

05,01

Особенности электросопротивления полуметаллических ферромагнетиков Co_2MeAl ($\text{Me} = \text{Ti}, \text{V}, \text{Cr}, \text{Mn}, \text{Fe}$)

© Н.И. Коуров¹, Ю.А. Перевозчикова¹, Н.В. Вебер², В.В. Марченков^{1,3,4}

¹ Институт физики металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН, Екатеринбург, Россия

² Atominstitut, Vienna Technological University, Vienna, Austria

³ Уральский федеральный университет им. Б.Н. Ельцина, Екатеринбург, Россия

³ International Laboratory of High Magnetic Fields and Low Temperatures, Wrocław, Poland

E-mail: kourov@imp.uran.ru

(Поступила в Редакцию 30 декабря 2015 г.)

В интервале температур 4–900 К проведены измерения транспортных свойств полуметаллических ферромагнитных сплавов Гейслера Co_2MeAl ($\text{Me} = \text{Ti}, \text{V}, \text{Cr}, \text{Mn}, \text{Fe}$ — переходные $3d$ -элементы). Особенности поведения электросопротивления рассматриваются в рамках двухтоковой модели проводимости, учитывающей наличие энергетической щели в электронном спектре сплавов вблизи уровня Ферми для одной из подполос электронов, различающихся направлением спинов.

Работа выполнена по плановому государственному заданию (тема „Спин“) при частичной поддержке Комплексной программы УрО РАН (проект № 15-17-2-12) и РФФИ (грант № 15-02-06686).

1. Введение

Главная особенность полуметаллических ферромагнетиков (ПМФ) заключается в том, что в их электронном спектре на уровне энергии Ферми E_F присутствует энергетическая щель в одной из подполос, различающихся направлением спинов электронов [1]. Эта особенность электронного спектра выявляется в результате *ab initio* зонных расчетов и обычно экспериментально обнаруживается при измерении оптических характеристик (см., например, [2]). Вследствие значительных изменений спектральных параметров в зависимости от температуры и, особенно, при переходе из ферромагнитного в парамагнитное состояние она должна проявляться также в поведении других электронных свойств данных материалов. В частности, следует ожидать наличие „щелевых“ особенностей в удельном электросопротивлении $\rho(T)$.

Теоретически влияние щели в электронном спектре на транспортные свойства сплавов рассматривалось ранее, например, в [3,4]. Было показано, что в случае сильного возмущения электронного спектра из-за суперпозиции электрон-фононного $\rho_{ph}(T)$ и магнитного (щелевого) $\rho_m(T)$ вкладов на температурной зависимости сопротивления вблизи T_C появляется аномалия в виде максимума. Экспериментально такая щелевая особенность в $\rho(T)$ наблюдается вблизи точки Нееля антиферромагнитного марганца (см., например, [5]). При слабом влиянии магнитного упорядочения на спектральные параметры имеет место разложение по намагниченности, и дополнительный магнитный вклад в сопротивление будет пропорционален квадрату спонтанной намагниченности M_S .

В [6–10] такие характерные особенности $\rho(T)$ были обнаружены в высокоомных ПМФ Co_2CrAl и Co_2CrGa , имеющих щель в спектре для подполосы электронов со спинами, направленными вниз (minority). В сплаве Co_2CrAl при $T < T_C = 305$ К и уровне остаточного сопротивления $\rho_0 \sim 1.5 \mu\Omega \cdot \text{m}$ с ростом температуры $\rho(T)$ уменьшается по величине пропорционально квадрату M_S . В сплаве Co_2CrGa , имеющем $\rho_0 \sim 1.28 \mu\Omega \cdot \text{m}$, наблюдается более сложный вид зависимости $\rho(T)$ с максимумом вблизи $T_C = 495$ К. В [6–10] обнаруженные особенности поведения $\rho(T)$ этих сплавов объясняются в рамках двухтоковой модели. При этом особо отмечается, что проявление щелевых особенностей в транспортных свойствах ПМФ Co_2CrAl и Co_2CrGa обусловлено сравнимыми по величине значениями сопротивлений для электронов со спином вверх $\rho_{\uparrow}(T)$ и вниз $\rho_{\downarrow}(T)$.

