: полуметаллический ферромагнетик, Co_2FeSi , электросопротивление, эффект Холла, магнитосопротивление, намагниченность

ELECTRICAL AND MAGNETIC PROPERTIES OF HALF-METALLIC FERROMAGNET Co_2FeSi

¹Perevozchikova Yu.A., ¹Semyannikova A.A., ¹Domozhirova A.N.,
¹Chistyakov V.V., ¹Emelyanova S.M., ^{1,2}Marchenkov V.V.

¹M.N. Mikheev Institute of Metal Physics of Ural Branch of Russian Academy of Sciences,
Ekaterinburg, e-mail: yu.perevozchikova@imp.uran.ru;

²Ural Federal University, Ekaterinburg

The half-metallic ferromagnetic Co_2FeSi Heusler alloy is a promising material in the spin electronics – spintronics, since it can realize high, close to 100%, polarization of electron spins near room temperature due to the feature in the electronic energy spectrum. It is known that there is a wide energy gap for one spin direction of the electrons near the Fermi level of a half-metallic ferromagnet, and there is no gap for another spin direction of the charge carriers. Such «gap» features should be manifested in electronic transport. Therefore, in this paper the electronic transport and magnetic properties of Co_2FeSi Heusler alloy are investigated, namely the temperature dependence of the electrical resistivity in the temperature range (4.2–1100) K and the field dependences of the magnetization, the Hall resistance and the magnetoresistance at $T = 4.2$ K and in fields up to 7 T. It is revealed that the temperature dependence of the electrical resistivity up to the Curie temperature is mainly determined by the processes of scattering of charge carriers with spin «up». Spontaneous moment value μ_s , coefficients of normal R_0 and anomalous R_s Hall effects are determined. The concentration, mobility, and type of charge carriers, that have been found to be typical for metals, are estimated. The magnetoresistance of Co_2FeSi alloy does not exceed a tenth of a percent and has a positive sign.

Keywords: half-metallic ferromagnet, Co_2FeSi , electroresistance, Hall effect, magnetoresistance, magnetization

Развитие современной нанoeлектроники и спинтроники требует поиска и создания новых магнитных материалов, в частности, обладающих высокой спиновой поляризацией носителей заряда. К таким материалам могут относиться полуметаллические ферромагнетики (ПМФ) [1–3], так как у них имеется разный вид электронного спектра для подсистем электронов со спином «вниз» и спином «вверх», т.е. наблюдается наличие щели и ее отсутствие на уровне Ферми со-

ответственно. Выявить эту особенность можно с помощью *ab initio* зонных расчетов или при измерении оптических свойств данных материалов (например, [4–6]). Логично предположить, что эти «щелевые» особенности будут влиять и на другие свойства, прежде всего на электронный транспорт и магнитные характеристики. Так роль этих особенностей электронного спектра была подробно изучена в работах [7–9], где исследовали электрические и магнитные свой-

ства сплавов Гейслера системы Co_2MeAl . Для устройств спинтроники необходимы материалы, в которых можно реализовать спин-зависимый или даже спиновый ток, т.е. такое вещество должно иметь большие величины коэффициента спиновой поляризации носителей тока и намагниченности вблизи комнатной температуры, а также высокие значения температуры Кюри. Одним из таких материалов является сплав Co_2FeSi . Его температура Кюри T_C составляет около 1100 К [10, 11], а спонтанная намагниченность при комнатной температуре около $3 \mu_B/\text{Fe}$ [6]. Новая информация об электронном транспорте и магнитных свойствах этого соединения до сих пор представляет большой интерес. Поэтому в данной работе были исследованы электрические, магнитные и гальваномагнитные свойства сплава Co_2FeSi с целью получения новой информации об его электронных и магнитных характеристиках. Экспериментально были измерены температурные зависимости электросопротивления, намагниченности и полевые зависимости магнитосопротивления и сопротивления Холла в диапазоне температур от 4,2 до 1100 К и в магнитных полях до 7 Т.

