

# 费米能级调控半金属 Co 基 Heusler 合金的磁致伸缩效应\*

姚亮<sup>1)2)</sup> 吴鹏举<sup>1)</sup> 杜杰<sup>1)</sup> 刘永昌<sup>2)3)</sup> 郝学奎<sup>2)†</sup> 王文洪<sup>1)‡</sup>

1) (天津工业大学电子与信息工程学院, 天津 300387)

2) (中国科学院物理研究所, 北京 100190)

3) (中国科学院大学, 北京 100049)

(2025 年 11 月 20 日收到; 2025 年 12 月 31 日收到修改稿)

通过第一性原理计算与实验研究相结合, 系统分析了半金属 Heusler 合金  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  中费米能级调控对自旋极化率与磁致伸缩性能的协同影响机制. 结果表明, 通过 Al/Si 原子互替可有效调控费米能级在少数自旋准带隙中的位置, 当费米能级位于准带隙中心 ( $x \approx 0.5$ ) 时, 体系同时呈现最高的本征自旋极化率与最大的饱和磁致伸缩系数  $\lambda_s$ . 变温磁致伸缩测量显示, 各组分的  $\lambda_s$  随温度的变化均良好的遵循 Bloch  $T^{3/2}$  定律, 表明自旋波的热激发是磁致伸缩性能随温度衰减的主要机制之一. 其中, 中间组分的磁致伸缩衰减系数  $\beta$  显著低于两端组分, 表现出优异的温度稳定性, 这可归因于费米能级位于少数自旋准带隙中心所带来的自旋极化稳定性提升, 从而减弱了自旋波热激发对磁弹响应的影响. 通过分析表明, 该电子结构下自旋-轨道耦合对磁晶各向异性性能的有效调制作用增强是连接自旋与晶格自由度, 从而实现强磁弹耦合的关键微观机制. 本工作从电子结构角度揭示了自旋极化率与磁致伸缩的内在关联, 为设计兼具高自旋极化率与强磁弹性能的多功能 Heusler 合金材料提供了新的思路和理论依据.

**关键词:** 磁致伸缩, 自旋极化率, Co 基 Heusler 合金

**DOI:** 10.7498/aps.75.20251581

**CSTR:** 32037.14.aps.75.20251581

## 1 引言

磁致伸缩与自旋极化率是磁性材料中的两类基本且关键的物性参数. 磁致伸缩反映了材料的磁弹耦合强度, 与材料的晶体结构、磁晶各向异性密切相关<sup>[1-3]</sup>, 其在传感器、换能器和精密驱动等领域具有重要应用价值<sup>[4-9]</sup>. 而自旋极化率则描述了费米能级附近电子在两种自旋通道中的占据差异<sup>[10]</sup>, 是磁性隧道结、自旋阀等自旋电子器件性能的核心参数<sup>[11-14]</sup>. 长期以来, 关于这两种物性的研究通常

沿着相对独立的路径展开, 磁致伸缩侧重于晶格与磁矩的相互作用, 自旋极化率则主要与电子能带结构及其输运性质相关. 已有的研究与实验普遍认为, 对于大多数磁性材料而言, 高的自旋极化率与较大的磁致伸缩通常并不同时出现, 两者之间缺乏明确的对应关系<sup>[14,15]</sup>.

在众多磁性功能材料中, Heusler 合金因其丰富的物理性质而占据重要地位. 其中, Co 基 Heusler 合金 (化学式  $X_2YZ$ ) 更是由于理论预测的半金属特性 (即在费米能级处对一种自旋取向的电子呈现金属性, 而对另一种自旋取向的电子呈现绝缘体或

\* 国家重点研发计划 (批准号: 2024YFF0726700) 和国家自然科学基金 (批准号: 12274321, 12361141823) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xi@iphy.ac.cn

‡ 通信作者. E-mail: wenhongwang@tiangong.edu.cn

半导体性, 从而产生 100 % 的自旋极化率) 成为了自旋电子学研究的焦点材料体系<sup>[16-19]</sup>. 该预测已在  $\text{Co}_2\text{MnSi}$ ,  $\text{Co}_2\text{FeAl}$ ,  $\text{Co}_2\text{FeSi}$ ,  $\text{Co}_2\text{FeSi}_{0.5}\text{Al}_{0.5}$  和  $\text{Co}_2\text{Cr}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Al}$  等 Co 基 Heusler 合金的磁性隧道结 (MTJ) 所展现出的高隧道磁阻 (TMR) 比得到了多次有力验证<sup>[20-24]</sup>. 已有理论和实验研究表明, 在四元 Co 基 Heusler 合金  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  中, 通过调控 Al 与 Si 元素的比例, 可以有效移动费米能级在少数自旋带隙中的位置, 从而显著影响体系的自旋极化率<sup>[25,26]</sup>. 进一步将费米能级移动至少数自旋带隙的中心, 可以显著提高自旋极化率及对外界扰动的鲁棒性<sup>[27,28]</sup>.