Представляет интерес исследовать изменение щелевого вклада в $\rho(T)$ ПМФ в зависимости от величины ρ , значений T_C и параметров щели в электронном спектре. С этой целью в настоящей работе рассматривается поведение $\rho(T)$ в широком интервале температур $4 \leq T \leq 900$ К для серии сплавов Co_2MeAl , где $\text{Me} = \text{Ti}, \text{V}, \text{Cr}, \text{Mn}, \text{Fe}$ — переходные $3d$ -элементы. Как видно из данных, приведенных в таблице, эти сплавы являются ферромагнетиками с сильно различающимися значениями T_C [10–14]. Остаточное сопротивление рассматриваемых сплавов изменяется в широком интервале значений от $\rho_0 \sim 0.4 \mu\Omega \cdot \text{m}$ в сплаве Co_2TiAl до $\rho_0 \sim 2.37 \mu\Omega \cdot \text{m}$ в сплаве Co_2MnAl . Все исследованные сплавы упорядочиваются в одинаковой кристаллической структуре типа $L2_1$. Зонные расчеты показывают (см., например, [10,15]), что рассматриваемые сплавы имеют в электронном спектре энергетическую щель,

Значения точек Кюри T_C [10–14] и остаточного сопротивления ρ_0 исследованных полуметаллических ферромагнетиков

Параметр	Co ₂ TiAl	Co ₂ VAl	Co ₂ CrAl	Co ₂ MnAl	Co ₂ FeAl
T_C , К	120 [12]	357 [11]	305 [10]	726 [14]	1170 [13]
ρ_0 , $\mu\Omega \cdot \text{m}$	0.4	2.34	1.5	2.37	0.425

расположенную вблизи E_F в подзоне электронов со спинами, направленными вниз. Следовательно, эти сплавы Гейслера можно отнести к классу ПМФ.

2. Образцы и методика эксперимента

Сплавы Co₂TiAl, Co₂VAl, Co₂CrAl, Co₂MnAl и Co₂FeAl были выплавлены в индукционной печи в атмосфере очищенного аргона. Слитки переплавлялись несколько раз, чтобы обеспечить равномерное перемешивание компонентов. Полученные сплавы отжигались в течение 48 h при 800 К в атмосфере аргона с последующим охлаждением до комнатной температуры со скоростью около 100 К/h.

Атомное содержание элементов в сплавах контролировалось с помощью сканирующего электронного микроскопа FEI Company Quanta 200, оснащенного приставкой для рентгеновского микроанализа EDAX. Исследования показали, что для всех изученных сплавов отклонения от стехиометрического состава являются незначительными. Рентгеноструктурные исследования подтвердили, что во всех сплавах была сформирована структура L2₁. Структурная аттестация исследованных сплавов была выполнена в Центре коллективного пользования ИФМ УрО РАН.

Измерения электросопротивления были выполнены с использованием общепринятой четырехконтактной методики на постоянном токе с коммутацией направления электрического тока через образец.

3. Результаты измерений и их обсуждение

Температурные зависимости электросопротивления ПМФ Co₂MeAl приведены на рис. 1. Видно, что сплавы этой серии имеют разное поведение $\rho(T)$.

3.1. Низкотемпературное электросопротивление ($T \leq T_C$). Для сплава Co₂TiAl на температурной зависимости сопротивления в точке Кюри наблюдается аномалия в виде излома с резким уменьшением величины температурного коэффициента сопротивления (ТКС) при переходе из ферромагнитного в парамагнитное состояние. В остальных сплавах вблизи T_C кривые $\rho(T)$ имеют особенности в виде максимума или минимума. Учитывая результаты исследования ПМФ Co₂CrAl и Co₂CrGa, приведенные в [6–10], можно считать, что при $T \leq T_C$ поведение $\rho(T)$ обусловлено прежде всего изменением электронного спектра вблизи