Сплав Co_2FeSi был выплавлен методом дуговой плавки в инертной аргонной атмосфере, как это описано в [7–9]. Отжиг проводили при $T = 1100$ К в течение суток с охлаждением до $T = 297$ К при средней скорости охлаждения около 100 град/час.

Элементный анализ, т.е. атомное содержание компонентов сплава, определяли с помощью сканирующего электронного микроскопа FEI Company Quanta 200, имеющего оснастку в виде рентгеновского микроанализатора EDAX. Анализ показал, что сплав Co_2FeSi имеет состав близкий к стехиометрическому, а отклонения от стехиометрии состава совсем незначительные. В результате рентгеноструктурного анализа установлено, что соединение упорядочено в структуре $L2_1$. Аттестация структуры выполнена в центре коллективного пользования ИФМ УрО РАН и НОЦ «Нанотех» УрФУ.

Для измерения удельного электро- и магнитосопротивления, соответственно ρ_0 и ρ_{xx} , а также сопротивления Холла ρ_H использовали общепринятый 4-контактный метод на постоянном токе. Исследованные образцы имели форму пластин с размерами около $0,5 \times 1,5 \times 5$ мм³. Электрический ток был направлен вдоль наибольшей грани образца, а магнитное поле строго перпендикулярно плоскости пластин. В аналогичной геометрии эксперимента и на том же самом образце проведены измерения полевых зависимостей намагниченности $M(B)$. Измерения

электро- и магнитосопротивления, а также намагниченности проведены на сверхпроводящем соленоиде (Oxford) и магнитометре SQUID MPMS XL7 (Quantum Design). Методика проведения эксперимента также описана в [7–9].

Электросопротивление

Температурная зависимость электросопротивления Co_2FeSi приведена на рис. 1. Значение температуры Кюри T_C , определенное из данной зависимости, составляет 1030 К, что близко к значению, полученному авторами в [6, 10] $T_C \sim 1100$ К. Из рисунка видно, что при увеличении температуры электросопротивление плавно возрастает, а при T_C наблюдается излом, характерный для фазового перехода второго рода.

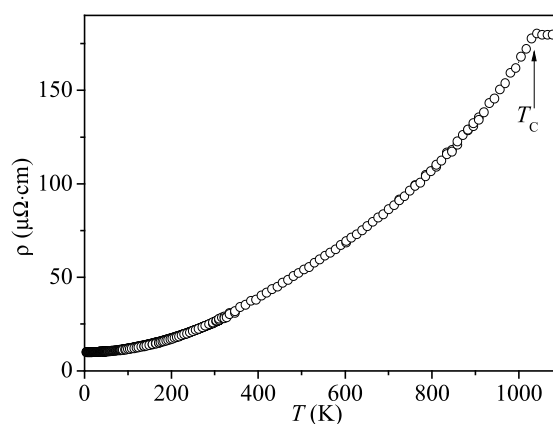


Рис. 1. Температурная зависимость электросопротивления сплава Гейслера Co_2FeSi . Стрелкой обозначена температура Кюри T_C

Видно (рис. 1), что для сплава Co_2FeSi характерно малое остаточное сопротивление и сильная, близкая к квадратичной, температурная зависимость $\rho(T)$.

Из формул (1) и (2) известно, что проводимость (сопротивление) определяется числом носителей заряда, эффективной массой и длиной свободного пробега. Согласно [12] проводимость (сопротивление) ПМФ определяется двумя каналами проводимости: для носителей заряда с направлением спина «вниз» и для носителей заряда с направлением спина «вверх». Они дают разные вклады в вид температурной зависимости электросопротивления $\rho(T)$. При увеличении температуры первый канал проводимости с носителями заряда со спином «вниз» (для которых характерно наличие щели на уровне Ферми) приводит к уменьшению электросопротивления из-за роста

концентрации носителей заряда n_{\downarrow} ; второй канал проводимости приводит к росту электросопротивления из-за уменьшения длины свободного пробега. Концентрация носителей заряда со спином «вверх» n_{\uparrow} при этом практически не изменяется.

$$\sigma = 1/\rho = ne^2\tau/m^*, \quad (1)$$

где σ – проводимость, ρ – электросопротивление, n – число носителей заряда, e – заряд электрона, m^* – эффективная масса носителя тока, τ – время релаксации.

$$\tau = 1/l, \quad (2)$$

где l – длина свободного пробега.

