

# Full-Heusler 合金 $X_2 YGa$ ( $X = Co, Fe, Ni$ ; $Y = V, Cr, Mn$ ) 的电子结构、磁性及 半金属特性的第一性原理研究\*

刘新浩 林景波 刘艳辉 金迎九<sup>†</sup>

(延边大学理学院物理系, 延吉 133002)

(2011 年 1 月 6 日收到; 2011 年 1 月 28 日收到修改稿)

利用基于密度泛函理论的全势线性缀加平面波方法, 结合广义梯度近似, 对 full-Heusler  $X_2 YGa$  ( $X = Co, Fe, Ni$ ;  $Y = V, Cr, Mn$ ) 合金的电子结构、磁性及半金属特性进行了研究, 并讨论了自旋-轨道耦合作用对它们的影响. 计算结果表明, 自旋-轨道耦合作用对 full-Heusler  $X_2 YGa$  ( $X = Co, Fe, Ni$ ;  $Y = V, Cr, Mn$ ) 合金的电子结构、磁性与半金属特性的影响很小. 当未考虑自旋-轨道耦合作用时,  $Co_2 VGa$ ,  $Co_2 CrGa$ , 和  $Fe_2 CrGa$  合金为半金属或准半金属铁磁体, 加入自旋-轨道耦合作用后体系的自旋极化率将降低 1% 左右, 它们依然保持很高的自旋极化率.  $Fe_2 MnGa$ ,  $Co_2 MnGa$ ,  $Ni_2 CrGa$  和  $Ni_2 MnGa$  合金为一般铁磁体,  $Fe_2 VGa$  和  $Ni_2 VGa$  合金为顺磁体.

**关键词:** 半金属特性, 自旋-轨道耦合, Heusler 合金, 全势线性缀加平面波方法 (FLAPW)

**PACS:** 71.20.-b, 75.50.-y, 75.50.Cc

## 1. 引言

自旋电子学器件因具有良好的稳定性、体积小、能耗低、数据处理快, 以及集成密度高等优点而备受人们的关注. 目前自旋电子学器件的研制所遇到的关键问题之一是如何高效率地将自旋电流从磁性材料注入到半导体材料之中. 稀磁半导体材料虽然具有很高的自旋极化率但它的居里温度一般很低 (低于室温)<sup>[1,2]</sup>, 而传统的铁磁材料虽然具有很高的居里温度却具有很低的自旋极化率只有 10% 到 50%<sup>[3]</sup>. 半金属铁磁体 (half-metallic ferromagnet) 因具有完全的自旋极化率 (100%), 而认为是理想的半导体自旋电子注入源之一<sup>[4-6]</sup>. 在半金属铁磁体中, 一种自旋方向的能带呈现金属性, 而另一种自旋方向的能带呈现半导体特性, 从而导致在费米面附近传导电子的自旋极化率为 100%. 实验和理论研究表明  $La_{0.7} Sr_{0.3} MnO_3$ <sup>[7]</sup>,  $CrO_2$ <sup>[8]</sup>, Zinc-blende 结构  $CrAs$ <sup>[9]</sup>, half-Heusler  $NiMnSb$ <sup>[4]</sup>, full-Heusler  $Co_2 MnSi$ ,  $Co_2 FeSi$ <sup>[10,11]</sup> 等化

合物具有半金属特性. 在众多的半金属铁磁体中 Heusler 合金因具有较高的居里温度、较大的磁矩、与闪锌矿结构的半导体相接近的晶体结构而备受关注<sup>[12-14]</sup>. Heusler 合金可分为两种类型, 即 full-和 half-Heusler 合金. Full-Heusler 合金的化学式为  $X_2 YZ$ , 具有  $L2_1$  结构, 相当于把四个 fcc 面心立方结构相互套构而成, 其中  $X$  和  $Y$  代表不同的过渡金属元素 (如  $Fe, Co, Ni, Cu, Mn, Ti$  和  $V$  等), 而  $Z$  代表 sp 元素 (如  $Al, Ga, In, Ge, As$  和  $Sn$  等).

因为 Heusler 合金是由多种不同电子结构的元素组合而成, 即有局域的 d 电子轨道又有非局域的 sp 电子轨道, 因此具有复杂的能带结构, 进而呈现非常丰富而多样的物理现象, 比如半金属特性, 磁形状记忆效应等<sup>[15,16]</sup>. Galanakis 等人利用 full-potential screened Korringa-Kohn-Rostoker 方法对 full-Heusler  $Co_2 YAl$  和  $Fe_2 YAl$  ( $Y = V, Cr, Mn$ ) 等合金进行了理论研究<sup>[10]</sup>, 并预测了许多 full-Heusler 合金具有半金属特性, 而且它们的总自旋磁矩满足 Slater-Pauling 规则, 即  $M_t = Z_t - 24$  ( $\mu_B$ /原胞), 其中  $M_t$  代表原胞的总自旋磁矩, 而  $Z_t$  代表原胞中价电

\* 国家自然科学基金 (批准号: 10664005, 10864008, 11064015) 和教育部留学回国人员科研启动基金 (批准号: [2007]1108) 资助的课题.