E_F в зависимости от температуры. Вследствие раздвижки подзон электронов со спинами вверх (\uparrow) и вниз (\downarrow) можно записать выражение для сопротивления в виде (см., например, [4])

$$\rho = \rho(0) + cM_S^2. \quad (1)$$

В формуле (1) член $\rho(0)$ включает в себя независящее от температуры остаточное сопротивление ρ_0 , а также температурно-зависимые электрон-электронную ρ_{ee} и электрон-фононную ρ_{ph} составляющие, при этом $\rho_0 \gg \rho_{ee}$ и ρ_{ph} .

Для проверки соотношения (1) были проведены измерения магнитных свойств сплава Co₂TiAl, которые приведены на рис. 2. Видно, что при $T = 4.2$ К кривая намагничивания $M(H)$ выходит в область парапроцесса при достаточно малых полях $H < 1$ МА/м. При этом как в парамагнитной области температур, так и при $T < T_C$ она характеризуется слабым парапроцессом. Это

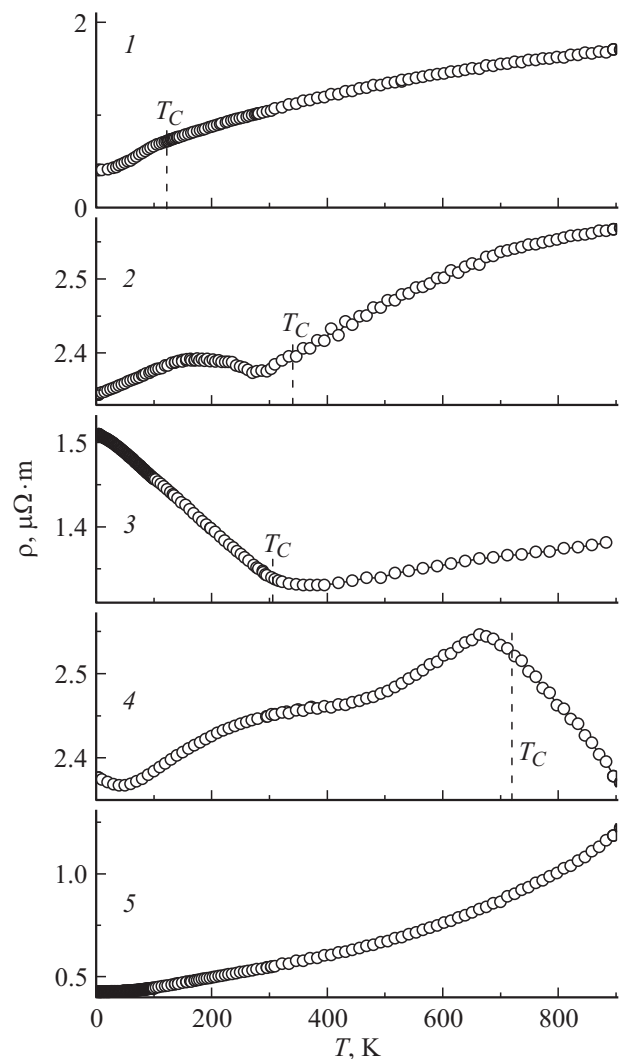


Рис. 1. Электросопротивление полуметаллических ферромагнитных сплавов Гейслера Co₂MeAl: Me = Ti (1), V (2), Cr (3), Mn (4), Fe (5).

