

Co₅₀Fe_{25-x}Mn_xSi₂₅ 系列合金的结构、 磁性和半金属性研究*

赵晶晶¹⁾²⁾ 祁欣^{1)†} 刘恩克²⁾ 朱伟²⁾ 钱金凤²⁾ 李贵江²⁾ 王文洪²⁾ 吴光恒²⁾

1) (北京化工大学理学院, 北京 100029)

2) (中国科学院物理研究所, 磁学国家重点实验室, 北京 100190)

(2010年10月13日收到; 2010年12月2日收到修改稿)

利用实验和能带计算相结合的方法, 对介于两种预期的半金属 Heusler 合金 Co₂FeSi 和 Co₂MnSi 间的四元合金 Co₅₀Fe_{25-x}Mn_xSi₂₅ 的晶体结构、磁性、能带结构和半金属性进行了研究. 采用考虑库仑相互作用的广义梯度近似方法计算了系列合金的能带结构, 通过与实验结果进行对比, 揭示了成分变化过程中合金分子磁矩及原子磁矩的变化规律. 研究发现, 随着 Mn 含量的变化, Co₅₀Fe_{25-x}Mn_xSi₂₅ 合金的保持了高有序的 L2₁ 结构, 由于 Co 和 Mn 原子磁矩随着 Mn 替代量的增加而降低, 系列四元合金的分子磁矩呈线性下降趋势. 在整个 Mn 替代 Fe 的成分范围内, 由于 Co, Mn 和 Fe 之间的电子杂化作用, 材料始终保持 100% 的自旋极化率, 呈半金属态. 费密能级从 Co₂FeSi 半金属能隙的导带底下移至 Co₂MnSi 能隙的中间. 能隙宽度在中间合金处出现最佳值, 这表明四元合金有可能成为具有更高自旋极化率和更强抗干扰能力的自旋电子学材料.

关键词: 磁性, 半金属, Heusler 合金

PACS: 71.20.Be, 71.20.Lp, 75.50.Cc

1. 引言

半金属 (half-metal) 材料是磁电子学领域倍受关注的新型磁性材料. 自旋向上导电电子在费密面处呈现出金属性, 而自旋向下的电子在费密面处态密度为零, 因而传导电子的自旋极化率为 100%, 因此, 半金属材料在磁电子器件及自旋注入半导体器件等方面具有潜在的应用前景. 1983 年, Degroot 等^[1] 在对半 Heusler 合金 NiMnSb 的电子结构进行研究时提出了半金属概念. 此后, 人们开展了很多实验和计算工作, 在 Heusler 合金中预期了相当多的半金属材料系列. Co 基 Heusler 合金是其中非常重要的一族.

Wurmehl 等^[2,3] 的计算指出, L2₁ 结构的 Co₂FeSi 在高度有序时是半金属, 而且在 Heusler 合金中具有最高的分子磁矩 (6μ_B) 和最高的居里温度 (T_C = 1100 ± 20 K). 但是, 采用 KKR-CPA-LDA 的方法对 Co₂FeSi 进行的计算时^[2], 计算结果与实验

值并不相符. 2007 年, Nakatani 等人^[4] 报道了用 GGA + U 的方法对 Co₂FeSi 进行计算, 得到的饱和磁矩值与实验值 6.0μ_B 一致, 并从结果中得知 Co₂FeSi 具有半金属性. 但费米能级处于带隙的导带底, 少量的原子混乱占位^[5] 或轻微热扰动即可导致费密能级处带隙的消失. Co₂MnSi 是最早被发现的具有半金属能带结构的材料之一^[6], 文献^[7,8] 对 Co₂MnSi 的电子结构进行了详细的计算和研究, 认为费米能级处的能隙是由 Co, Mn 原子 3d 电子的杂化作用造成的. 但是, 在进一步的实验中^[9,10,11] 却没有在实际的 Co₂MnSi 合金中测量到接近 100% 的预期高自旋极化率, 研究认为这主要是由于 Co₂MnSi 的半金属性与原子占位关系更为密切, 较少量的反占位原子就可能对费米能级处的态密度造成显著影响并导致自旋极化率迅速降低. 此外, 与 Co₂FeSi 相比, Co₂MnSi 的居里温度较低. 因此, 是否可以采用一个中间的四元 CoMnFeSi 系统, 获得实际的高自旋极化率成为了一个有意义的问题. 目前这方面系

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2010CB833102) 和北京市教育委员会学科与研究生教育建设项目专项资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: qixin@mail.buct.edu.cn

统的工作尚未见到详细报道.