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

子的总数目. 利用超导量子干涉器件和振动样品磁强计, Umetsu<sup>[17]</sup> 等人研究了  $\text{Co}_2\text{CrGa}$  合金, 所测得的总磁矩为  $3.01 \mu_B$ , 很好的满足 Slater-Pauling 规则, 表明  $\text{Co}_2\text{CrGa}$  合金具有半金属特性. 第一性原理计算结果也表明  $L2_1$  结构的  $\text{Co}_2\text{CrGa}$  合金具有很高的自旋极化率, 约为 95%<sup>[17]</sup>. 尽管目前对 Heusler 合金已经有大量的基于密度泛函理论的文献报道, 但大多数文献的能带计算是在忽略自旋-轨道耦合作用的条件下进行的. 对 Half-Heusler  $\text{NiMnSb}$  合金的第一性原理研究发现, 当考虑自旋-轨道相互作用时, 因为费米能级上出现由自旋-轨道耦合所引起的自旋向下态, 该合金的自旋极化率由 100% 变成 99%; 而含有重元素的 Zinc-blende 结构  $\text{MnBi}$ , 自旋-轨道耦合作用使该体系的自旋极化率由 100% 下降到 77%<sup>[18]</sup>. 自旋轨道耦合效应在自旋电子学中有关自旋注入、输运和调控等方面起着重要的

作用, 所以有必要对具有不同晶体结构的化合物中自旋-轨道耦合效应进行广泛的研究. 本文利用基于密度泛函理论的全势线性缀加平面波方法结合广义梯度近似研究了 full-Heusler  $X_2YZ$  ( $X = \text{Co}, \text{Fe}, \text{Ni}; Y = \text{V}, \text{Cr}, \text{Mn}$ ) 合金的电子结构、磁性及半金属特性, 并讨论了自旋-轨道耦合作用对它们的影响.

## 2. 模型与计算方法

Full-和 half-Heusler 合金的结构如图 1 所示. 在 Wyckoff 坐标系中,  $X$  原子占据  $4a(0, 0, 0)$  和  $(1/2, 1/2, 1/2)$  的位置;  $Y$  原子和  $Z$  原子则分别占据  $4c(1/4, 1/4, 1/4)$  和  $4d(3/4, 3/4, 3/4)$  位置. Half-Heusler 合金的化学式为  $XYZ$ , 具有  $C1_b$  结构, 相当于从 full-Heusler 合金中把  $(1/2, 1/2, 1/2)$  位置处  $X$  原子用空缺代替.

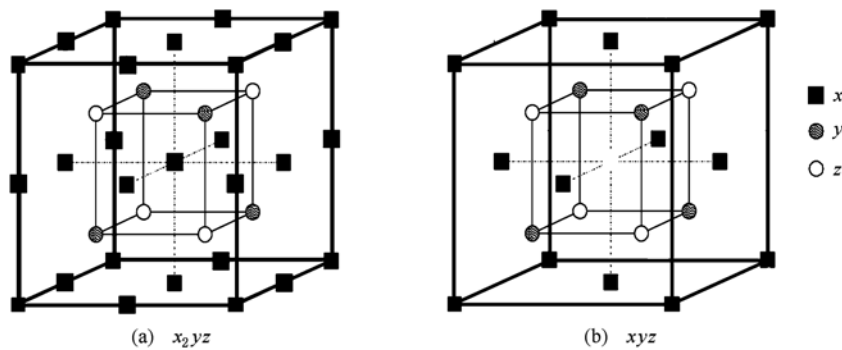


图 1 Heusler 合金的晶体结构 (a) Full-Heusler  $X_2YZ$  合金; (b) Half-Heusler  $XYZ$  合金

因为  $\text{Fe}_2\text{MnGa}$ ,  $\text{Ni}_2\text{VGa}$ ,  $\text{Ni}_2\text{CrGa}$  等合金的晶格常数到目前还没有实验方面的报道, 我们通过总能量随晶格常数的变化关系 (图 1), 得到了三种合金的最优化晶格常数, 而对于其他的合金则采用了相应的实验晶格常数. 计算得到的  $\text{Fe}_2\text{MnGa}$ ,  $\text{Ni}_2\text{VGa}$ ,  $\text{Ni}_2\text{CrGa}$  等合金的晶格常数分别为  $5.685, 5.797$  和  $5.801 \text{ \AA}$ , 它们与以前的理论预测值  $5.688 \text{ \AA}$  ( $\text{Fe}_2\text{MnGa}$ )<sup>[19]</sup> 和  $5.806 \text{ \AA}$  ( $\text{Ni}_2\text{CrGa}$ )<sup>[20]</sup> 一致.

Kohn-Sham 方程的求解是基于密度泛函理论的全势线性缀加平面波 (FLAPW) 方法<sup>[21]</sup> (采用 FLEUR 程序包<sup>[22]</sup>) 结合广义梯度近似 (GGA)<sup>[23]</sup>, 以自洽循环来完成. 计算中对价电子态考虑了包含和不包含自旋-轨道耦合作用的两种情形<sup>[24]</sup>. 包含自旋-轨道耦合作用时电子本征函数按未包含自旋-