Ответ на вопрос об определяющем вкладе в проводимость от одного из этих каналов можно получить из данных по температурным зависимостям коэффициента нормального эффекта Холла и определенных из этих данных зависимостях концентрации носителей заряда $n(T)$.

В работе [11] приведена температурная зависимость коэффициента нормального эффекта Холла $R_0(T)$ для монокристалла Co_2FeSi , из которой видно, что $R_0(T)$, а следовательно, и концентрация носителей заряда n , практически не изменяется с температурой от 4,2 К до комнатной температуры. Это позволяет заключить, что в случае Co_2FeSi определяющим является второй канал проводимости со спином вверх.

Магнитные свойства

Результат измерения кривых намагничивания при $T = 4,2$ К и $B \leq 7$ Т в сплаве Гейслера Co_2FeSi приведен на рис. 2. Видно, что в полях свыше 1 Т зависимость намагниченности от поля $M(B)$ выходит на насыщение. Это означает, что в этой области магнитных полей сплав Co_2FeSi переходит в однодоменное состояние.

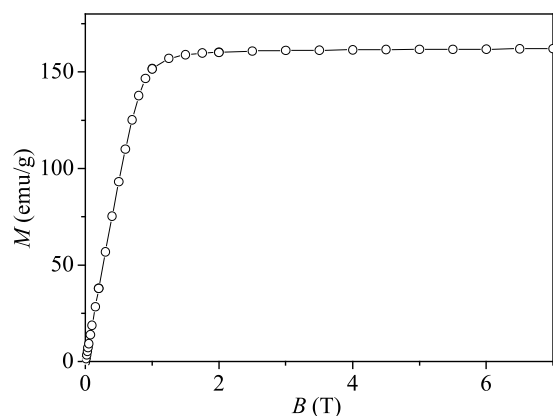


Рис. 2. Кривая намагничивания сплава Гейслера Co_2FeSi при $T = 4,2$ К

Из полученных экспериментальных данных была определена величина спонтанного магнитного момента $\mu_s = 5,8\mu_B/f.u.$, что согласуется с теоретическим значением, полученным в результате расчетов электронной зонной структуры сплавов в [6]: $\mu_{teor} = 4,9 - 5,9\mu_B/f.u.$

Эффект Холла

Результат измерений полевой зависимости сопротивления Холла $\rho_H(B)$, полученный для сплава Co_2FeSi при температуре $T = 4,2$ К и $B \leq 7$ Т, приведен на рис. 3. Видно, что так же, как и на зависимости кривой намагничивания имеется два интервала магнитных полей: до 1 Т и выше 1,5 Т, где ρ_H линейно возрастает с магнитным полем.

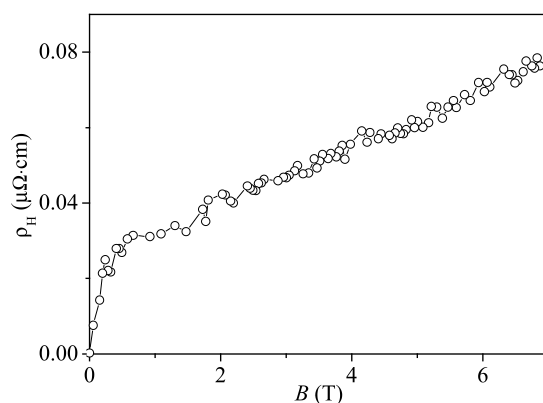


Рис. 3. Полевая зависимость сопротивления Холла при $T = 4,2$ К

Для сплава Co_2FeSi были определены величины коэффициентов нормального R_0 и аномального R_s эффектов Холла, используя измеренные зависимости $\rho_H(B)$ и $M(B)$ в области парапроцесса, а также известную формулу