本文的研究对象是介于 Co_2MnSi 和 Co_2FeSi 间的四元 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25-x}\text{Mn}_x\text{Si}_{25}$ 合金系列, 合成一系列四元合金样品, 实验测量它们的晶体结构和磁性. 采用基于密度泛函理论 (DFT) 的广义梯度近似 (GGA) 同时考虑电子间的库伦相互作用 (GGA + U) 的方法^[4,12,13], 进行了第一性原理计算. 通过实验和计算结果的比较, 研究随着成分变化四元合金中晶体结构、磁性、分子磁矩和原子磁矩的变化, 以及半金属性的变化. 研究发现, 随着 Mn 取代 Fe 的成分变化, $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25-x}\text{Mn}_x\text{Si}_{25}$ 系列合金始终保持 $L2_1$ 结构, 分子磁矩从整数 $6.0\mu_B$ 线性下降到整数 $5.0\mu_B$. 能级在整个成分范围中, 合金都具有半金属性, 费米面和能隙的相对位置存在一定的变化, 中间成分的下旋能隙出现宽化.

2. 实验与计算方法

$\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25-x}\text{Mn}_x\text{Si}_{25}$ 系列多晶样品采用氩气保护的电弧熔炼方法制备, 使用的金属纯度均大于 99.9%. 每个样品熔炼四次以保证成分均匀. 熔炼后的合金样品在氩气保护的密封石英管中, 在 1000°C 进行均匀化退火 48 h, 并在 800°C 下有序化退火 24 h 后炉冷, 以获得高度原子有序. 我们用 Cu 靶 X 衍射仪分析样品的晶体结构, 用超导量子干涉器 (SQUID) 在 5 K 温度下测量样品的饱和磁化强度, 计算分子磁矩. 用 DSC-TG 量热仪 (Netzch 459) 测试样品的有序—无序相变及居里温度. 电子结构的计算采用基于密度泛函理论的广义梯度近似 (GGA) 方法, 计及电子间的库伦相互作用 (GGA + U), 这里 $U_{\text{Co}} = 3.0 \text{ eV}$, $U_{\text{Fe}} = 2.5 \text{ eV}$. 在 k 空间中, 平面波截止能选取为 400 eV, 选择 k 网格点为 $8 \times 8 \times 8$, 以保证体系能量和构型的收敛.

3. 结果与讨论

Co_2FeSi 是典型的 Heusler 合金, 具有 $L2_1$ 结构, 空间群为 $Fm\bar{3}m$, 两个 Co 原子分别占据 $A(0, 0, 0)$ 和 $C(0.5, 0.5, 0.5)$ 位; Fe 原子占据 $B(0.25, 0.25, 0.25)$ 位, 而 Si 原子将占据 $D(0.75, 0.75, 0.75)$ 位. 与 Co_2FeSi 类似, Co_2MnSi 也是 $L2_1$ 结构, 两个 Co 原子和 Si 原子占据同样的晶位, Mn 原子占据 $B(0.25, 0.25, 0.25)$ 位^[13]. 为了方便, 四元合金

CoFeMnSi 的分子式常采用 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25-x}\text{Mn}_x\text{Si}_{25}$ 的形式, 系列样品就是用 Mn 原子逐渐替代 B 位的 Fe 原子, Mn 含量 $x = 0-25$.