然而, 围绕 Co 基 Heusler 合金的研究, 多年来主要集中于其电子输运特性和自旋相关功能, 而对作为材料宏观磁性另一重要组成部分的磁致伸缩效应关注相对有限. 因此通过费米能级调控优化电子能带结构、提升自旋极化率的过程是否也会以某种方式影响晶格自由度, 并对磁致伸缩行为产生系统性的调制作用, 这值得进一步探讨. 理论研究提出自旋-轨道耦合 (SOC) 是磁晶各向异性 (MCA) 的物理起源<sup>[29,30]</sup>, 同时也间接影响了自旋极化率<sup>[31]</sup>, 因为沿着不同晶体方向磁化材料所需的能量, 也就是外在表现出的极化率是不同的. 与此同时, 磁致伸缩的大小关键在于 SOC 诱导的磁晶各向异性能  $E_{\text{MCA}}$  对晶格畸变的敏感响应<sup>[32]</sup>. 当晶格发生微小应变时, 电子能带结构及轨道杂化随之改变, 从而引起磁晶各向异性能  $E_{\text{MCA}}$  的变化. 当应变能够显著调制 SOC 相关能量项, 使  $E_{\text{MCA}}$  发生明显变化时, 体系将通过自发形变来降低总能量, 从而表现出较大的磁致伸缩效应. 这说明 SOC、自旋极化率与磁致伸缩之间可能存在着尚未充分揭示的内在联系, 深入理解这一联系, 不仅有助于深化对该体系乃至更广泛的 Heusler 合金中电荷、自旋与晶格相互作用机制的认识, 也可能为设计兼具高自旋极化和显著磁致伸缩响应的多功能磁性材料提供新的思路.

我们前期的研究系统探讨了  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  体系中原子占位有序度对磁致伸缩性能的影响, 提出了  $\text{L}_{21}/\text{B}2$  两相共存界面态通过降低立方对称性并引入局域晶格畸变增强磁弹耦合的机制<sup>[33]</sup>. 在此研究基础上, 本文进一步从电子结构层次出发, 通过第一性原理计算与实验相结合, 系统探讨  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  中费米能级位置变化对自旋极化率

与磁致伸缩性能的协同作用机制, 希望阐明组分调控引起的电子结构演化在自旋与晶格之间可能存在的耦合关系, 进而加深对 Heusler 合金体系中多自由度相互作用机制的理解, 为理解与设计兼具优异自旋输运与磁弹响应特性的多功能材料提供理论与实验依据.

## 2 计算与实验方法

### 2.1 计算方法

基于密度泛函理论, 所有计算结果均采用 VASP 完成<sup>[34,35]</sup>, 并采用 PAW 方法对电子与离子的相互作用进行计算<sup>[36]</sup>, 使用自旋极化下的广义梯度近似 (GGA) 和 PBE 函数来计算交换关联泛函的相互作用<sup>[37,38]</sup>. 针对  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  ( $x = 0, 0.25, 0.5, 0.75, 1$ ), 采用在  $\text{L}_{21}$  最小结构单元基础上展开得到的包含 16 个原子的  $\text{L}_{21}$  原胞结构进行建模. 该原胞中位于晶胞边界及角点的原子通过周期性边界条件进行等效处理, 所有后续计算均在该周期性  $\text{L}_{21}$  原胞框架内完成. 为获得稳定可靠的基态结构, 首先对所有组分进行充分的结构弛豫计算, 并采用  $6 \times 6 \times 6$  的  $K$  点网格对布里渊区进行采样<sup>[39]</sup>, 截断能设置 500 eV, 对于优化的原子结构以作用在每个原子上的力小于 0.01 eV/Å, 自洽计算的总能量收敛设置为  $10^{-7}$  eV 为标准. 此外, 对于同一组分, 比较了不同 Al/Si 原子占位方式所对应构型的基态总能量 (见补充材料表 S1—表 S3 (online)). 结果表明, 在所采用的  $\text{L}_{21}$  原胞模型和计算精度下, 不同构型之间的能量差异非常小. 因此, 本文后续关于电子结构、自旋极化率及磁致伸缩性质的计算, 均基于对应组分下总能量最低的构型进行.

在结构优化的基础上引入自旋-轨道耦合 (SOC) 对  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  ( $x = 0, 0.25, 0.5, 0.75, 1$ ) 磁致伸缩性质进行理论计算<sup>[40,41]</sup>, 为确保计算精度, 将截断能提高至 560 eV, 总能量收敛标准收紧至  $10^{-8}$  eV, 并采用了更稠密的  $12 \times 12 \times 12$   $K$  点网格. 磁晶各向异性能 ( $E_{\text{MCA}}$ ) 是磁致伸缩计算中的关键因素, 采用总能量差法确定, 定义为沿两个正交晶体学方向磁化取向之间的能量差<sup>[42]</sup>:  $E_{\text{MCA}} = E_{[100]} - E_{[001]}$ . 由总能量 ( $E_{\text{tot}}$ ) 和磁晶各向异性能的应变关系, 可以得到磁致伸缩系数  $\lambda_{001}$ , 使用以下关系<sup>[43,44]</sup>:

$$\lambda_{001} = \frac{2dE_{\text{MCA}}/d\varepsilon_z}{3d^2E_{\text{tot}}/d\varepsilon_z^2}, \quad (1)$$

其中,  $\epsilon_z$  是沿  $z$  轴施加的四方应变. 在本文中, 坐标取向与立方晶体的晶轴一致, 其中  $z$  轴选取为晶体的  $[001]$  方向, 对应于计算中关注的  $\lambda_{001}$  磁致伸缩系数. 总的来说,  $\lambda_{001}$  的计算基于 SOC 诱导的磁晶各向异性能在不同磁化取向下对应变的关系. 不同组分的总能量  $E_{\text{tot}}$  及磁晶各向异性能  $E_{\text{MCA}}$  计算结果见补充材料图 S1 (online).

## 2.2 实验方法

多晶  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  ( $x = 0, 0.25, 0.5, 0.75, 1$ ) 块体合金样品采用电弧熔炼方法制备. 将高纯金属单质原料依据目标组分进行精确的化学计量配比, 在氩气保护下在电弧炉中反复熔炼 4 次得到成分均一的铸锭. 为优化样品的晶体结构有序度与磁性能, 将所得铸锭密封于真空石英管中, 在 873 K 下进行为期 7 天的退火处理, 随后随炉自然冷却至室温.

