

Heusler 合金 Mn_2NiGa 的第一性原理研究

赵建涛¹⁾²⁾ 赵昆¹⁾²⁾ 王家佳¹⁾²⁾ 余新泉¹⁾²⁾ 于金^{1)2)†} 吴三械³⁾

1) (东南大学材料科学与工程学院, 南京 211189)

2) (东南大学江苏省先进金属材料高技术重点实验室, 南京 211189)

3) (南京大学化学化工学院, 南京 210093)

(2012年3月30日收到; 2012年5月14日收到修改稿)

运用基于密度泛函理论的投影缀加波方法研究了 Heusler 合金 Mn_2NiGa 的四方变形, 对立方和四方结构的磁矩、电子结构、弹性常数及声子谱进行了计算和分析. Mn 原子是 Mn_2NiGa 总磁矩的主要贡献者, 但 Mn(A)、Mn(B) 原子磁矩的值不等且呈反平行耦合, 因而 Mn_2NiGa 合金在两种状态下均表现为亚铁磁结构. 四方变形中, Mn_2NiGa 在 $c/a = 0.94$ 和 $c/a = 1.27$ 处出现总能的局域极小值和局域最小值, 分别对应一个稳定的马氏体. 弹性常数的计算结果显示, Mn_2NiGa 的立方结构不满足立方相稳定性判据, 四方结构 ($c/a = 0.94$ 和 $c/a = 1.27$) 的弹性常数满足相应的稳定性判据. 立方结构声子谱中存在虚频, 而四方结构 ($c/a = 0.94$ 和 $c/a = 1.27$) 则不存在虚频, 验证了 Mn_2NiGa 四方结构比立方结构稳定. $c/a = 1.27$ 的四方结构 Mn_2NiGa 转变为 $c/a = 1.0$ 的立方结构的相变温度在 315 K 左右.

关键词: Heusler 合金, 四方变形, 磁性, 弹性常数

PACS: 31.15.E-, 71.20.-b, 75.50.Gg

1 引言

Heusler 合金具有丰富的物理特性, 如磁性形状记忆效应、半金属性质、巨磁阻、磁致伸缩、超顺磁、马氏体相变、超导相变、金属半导体转变等^[1-6], 这些独特的电磁性质使其极具潜在的应用价值, 是目前凝聚态物理和材料科学领域研究开发新型功能材料的热点材料体系之一. 目前研究较多的 Heusler 合金材料包括 Ni-Mn-Ga^[7], Ni-Fe-Ga^[8], Ni-Mn-Al^[9], Co-Ni-Ga^[10], Co-Ni-Al^[11], Ni-Mn-In^[12] 等.

在对 Heusler 合金的研究中发现多种材料具有磁性形状记忆效应 (magnetic shape memory effect, 简称 MSME), 最早发现也是目前研究最多的具有 MSME 效应的 Heusler 合金是 Ni_2MnGa ^[13,14]. 但是 Ni_2MnGa 合金由于材料本身的脆性问题, 且居里温度及相变温度都比较低, 制约了进一步的开

发和应用.

新近研究发现一种新的具有 MSME 效应的 Heusler 合金—— Mn_2NiGa ^[15], 这种合金具有发生在室温附近的马氏体相变、50 K 的相变滞后、高达 588 K 的居里温度和 21.3% 的晶格扭曲, 而且展现出极好的双向效应, 是一种潜力很大的功能材料.

本文利用基于密度泛函理论 (DFT) 的第一性原理方法研究了 Mn_2NiGa 合金的四方变形过程, 对立方和四方结构的磁矩、电子结构、弹性常数及声子谱进行了计算和分析, 从而对该合金的磁性、弹性性质、相变等规律有更深一步了解, 为今后的研究开发提供理论依据.

2 计算方法与模型确定

本文的计算利用基于 DFT 的 VASP^[16,17] 软件采用经相对论校正的投影缀加波^[18,19] PAW (pro-

† E-mail: yujin@seu.edu.cn

jector augmented wave) 方法 (PAW 方法计算精度高于普通的赝势计算, 同时计算时间又少于全电子方法), 交换关联能采用广义梯度近似 (GGA), 平面波截断能选取 500 eV, K 点网格采用 $12 \times 12 \times 12$, 四方变形、磁性及弹性常数的计算均采用自旋极化处理方式. 进行声子计算时, 建立了基于物理学原胞的 $2 \times 2 \times 2$ 超胞, 用 VASP 软件计算作用在胞内各个原子的力常数, 用 PHONOPY 软件进行 Mn_2NiGa 声子的计算.