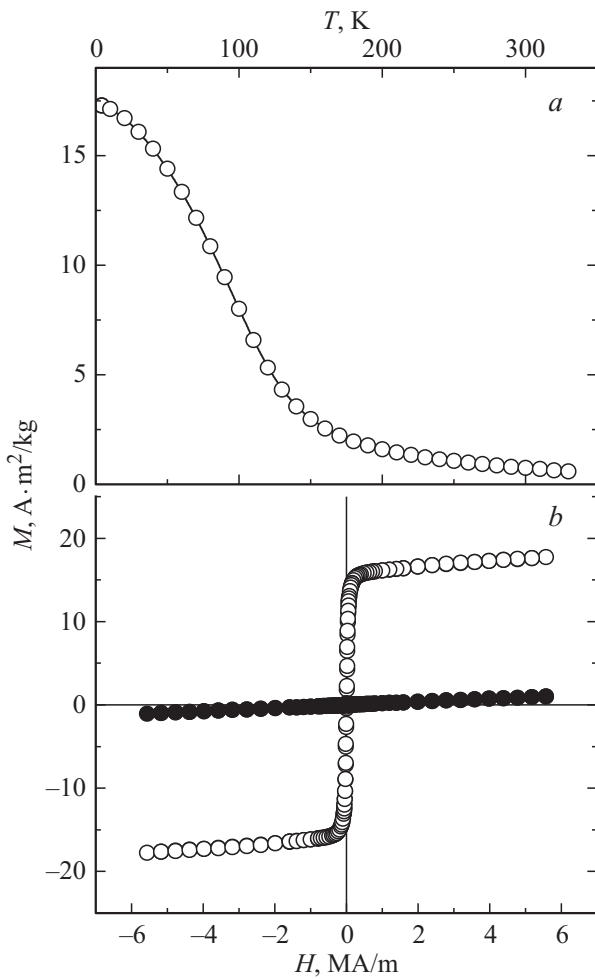


Рис. 2. *a*) Температурная зависимость намагниченности, измеренная при $H = 4 \text{ MA/m}$. *b*) Полевая зависимость намагниченности, измеренная при $T = 4.2 \text{ K}$ (светлые кружки) и 295 K (темные кружки) для сплава Co_2TiAl .

позволяет считать, что намагниченность, измеренная в большом магнитном поле (при $H = 4 \text{ MA/m}$), по величине близка к спонтанной намагниченности M_S . Приведенная на рис. 3, *a* зависимость сопротивления сплава Co_2TiAl от квадрата высокополевой намагниченности подтверждает справедливость выражения (1) для ПМФ Co_2TiAl при условии $c < 0$ и $T < T_C$.

Известно, что, согласно зонной теории магнетизма [16], которая должна быть справедлива для ПМФ, спонтанную намагниченность можно определить как

$$M_S^2 = (M_{T=0, H=0})^2 [1 - (T/T_C)]. \quad (2)$$

Следовательно, для сопротивления имеем выражение

$$\rho = \rho_1 + \rho_2 (T/T_C)^2, \quad (3)$$

где ρ_1 и ρ_2 в первом приближении можно считать константами. Из данных рис. 3, *b* видно, что для сплава Co_2TiAl соотношение (3) действительно выполняется в широком интервале температур при $T < T_C$.

Необходимо отметить, что в ПМФ Co_2FeAl , имеющем высокую температуру Кюри, необычно сильная температурная зависимость сопротивления при $T < T_C \sim 1170 \text{ K}$ [13] также подчиняется соотношению (3), а следовательно, и выражению (1) с коэффициентом $c < 0$. В то же время, согласно [10], в ПМФ Co_2CrAl для зависимости $\rho(T)$ при $T < T_C$ соотношение (1) справедливо уже только при условии $c > 0$.

Более сложный вид температурной зависимости сопротивления наблюдается при $T < T_C$ в сплавах Co_2MnAl и Co_2VAl , имеющих наибольшее среди исследованных ПМФ значение ρ_0 . Вблизи T_C этих сплавов на кривых $\rho(T)$ наблюдается максимум. Можно предполагать, что этот максимум в ПМФ обусловлен существенным изменением электронной зонной структуры вблизи E_F из-за исчезновения энергетической щели в подзоне электронов со спином \downarrow вследствие $M_S \rightarrow 0$. Согласно [3,4,8,9], в этом случае на фоне линейного роста электрон-фононной составляющей в приближении среднего поля имеем выражение для температурной зависимости суммарного сопротивления вблизи T_C в виде

$$\rho(T) = \rho_{\text{ph}}(T) + \rho_m(t) = \beta T + \alpha [1 - M_S^2(T)] + \gamma M_S^2(T) T, \quad (4)$$

где α , β и γ — коэффициенты.