样品的磁致伸缩性能通过标准电阻应变片法进行表征, 同时采用液氮降温的低温恒温腔, 可实现 80—300 K 的连续变温控制. 在不同温度及外加磁场下, 实时测量样品的磁致伸缩性能, 从而获得磁致伸缩系数随磁场变化的  $\lambda$ - $H$  曲线.

## 3 结果及讨论

### 3.1 组分调控的电子结构演化与性能关联预测

$\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  的晶体结构主要表现为高度有序的  $L2_1$  结构和存在 Fe/(Si, Al) 占位无序的 B2

结构. 如图 1(a) 所示, 在  $L2_1$  结构中, 各原子分别占据特定的 Wyckoff 位置, 形成理想的化学有序; 而在 B2 结构中, Y 位置的 Fe 原子与 Z 位置的 Si/Al 原子之间发生部分随机占位, 从而破坏了  $L2_1$  结构的有序性. 在  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  体系中, 当  $x \leq 0.5$  时材料更倾向于形成  $L2_1$  结构, 当  $x > 0.5$  时则主要表现为 B2 结构, 这两种结构的竞争与共存为理解其物性的演化提供了重要的结构基础.

为深入理解  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  体系中组分、电子结构与物性的内在联系, 首先基于优化的晶体结构, 对  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  的电子结构进行了第一性原理计算. 针对 3 种代表性组分 ( $x = 0, 0.5, 1.0$ ), 计算得到的电子态密度 (DOS) 如图 1(b) 所示, 结果表明在上述 3 种组分中, 自旋向下电子态在费米能级附近表现出态密度显著抑制的准带隙特征, 而自旋向上电子态在费米能级处保持连续分布并呈现金属性, 因此  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  在该条件下具有半金属电子结构特征. 全部组分的总态密度见补充材料图 S2 (online). 进一步的 PDOS 分析表明 (补充材料图 S3 (online)), 少数自旋准带隙中存在的少量电子态主要来源于过渡金属 d 轨道的贡献. 由于 Al 原子的价电子数比 Si 原子少, 随着 Al 原子含量的增大, 导致费米能级  $E_F$  在少数自旋准带隙中的相对位置发生变化. 对于  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  ( $x = 0$ ), 费米能级  $E_F$  靠近导带底, 而  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  ( $x = 1$ ) 的费米能级  $E_F$  则移动至价带顶附近, 这种准能隙边缘位置使得体系在温度扰动下容易通过热激发将电子从

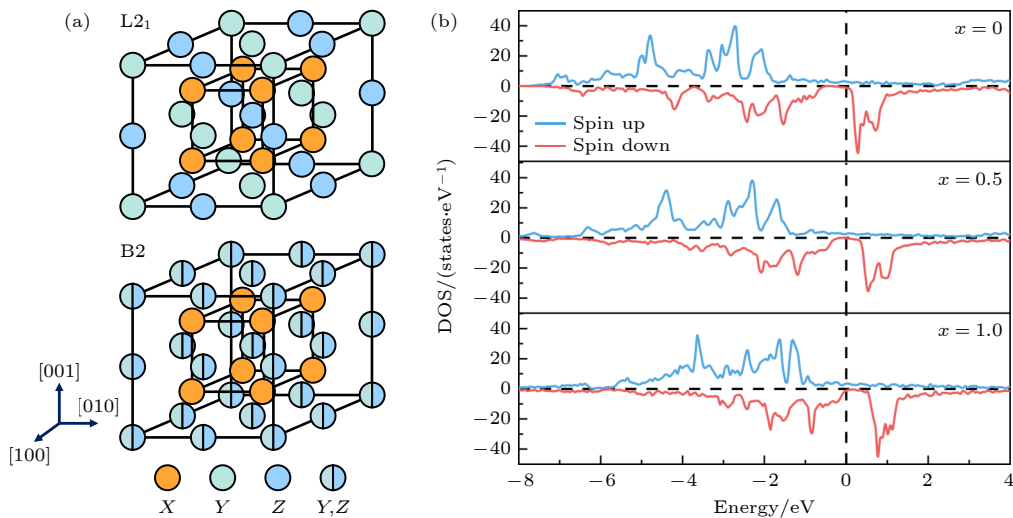


图 1 (a)  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  的晶体结构,  $L2_1$  结构和 B2 结构; (b)  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  ( $x = 0, 0.5, 1.0$ ) 的总态密度

Fig. 1. (a) Crystal structure of  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$ ,  $L2_1$  structure and B2 structure; (b) total density of states (DOS) of  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  ( $x = 0, 0.5, 1.0$ ).

价带顶激发到费米能级以上的未占据态, 从而导致自旋极化率的显著降低. 重要的是, 在中间组分  $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}$  ( $x = 0.5$ ) 时, 费米能级被精确地调控至少数自旋准带隙的中心位置, 这一位置使其对外界扰动的敏感度最低, 电子被激发跨越带隙的难度最大, 从理论上预示了该组分应具有最佳的自旋极化率稳定性.

需要指出的是, Fecher 等 [25,26] 的第一性原理计算表明, 随着 Si 含量增大, 价电子数提高引起少数自旋能带整体下移, 使费米能级由价带顶逐渐移向导带底, 并在  $x \approx 0.5$  时位于少数自旋带隙中心, 从而获得最稳定的半金属性. 进一步实验研究也证实,  $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}$  中费米能级居中可显著提高有效自旋极化率, 并表现出最弱的温度依赖性和最优的热稳定性 [27,28]. 本文关于 Al/Si 组分调控导致费米能级在少数自旋准带隙中连续移动的结果, 与上述已有理论与实验研究在整体趋势上是一致的. 因此, 本文将这一电子结构特征作为后续分析磁致伸缩行为及其组分依赖性的基础, 为理解费米能级位置、费米能级附近电子态分布与磁弹耦合之间的关系提供必要的前提.