$$\rho_H/B = R_0 + 4\pi R_s M/B. \quad (3)$$

Первое слагаемое в уравнении (3) – это коэффициент нормального Холла. Нормальный эффект Холла возникает из-за силы Лоренца, искривляющей траектории движения электронов проводимости в поле магнитной индукции B . В однозонной модели коэффициент нормального Холла не зависит от механизмов рассеяния носителей заряда. Второе слагаемое в уравнении (3) связано с аномальным эффектом Холла, который обычно возникает в результате спин-орбитального взаимодействия [13, 14].

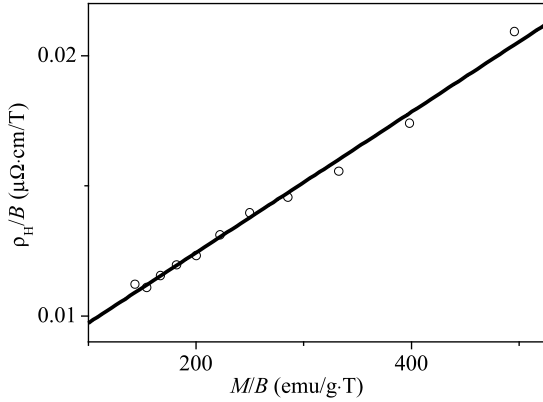


Рис. 4. Зависимость ρ_H/B от M/B

Из рис. 4 видно, что в магнитных полях свыше 1,5 Т, для $\rho_H(B)$ и $M(B)$ справедливо соотношение (3). Отличие значений коэффициентов нормального ($R_0 = 6 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^3/\text{C}$) и аномального ($R_S = 7 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^3/\text{C}$) эффектов Холла на два порядка характерно для ферромагнетиков.

Используя значения коэффициента нормального Холла, можно оценить основной тип носителей заряда, их концентрацию и подвижность. Для Co_2FeSi преобладающим типом носителей заряда при $T = 4,2 \text{ K}$ оказались дырки с концентрацией $n \approx 9 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ и подвижностью $\mu \approx 7 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{c})$, что является типичным для металлов. Необходимо отметить, что исследуемый в данной работе сплав является поликристаллом, поэтому полученные оценки концентрации носителей заряда и подвижности носят качественный характер. При этом полученные значения хорошо согласуются с данными, полученными на монокристалле [11].

Магнитосопротивление

На рис. 5 приведены полевые зависимости поперечного магнитосопротивления $[\rho_{xx}(B) - \rho_0]/\rho_0 = \Delta\rho/\rho_0(B)$, где ρ_{xx} – удельное магнитосопротивление в магнитном поле B , ρ_0 – удельное магнитосопротивление в поле $B = 0 \text{ T}$. Видно, что магнитосопротивление $\Delta\rho/\rho_0$ не превышает десятых процента, а его величина $\Delta\rho/\rho_0 > 0$. В магнитных полях $B \geq 1,5 \text{ T}$, т.е. выше технического насыщения, наблюдается слабая зависимость $\Delta\rho/\rho_0(B)$. Такую зависимость можно представить в виде известного для ферромагнетиков выражения [13]:

$$\begin{aligned} \Delta\rho/\rho_0 &= a(M_S^2 - M^2(H)) = \\ &= a_0 - a_1(\chi H) - a_2(\chi H)^2, \end{aligned} \quad (4)$$

где a , a_0 , a_1 и a_2 – постоянные.