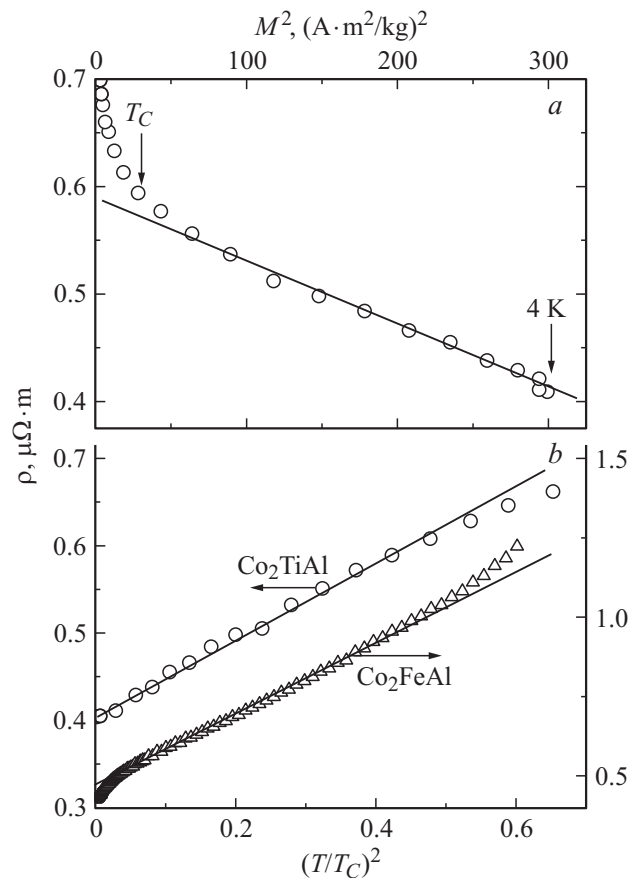


Рис. 3. Зависимости $\rho(T)$ от M^2 для сплавов Co_2TiAl (*a*) и $\rho(T)$ от $(T/T_C)^2$ для сплавов Co_2TiAl (светлые кружки) и Co_2FeAl (треугольники) (*b*). Стрелки указывают оси координат и значения температуры.

Аномалию в виде минимума при $T \sim 50$ К, наблюдаемую на кривой $\rho(T)$ в ПМФ Co_2MnAl , можно объяснить при учете дополнительных вкладов в сопротивление, обусловленных процессами взаимодействия [17] или андерсоновской локализации [18] электронов проводимости. При низких температурах $T \ll T_C$ эти эффекты могут быть важными в условиях незначительной перестройки электронного спектра вблизи E_F из-за слабого изменения величины M_S .

Следовательно, приведенные в этом подразделе результаты измерений электросопротивления серии сплавов Co_2MeAl при $T \leq T_C$ подтверждают представленную в настоящей работе точку зрения об определяющей роли особенностей электронного спектра для поведения $\rho(T)$ в ПМФ.

3.2. Высокотемпературное электросопротивление ($T > T_C$). Из рис. 1 видно, что при температурах выше T_C для поведения $\rho(T)$ исследованных ПМФ характерны три вида зависимостей. В сплаве Co_2CrAl выше T_C наблюдается практически линейная зависимость $\rho(T)$, что, как правило, имеет место в случае обычного электрон-фононного вклада при температурах выше температуры Дебая Θ_D .