轨道耦合作用下 Kohn-Sham 本征函数的线性叠加展开, 相应的展开系数由包含自旋-轨道耦合作用的完全相对论 Kohn-Sham 方程的对角化来得到. 自旋-轨道耦合作用降低体系的对称性. 我们把  $\text{V}, \text{Cr}, \text{Mn}, \text{Fe}, \text{Co}$  和  $\text{Ni}$  原子的  $3d4s$  态电子取为价电子, 而对于  $\text{Ga}$  原子  $3d^{10}4^2p^1$  态电子取为价电子. 对  $\text{Co}, \text{Fe}, \text{Ni}$  和  $\text{Mn}$  原子的 Muffin-tin 半径 ( $R_{\text{MT}}$ ) 取为  $1.164 \text{ \AA}$ , 而  $\text{V}, \text{Cr}$  和  $\text{Ga}$  原子的  $R_{\text{MT}}$  取为  $1.217 \text{ \AA}$ .  $R_{\text{MT}} \times K_{\text{max}}$  取为  $\sim 8$ , 平面波展开过程中的能量截断值取为  $14 \text{ Ry}$ . 为了描写 MT 球内电荷密度与势场, 基函数球谐函数对应的最大分波数为  $l_{\text{max}} = 8$ . 采用 Monkhorst-Pack 方法案将布里渊区中的  $k$  点进行  $20 \times 20 \times 20$  的分割. 当输入与输出电荷 (自旋) 密度之差小于  $1.0 \times 10^{-5} \text{ electrons}/(\text{a. u.})^3$  时为收敛标准.

### 3. 结果与讨论

#### 3.1. 态密度与半金属特性

图 2 中给出了未含自旋-轨道耦合作用时的  $X_2Y\text{Ga}$  ( $X = \text{Co}, \text{Fe}, \text{Ni}; Y = \text{V}, \text{Cr}, \text{Mn}$ ) 合金的态密度(DOS). 对于自旋向下的态密度乘了  $-1$ , Fermi 能级( $E_F$ ) 取为 0. 从图 2 可以看出,  $\text{Fe}_2Y\text{Ga}$  ( $Y = \text{Cr}, \text{Mn}$ ) 和  $\text{Co}_2Y\text{Ga}$  ( $Y = \text{V}, \text{Cr}, \text{Mn}$ ) 等合金的自旋向下的能带在  $E_F$  附近具有能隙, 此时  $E_F$  位于能隙的

不同位置, 表明以上各体系可能具有较高的自旋极化率, 即  $P = \frac{N_{\uparrow}(E_F) - N_{\downarrow}(E_F)}{N_{\uparrow}(E_F) + N_{\downarrow}(E_F)}$ , 这里的  $N_{\uparrow}(E_F)$  和  $N_{\downarrow}(E_F)$  分别表示  $E_F$  处自旋向上和自旋向下能带的态密度. 与此相反  $\text{Ni}_2Y\text{Ga}$  ( $Y = \text{Cr}, \text{Mn}$ ) 合金具有传统铁磁体的态密度曲线, 即  $E_F$  处自旋向上和向下能带具有不同的态密度值, 而  $X_2V\text{Ga}$  ( $X = \text{Fe}, \text{Ni}$ ) 态密度图在两个自旋方向上对称表明这些合金中自旋向上的电子数与自旋向下的电子数相等, 即它们的净磁矩为零, 为顺磁性合金. 以上合金的态密度曲线与以前的相关文献报道<sup>[10,17,25,26]</sup> 相一致.

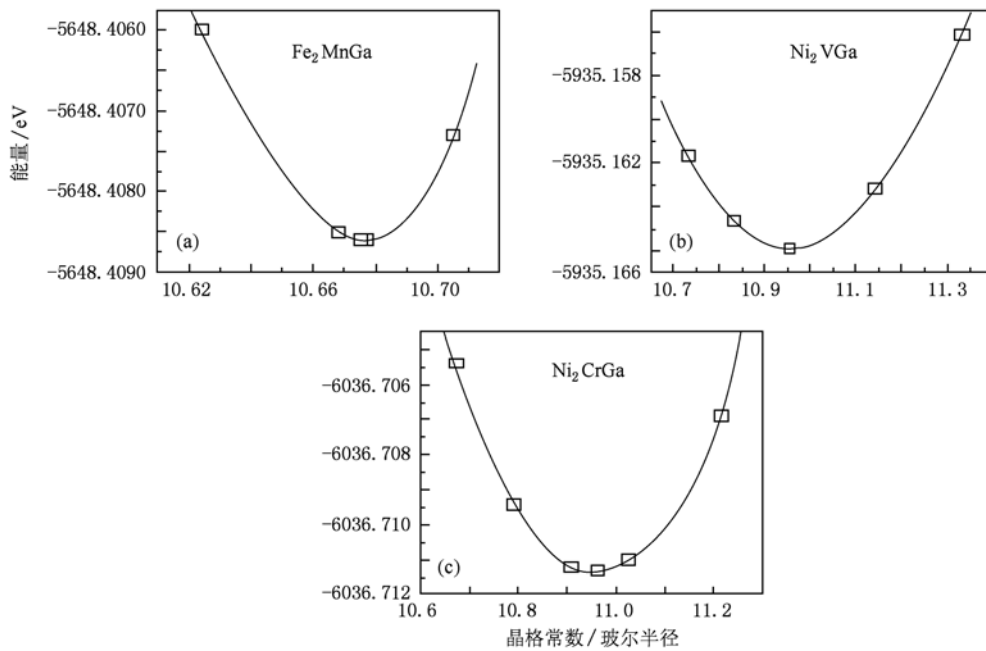


图 2 总能量随晶格常数的变化关系 (a)  $\text{Fe}_2\text{MnGa}$ ; (b)  $\text{Ni}_2V\text{Ga}$ ; (c)  $\text{Ni}_2\text{CrGa}$