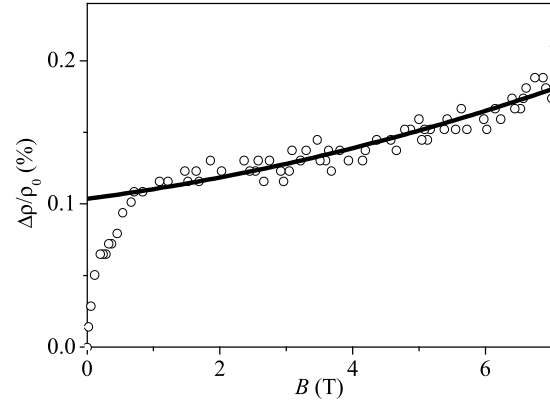


Рис. 5. Полевая зависимость магнитосопротивления $\Delta\rho/\rho_0(B)$. Сплошная линия – результат обработки экспериментальных данных согласно выражению (4)

Как видно из рис. 5, определяющую роль в полевой зависимости магнитосопротивления $\Delta\rho/\rho_0(B)$ играет линейный по магнитному полю член (4). Этот линейный по полю вклад в магнитосопротивление можно объяснить известным «законом Капицы» – линейным магнитосопротивлением, возникающим в поликристаллических металлах, поверхность Ферми которых содержит открытые листы [15]. Квадратичный по магнитному полю вклад в поперечное магнитосопротивление $\Delta\rho/\rho_0(B)$ не существен по величине.

Заключение

В результате исследований электрических и магнитных свойств полуметаллического ферромагнитного сплава Гейслера Co_2FeSi установлено, что при $T < T_C$ основной вклад в температурные зависимости его электросопротивления вносят процессы рассеяния носителей заряда со спином «вверх».

Намагниченность сплава Co_2FeSi переходит в насыщение в полях выше 1,5 Т. При этом достаточно большая величина спонтанного магнитного момента μ_s , полученная из экспериментальных данных $M(B)$, близка к расчетному значению магнитного момента $\mu_{\text{теор}}$.

Показано, что коэффициент нормального эффекта Холла R_0 на два порядка меньше коэффициента аномального эффекта Холла R_S . Полученные значения концентрации и подвижности носителей заряда оказались типичными для металлов.

Магнитосопротивление сплава Гейслера Co_2FeSi не превышает десятых процента. Основную роль в формировании

магнитосопротивления $\Delta\rho/\rho_0(B)$ в области парапроцесса могут играть как процессы упорядочения магнитных неоднородностей во внешнем магнитном поле, так и особенности поверхности Ферми сплава Co_2FeSi , приводящие в поликристаллическом образце к линейному магнитосопротивлению, т.е. «закону Капицы».

Данная работа выполнена в рамках государственного задания ФАНО России (тема «Спин», № АААА-А18-118020290104-2) при частичной поддержке РФФИ (проекты № 18-32-00686 и № 18-02-00739), программы фундаментальных научных исследований УрО РАН (проект № 18-10-2-37) и гранта № 14.Z50.31.0025 Министерства образования и науки РФ.