В сплавах Co_2TiAl и Co_2VAl с ростом температуры наклон зависимости $\rho(T)$ уменьшается, т.е. для данных сплавов имеет место так называемый эффект насыщения сопротивления. Для объяснения этого эффекта обычно используется „модель шунтирующих сопротивлений“ Алена и Чакраборти [19], в которой предполагается существование в сплаве двух параллельных каналов проводимости. При этом в одном из них сопротивление не зависит от температуры и имеет предельно высокое значение ρ_{max} , когда длина свободного пробега электронов l сравнима с параметрами решетки a . В другом канале существует обычная металлическая проводимость. В этой модели температурная зависимость сопротивления имеет вид

$$\rho^{-1}(T) = \frac{1}{\rho_0 + \rho_1 T} + \frac{1}{\rho_{\text{max}}}, \quad (5)$$

где ρ_0 , ρ_1 , ρ_{max} — постоянные величины, а $\rho_{\text{ph}}(T) = \rho_1 T$ — электрон-фононная составляющая, определяемая при температурах выше Θ_D .

Казалось бы, использование такого подхода должно быть идеальным для ПМФ, в которых, согласно [6–10], можно выделить два канала проводимости: высокоомный для подзоны электронов, имеющей энергетическую щель на уровне Ферми E_F , и обычный металлический с противоположным направлением спинов электронов. Однако экспериментально полученные зависимости $\rho(T)$ для сплавов Co_2TiAl и Co_2VAl не удается описать выражением (5) в широком интервале температур.

В [20] предлагается другой подход, объясняющий эффект насыщения сопротивления. Предполагается, что в сплавах с достаточно высоким уровнем сопротивления (в нашем случае $\rho_0 \geq 0.4 \mu\Omega \cdot \text{m}$), имеющих положительный ТКС, наряду с механизмом упругого рассеяния носителей заряда осуществляются также неупругие процессы рассеяния. В исследованных нами ПМФ

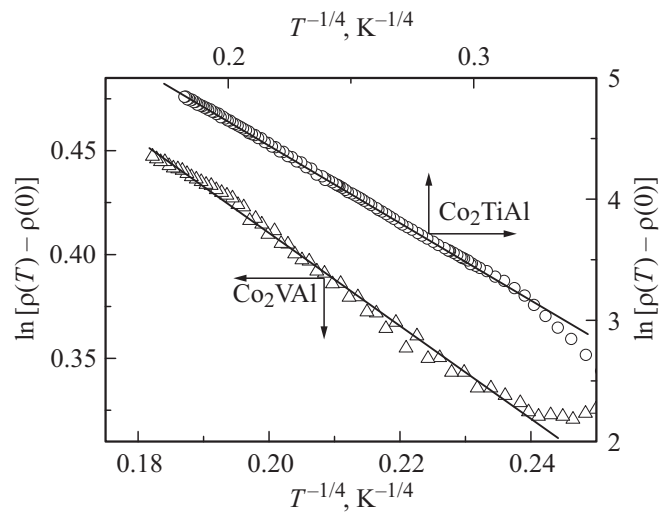


Рис. 4. Зависимости $\ln[\rho(T) - \rho(0)]$ от $T^{-1/4}$ при $T > T_C$ для сплавов Co_2TiAl (светлые кружки) и Co_2VAl (треугольники). Стрелки указывают оси координат.

неупругие процессы могут реализоваться, в частности, при рассеянии электронов проводимости в подзону, имеющую щель на уровне Ферми E_F , когда происходит рассеяние с переворотом спина. Следуя [20], можно записать интерполяционное выражение для $\rho(T)$ в виде

$$\rho(T) = \rho_{\text{res}} + \rho_{\text{in}} \exp(-2B/T^{1/4}), \quad (6)$$

где ρ_{in} — сопротивление, обусловленное неупругими процессами рассеяния, B — коэффициент. Здесь первое слагаемое ρ_{res} включает в себя все механизмы упругого рассеяния. Очевидно, что оно также зависит от температуры. Однако, как и в [20], на уровне достаточно высокого остаточного сопротивления его температурной зависимостью можно пренебречь по сравнению со вторым (экспоненциальным) членом в (6). Из рис. 4 видно, что для сплавов Co_2TiAl и Co_2VAl экспериментально полученные температурные зависимости сопротивления удовлетворительно описываются выражением (6) в широком интервале температур при $T > T_C$.