最新的 X 射线衍射实验结果确定^[15], Mn_2NiGa 合金为立方结构, 并测得晶格参数 $a = b = c = 5.9072 \text{ \AA}$. 早期有文献 [20] 通过中子衍射确定了与 Mn_2NiGa 合金结构式类似的 Mn_2NiSn 合金结构为 Hg_2CuTi 型 (空间群 $F\bar{4}3m$), 与传统的 Heusler 合金结构 Cu_2MnAl 型 (空间群 $Fm\bar{3}m$) 不同. 文献 [15] 对 Mn_2NiGa 上面两种可能的结构进行 X 射线衍射谱模拟, 与实验谱对比后确认结构为 Hg_2CuTi 型; 第一性原理计算表明结构为 Hg_2CuTi 型时, 合金的晶胞磁矩计算结果与实验值非常接近, 而结构为 Cu_2MnAl 型时合金的晶胞磁矩计算结果远大于实验值, 与实际不符.

本文为确定 Mn_2NiGa 合金的结构, 不仅对以上两种结构进行了计算, 还对第三种结构 (空间群 $P\bar{4}3m$, 与 Hg_2CuTi 型相比, 晶胞中一个 Mn (A) 原子与一个 Ga 原子对调) 也进行了计算, 得出: Hg_2CuTi 型结构的晶胞总能最低; Cu_2MnAl 型结构的能量比 Hg_2CuTi 型结构高 1.742 eV/晶胞; 第三种结构的能量比 Hg_2CuTi 型结构高 0.731 eV/晶胞; 并计算出 Hg_2CuTi 型结构、 Cu_2MnAl 型结构和第三种结构的磁矩分别为 $4.589 \mu_B$ /晶胞, $28.7912 \mu_B$ /晶胞, $0.5941 \mu_B$ /晶胞, 而文献 [15] 磁矩计算值为 $5.12 \mu_B$ /晶胞. 由此验证了文献 [15] 的结果, 即 Mn_2NiGa 合金的稳定结构是 Hg_2CuTi 型.

本文采用 Hg_2CuTi 型结构建立计算模型, 其中两个 Mn 原子的位置分别为 Mn(A)(0.75, 0.75, 0.75) 和 Mn(B)(0.5, 0.5, 0.5), Ni 原子占据 (0.25, 0.25, 0.25), Ga 原子占据 (0, 0, 0), 如图 1(a). 为了

研究四方变形中结构的变化, 另外考虑了 Mn_2NiGa 的四方结构, 如图 1(b).

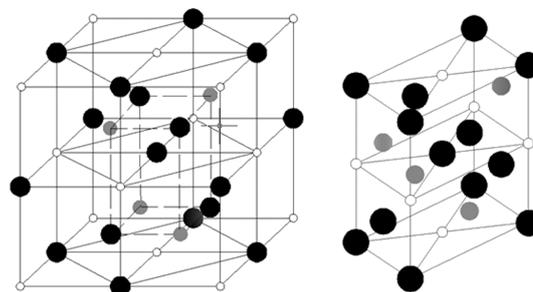


图 1 Mn_2NiGa 的结构 (a) 立方相; (b) 四方相 (●-Mn 原子, ●-Ni 原子, ○-Ga 原子)

3 结果与讨论

3.1 晶格常数和体积模量

采用自旋极化方式对 Mn_2NiGa 晶胞进行了晶格优化, 以确定准确的基态能量, 进而获得基态的晶格常数和体积模量 B .

体积优化过程中通过对一系列不同体积和能量的拟合, 如图 2 所示, 得出 Mn_2NiGa 立方结构的晶格常数, 结果列于表 1 中. 计算出 $a = 5.9085 \text{ \AA}$, 与实验值^[15] 相符. 另外, 本文还计算了 Mn_2NiGa 四方结构 ($c/a = 0.94$ 和 $c/a = 1.27$) 的晶格常数, 计算结果列于表 1 中.

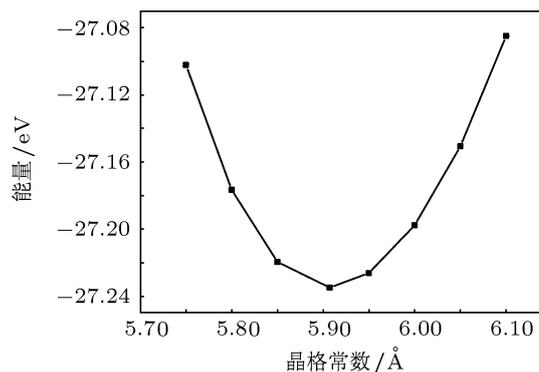


图 2 立方结构的 Mn_2NiGa 的晶格常数和总能的关系

表 1 Mn_2NiGa 的晶格常数及立方结构的体积模量 B

	立方结构		四方结构 ($c/a = 1.27$)			四方结构 ($c/a = 0.94$)				
	$a/$	B/GPa	c/a	$a/$	$b/$	$c/$	c/a	$a/$	$b/$	$c/$
计算值	5.9085	115.51	1.27	5.3948	5.3948	6.8514	0.94	5.9639	5.9639	5.6061
实验值 ^[15]	5.9072	—	1.21	5.5472	5.5472	6.7144	0.94	—	—	—