利用 X 射线衍射 (XRD) 技术通常能够准确地确定合成的 Heusler 合金的结构, 判断样品中原子的占位有序程度. 一般认为, 在高有序的 $L2_1$ 结构的 Heusler 合金中的 XRD 图中, 将出现相当明显的 (111) 和 (200) 超晶格衍射峰^[15]. 图 1 (a) 示出 Co_2FeSi , Co_2MnSi 和一个中间合金的 XRD 图. 可以看到在本工作的 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25-x}\text{Mn}_x\text{Si}_{25}$ 系列合金中, 随着 Mn 含量的增加, 衍射峰的相对位置发生移动, 但合金结构没有发生变化, 也没有其他杂相的衍射峰出现. 这表明在用 Mn 逐渐替代 Fe 的成分变化中样品是纯面心立方的 $L2_1$ 相. 图 1 中的插图是各自样品 (111) 和 (200) 超晶格峰, 表明合金都是 $L2_1$ 结构.

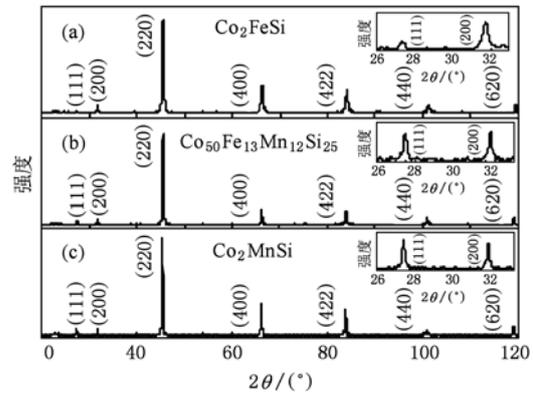


图 1 合金样品的粉末 XRD 图 (a) Co_2FeSi ; (b) $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{13}\text{Mn}_{12}\text{Si}_{25}$; (c) Co_2MnSi

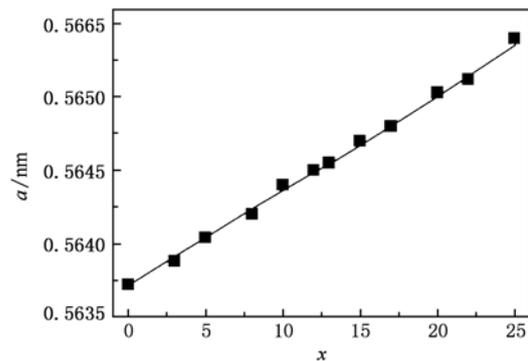


图 2 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25-x}\text{Mn}_x\text{Si}_{25}$ 的晶格常数随 Mn 含量的变化

将衍射峰指标化, 可以得到成分变化过程中晶格常数的变化. 成分两端样品 Co_2FeSi 和 Co_2MnSi 的晶格常数分别为 0.5637 和 0.5654 nm, Co_2MnSi

的晶格常数大于 Co_2FeSi . 这是因为 Mn 原子的半径大于 Fe 原子的半径. 图 2 示出晶格常数随成分变化关系. 将实验点进行线性拟合, 其晶格常数用在此后的能带计算中.

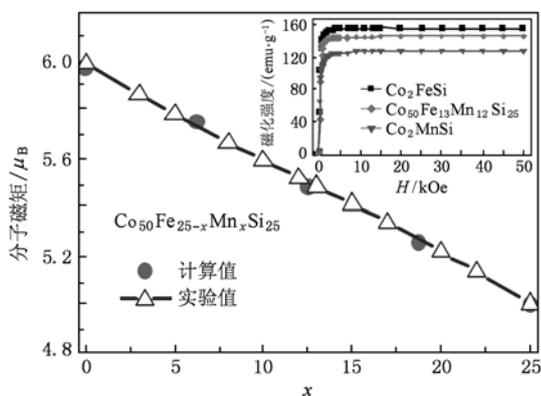


图 3 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25-x}\text{Mn}_x\text{Si}_{25}$ 系列样品的分子磁矩随 Mn 含量 x 的变化 ($1 \text{ Oe} = 79.5775 \text{ A/m}$)