基于上述电子结构分析, 进一步计算了  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  ( $x = 0, 0.25, 0.5, 0.75, 1$ ) 的自旋极化率  $P$  和磁致伸缩系数  $|\lambda_{001}|$  随组分  $x$  的变化关系, 结果汇总于图 2. 其中, 自旋极化率  $P$  通过在费米能级附近  $[-0.1 \text{ eV}, 0.1 \text{ eV}]$  的能量窗口内, 对态密度进行积分计算得到, 在获得优化的基态结构后, 基于收敛的电子态密度计算了费米能级处的自旋极化率  $P$ . 其计算公式如下:

$$P = \frac{D \uparrow(E_F) - D \downarrow(E_F)}{D \uparrow(E_F) + D \downarrow(E_F)}, \quad (2)$$

其中,  $D \uparrow$  和  $D \downarrow$  分别表示费米面处自旋向上和自旋向下的电子态密度.

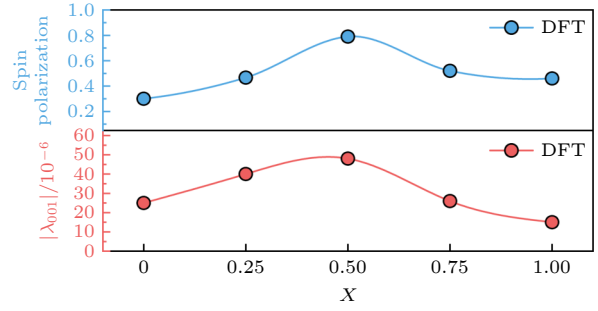


图 2 第一性原理计算的  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  的自旋极化率  $P$  与磁致伸缩  $|\lambda_{001}|$   
Fig. 2. Spin polarization ( $P$ ) and magnetostriction ( $|\lambda_{001}|$ ) of  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  by first-principles calculations.

计算结果表明,  $P$  与  $|\lambda_{001}|$  随组分  $x$  的变化呈现出高度一致的变化规律, 两者均在中间组分  $x = 0.25-0.75$  增大, 且在  $x = 0.5$  时达到最大值. 这一结果预测了磁致伸缩大小和费米能级附近态密度有关, 也就是说自旋极化率与磁致伸缩之间存在一定的内在关联. 从物理机制上理解, 当费米能级  $E_F$  处于少数自旋准带隙中心时, 不仅表现出最高的自旋极化率, 同时该能级位置对应的电子结构特征也会增强晶格对磁化方向变化的能量敏感性 [45], 从而导致更显著的磁弹耦合并表现为较大的磁致伸缩效应. 这一从电子结构层面得到的趋势, 为后续实验结果的理解提供了清晰的理论指引.

### 3.2 $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$ 的室温磁致伸缩性能

为验证理论计算的预测, 通过电弧熔炼结合热处理工艺制备了  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  多晶块体样品, 并测量了其室温磁致伸缩性能. 图 3 展示了 3 种代表

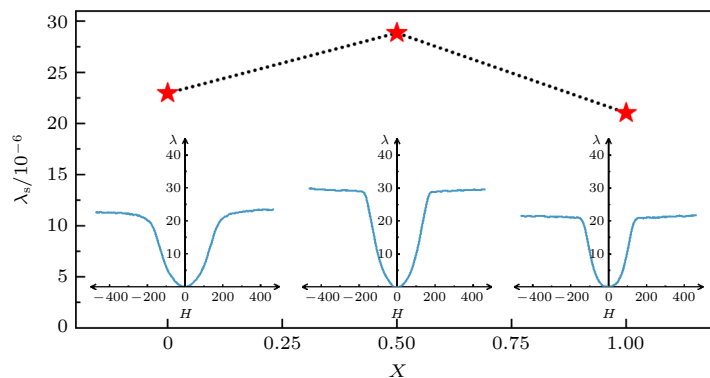


图 3 3 种代表性组分 ( $x = 0, 0.5, 1.0$ ) 的室温磁致伸缩  
Fig. 3. Room-temperature magnetostriction ( $\lambda$ - $H$ ) curves for  $x = 0, 0.5, \text{ and } 1$ .

组分 ( $x = 0, 0.5, 1.0$ ) 的室温饱和磁致伸缩系数  $\lambda_s$  随组分  $x$  的变化关系, 可以明显观察到  $\lambda_s$  值在  $x = 0.5$  时达到约  $30 \times 10^{-6}$  的最大值, 另外端点组分  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  ( $x = 0$ ) 和  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  ( $x = 1$ ) 的  $\lambda_s$  值均显著低于中间组分, 这一结果与理论计算给出的组分依赖关系表现出良好的一致性. 图 3 中的插图给出了 3 个代表性组分 ( $x = 0, 0.5, 1.0$ ) 的磁致伸缩曲线 ( $\lambda$ - $H$ ), 直观呈现了不同组分在外加磁场作用下的磁致伸缩响应差异.

先前研究表明, 这种不同组分的磁致伸缩性能变化可能源于其灵活的原子占位导致的结构变化, 高度有序的  $\text{L2}_1$  结构中, 立方对称性限制磁弹耦合的强度; 而在完全无序的 A2 结构中, 过度的随机性则会破坏磁弹耦合的相干性. 其中中间组分中 Al 原子与 Si 原子的替换导致的部分 B2 无序化有效降低了体系  $\text{L2}_1$  结构的立方对称性, 引发局域晶格畸变, 从而增强了磁弹耦合强度.