体积模量 B 是反映材料对液体静压阻力大小的一个参量, 其定义为

$$B = -\frac{\partial P}{\partial V} = V \frac{\partial^2 E}{\partial V^2}, \quad (1)$$

其中 E 为基态的总能, P, V 分别为压强和体积. 体积优化就是计算一系列不同体积下晶体的总能. 再根据 Birch-Murnaghan^[9] 状态方程进行拟合, 可以确定体积模量 B :

$$E(V) = E_0 + \frac{9V_0 B_0}{16} \left\{ \left[\left(\frac{V_0}{V} \right)^{2/3} - 1 \right]^3 B'_0 + \left[\left(\frac{V_0}{V} \right)^{2/3} - 1 \right]^2 \times \left[6 - 4 \left(\frac{V_0}{V} \right)^{2/3} \right] \right\}, \quad (2)$$

式中 E_0, V_0, B_0 及 B'_0 分别为基态的总能、基态的体积、体积模量以及体积模量对压强导数在零压时的值. 根据 (2) 式, 拟合得到了 Mn_2NiGa 立方结构的体积模量为 115.51 GPa. 所得 Mn_2NiGa 的零压体积模量 B 比 Ni_2MnSi (181.21 GPa)^[21]、 Ni_2MnGa (170 GPa)^[22] 的都要小, 这说明 Mn_2NiGa 的抗压缩性比二者均小.

3.2 四方变形

为了研究 Mn_2NiGa 马氏体相的性质, 进行了四方变形研究. 本文研究 Mn_2NiGa 的四方变形采用 EBP's^[23-25] 方法, 这是国内外研究 Heusler 合金四方变形的常用方法. 变形过程中保持晶体体积不变, 对优化后的立方结构施加变形, 计算合金总能随 c/a 的变化而变化情况.

Mn_2NiGa 四方变形中总能随 c/a 变化而改变的关系如图 3 所示. 在 $c/a = 0.94$ 和 $c/a = 1.27$ 处出现了总能的局域极小值和局域最小值, 预示了在这两处分别对应存在一个稳定的

马氏体相. 这与 Ni_2MnGa 的四方变形曲线极其相似.

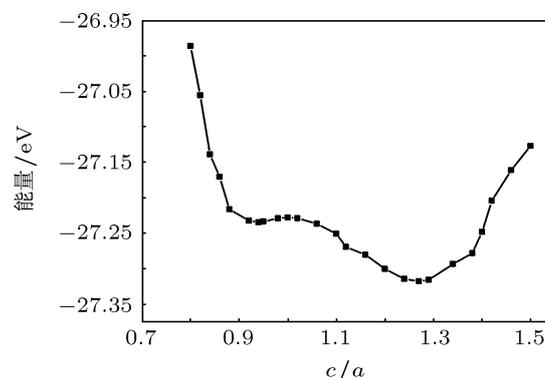


图 3 Mn_2NiGa 体积不变时的总能与 c/a 的关系

3.3 磁性

Mn_2NiGa 的立方结构和四方结构的磁矩计算结果列于表 2 中.

从表 2 中可以得出, 无论是立方结构还是四方结构, Mn_2NiGa 均呈亚铁磁性. 在三种结构中, Mn 原子均是 Mn_2NiGa 总磁矩的主要贡献者, Mn(A) 和 Mn(B) 呈反铁磁排列, 这是由于两个 Mn 原子处在两个原子环境完全不同的亚晶格位置所造成的, 这也是 Mn_2NiGa 呈亚铁磁性的原因.

3.4 态密度

Mn_2NiGa 立方结构与四方结构的态密度分别如图 4—6 所示. 其中图 4 是 Mn_2NiGa 立方结构的态密度, 图 5 和图 6 分别为 $c/a = 0.94$ 和 $c/a = 1.27$ 的 Mn_2NiGa 四方结构的态密度. 图 (a)—(e) 分别是 Mn_2NiGa 的四方结构的总态密度, Mn(A) 原子、Mn(B) 原子和 Ni 原子的 3d 态电子的分波态密度及 Ga 原子的 4s 态的分波态密度.