图 3 示出实验测量的 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25-x}\text{Mn}_x\text{Si}_{25}$ 系列样品的分子磁矩 (M_1) 随成分的变化, 能带计算的结果也画在图中. M_1 的实验值是根据 5 K 温度下测量的磁化曲线 (见图 3 插图) 计算所得. 实验值与理论值符合得很好, 说明计算结果是可信的. 可以看到, 两个端点成分 Co_2FeSi 和 Co_2MnSi 的分子磁矩分别为两个接近整数的数值, 5.92 和 $5.0 \mu_B$, 与文献报道的实验值一致^[2, 3, 4, 12]. 随着 Mn 含量的增加, Co_{50}

$\text{Fe}_{25-x}\text{Mn}_x\text{Si}_{25}$ 的分子磁矩线性下降了大约 $1\mu_B$, 并且与 Slater-Pauling 曲线 $M_1 = Z_1 - 24$ 相符合, 其中 Z_1 为平均价电子数. 随着 Mn 含量的增加 ($x = 0-25$), $\text{Co}_2\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Si}$ 合金的 Z_1 线性地从 30 降到 29, 因而 M_1 也是线性变化的. 由于 Co, Mn 原子 3d 电子的杂化作用, 使得费米能级以下形成 12 个态 ($3 \times t_{1u}, 3 \times t_{2g}, 2 \times e_g, 1 \times s, 3 \times p$), 根据后面的计算, 费米能级在自旋向下态密度的带隙中, 电子将费米能级下的 12 个态全部填满, 剩下的对磁性有贡献的电子将填充到自旋向上的态中, 因而符合 Slater-Pauling 法则^[7], 这是它们成为半金属的一个重要特征.

表 1 给出了计算得到的 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25-x}\text{Mn}_x\text{Si}_{25}$ 合金的 M_1 和各原子磁矩随 Mn 含量增加的变化. 随着 Mn 含量 ($x = 0-25$) 的增加, $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25-x}\text{Mn}_x\text{Si}_{25}$ 的 M_1 线性地从 $5.92\mu_B$ (约为 $6.0\mu_B$) 下降到 $5.0\mu_B$. 在 Mn 含量的变化中所有合金的磁结构都是铁磁性的. 从计算结果可以看出, M_1 的降低主要来自于 Co 原子的磁矩 (M_{Co}) 变化. 在 Mn 原子替代 Fe 原子的过程中, M_{Co} 逐渐减小, 从 $1.36\mu_B$ 降到了 $0.88\mu_B$, 下降了 35.3%; Fe 原子的磁矩 (M_{Fe}) 从 $3.2\mu_B$ 降到了 $3.14\mu_B$, 下降了 1.9%. 在 Mn 原子取代 Fe 原子的开始阶段, Mn 原子磁矩 (M_{Mn}) 基本保持 $4.0\mu_B$ 不变. 值得注意的是, 在 Mn 高含量取代 Fe 时, M_{Mn} 出现一个较快的降低, 变为 $3.38\mu_B$, 在这个高 Mn 成分范围内, 成为 M_1 降低的主要原因.

表 1 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25-x}\text{Mn}_x\text{Si}_{25}$ 系列合金分子磁矩及 Co, Fe, Mn 原子磁矩的计算值

x	M_1 (计算值)/ μ_B	M_{Co} (计算值)/ μ_B	M_{Mn} (计算值)/ μ_B	M_{Fe} (计算值)/ μ_B	E_g/eV
0.00	5.92	1.36	—	3.22	0.91
6.25	5.75	1.24	4.00	3.18	0.96
12.5	5.50	1.06	3.94	3.16	0.97
18.75	5.25	0.86	3.92	3.14	0.99
25.00	5.00	0.88	3.38	—	0.62

为了进一步分析 M_{Mn} 在合金中的变化规律, 我们合成了另外两个在 Co_2FeSi 中加入 Mn 的样品: $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25}\text{Mn}_5\text{Si}_{20}$ 和 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{20}\text{Mn}_{10}\text{Si}_{20}$. 其中 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25}\text{Mn}_5\text{Si}_{20}$ 样品的成分用意为仅以 5% 的少量 Mn 取代非磁性元素 Si, 而保持 Co 和 Fe 磁性元素的含量不变. 这一成分的选择基于前面的一个实验结果: 这种在高 Fe, 低 Mn 含量的取代, 各个磁性元素, 尤其是 Mn 原子的磁矩, 基本上没有改变. 这样, 就可以从合金的分子磁矩变化, 推算出加入 Mn 后的磁矩