从电子结构层面来看, 随着 Al 原子含量的增大, 体系的平均价电子数减小, 电子浓度的变化直接影响化学键合特性. 在 Al 原子含量较多时, 较弱的 Co—Al 和 Fe—Al 键合导致晶格软化, 弹性模量降低; 而在 Si 原子含量较多时, 强化的 Co—Si 和 Fe—Si 键合增强了晶格刚度. 另外, 在  $x = 0$  和  $x = 1$  时, 费米能级位于少数自旋准带隙的边缘附近, 使得费米能级邻近更容易出现能量间隔较小的占据/未占据能级对. 由于磁晶各向异性能  $E_{\text{MCA}}$  本质上源于自旋-轨道耦合 (SOC) 对这些能级对的耦合贡献, 其大小及其对应变的响应强度对费米能级附近的能带分布更敏感. 因此, 当费米能级靠近准带隙边缘时, SOC 诱导的磁晶各向异性能对应变的敏感性相对较弱, 导致磁弹耦合强度受限, 从

而表现出较小的磁致伸缩. 而在  $x = 0.5$  时, 费米能级位于少数自旋准带隙的中心区域, 自旋极化率达到最大且对热扰动更为稳定, 同时该电子结构更有利于提升 SOC 诱导的  $E_{\text{MCA}}$  及其对应变的响应 (即更大的  $dE_{\text{MCA}}/d\varepsilon$ ), 从而增强磁弹耦合并最终导致更显著的磁致伸缩效应.

### 3.3 低温磁致伸缩行为与温度稳定性

通过 Al 和 Si 互替可以有效调控费米能级  $E_F$  在少数自旋准带隙中的位置, 而费米能级  $E_F$  所处不同位置对热扰动的表现也存在明显差别. 在半金属中, 当费米能级  $E_F$  接近准带隙边缘时, 热扰动容易影响电子态的分布, 进而破坏半金属性, 当费米能级  $E_F$  位于准带隙中心时, 其与准带隙边缘保持约 0.4 eV 的能量距离, 这种位置使其具有最优的热稳定性. 由此可以推测其磁致伸缩性能也相应对于温度的敏感程度不同, 进一步测量了代表性样品 ( $x = 0, 0.5, 1.0$ ) 从 300 K 降至 80 K 的磁致伸缩曲线, 结果如图 4 所示. 全部组分的变温  $\lambda$ - $H$  曲线见补充材料图 S4.

从图 4 可以看出, 所有样品的  $\lambda_s$  值均随温度降低而明显增大, 这是由于低温下热扰动减小, 磁有序增强, 同时低温下晶格热振动减弱, 减少了对磁畴转向的阻碍, 使磁矩在外场下更易协同排列, 从而强化了磁弹耦合效应. 然而, 不同组分间表现出显著的区别在于  $\lambda_s$  随温度变化的幅度, 我们计算了 300 K 与 80 K 下饱和磁致伸缩系数  $\lambda_s$  的增益  $R$ , 其中  $x = 0.5$  与  $x = 1$  的  $\lambda$ - $H$  曲线在低温下饱和后呈线性增大趋势, 为了避免测量手段的误差, 取饱和点附近的值进行了计算. 通过对比 3 个组分的  $\lambda$ - $H$  曲线在不同温度下的演化规律, 可以

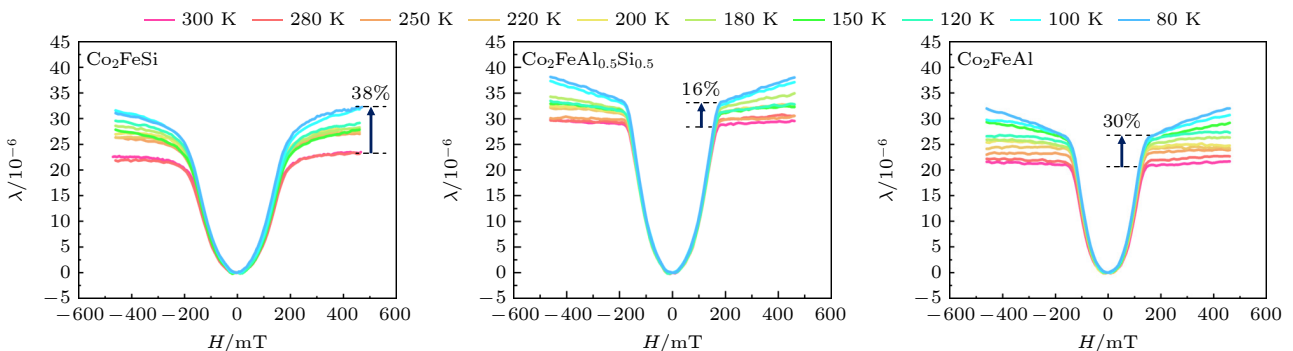


图 4  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  ( $x = 0, 0.5, 1.0$ ) 的变温  $\lambda$ - $H$

Fig. 4. Temperature-dependent  $\lambda$ - $H$  curves for  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  ( $x = 0, 0.5, 1.0$ ).