表 2 Mn_2NiGa 的总磁矩和各原子的局域磁矩 (单位: μ_B)

	Mn (A)	Mn (B)	Ni	Ga	总磁矩
立方结构	-2.372	3.151	0.321	0.009	1.109
四方结构 ($c/a = 0.94$)	-2.350	3.133	0.333	0.010	1.126
四方结构 ($c/a = 1.27$)	-2.336	3.045	0.277	0.010	0.996

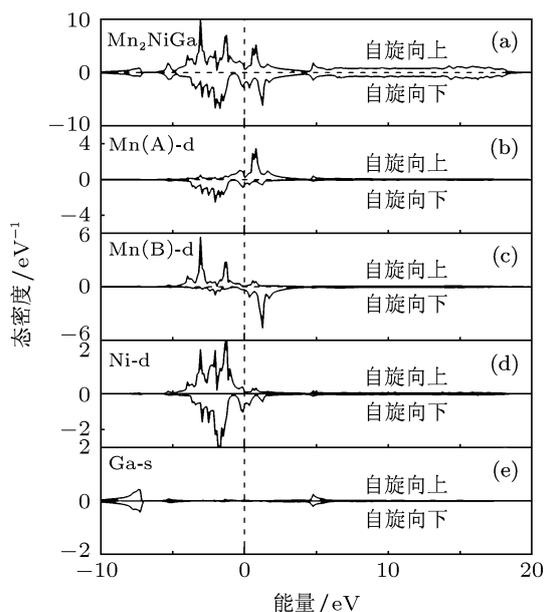


图4 Mn_2NiGa 立方结构的态密度

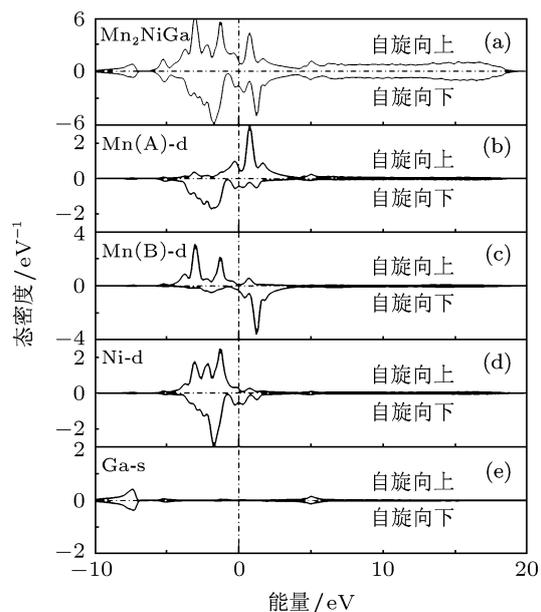


图5 Mn_2NiGa 四方结构 ($c/a = 0.94$) 的态密度

从图4、图5和图6中可以看到, 对于立方结构的态密度, 费米面附近无论自旋向上还是自旋向下的态密度并没有处于态密度最低的谷中, 也未处于最低谷附近的一个次低谷中; 而对于四方结构 ($c/a = 0.94$) 来说, 其费米面附近自旋向下的态密度落在态密度的一个次低谷中; 对于四方结构 ($c/a = 1.27$) 来说, 其费米面附近态密度则是落在态密度的一个最低谷中. s-p 电子态密度的这种特点反映到总的电子态密度中, 就

是四方结构费米面附近的主峰发生劈裂. 按照文献 [26] 中关于电子数 Hume-Rothery 合金稳定性的说法, 最低谷称为赝能隙 (pseudogap), 赝能隙以下是成键 s-p 态, 赝能隙以上是反键 s-p 态. 当电子完全占据成键态, 而反键态为空时, 也就是费米面落入赝能隙之内时, 能带总能量最低. 从这个角度来看, 四方结构要比立方结构更稳定, 而 $c/a = 1.27$ 的四方结构相较于 $c/a = 0.94$ 的四方结构来说是最稳定的, 这也与四方变形过程中 $c/a = 1.27$ 处是能量的一个局域最小值点、而 $c/a = 0.94$ 处是一个能量局域极小值点对应.