净增加^[16]. 而 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{20}\text{Mn}_{10}\text{Si}_{20}$ 样品中的 Mn 含量是 10%, 取代方式为在保持前一个的 5% Mn 取代 Si 不变的前提下, 再用 5% 的 Mn 取代 Fe. 在这种取代中, 磁性原子 Fe 的数量有所减少. 实验测得 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25}\text{Mn}_5\text{Si}_{20}$ 的磁矩是 $6.72\mu_B$, 相比 Co_2FeSi 的磁矩 ($5.92\mu_B$), $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25}\text{Mn}_5\text{Si}_{20}$ 中 5 个 Mn 原子取代无磁性的 Si 原子, 总磁矩增加了 $0.76\mu_B$. 由此计算可知, 每个加入的 M_{Mn} 为 $4.00\mu_B$, 说明 M_{Mn} 基本保持不变. 这与前面实验和计算所得出的结果是一致的. 而

$\text{Co}_{50}\text{Fe}_{20}\text{Mn}_{10}\text{Si}_{20}$ 与 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25}\text{Mn}_5\text{Si}_{20}$ 相比,根据计算,此时 M_{Mn} 为 $3.90\mu_{\text{B}}$,这高于 M_{Fe} (大约为 $3.20\mu_{\text{B}}$),结果本应是 M_{I} 有进一步的增加.但实验测得的磁矩是 $6.24\mu_{\text{B}}$,反而低于 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{20}\text{Mn}_{10}\text{Si}_{20}$ 的 $0.48\mu_{\text{B}}$.这应该归咎于 M_{Co} 的较大变化.这一实验结果进一步证明了我们计算结果的正确性.

在 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25-x}\text{Mn}_x\text{Si}_{25}$ 系列合金中,由于 Co 原子和 Mn 原子强相互交换作用,使得 Mn 原子在取代过程中始终呈铁磁状态. M_{Mn} 在低 Mn 含量成分保持不变的特性,有可能是源于 Mn 原子 3d 电子的局域性^[16].而在高 Mn 含量范围内, M_{Mn} 较快降低,是由于 Co-Mn 原子 3d 电子的轨道杂化作用增强,这一局域特性被部分破坏.这一点也见于下面的能带结构讨论.

通过计算得到的 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25-x}\text{Mn}_x\text{Si}_{25}$ 合金的能态密度如图 5 所示, -8 eV 以下主要是能量较低的 Si 的 s 电子,它们受 3d 电子的影响很小,因此并没有在图 5 中给出.在 -7 eV 附近主要是 Si 的 s 电子.在 -6 eV 到 $+2\text{ eV}$ 之间的态密度峰主要来自 3d 电子的贡献,这与 Co-Fe 和 Co-Mn 原子之间的强的共价杂化作用有关.在立方晶场的作用下,Fe (Mn) 原子的自旋态密度发生 $e_g - t_{2g}$ 能级劈裂,形成了低能的成键态峰和高能的反键态峰,之间由态密度较低的区域隔开^[13].Co 原子位上局域着很高的成键态密度并位于费米能级以下,无论是向上向下自旋都是如此,而在费米能级以上,Co 原子的反成键态密度相对较小,能量比 Fe 原子的反成键峰也要低,这意味着 Co 原子的交换劈裂被削弱,将导致 Co 原子磁矩的降低.

在 Fe 的自旋向上的态密度中,成键峰和反键峰均位于费米能级以下,但在自旋向下的态密度中,由于交换劈裂的作用,反键峰被移到了费米能级以上的区域,这将使 Fe 具有一个比较大的原子磁矩. Mn 的态密度的情况与 Fe 的类似,具有较大的磁矩.