直观地看出, 两端组分的  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  和  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  在 300 K 下饱和磁致伸缩最小, 随温度降低至 80 K 后, 其饱和磁致伸缩系数  $\lambda_s$  分别提升了约 38% 和 30%,  $\lambda_s$  值随温度变化更为显著; 而中间组分  $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}$  在 300 K 下饱和磁致伸缩最大, 但在 80 K 时饱和磁致伸缩系数  $\lambda_s$  仅提升了约 16%,  $\lambda_s$  增大的幅度明显小于其他两个端点组分, 这初步表明该组分具有良好的温度稳定性. 这一现象与文献 [28] 中报道的该组分自旋极化率具有最弱温度依赖性的结论相对应. 这种差异可以从电子结构的角度得到理解, 由于  $x = 0.5$  时费米能级位于少数自旋准带隙的中心区域, 有效抑制了温度变化对电子态的扰动, 使得决定磁弹耦合强度的电子结构在温度变化时保持相对稳定, 最终表现为宏观磁致伸缩性能的良好温度稳定性.

铁磁体中热扰动对磁有序的削弱主要源于自旋波的产生, 而非单个自旋的独立翻转. 自旋波的激发能量更低, 因此在低温区域更易产生, 从而引起磁化强度的下降. 依据自旋波理论, 在远低于居里温度  $T_c$  的范围内, 铁磁体自发磁化强度随温度的衰减可通过 Bloch  $T^{3/2}$  定律来描述, 即铁磁体的自发磁化强度  $M(T)$  相对于其绝对零度的值  $M(0)$  的衰减与温度  $T^{3/2}$  成正比 [46], 如下式:

$$M(T) = M(0)(1 - BT^{3/2}). \quad (3)$$

对于典型的半金属, 其在低温下的自旋极化率  $P$  通常正比于磁化强度  $M$ . 因此, 自旋极化率  $P(T)$  的衰减也应遵循与  $M(T)$  相同的温度依赖关系. 对于能隙狭窄或费米能级与导带或价带边缘之间的能量间隔小于热激活能的材料, 一般情况下不属于半金属. 已有研究表明  $\text{Co}_2\text{FeAl}_{0.5}\text{Si}_{0.5}$  的有效自旋极化率  $P_{\text{eff}}$  的衰减完美地符合 Bloch  $T^{3/2}$  定律 [27], 表示为

$$P_{\text{eff}} = P_0(T)(1 - \alpha T^{3/2}). \quad (4)$$

磁致伸缩是磁弹耦合强度的宏观体现. 在微观上, 其源于自旋-轨道耦合, 即电子的自旋取向与其轨道运动相互关联, 而轨道运动直接与晶格相连. 饱和磁致伸缩系数  $\lambda_s$  的大小, 本质上反映了在磁场作用下, 所有自旋沿同一方向排列时, 由自旋-轨道耦合所能引发的最大晶格应变. 因此,  $\lambda_s$  与系统的磁有序程度直接相关. 正如自旋波的激发会降低磁化强度  $M$  一样, 这些集体性的自旋涨落也会削弱宏观的自旋排列一致性, 从而降低由自旋-轨道

耦合所能产生的最大应变. 也就是说, 自旋波的热激发同样会导致  $\lambda_s$  的衰减. 由于在自旋波主导的低温区,  $\lambda_s(T)$  可近似写成归一化磁化强度  $M(T)$  的函数, 因此其低温衰减可呈现与 Bloch  $T^{3/2}$  类似的形式:

$$\lambda_s(T) = \lambda_s(0)(1 - \beta T^{3/2}), \quad (5)$$

其中,  $\lambda_s(T)$  是温度  $T$  下的饱和磁致伸缩系数;  $\lambda_s(0)$  是外推至绝对零度的本征磁致伸缩系数;  $\beta$  是磁致伸缩衰减系数, 是一个与材料相关的常数, 反映了磁致伸缩对温度的敏感程度.

为了定量表征磁致伸缩的温度稳定性并深入探究其微观物理机制, 我们提取了  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  ( $x = 0, 0.25, 0.5, 0.75, 1$ ) 在不同温度下的饱和磁致伸缩系数  $\lambda_s$  并用 (5) 式进行拟合. 图 5 展示了各组分饱和磁致伸缩系数  $\lambda_s$  与  $T$  的关联以及相应的拟合结果. 需要指出的是, Co 基 Heusler 合金通常具有较高的居里温度. 已有许多研究表明,  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  体系在整个成分范围内的居里温度  $T_c$  普遍超过 1000 K [47–49]. 相比之下, 本研究的实验测量温度范围为 80–300 K, 其中最高实验温度仅约为估算  $T_c$  的 30%, 明显符合 Bloch  $T^{3/2}$  定律远低于材料居里温度的适用条件.

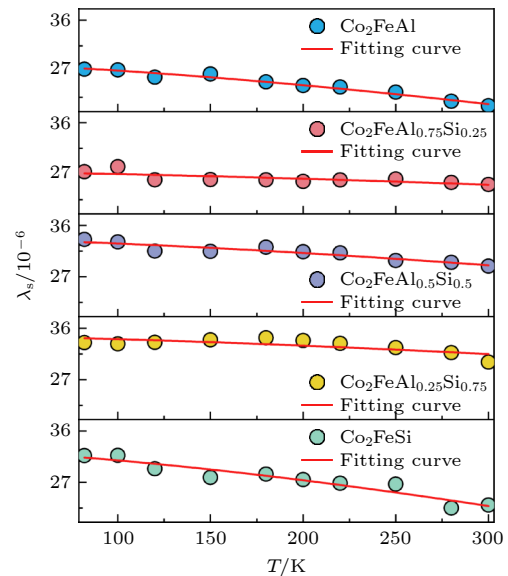


图 5  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  的  $\lambda_s$ - $T$  关系与拟合曲线

Fig. 5.  $\lambda_s$ - $T$  relation and fitting curves for  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$ .