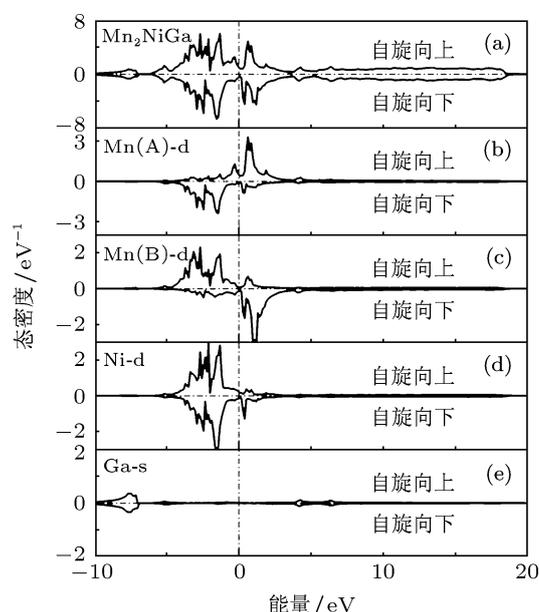


图6 Mn_2NiGa 四方结构 ($c/a = 1.27$) 的态密度

3.5 弹性常数

弹性常数是描述材料在应力作用下变形的规律, 同时也与晶体稳定性紧密相关. 本文采用能量法 [27] 计算了 Mn_2NiGa 立方结构和四方结构 ($c/a = 0.94$ 和 $c/a = 1.27$) 的弹性常数. Mn_2NiGa 的立方结构存在三个独立的弹性常数 C_{11} , C_{12} 和 C_{44} . 采用文献 [28] 中介绍的变形矩阵得到了立方结构的三个独立弹性常数. Mn_2NiGa 的四方结构包含六个独立的弹性常数, 分别为 C_{11} , C_{12} , C_{13} , C_{33} , C_{44} 及 C_{66} . 根据文献 [29] 中计算四方结构弹性常数采用的方法, 本文得到了 Mn_2NiGa 的四方结构的弹性常数, 结果列于表3中.

表3 Mn₂NiGa 的立方结构和四方结构的弹性常数 (单位: GPa)

	C ₁₁	C ₁₂	C ₁₃	C ₃₃	C ₄₄	C ₆₆	B
立方结构	90.55	128.00	—	—	124.42	—	115.51
四方结构 (c/a = 0.94)	140.24	118.82	102.34	187.93	26.68	26.80	113.10
四方结构 (c/a = 1.27)	241.67	42.84	107.39	172.20	26.71	15.70	109.12

Mn₂NiGa 的立方结构不符合立方晶体的稳定性判据^[30]:

$$C_{11} > |C_{12}|, C_{11} + 2C_{12} > 0, C_{44} > 0, \quad (3)$$

Mn₂NiGa 的四方结构的弹性常数满足四方相稳定性判据^[31]:

$$C_{11} > |C_{12}|, (C_{11} + C_{12})C_{33} - 2C_{13}^2 > 0, \\ C_{44} > 0, C_{66} > 0. \quad (4)$$

通过 Mn₂NiGa 立方结构和四方结构弹性常数的计算发现, 四方结构比立方结构更稳定, 这与图3所示的能量曲线及态密度分析结果相符合.

3.6 Mn₂NiGa 声子谱的计算

声子谱在不同条件下的变化情况是反映物质结构稳定性的有效方法, 如果计算得到的声子谱存在虚频, 则说明该结构是不稳定相^[32-34]. 本文利用

第一性原理对 Mn₂NiGa 的声子进行了计算, 并从声子角度对其相变进行分析.

计算结果如图7所示. 从声子谱和声子态密度可以看出, Mn₂NiGa 的声子谱共有3条声学支和9条光学支.

由图7可知, Mn₂NiGa 立方结构的声子谱中, 在 $\Gamma-X$ 方向声学支发生简并. 并且在 Γ 点附近 $\omega(q) < 0$, 也就是说出现了具有负能量的声子. 横向声学支的频率为负值, 即有虚频存在. 这意味着该结构是不稳定的, 易于在外界扰动下向另一种较稳定的结构转化.

从能量与 c/a 的曲线可知, c/a = 0.94 和 c/a = 1.27 时的四方结构 Mn₂NiGa 能量比立方结构 Mn₂NiGa 能量要低, 对应着相对于立方结构来说更为稳定的结构. 因此本文分别对这两种结构的声子进行了计算, 计算得到的声子谱和声子态密度如图8和图9所示.

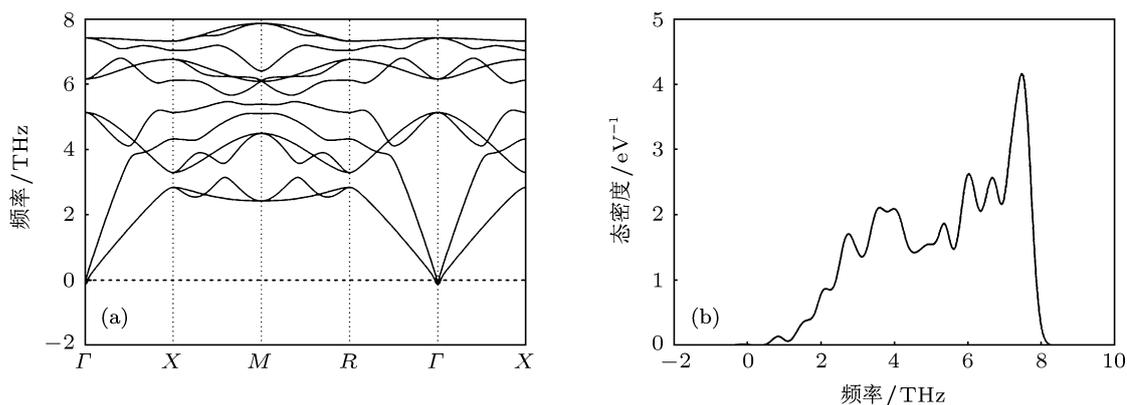


图7 Mn₂NiGa 立方结构的声子谱 (a) 和声子态密度 (b)

从图8和图9可知, 当 Mn₂NiGa 从立方结构变为 c/a = 0.94 和 c/a = 1.27 的四方结构时, $\Gamma-M$ 方向的三支声学支是非简并的, 并且在该点的虚频消失. 从声子谱的整体来看, 声子频率都是正的, 这

说明 c/a = 0.94 和 c/a = 1.27 的 Mn₂NiGa 四方结构相对于立方结构来说更为稳定, 这也与这两种四方结构在 Mn₂NiGa 的能量曲线上分别处于能量局域极小值和局域最小值点相符合.