首先分析  $\text{Co}_2V\text{Ga}$  合金的态密度. 由图 2(d) 可以看出, 在自旋向上的能带中费米能级处上有态密度存在, 而在自旋向下的能带中费米能级恰好位于能隙 ( $0.14 \text{ eV}$ ) 的中间, 因此  $\text{Co}_2V\text{Ga}$  合金是具有 100% 自旋极化率的半金属铁磁体. 自旋向下能带中的能隙主要产生于次近邻 Co 原子 3d 态之间的强杂化作用<sup>[25]</sup>. 在高度有序的  $L2_1$  结构中, Co 原子处于由次近邻 Co 原子形成的八面晶体场中, 此时 Co 的 3d 轨道分裂为能量较低的  $t_{2g}$  和能量较高的  $e_g$  轨道, 虽然 Co 原子之间是次近邻, 但他们之间的轨道杂化作用很大, 因而将产生成键态 ( $e_g$  和  $t_{2g}$ ) 与反键态 ( $e_u$  和  $t_{1u}$ ) 轨道; 而 V 原子处于由最近邻 Co 原子形成的简单立方晶体场中, 它的 3d 轨道分裂为能量较低的  $e_g$  和能量较高的  $t_{2g}$  轨道. 按照轨道杂化的

对称性匹配原理, 最近邻的 V 原子  $e_g$  和  $t_{2g}$  轨道只跟 Co—Co 成键态  $e_g$  和  $t_{2g}$  轨道发生杂化而形成成键态  $e_g, t_{2g}$  轨道和反键态  $e_g^*, t_{2g}^*$  轨道, 反键态  $e_u$  和  $t_{1u}$  轨道并没有与 V 的 d 轨道发生杂化, 从而次近邻 Co 原子之间相互作用所引起的  $e_u$  和  $t_{1u}$  轨道之间的分裂将决定自旋向下能带中能隙的宽度. 另外在图 2(d) 可以看到, V 原子的自旋交换劈裂很小表明 V 原子具有很小的自旋磁矩; 在自旋向上能带中费米能级以上未填满的态主要是 V 原子的 3d 轨道.

当我们用价电子数目跟 V 原子相比分别多一个和两个的 Cr, Mn 原子取代  $\text{Co}_2V\text{Ga}$  合金中的 V 原子时发现盈余的价电子主要填充自旋向上能带, 从而在自旋向上的能带中部分填充的反键态 ( $e_g^*, t_{2g}^*$ ) 向能量低处移动, 导致在  $\text{Co}_2\text{CrGa}$  中  $E_F$  位于 Cr 原

子自旋向上 3d 态的尖峰的右侧,而在  $\text{Co}_2\text{MnGa}$  中  $E_F$  位于自旋向上反键态轨道的尾部. 另一方面,因为 Cr, Mn 原子的自旋交换劈裂比 V 原子的大,自旋向下的能带稍微向能量高处移动,使得在  $\text{Co}_2Y\text{Ga}$  ( $Y = \text{Cr}, \text{Mn}$ ) 中  $E_F$  位于自旋向下能带能隙的左边缘且具有很小的态密度. 由于在  $\text{Co}_2\text{CrGa}$  的自旋向上能带中  $E_F$  位于主要来自于 Cr3d 态的尖峰的右侧,所以它具有很高的自旋极化率,88%;而  $\text{Co}_2\text{MnGa}$  在  $E_F$  处的自旋向上态密度比较小,它的自旋极化率仅为 70%,这与最近的实验结果(60%)比较相近<sup>[27]</sup>.

因为 Fe 原子的价电子数目与 Co 原子相比少一个电子,如果用 Fe 原子替换  $\text{Co}_2Y\text{Ga}$  ( $Y = \text{V}, \text{Cr}, \text{Mn}$ ) 中的 Co 原子,可以看到虽然  $\text{Fe}_2$  基 Heusler 合金的自旋向下 DOS 图与相应的  $\text{Co}_2$  基 Heusler 合金非常相似,但  $\text{Fe}_2$  基 Heusler 合金自旋向上 DOS 与相应的  $\text{Co}_2$  基 Heusler 合金的相比发生了较大的变化,最明显的是自旋向上 DOS 中出现了空的 Fe3d

轨道(既有  $t_{2g}$  态也有  $e_g$  态的贡献). 由图 2(a) — (c) 和 (d) — (f) 的比较,可以看到  $\text{Fe}_2$  基 Heusler 合金的自旋向下能带中的能隙宽度比  $\text{Co}_2$  基 Heusler 合金的相比明显缩小,表明  $\text{Fe}_2$  基 Heusler 合金中 Fe 原子之间的相互作用与  $\text{Co}_2$  基 Heusler 合金的 Co—Co 相互作用相比较弱. 此外  $\text{Fe}_2$  基 Heusler 合金中 Cr 和 Mn 的交换劈裂比  $\text{Co}_2$  基 Heusler 合金的要小,这是由于 Cr(或 Mn)原子与 Fe 原子的轨道杂化比 Co 原子的杂化程度较强导致的. 分析表明  $\text{Fe}_2\text{VGa}$  为非磁性的半金属(semimetal),从能带结构图(未给出)发现此时  $E_F$  附近存在空穴和电子型两个能带,分别位于布里渊区中心  $\Gamma$  点和布里渊区边界  $X$  点,这和以前的文献报道一致<sup>[28]</sup>.