拟合结果显示, 所有组分的  $\lambda_s$  随温度变化与拟合曲线保持良好一致性, 证明  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  合金磁致伸缩性能的衰减原因包含体相的自旋波激发, 这是一种本征的、可控的物理机制. 自旋波是

铁磁体中低能量的集体激发, 在低温下成为破坏磁有序的主要机制, 该结果表明磁致伸缩作为与磁有序密切相关的物理量, 其温度行为也遵循相同的规律. 另外根据拟合曲线, 可以发现不同组分的衰减程度有明显区别, 其中中间 3 个组分  $\lambda_s$  随温度的变化相对平稳, 而两端组分的  $\text{Co}_2\text{FeSi}$  和  $\text{Co}_2\text{FeAl}$  的  $\lambda_s$  衰减程度明显大于中间 3 个组分, 由此也可以初步判断中间组分的温度稳定性较好.

磁致伸缩衰减系数  $\beta$  是衡量材料磁致伸缩随温度变化敏感程度的一个重要参数. 根据拟合结果提取了所有样品的  $\beta$  值, 如图 6 所示, 不同组分的衰减系数  $\beta$  呈现出明显差异, 其中中间组分的  $\beta$  值明显小于端点组分, 表明其磁致伸缩性能随温度变化最为平稳, 体现出优异的温度稳定性. 需要指出的是,  $\beta$  在中间组分区间内可能呈现轻微的非单调变化, 这反映了电子结构效应与结构有序度等因素的共同作用, 但不影响中间组分整体温度稳定性优于端点组分的趋势性结论. 从微观层面来看, 这一特性与其电子结构密切相关, 当费米能级位于少数自旋准带隙的中心区域时, 从费米能级到能带边缘的能量尺度大于热扰动能量, 这将有效抑制热激发电子对少数自旋通道的占据. 在这种情况下, 自旋极化率对温度的依赖性主要由材料本征的自旋波激发所主导, 因此表现出相对微弱且规则的 Bloch  $T^{3/2}$  型衰减行为. 这一机制为宏观磁致伸缩温度稳定性提供了合理的物理解释, 也进一步揭示了电子结构在决定磁弹响应温度行为中的关键作用.

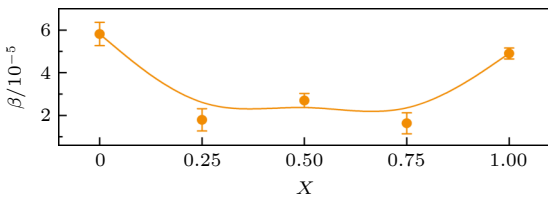


图 6  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  的  $\beta$  随组分  $x$  变化关系  
Fig. 6. Composition dependence of  $\beta$  with  $x$  in  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$ .

为更系统地理解上述现象, 将 3 个关键参量的组分依赖关系汇总于图 7. 其中  $R$  表示 80 K 相对于 300 K 的饱和磁致伸缩增益,  $R$  越小意味着温度变化对  $\lambda_s$  的影响越弱, 即温度稳定性越高; 衰减系数  $\beta$  表示从拟合曲线中获得的定量衰减率, 其大小直接反映磁致伸缩随温度衰减的程度,  $\beta$  越小表示材料对热激发更不敏感; 而本征自旋极化率  $P$  则

基于第一性原理计算, 用以表征材料的半金属性及其潜在的自旋输运能力.

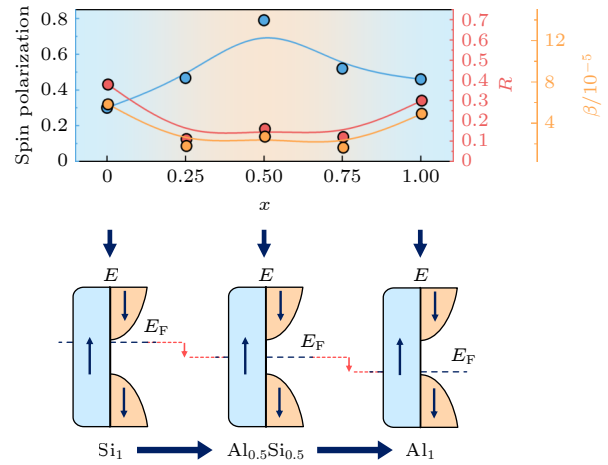


图 7  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  的  $P, R, \beta$  随组分  $x$  变化关系  
Fig. 7. Summary of the composition dependence of  $P, R,$  and  $\beta$  for  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$ .

图 7 所示的 3 条曲线展现出高度一致的组分依赖关系, 自旋极化率  $P$  在中间组分达到最大值, 而低温增益  $R$  与衰减系数  $\beta$  均在相同组分附近取得最小值. 这一趋势表明, 中间组分同时具备高自旋极化率、较大的饱和磁致伸缩系数以及优异的温度稳定性. 这一现象可以归因于费米能级位置的有效调控, 当费米能级处于少数自旋准带隙中心时, 自旋极化率得到提升, 同时也增强了 SOC 诱导的磁晶各向异性及其磁弹响应, 使磁致伸缩达到最大. 而在此电子结构下热激发电子难以占据少数自旋通道, 自旋波热激发对磁有序与磁弹响应的破坏作用减弱, 使得磁有序结构在温度变化下更为稳固.

值得强调的是, 费米能级精确定位于准带隙中心不仅强化了磁致伸缩效应本身, 也赋予体系较高的对温度扰动的鲁棒性, 使得高自旋极化与高磁致伸缩性能得以同时实现. 这一结果从电子结构层面揭示了自旋极化率与磁致伸缩之间的内在关联, 为构筑兼具磁弹响应与高效自旋输运特性的多功能 Heusler 合金提供了有意义的理论指导.