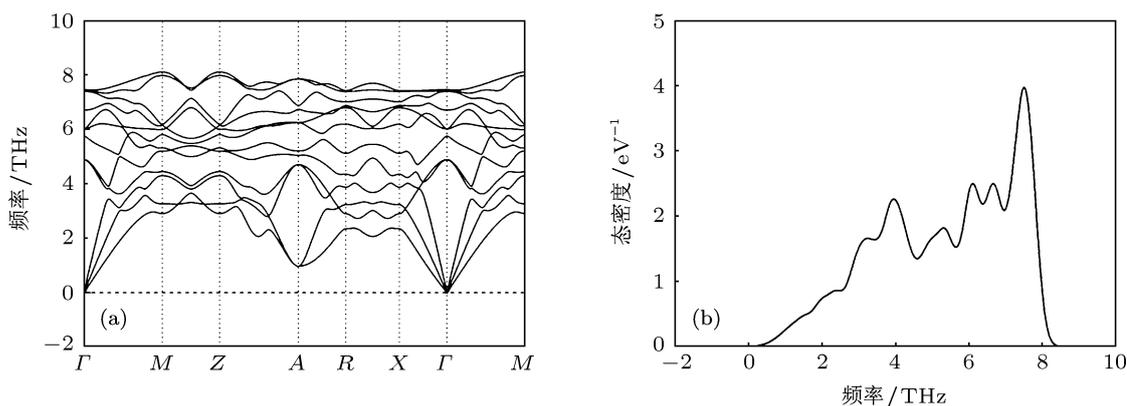


图8 Mn₂NiGa 四方结构 ($c/a = 0.94$) 的声子谱 (a) 和声子态密度 (b)

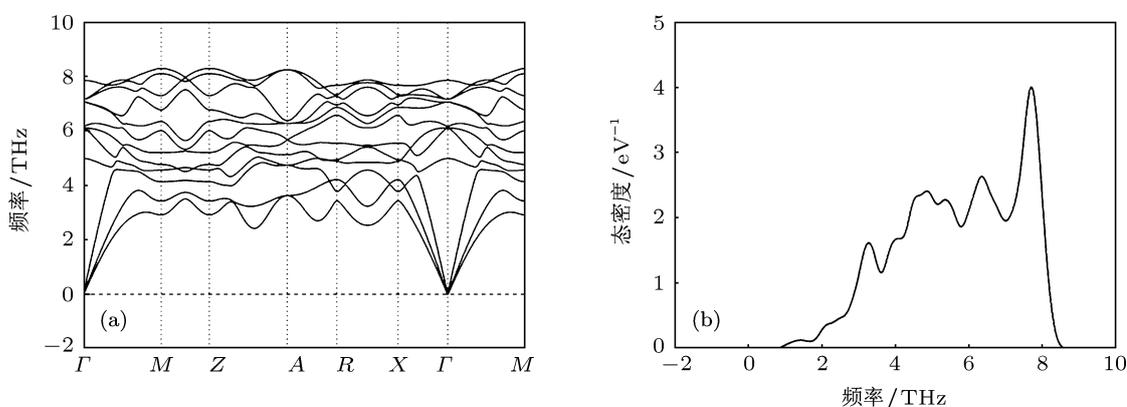


图9 Mn₂NiGa 四方结构 ($c/a = 1.27$) 的声子谱 (a) 和声子态密度 (b)

Helmholtz 自由能是温度 (T) 及体积 (V) 的函数, 计算过程中, 可以把晶体的 Helmholtz 自由能分为三部分: 0 K 时的总能、振动自由能和激发电子自由能, 如下式^[35,36]所示:

$$F(V, T) = E(V) + F_{\text{vib}}(V, T) + F_{\text{ele}}(V, T), \quad (5)$$

其中 $E(V)$ 是 0 K 时的总能, $F_{\text{ele}}(V, T)$ 是激发电子自由能, $F_{\text{vib}}(V, T)$ 是晶体振动自由能. 如下式^[37]所示:

$$F_{\text{vib}}(V, T) = k_B \int_0^{\infty} \ln \left\{ 2 \sin \hbar \left[\frac{\hbar \omega}{2k_B T} \right] \right\} \times g(\omega, V) d\omega, \quad (6)$$

式中 k_B 为玻尔兹曼常数, ω 为声子频率, $g(\omega, V)$ 为声子态密度.