对于  $\text{Ni}_2$  基 Heusler 合金,由图 2(g) — (i) 发现  $\text{Ni}_2Y\text{Ga}$  为顺磁性合金,而  $\text{Ni}_2Y\text{Ga}$  ( $Y = \text{Cr}, \text{Mn}$ ) 为一般铁磁性合金,这是由于 Ni 原子比 Co 原子多一个价电子,而这些价电子主要填充 Ni 的自旋向下 3d 态,导致  $E_F$  位于 Ni  $e_g$  态尖峰的右侧.

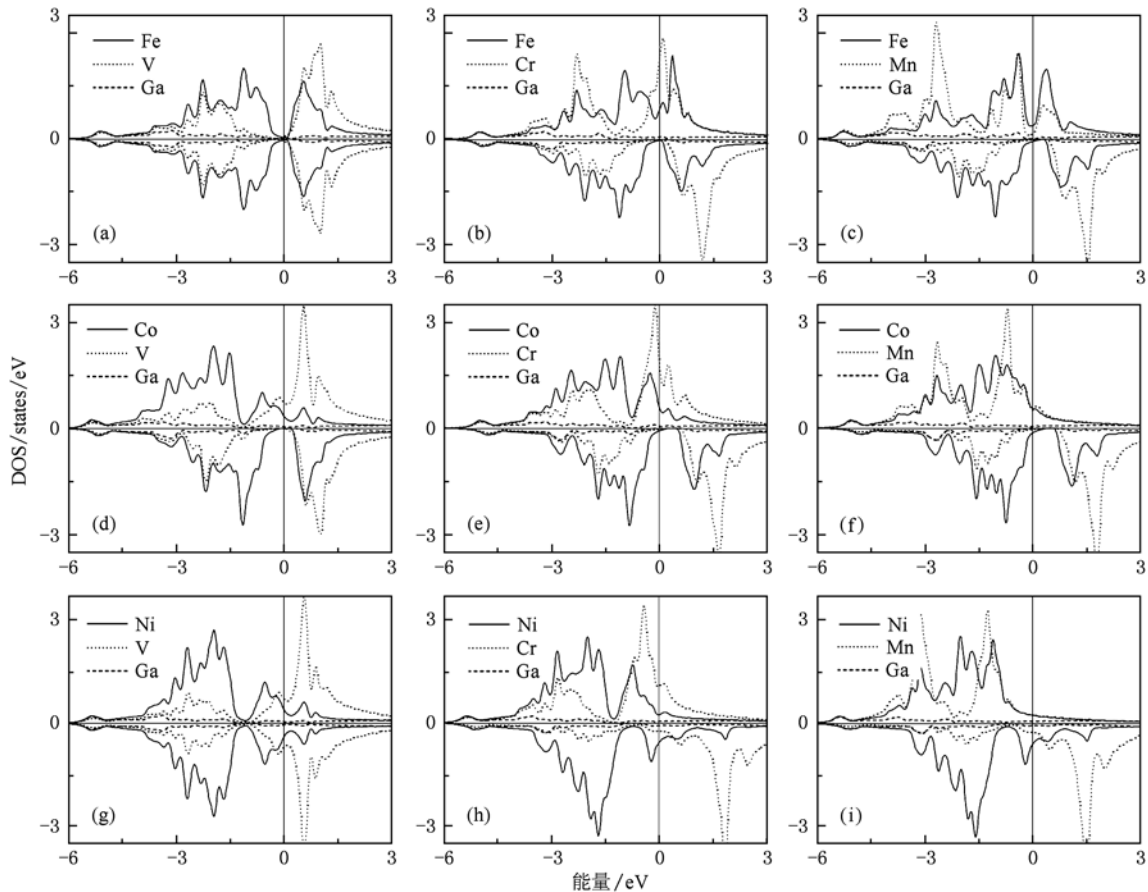


图 3 态密度 (a)  $\text{Fe}_2\text{VGa}$ ; (b)  $\text{Fe}_2\text{CrGa}$ ; (c)  $\text{Fe}_2\text{MnGa}$ ; (d)  $\text{Co}_2\text{VGa}$ ; (e)  $\text{Co}_2\text{CrGa}$ ; (f)  $\text{Co}_2\text{MnGa}$ ; (g)  $\text{Ni}_2\text{VGa}$ ; (h)  $\text{Ni}_2\text{CrGa}$ ; (i)  $\text{Ni}_2\text{MnGa}$

### 3.2. 自旋-轨道耦合作用对半金属特性的影响

为了研究自旋-轨道耦合作用对半金属特性的影响,我们对本论文所研究的合金进行了包含自旋-轨道耦合的第一性原理计算,此时把自旋-轨道耦合作用看成是一种微扰. 包含自旋-轨道耦合作用时系统的本征函数是未含自旋-轨道耦合(标量相对论)Kohn-Sham 方程的自旋向上和自旋向下本征函数的线性组合. 因此系统的按自旋分解的态密度中不仅有来自于自旋向上或自旋向下态密度的贡献,而且有来自于自旋向上和自旋向下态耦合而产生的态密度的贡献<sup>[18]</sup>.