В сплаве Co_2MnAl при $T > T_C$ с ростом температуры наблюдается резкое уменьшение сопротивления, причем $\rho(T)$ выше T_C имеет явно нелинейный вид. Учитывая высокоомный характер рассматриваемого ПМФ, для которого наблюдается отрицательный ТКС, можно использовать концепцию сосуществования упругих и неупругих механизмов рассеяния (см., например, работы [20,21] и ссылки в них). Следуя [20,21], в сплавах с длиной пробега электронов проводимости, сравнимой с параметрами решетки ($l \sim a$), для температурной зависимости проводимости можно записать

$$\sigma = 1/\rho = \sigma_{\text{res}} + \sigma_{\text{in}} = \sigma_{\text{res}} + A \exp(-B/T^{1/4}), \quad (7)$$

где A и B — коэффициенты. В этой формуле σ_{res} — обычная металлическая проводимость, обусловленная

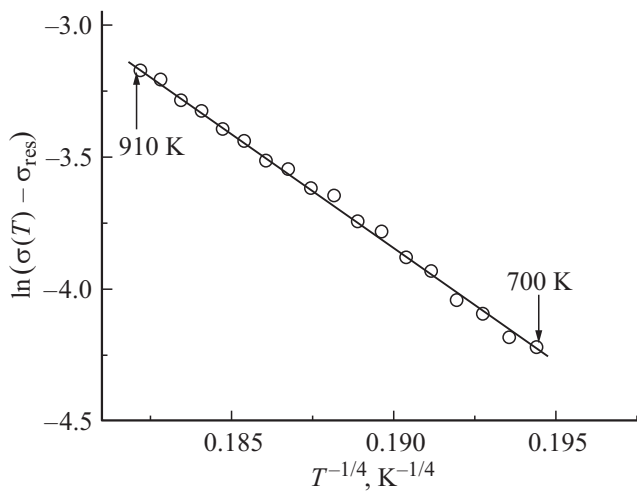


Рис. 5. Зависимость $\ln[\sigma(T) - \sigma_{\text{res}}]$ от $T^{-1/4}$ при $T > T_C$ для сплава Co_2MnAl .

упругим рассеянием носителей тока, а σ_{in} — проводимость, связанная с неупругими процессами рассеяния. По существу вторая составляющая в (7) соответствует прыжковой проводимости по локализованным состояниям с переменной длиной прыжка [22,23] (закон Мотта $T^{1/4}$). В том случае, когда $\sigma_{\text{in}} \geq \sigma_{\text{res}}$, на зависимости $\rho(T)$ может наблюдаться отрицательный ТКС. Из рис. 5 видно, что в сплаве Co_2MnAl при $T > T_C$ поведение $\sigma(T)$ действительно подчиняется закономерности (7). Отсюда можно заключить, что в выражении (4), описывающем зависимость $\rho(T)$ вблизи T_C , наряду с упругим электрон-фононным вкладом необходимо учитывать более сильный неупругий механизм рассеяния согласно выражению (7).

Следовательно, приведенные в данном подразделе результаты измерений электросопротивления серии сплавов Co_2MeAl показывают, что при $T > T_C$ поведение $\rho(T)$ в ПМФ определяется прежде всего сосуществованием упругих и неупругих механизмов рассеяния электронов проводимости. При этом усиление роли неупругих механизмов рассеяния связано с особенностями электронного спектра, а именно с наличием энергетической щели (или „псевдощели“) на уровне Ферми E_F ПМФ.

4. Заключение

Таким образом, представленные в работе результаты исследования показывают, что температурные зависимости сопротивления $\rho(T)$ ПМФ Co_2MeAl (где $\text{Me} = \text{Ti}, \text{V}, \text{Cr}, \text{Mn}, \text{Fe}$ — переходные $3d$ -элементы), в основном определяются особенностями их электронной зонной структуры. Наличие энергетической щели на уровне Ферми E_F в подзоне электронов со спинами, направленными вниз, приводит к аномалии на температурной зависимости $\rho(T)$ в виде излома, максимума или минимума вблизи точки Кюри.