Co_2FeSi 的态密度如图 4(a) 中所示,在自旋向上的部分中, -6 eV 附近 Co 原子 3d 电子和 Fe 原子 3d 电子有很强的轨道杂化作用,在自旋向下的部分中 Co 原子 3d 电子和 Fe 原子 3d 电子在 -3 eV 附近有强的轨道杂化作用, Si 原子 2p 电子和 Co, Fe 原子的 3d 电子的发生 p-d 杂化,填充了 -6 eV 以下的态. Co, Fe 原子 3d 电子的轨道杂化作用导致了带隙的产生, Co_2FeSi 的带隙宽度 (E_g) 为 0.91 eV ,如表 1 所示.图 4(b) 所示的是 $\text{Co}_2\text{Fe}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}\text{Si}$ 的态密度,自旋向上部分, -5 eV 至 -1.5 eV 的能量范围内发生了 Co, Fe 原子 3d 电子和 Co, Mn 原子 3d 电子的轨道杂化作用,使能带展宽.自旋向下的部分,由于 Co, Mn 原子 3d 电子的轨道杂化作用使 Co 的反键态峰向高能态移动.同时,影响了 Co, Fe 的原子 3d 电子的轨道杂化,使 Fe 的反键态峰也向高能态移动,这样就使带隙变宽,为 0.97 eV . Co_2MnSi 的态密度如图 4(c) 所示,自旋向上部分,在 -1 eV 附近, -3.5 eV 附近, Co, Mn 原子 3d 电子的轨道杂化作用很强, -4 eV 以下的能量范围内 Co 原子 3d 电子和 Si 原子的 2p 电子发生了 p-d 轨道杂化.费米能级处的带隙主要是由 Co, Mn 原子 3d 电子的轨道杂化作用造成的,因此 E_g 出现了比较明显的降低,为 0.63 eV .

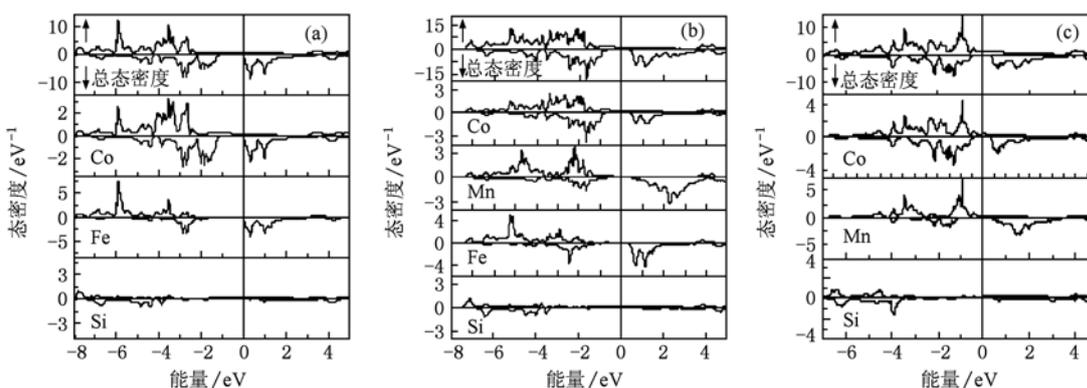


图 4 计算得到的 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25-x}\text{Mn}_x\text{Si}_{25}$ 合金的能态密度 (a) Co_2FeSi ; (b) $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{13}\text{Mn}_{12}\text{Si}_{25}$; (c) Co_2MnSi

图 5 给出的是 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25-x}\text{Mn}_x\text{Si}_{25}$ 合金的总态密度随 Mn 含量 x 的变化.随着 Mn 原子含量的增加, $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25-x}\text{Mn}_x\text{Si}_{25}$ 的能态密度发生了一定变化.

但是在自旋向下费米能级处都形成一个能隙,自旋极化率都为 100%,这就使得 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25-x}\text{Mn}_x\text{Si}_{25}$ 合金在 Mn 成分变化的过程中始终保持半金属性不变.