现对具有半金属特性的  $\text{Co}_2\text{VGa}$  进行讨论. 在图 3 中给出了考虑自旋-轨道耦合作用下  $\text{Co}_2\text{VGa}$  在  $E_F$  附近的态密度(实线),虚线表示未含自旋-轨道耦合作用时的态密度. 最显著的特点是在自旋向下能带的能隙中出现了由自旋-轨道耦合引起的微小的态密度,数量级为  $1.0 \times 10^{-3}$ ,而未考虑自旋-轨道耦合作用时能隙中的态密度为零. 由于  $E_F$  处存在着这种由自旋-轨道耦合作用所引起的微小的态密度, $\text{Co}_2\text{VGa}$  的自旋极化率由 100% 降低为 99%. Mavroupos 等<sup>[18]</sup>通过 screened Korringa-Kohn-Rostoker Green function 方法研究了自旋-轨道耦合作用对半金属能隙的影响. 研究发现自旋-轨道耦合作用使  $E_F$  处半金属铁磁体  $\text{NiMnSb}$  的自旋极化率为 99%,而含重元素的半金属铁磁体  $\text{MnBi}$  的自旋极化率显著降低,仅为 77%. 对于闪锌矿结构的  $\text{CaBi}$ ,第一性原理研究也发现当不考虑自旋-轨道耦合作用时该体系表现为半金属特性,而考虑了自旋-轨道耦合作用后体系的半金属特性消失<sup>[29]</sup>. 从以上的研究

结果,我们看到对于含重元素的体系自旋-轨道耦合作用对自旋极化率的影响不可忽略,能带计算中必须考虑自旋-轨道耦合作用,而对于  $\text{Co}_2\text{VGa}$  和  $X_2\text{CrGa}$  ( $X = \text{Co}, \text{Fe}$ ) 等合金,因为它们并未含有重元素所以自旋-轨道耦合作用对其能带结构的影响很小,所以体系依然具有很高的自旋极化率.

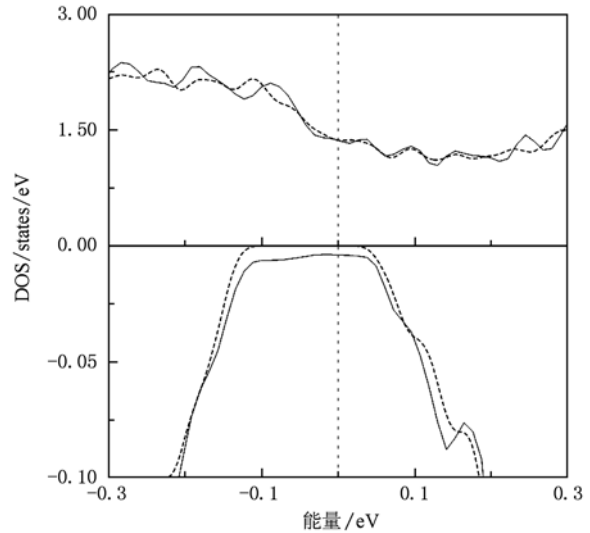


图 4  $\text{Co}_2\text{VGa}$  的态密度,实线和虚线分别表示包含和未包含自旋-轨道耦合作用时的态密度

### 3.3. 自旋磁矩与轨道磁矩

在表 1, 给出了 full-Heusler  $X_2Y\text{Ga}$  ( $X = \text{Co}, \text{Fe}, \text{Ni}; Y = \text{V}, \text{Cr}, \text{Mn}$ ) 合金的晶格常数、各原子的自旋磁矩、总磁矩/f. u. 和自旋极化率( $P$ ). 括号内数据表示包含自旋-轨道耦合作用时相应原子的自旋磁矩/轨道磁矩、总磁矩和自旋极化率.

表 1 Full-Heusler  $X_2Y\text{Ga}$  ( $X = \text{Co}, \text{Fe}, \text{Ni}; Y = \text{V}, \text{Cr}, \text{Mn}$ ) 合金的晶格常数、各原子的自旋磁矩、总磁矩/f. u. 和自旋极化率( $P$ )

合金	$a/\text{\AA}$	$m_x$	$m_y$	Ga	$M_t$	$P/\%$
$\text{Fe}_2\text{VGa}$	5.782 <sup>[30]</sup>	0.000(0.000/0.000)	0.000(0.000/0.000)	0.000	0.000(0.000)	0
$\text{Fe}_2\text{CrGa}$	5.824 <sup>[30]</sup>	-0.255(-0.256/-0.018)	1.461(1.460/-0.010)	-0.008	1.008(1.005)	97(96)
$\text{Fe}_2\text{MnGa}$	5.685	-0.208(-0.205/-0.011)	2.424(2.420/0.009)	-0.008	2.041(2.043)	68
$\text{Co}_2\text{VGa}$	5.779 <sup>[30]</sup>	0.948(0.946/0.023)	0.187(0.187/0.012)	-0.016	2.000(1.995)	100(99)
$\text{Co}_2\text{CrGa}$	5.805 <sup>[30]</sup>	0.763(0.761/0.015)	1.641(1.642/0.005)	-0.060	3.050(3.048)	88(88)
$\text{Co}_2\text{MnGa}$	5.767 <sup>[30]</sup>	0.765(0.763/0.009)	2.759(2.761/0.018)	-0.072	4.136(4.134)	70
$\text{Ni}_2\text{VGa}$	5.797	0.000(0.000/0.000)	0.000(0.000/0.000)	0.000	0.000(0.000)	0
$\text{Ni}_2\text{CrGa}$	5.801	0.294(0.294/0.015)	2.565(2.562/-0.016)	-0.041	3.214(3.213)	18
$\text{Ni}_2\text{MnGa}$	5.835 <sup>[30]</sup>	0.364(0.363/0.024)	3.385(3.381/0.016)	-0.043	4.131(4.126)	-23