通过计算自由能可以了解晶体的相变温度. 本文通过计算, 给出 Mn₂NiGa 的 Helmholtz 自由能和

温度的曲线关系, 如图 10 所示.

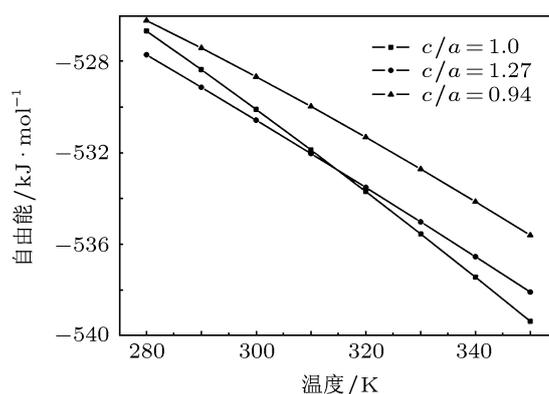


图10 Mn₂NiGa 的 Helmholtz 自由能和温度的关系曲线

从图 10 可知, $c/a = 1.27$ 的四方结构 Mn₂NiGa 转变为 $c/a = 1.0$ 的立方结构的相变温度在 315 K 左右时, 计算值与实验值 320 K 符合良好^[38]. 在相变温度以下, $c/a = 1.27$ 的四方结构的自由能最低, 说明该四方结构为最稳定结构. 这与能量、态密度

及弹性常数的计算结果也完全一致.

4 结论

采用基于密度泛函理论的第一性原理软件 VASP 计算了 Heusler 合金 Mn_2NiGa 的四方变形、磁性、弹性常数及声子性质. 计算发现, Mn_2NiGa 四方变形过程中在 $c/a = 0.94$ 和 $c/a = 1.27$ 处各存在稳定的马氏体相. Mn_2NiGa

变形中总磁矩的变化主要源于 Mn 原子的贡献, 且 Mn(A)、Mn(B) 原子磁矩值不等并呈反铁磁排列. Mn_2NiGa 立方结构的弹性常数不符合立方晶体的稳定性判据, 四方结构的弹性常数满足相应的稳定性判据, 说明四方结构比立方结构更稳定. 声子的计算结果表明, Mn_2NiGa 由立方结构转变为四方结构时, Γ 点附近虚频消失, 验证了四方结构的稳定性. $c/a = 1.27$ 的四方结构 Mn_2NiGa 转变为 $c/a = 1.0$ 的立方结构的相变温度在 315 K 左右.