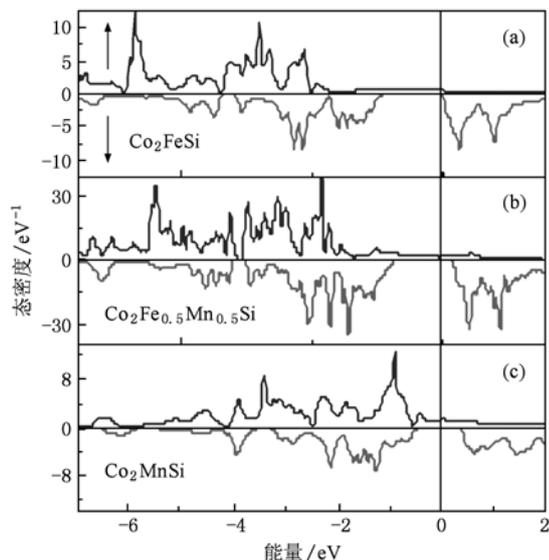


图5 计算得到的 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25-x}\text{Mn}_x\text{Si}_{25}$ 合金的态密度 (a) Co_2FeSi ; (b) $\text{Co}_2\text{Fe}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}\text{Si}$; (c) Co_2MnSi

Co_2FeSi 的费米能级处于导带底,随着 Mn 含量的增加,费米能级从导带底下移至能隙的中间.从表 1 也可以看出, E_g 在 Mn 含量 $x = 20$ 附近达到最大值: 0.99 eV ,比 Co_2MnSi 的 E_g (0.62 eV) 增宽 0.37 eV ,提高近 60%. 这样,热扰动和结构缺陷对自旋极化率的影响将有所降低. 这一计算结果说明, CoFeMnSi 四元合金具有比两端三元合金,尤其是比 Co_2MnSi 更宽的 E_g . 因此,合理地设计四元合金的成分,是有可能找到这样一种合金,其自旋极化率虽然受到缺陷和原子错占位的影响,但实际的自旋极化率比两端三元合金反而更高.

用 DSC-TG 测试的 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{10}\text{Mn}_{15}\text{Si}_{25}$ 居里温度为 760°C ,而 Co_2MnSi 的较为复杂, Okubo 等^[17]认为

Co_2MnSi 的 L2_1 向 B2 结构的转变温度约为 1300°C ,而我们的测量结果是,在升温过程中, Co_2MnSi 在 750°C 会发生 L2_1 向 B2 结构的转变,降温过程中,在 720°C 发生 B2 向 L2_1 转变,所以在升温过程中我们可以测到 L2_1 结构的 T_C 为 730°C ,降温过程中可以测到 B2 结构的 T_C 为 750°C . 比较 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{10}\text{Mn}_{15}\text{Si}_{25}$ 和 Co_2MnSi 两种合金的 T_C ,前者高于后者. 结合前面讨论的带隙宽度比较,进一步说明四元 CoFeMnSi 有可能成为比三元合金更有应用价值的高自旋极化率的磁电子学材料.

4. 结 论

我们合成了一系列四元 $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25-x}\text{Mn}_x\text{Si}_{25}$ 合金,通过实验与理论计算的方法研究了它们的晶体结构、磁性、有序占位以及半金属性. 通过与实验结果进行对比,在 Mn 含量不断增加的过程中,合金保持高有序的 L2_1 结构不变, M_I 线性地从 $5.920\mu_B$ 降到了 $5.0\mu_B$. 磁矩的降低主要来自于 M_{Co} 的减小,但在 Mn 高含量范围, M_{Mn} 出现了一个较快的降低,成为 M_I 降低的另一个主要原因. 根据 GGA + U 态密度计算的结果,在整个替代过程中,由于 Co, Mn 和 Fe 之间的电子轨道杂化作用,中间合金都具有半金属性. 随着中间合金从 Co_2FeSi 向 Co_2MnSi 转变,由于 Co, Mn 和 Fe 原子 3d 电子之间的轨道杂化作用,费米能级处的能隙由能量高的边缘移到中间,但能隙宽度在中间合金处出现最佳值,这些结果表明四元合金有可能成为具有更高自旋极化率,更能耐受缺陷和热扰动干扰的半金属材料.