При $T \leq T_C$ сопротивление полуметаллических сплавов Co_2MeAl определяется прежде всего процессами перестройки электронной зонной структуры вблизи E_F в зависимости от температуры и при переходе из ферромагнитного в парамагнитное состояние.

При $T > T_C$ в исследованных сплавах наблюдаются эффект насыщения сопротивления, заключающийся в уменьшении величины положительного ТКС с ростом температуры, или отрицательный ТКС. Высокотемпературные особенности поведения $\rho(T)$ в исследованных ПМФ объясняются при учете наряду с упругими также неупругих процессов рассеяния электронов проводимости.

Список литературы

- [1] В.Ю. Ирхин, М.И. Кацнельсон. УФН **164**, 705 (1994).
- [2] E. Shreder, S.V. Streltsov, A. Svyazhin, A. Makhnev, V.V. Marchenkov, A. Lukoyanov, H.W. Weber. J. Phys.: Condens. Matter **20**, 045 212 (2008).
- [3] Ю.П. Ирхин. ФММ **6**, 214 (1958).
- [4] В.Ю. Ирхин, Ю.П. Ирхин. Электронная структура, физические свойства и корреляционные эффекты в d - и f -металлах и их соединениях. УрО РАН, Екатеринбург (2004). 472 с.
- [5] С.В. Вонсовский. Магнетизм. Наука, М. (1971). 1032 с.
- [6] К.А. Fomina, V.V. Marchenkov, E.I. Shreder, H.W. Weber. Solid State Phenom. **168–169**, 545 (2011).
- [7] Н.И. Коуров, В.В. Марченков, В.Г. Пушин, К.А. Белозерова. ЖЭТФ **144**, 141 (2013).
- [8] Н.И. Коуров, А.В. Лукоянов, В.В. Марченков. ФТТ **55**, 2366 (2013).
- [9] N.I. Kourov, V.V. Marchenkov, A.V. Korolev, K.A. Beloserova, H.W. Weber. Current Appl. Phys. **15**, 7, 839 (2015).
- [10] Н.И. Коуров, А.В. Королёв, В.В. Марченков, А.В. Лукоянов, К.А. Белозерова. ФТТ **55**, 899 (2013).
- [11] T. Kanomata, Y. Chieda, K. Endo, H. Okada, N. Nagasako, K. Kobayashi, R. Kainuma, R.Y. Umetsu, H. Tagahashi, Y. Furutani, H. Nishihara, K. Abe, Y. Miura, M. Shirai. Phys. Rev. B **82**, 144 415 (2010).
- [12] T. Graf, G.H. Fecher, J. Barth, J. Winterlik, C. Felser. J. Phys. D **42**, 084 003 (2009).
- [13] K. Kobayashi, R. Kainume, K. Ishida. Mater. Trans. **47**, 20 (2006).
- [14] R.Y. Umetsu, K. Kobayashi, A. Fujita, R. Kainuma, K. Ishida. J. Appl. Phys. **103**, 07D 718 (2008).
- [15] H.C. Kandpal, G.H. Fecher, C. Felser. J. Phys. D **40**, 1507 (2007).
- [16] E.P. Wohlfart. J. Appl. Phys. **39**, 1061 (1968).
- [17] Б.Л. Альтшулер, А.Г. Аронов. ЖЭТФ **77**, 2028 (1979).
- [18] P.W. Anderson. Phys. Rev. **109**, 1492 (1958).
- [19] P.V. Allen, B. Chakraborty. Phys. Rev. B **23**, 4815 (1981).
- [20] А.С. Щербаков, Н.И. Коуров, Ю.Н. Циовкин. ФТТ **27**, 1685 (1985).
- [21] А.С. Щербаков, А.Ф. Прекул, Р.В. Поморцев. Письма в ЖЭТФ **32**, 425 (1980).
- [22] Н. Мотт, Э. Дэвис. Электронные процессы в некристаллических веществах. Мир, М. (1974). 472 с.
- [23] Н.Ф. Мотт. Переходы металл–изолятор. Наука, М. (1979). 342 с.