- [1] Karaman I, Basaran B, Karaca H E, Karsilayan A I, Chamlyakov Y I 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 172505
- [2] Aparna C, Barman S R 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 161908
- [3] Chatterjee S, Giri S, Majumdar S 2008 *Phys. Rev. B* **77** 22440
- [4] Luo H Z, Zhang H W, Zhu Z Y, Ma L, Xu S F, Wu G H, Zhu X X, Jiang C B, Xu H B 2008 *J. Appl. Phys.* **103** 083908
- [5] Yusuke O, Mikihiko O, Yasuo A 2009 *J. Appl. Phys.* **105** 07C920
- [6] Galanakis I, Mavropoulos P H, Dederichs P H 2006 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **39** 765
- [7] Ullakko K, Huang J K, Kantner C, O' Handley R C, Kokorin V V 1996 *Appl. Phys. Lett.* **69** 1966
- [8] Liu Z H, Zhang M, Cui Y T, Zhou Y Q, Wang W H, Wu G H, Zhang X X, Xiao G 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 424
- [9] Fujita A, Fukamichi K, Gejima E, Kainum R, Ishida K 2001 *Appl. Phys. Lett.* **77** 3054
- [10] Wuttig M, Li J, Craciunescu C 2001 *Scripta Mater.* **44** 2393
- [11] Oikawa K, Wulff L, Iijima T, Gejima F, Ohmori T, Fujita A, Fukamichi K, Kainuma R, Ishida K 2001 *Appl. Phys. Lett.* **79** 3290
- [12] Sutou Y, Imano Y, Koeda N, Omori T, Kainum R, Ishida K, Oikawa K 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 4358
- [13] Wan J F, Wang J N 2005 *Physica B* **355** 172
- [14] Jakob G, Elmers H J 2007 *J. Magn. Magn. Mater.* **310** 12779
- [15] Liu G D, Dai X F, Yu S Y, Zhu Z Y, Chen J L, Wu G H 2006 *Phys. Rev. B* **74** 054435
- [16] Hafner J 2008 *J. Comput. Chem.* **29** 2044
- [17] Kresse G, Furthmuller J 1996 *Phys. Rev. B* **54** 11169
- [18] Torrent M, Jollet F, Bottin F 2008 *Comput. Mater. Sci.* **42** 337
- [19] Kresse G, Joubert D 1999 *Phys. Rev. B* **59** 1758
- [20] Helmholdt R B, Buschow K H J 1987 *J. Less-Comm. Met.* **128** 167
- [21] Luo L J, Zhong C G, Jiang X F, Fang J H, Jiang Q 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 0521 (in Chinese) [罗礼进, 仲崇贵, 江学范, 方靖淮, 蒋青 2010 物理学报 **59** 0521]
- [22] Godlevsky V V, Rabe K M 2001 *Phys. Rev. B* **63** 134407
- [23] Alippi P, Marcus P M, Scheffler M 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 3892
- [24] Marcus P M, Alippi P 1998 *Phys. Rev. B* **57** 1971
- [25] Zhao K, Zhang K, Wang J J, Yu J, Wu S X 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 127101 (in Chinese) [赵昆, 张坤, 王家佳, 于金, 吴三械 2011 物理学报 **60** 127101]
- [26] Trambly L G, Nguyen M D, M L 1995 *Phys. Rev. B* **52** 7920
- [27] Mehl M J, Osburn J E, Papaconstantopoulos D A, Klein B M 1990 *Phys. Rev. B* **41** 10311
- [28] Rached H, Rached D, Khenata R, Reshak Ali H, Rabah M 2009 *Phys. Status Solidi B* **246** 1580
- [29] Ozdemir Kart S, Uludogan M, Karaman, Cagin T 2008 *Phys. Stat. Sol. A* **205** 1026
- [30] Wallace D C 1972 *Thermodynamics of Crystals* (New York: John Wiley & Sons) p39
- [31] Jona F, Marcus P M 2001 *Phys. Rev. B* **63** 094113
- [32] Yuan P F, Zhu W J, Xu J A, Liu S J, Jing F Q 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 8755 (in Chinese) [原鹏飞, 祝文军, 徐济安, 刘绍军, 经福谦 2010 物理学报 **59** 8755]
- [33] Hao Y J, Zhang L, Chen X R 2008 *Phys. Rev. B* **78** 134101
- [34] Mei Z G, Shang S L, Wang Y 2009 *Phys. Rev. B* **79** 134102
- [35] Wang Y, Liu Z K, Chen L Q 2004 *Acta Mater.* **52** 2665
- [36] Wang Y, Ahuja R, Johansson B 2004 *Int. J. Quantum. Chem.* **96** 501
- [37] Dove M T 1993 *Introduction to Lattice Dynamics* (Cambridge: Cambridge University Press) p258
- [38] Liu G D 2007 *Ph. D. Dissertation* (Chongqing: Chongqing University) (in Chinese) [刘国栋 2007 博士学位论文 (重庆: 重庆大学)]

A first principles study on Mn₂NiGa Heusler alloy

Zhao Jian-Tao¹⁾²⁾ Zhao Kun¹⁾²⁾ Wang Jia-Jia¹⁾²⁾ Yu Xin-Quan¹⁾²⁾
Yu Jin^{1)2)†} Wu San-Xie³⁾

1) (School of Materials Science and Engineering, Southeast University, Nanjing 211189, China)

2) (Jiangsu Key Laboratory of Advanced Metallic Materials, School of Materials Science and Engineering, Southeast University, Nanjing 211189, China)

3) (School of Chemistry and Chemical Engineering, Nanjing University, Nanjing 210093, China)

(Received 30 March 2012; revised manuscript received 14 May 2012)

Abstract

Tetragonal distortion of Mn₂NiGa Heusler alloy is calculated by first-principles based on density functional theory with projector augmented wave pseudopotential, and the magnetism, electronic structure, elastic constants and phonon frequencies are also calculated and analyzed. The contribution of the spin magnetic moments of Mn atom to the total moment is largest for Mn₂NiGa, and the Mn₂NiGa alloy shows ferrimagnetism in these two cases, owing to the antiparallel but unbalanced magnetic moments of Mn (A) atom and Mn (B) atom. Analysis of tetragonal distortion shows that there is a local minimum total energy at $c/a = 0.94$ and $c/a = 1.27$, which corresponds to a stable martensitic phase. Elastic constants of Mn₂NiGa reveal that cubic structure does not satisfy stability conditions, but tetragonal structure ($c/a = 0.94$ and $c/a = 1.27$) does. The imaginary values of phonon frequencies in cubic structures validate that tetragonal structure ($c/a = 0.94$ and $c/a = 1.27$) of Mn₂NiGa is more stable than cubic structure. The phase transition temperature of $c/a = 1.27$ tetragonal structure converting to cubic structure is about 315 K.

Keywords: Heusler alloy, tetragonal distortion, magnetism, elastic constants

PACS: 31.15.E-, 71.20.-b, 75.50.Gg

† E-mail: yujin@seu.edu.cn