[1] Degroot R A, Mueller F M, Vanengen P G, Buschow K H J 1983 *Phys. Rev. Lett.* **50** 2024
 [2] Wurmehl S, Fecher G H, Kandpal H C, Ksenofontov V, Felser C, Lin H J, Morais J 2005 *Phys. Rev. B* **72** 184434
 [3] Wurmehl S, Fecher G H, Kandpal H C, Ksenofontov V, Felser C, Lin H J 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 032503
 [4] Nakatani T M, Rajanikanth A, Gercsi Z, Takahashi Y K, Inomata K, Hono K 2007 *J. Appl. Phys.* **102** 033916
 [5] Li G N, Jin Y J, Lee J I 2010 *Chin. Phys. B* **19** 097102
 [6] Ishida S, Masaki T, Fujii S, Asano S 1998 *Physica B* **245** 8
 [7] Picozzi S, Continenza A, Freeman A J 2002 *Phys. Rev. B* **66** 094421

[8] Galanakis I, Dederichs P H, Papanikolaou N 2002 *Phys. Rev. B* **66** 174429
 [9] Picozzi S, Continenza A, Freeman A J 2004 *Phys. Rev. B* **69** 094423
 [10] Raphael M P, Ravel B, Huang Q, Willard M A, Cheng S F, Das B N, Stroud R M, Bussmann K M, Claassen J H, Harris V G 2002 *Phys. Rev. B* **66** 104429
 [11] Ritchie L, Xiao G, Ji Y, Chen T Y, Chien C L, Zhang M, Chen J L, Liu Z H, Wu G H, Zhang X X 2003 *Phys. Rev. B* **68** 104430
 [12] Balke B, Fecher G H, Felser C 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 242503

- [13] Qi J S, Yu H L, Jiang X F, Shi D N 2010 *Int. J. Mod. Phys. B* **24** 967
- [14] Balke B, Fecher G H, Wurmehl S, Felser C, Kübler J 2008 *Sci. Technol. Adv. Mater.* **9** 014102
- [15] Webster P J 1969 *Contemp. Phys.* **10** 559
- [16] Feng L, Ma L, Zhu Z Y, Zhu W, Liu E K, Chen J L, Wu G H, Meng F B, Liu H Y, Luo H Z, Li Y X 2010 *J. Appl. Phys.* **107** 013913
- [17] Okubo A, Umetsu R Y, Kobayashi K, Kainuma R, Ishida K 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 222507

Structural, magnetic and half-metallic properties of CoFeMnSi alloys *

Zhao Jing-Jing¹⁾²⁾ Qi Xin^{1)†} Liu En-Ke²⁾ Zhu Wei²⁾ Qian Jin-Feng²⁾

Li Gui-Jiang²⁾ Wang Wen-Hong²⁾ Wu Guang-Heng²⁾

1) (School of Science, Beijing University of Chemical Technology, Beijing 100029, China)

2) (State Key Laboratory of Magnetism, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

(Received 13 October 2010; revised manuscript received 2 December 2010)

Abstract

Compared with the experiment results, the atomic moment of $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25-x}\text{Mn}_x\text{Si}_{25}$ depending on composition and half-metallic of these alloys have been investigated by GGA + U method. It has been found that with the increase of Mn content, $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25-x}\text{Mn}_x\text{Si}_{25}$ alloys always maintain a high ordered $L2_1$ structure and the total moment of these alloys decrease linearly which is mainly attribute to the reduction of Co atomic moment. It has also been found that with the increase of Mn content, $\text{Co}_{50}\text{Fe}_{25-x}\text{Mn}_x\text{Si}_{25}$ alloys maintain 100% spin polarization and Fermi level move from the edge of the energy gap to the middle of the energy gap while the gap-width has changed.

Keywords: magnetic properties, half-metal, Heusler alloys

PACS: 71.20.Be, 71.20.Lp, 75.50.Cc

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2010CB833102) and Specific Funding of Discipline and Graduate Education Project of Beijing Municipal Commission of Education.

† Corresponding author. E-mail: qixin@mail.buct.edu.cn