从表中可以看出,  $\text{Co}_2$  和  $\text{Ni}_2$  为基的 full-Heusler 合金中  $X$  原子 (Co 或 Ni) 的自旋磁矩与  $Y$  原子的平行, 而  $\text{Fe}_2Y\text{Ga}$  ( $Y = \text{Cr}, \text{Mn}$ ) 中 Fe 与  $Y$  原子的自旋磁矩反平行. 未含自旋-轨道耦合作用时  $\text{Co}_2V\text{Ga}$  合金的总磁矩为整数, 即  $2\mu_B$ , 符合 Slater-Pauling 规则 (总磁矩  $M_t = Z_t - 24$ , 其中  $Z_t$  为价电子总数); 而考虑自旋-轨道耦合作用之后总磁矩稍微偏离了整数, 表明半金属特性被破坏, 这与态密度的分析相一致. 从计算结果可以看到自旋-轨道耦合作用下 Cr, Mn, Fe, Co 和 Ni 原子的轨道磁矩与它们的自旋磁矩相比小得很多, 其数量级仅为  $0.01 \mu_B$ , 与前人的计算结果基本一致<sup>[31,32]</sup>.

#### 4. 结 论

运用全势线性缀加平面波方法结合广义梯度近似, 研究了 full-Heusler 合金  $X_2Y\text{Ga}$  ( $X = \text{Co}, \text{Fe},$

Ni;  $Y = \text{V}, \text{Cr}, \text{Mn}$ ) 的电子结构, 磁性和半金属特性. 从总能量随晶格常数的变化关系得到了  $\text{Fe}_2\text{MnGa}$ ,  $\text{Ni}_2V\text{Ga}$  和  $\text{Ni}_2\text{CrGa}$  合金的最优化晶格常数, 它们分别为  $5.685, 5.797$  和  $5.801 \text{ \AA}$ . 计算得到的  $\text{Co}_2V\text{Ga}$  合金的总自旋磁矩为整数, 即  $2\mu_B$ , 满足 Slater-Pauling 规则; 从它的态密度图中也发现  $E_F$  在自旋向下态的能隙之中, 因此该合金为半金属铁磁体, 具有 100% 自旋极化率;  $\text{Co}_2\text{CrGa}$  和  $\text{Fe}_2\text{CrGa}$  的总自旋磁矩分别为  $3.050$  和  $1.008\mu_B$ , 并  $E_F$  位于此两种合金自旋向下态的能隙的边缘, 它们具有很高的自旋极化率 (分别为 88% 和 97%); 而自旋-轨道耦合作用使体系的自旋极化率降低 1% 左右.  $\text{Fe}_2\text{MnGa}$ ,  $\text{Co}_2\text{MnGa}$ ,  $\text{Ni}_2\text{CrGa}$  和  $\text{Ni}_2\text{MnGa}$  合金为一般铁磁体, 它们的总自旋磁矩分别为  $2.041, 4.136, 3.214$  和  $4.131 \mu_B$ ; 而  $\text{Fe}_2V\text{Ga}$  和  $\text{Ni}_2V\text{Ga}$  合金的总自旋磁矩为 0, 它们为顺磁体.