Список литературы

- Graf T., Felser C., Parkin S.S.P. Simple rules for the understanding of Heusler compounds. *Progress in Solid State Chemistry*. 2011. Vol. 39. P. 1. DOI: 10.1016/j.progsolidstchem.2011.02.001.
- Galanakis I., Mavropoulos P., Dederichs P.H. Electronic structure and Slater-Pauling behaviour in half-metallic Heusler alloys calculated from first principles. *Journal of Physics D: Applied Physics*. 2006. Vol. 39. P. 765. DOI: 10.1088/0022-3727/39/5/S01.
- Inomata K., Ikeda N., Tezuka N., Goto R., Sugimoto S., Wojcik M., Jedryka E. Highly spin-polarized materials and devices for spintronics. *Science and Technology of Advances Materials*. 2008. Vol. 9. P. 014101. DOI: 10.1088/1468-6996/9/1/014101.
- Kandpal H. C., Fecher G. H., Felser C. Calculated electronic and magnetic properties of the half-metallic, transition metal based Heusler compounds. *Journal of Physics D: Applied Physics*. 2007. Vol. 40. P. 1507. DOI: 10.1088/0022-3727/40/6/S01.
- Farshchi R., Ramsteiner M. Spin injection from Heusler alloys into semiconductors: A materials perspective. *Journal of Applied Physics*. 2013. Vol. 113. P. 191101. DOI: 10.1063/1.4802504.
- Balke B., Wurmehl S., Fecher G. H., Felser C., Kubler J. Rational design of new materials for spintronics: Co_2FeZ ($Z = \text{Al}, \text{Ga}, \text{Si}, \text{Ge}$). *Science and Technology of Advanced Materials*. 2008. Vol. 9. P. 014102. DOI: 10.1088/1468-6996/9/1/014102.
- Коуров Н.И., Перевозчикова Ю.А., Weber H.W., Марченков В.В. Особенности электросопротивления полуметаллических ферромагнетиков Co_2MeAl ($\text{Me} = \text{Ti}, \text{V}, \text{Cr}, \text{Mn}, \text{Fe}$) // *Физика твердого тела*. 2016. Т. 58. С. 1311.
- Коуров Н.И., Марченков В.В., Перевозчикова Ю.А., Королев А.В., Weber H.W. Высокополевая намагниченность зонных ферромагнетиков Co_2YAl ($\text{Y} = \text{Ti}, \text{V}, \text{Cr}, \text{Mn}, \text{Fe}, \text{Ni}$) // *Физика твердого тела*. 2016. Т. 58. С. 2346.
- Коуров Н.И., Марченков В.В., Перевозчикова Ю.А., Weber H.W. Гальваномагнитные свойства сплавов Гейслера Co_2YAl ($\text{Y} = \text{Ti}, \text{V}, \text{Cr}, \text{Mn}, \text{Fe}, \text{Ni}$) // *Физика твердого тела*. 2017. Т. 59. С. 63.
- Wurmehl S., Fecher G.H., Kandpal H.C., Ksenofontov V., Felser C., Lin H.J., Morai J. Geometric, electronic, and magnetic structure of Co_2FeSi : Curie temperature and magnetic moment measurements and calculations. *Physical Review B*. 2005. Vol. 72. P. 184434. DOI: 10.1103/PhysRevB.72.184434.
- Bombor D., Blum C. G. F., Volkonskiy O., Rodan S., Wurmehl S., Hess C., Buchner B. Half-metallic ferromagnetism with unexpectedly small spin splitting in the Heusler compound Co_2FeSi . *Physical Review Letters*. 2013. Vol. 110. P. 066601. DOI: 10.1103/PhysRevLett.110.066601.
- Marchenkov V.V., Perevozchikova Yu.A., Kourov N.I., Irkhin V.Yu., Eisterer M., Gao T. Peculiarities of the electronic transport in half-metallic Co-based Heusler alloys. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*. 2018. Vol. 459. P. 211. DOI: 10.1016/j.jmmm.2017.11.019.
- Ирхин В.Ю., Ирхин Ю.П. Электронная структура, физические свойства и корреляционные эффекты d- и f-металлах и их соединениях. Екатеринбург: УрО РАН, 2004. 472 с.
- Грановский А.Б., Прудников В.Н., Казаков А.П., Жуков А.П., Дубенко А.П. Определение коэффициентов нормального и аномального эффектов Холла в ферромагнитных сплавах Гейслера $\text{Ni}_{50}\text{Mn}_{35}\text{In}_{15-x}\text{Si}_x$ при мартенситном превращении // *Журнал экспериментальной и теоретической физики*. 2012. Т. 142. С. 916.
- Лифшиц И.М., Азбель М.Я., Каганов М.И. Электронная теория металлов. М.: Наука, 1971. 415 с.