- [1] Ohno Y, Young D K, Beschoten B, Matsukura F, Ohno H, Awschalom D D 1999 *Nature* **402** 790
- [2] Fiederling R, Keim M, Reuscher G, Ossau W, Schmidt G, Waag A, Molenkamp L W 1999 *Nature* **402** 787
- [3] Soulen Jr R J, Byers J M, Osofsky M S, Nadgorny B, Ambrose T, Cheng S F, Broussard P R, Tanaka C T, Nowak J, Moodera J S, Barry A, Coey J M D 1998 *Science* **282** 85
- [4] de Groot R A, Mueller F M, van Engen P G, Buschow K H J 1983 *Phys. Rev. Lett.* **50** 2024
- [5] Xie W H, Xu Y Q, Liu B G, Pettifor D G 2003 *Phys. Rev. Lett.* **91** 037204
- [6] Katsnelson M I, Irkhin V Yu, Chioncel L, Lichtenstein A I, de Groot R A 2008 *Rev. Mod. Phys.* **B 80** 315
- [7] Park J H, Vescovo E, Kim H J, Kwon C, Ramesh R, Venkatesan T 1998 *Nature* **392** 794
- [8] Ji Y, Strijkers G J, Yang F Y, Chien C L, Byers J M, Anguelouch A, Xiao G, Gupta A 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 5585
- [9] Akinaga H, Manago T, Shirai M 2000 *Jpn. J. Appl. Phys.* **39** L1118
- [10] Galanakis I, Dederichs P H and Papanikolaou N 2002 *Phys. Rev. B* **66** 174429
- [11] Wurmehl S, Fecher G H, Kandpal H C, Ksenofontov V, Felser C, Lin H J, Morais J 2005 *Phys. Rev. B* **72** 184434
- [12] Kandpal H C, Fecher G H, Felser C 2006 *Phys. Rev. B* **73** 094422
- [13] Li G N, Jin Y J 2009 *Chin. Phys. Lett.* **26** 107101
- [14] Li G N, Jin Y J, Lee J I 2010 *Chin. Phys. B* **19** 097102
- [15] Ma L, Zhu Z Y, Li M, Yu S D, Cui Q L, Zhou Q, Chen J L, Wu G H 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 3479 (in Chinese) [马 丽、朱永志、李 敏、于世丹、崔启良、周 强、陈京兰、吴光恒 2009 物理学报 **58** 3479]
- [16] Luo L J, Zhong C G, Quan H R, Tan Z Z, Jiang Q, Jiang X F 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 8037 (in Chinese) [罗礼进、仲崇贵、全宏瑞、谭志中、蒋 青、江学范 2010 物理学报 **59** 8037]
- [17] Umetsu R Y, Kobayashi K, Kainuma R, Fujita A, Fukamichi K, Ishida K, Sakuma A 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 2011
- [18] Mavropoulos Ph, Sato K, Zeller R, Dederichs P H, Popescu V, Ebert H 2004 *Phys. Rev. B* **69** 054424
- [19] Zayak A T, Entel P, Rabe K M, Adeagbo W A, Acet M 2005 *Phys. Rev. B* **72** 054113
- [20] Gillösen M 2009 *Ph. D. Thesis* (Aachen: Rwth Aachen University) (in German)
- [21] Wimmer E, Krakauer H, Weinert M and Freeman A J 1981 *Phys. Rev. B* **24** 864  
Weinert M, Wimmer E, Freeman A J 1983 *Phys. Rev. B* **26** 4571
- [22] <http://www.flapw.de>
- [23] Perdew J P, Burke K, Ernzerhof M 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 3865; 1997 *ibid.* **78** 1396(E)
- [24] Li C, Freeman A J, Jansen H J F, Fu C L 1990 *Phys. Rev. B* **42** 5433
- [25] Galanakis I, Dederichs P H, Papanikolaou N 2002 *Phys. Rev. B* **66** 134428

- Galanakis I, Mavropoulos P, Dederichs P H 2006 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **39** 765
- [26] Kandpal H C, Fecher G H, Felser C 2007 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **40** 1507
- [27] Varaprasad B S D Ch S, Rajanikanth A, Takahashi Y K, Hono K 2010 *Appl. Phys. Express* **3** 023002
- [28] Bansil A, Kaprzyk S, Mijnaerends P E, Toba J 1999 *Phys. Rev. B* **60** 13396
- [29] Li Y, Yu J J 2008 *Phys. Rev. B* **78** 165203
- [30] Buschow K H J, van Engen P G, Jongebreur R 1983 *J. Magn. Magn. Mater.* **38** 1
- [31] Sargolzaei M, Richter M, Koepernik K, Opahle I, Eschrig H, Chaplygin I 2006 *Phys. Rev. B* **74** 224410
- [32] Galanakis I 2005 *Phys. Rev. B* **71** 012413

## First-principles study on the electronic structures, magnetism, and half-metallicity of full-Heusler $X_2 YGa$ ( $X = Co, Fe, Ni$ ; $Y = V, Cr, Mn$ ) alloys\*

Liu Xin-Hao Lin Jing-Bo Liu Yan-Hui Jin Ying-Jiu<sup>†</sup>

(Department of physics, College of Science, Yanbian University, Yanji 133002, China)

(Received 6 January 2011; revised manuscript received 28 January 2011)

### Abstract

Using the full-potential linearized augmented plane wave method within the generalized gradient approximation, we investigate the electronic structures, magnetisms and half-metallicities of the full-Heusler  $X_2 YGa$  ( $X = Co, Fe, Ni$ ;  $Y = V, Cr, Mn$ ) alloys. It is found that the spin-orbit coupling has little effect on the electronic structures, magnetisms and half-metallicities of the full-Heusler  $X_2 YGa$  ( $X = Co, Fe, Ni$ ;  $Y = V, Cr, Mn$ ) alloys. Without spin-orbit coupling the  $Co_2 VGa$ ,  $Co_2 CrGa$ , and  $Fe_2 CrGa$  alloys are half-metallic or nearly half-metallic ferromagnets. With including the spin-orbit coupling, the spin-polarizations are lowered by about 1%, thus they still remain high spin-polarizations. The  $Fe_2 MnGa$ ,  $Co_2 MnGa$ ,  $Ni_2 CrGa$ , and  $Ni_2 MnGa$  alloys are conventional ferromagnets, whereas the  $Fe_2 VGa$  and  $Ni_2 VGa$  alloys are paramagnets.

**Keywords:** half-metallicity, spin-orbit coupling, Heusler alloys, full-potential linearized augmented plane wave method (FLAPW)

**PACS:** 71.20.-b, 75.50.-y, 75.50.Cc

\* Project supported by the Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10664005, 10864008, 11064015) and the SRF for ROCS, SEM (Grant No. [2007]1108).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: jinyingjiu@ybu.edu.cn