## 4 结 论

本研究通过理论计算与实验测量的结合, 系统揭示了  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  体系中自旋极化率与磁致伸缩性能之间的内在联系及其协同调控机制. 结果表

明, 利用 Al/Si 原子化学替代改变价电子数进而调控费米能级的位置, 是实现性能优化的关键途径. 当费米能级位于少数自旋准带隙的中心区域时, 体系不仅呈现接近理想的自旋极化率, 其饱和磁致伸缩系数也达到最大值. 上述结果表明, 通过组分调控费米能级及其附近电子态分布, 可以有效调制 SOC 诱导的磁晶各向异性性能对应变的响应, 从而实现了对磁致伸缩行为的调控. 此外, 磁致伸缩随温度的衰减较好的符合 Bloch  $T^{3/2}$  定律, 说明自旋波的热激发是影响磁弹性能的主要内在机制. 而中间组分所表现出的优异温度稳定性, 则可归因于其费米能级位于少数自旋准带隙的中心区域, 从而有效抑制了热激发导致的电子及自旋涨落. 综上, 本研究从电子结构层面建立起费米能级调控、自旋极化率以及磁致伸缩性能之间的系统关联, 深化了对半金属材料磁弹行为的理解, 也为设计兼具高自旋极化与大磁致伸缩特性的多功能材料提供了重要的理论依据.

## 参考文献

- [1] Jin T Y, Wu W, Jiang C B 2014 *Scr. Mater.* **74** 100
- [2] Dean J, Bryan M T, Morley N A, Hrkac G, Javed A, Gibbs M R J, Allwood D A 2011 *J. Appl. Phys.* **110** 043902
- [3] Chappert C, Bruno P 1988 *J. Appl. Phys.* **64** 5736
- [4] Apicella V, Clemente C S, Davino D, Leone D, Visone C 2019 *Actuators* **8** 45
- [5] Deng Z, Dapino M J 2017 *Smart Mater. Struct.* **26** 103001
- [6] Hristoforou E, Ktena A 2007 *J. Magn. Magn. Mater.* **316** 372
- [7] Kim Y Y, Kwon Y E 2015 *Ultrasonics* **62** 3
- [8] Olabi A G, Grunwald A 2008 *Mater. Des.* **29** 469
- [9] Wang L, Yuan F G 2008 *Smart Mater. Struct.* **17** 045009
- [10] de Groot R A, Mueller F M, Engen P G v, Buschow K H J 1983 *Phys. Rev. Lett.* **50** 2024
- [11] Hayakawa J, Ikeda S, Matsukura F, Takahashi H, Ohno H 2005 *Jpn. J. Appl. Phys.* **44** L587
- [12] Kimura T, Hashimoto N, Yamada S, Miyao M, Hamaya K 2012 *NPG Asia Mater.* **4** e13
- [13] Lee Y M, Hayakawa J, Ikeda S, Matsukura F, Ohno H 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 212507
- [14] Parkin S 2006 *MRS Bull.* **31** 389
- [15] Sander D (Coey M, Parkin S, ed.) 2020 *Handbook of Magnetism and Magnetic Materials* (Cham: Springer International Publishing) pp1–45
- [16] Fujii S, Sugimura S, Ishida, Asano S 1990 *J. Phys. Condens. Matter* **2** 8583
- [17] Galanakis I, Dederichs P H, Papanikolaou N 2002 *Phys. Rev. B* **66** 174429
- [18] Galanakis I, Mavropoulos P, Dederichs P H 2006 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **39** 765
- [19] Balke B, Wurmehl S, Fecher G H, Felser C, Kübler J 2008 *Sci. Technol. Adv. Mater.* **9** 014102
- [20] Inomata K, Okamura S, Miyazaki A, Kikuchi M, Tezuka N, Wojcik M, Jedryka E 2006 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **39** 816
- [21] Tezuka N, Ikeda N, Sugimoto S, Inomata K 2007 *Jpn. J. Appl. Phys.* **46** L454
- [22] Kämmerer S, Thomas A, Hütten A, Reiss G 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 79
- [23] Okamura S, Miyazaki A, Sugimoto S, Tezuka N, Inomata K 2005 *Appl. Phys. Lett.* **86** 232503
- [24] Sakuraba Y, Hattori M, Oogane M, Ando Y, Kato H, Sakuma A, Miyazaki T, Kubota H 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 192508
- [25] Fecher G H, Felser C 2007 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **40** 1582
- [26] Nakatani T M, Rajanikanth A, Gercsi Z, Takahashi Y K, Inomata K, Hono K 2007 *J. Appl. Phys.* **102** 033916
- [27] Shan R, Sukegawa H, Wang W H, Kodzuka M, Furubayashi T, Ohkubo T, Mitani S, Inomata K, Hono K 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 246601
- [28] Tezuka N, Ikeda N, Sugimoto S, Inomata K 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 252508
- [29] Wu R Q, Chen L J, Shick A, Freeman A J 1998 *J. Magn. Magn. Mater.* **177–181** 1216
- [30] Wang D S, Wu R, Freeman A J 1993 *Phys. Rev. B* **47** 14932
- [31] Liu X H, Lin J B, Liu Y H, Jin Y J 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 107104 (in Chinese) [刘新浩, 林景波, 刘艳辉, 金迎九 2011 物理学报 **60** 107104]
- [32] Zhang Y N, Wu R Q 2010 *Phys. Rev. B* **82** 224415
- [33] Yao L, Lu G H, Du J, Lau Y C, Xi X K, Wang W H 2025 *Acta Phys. Sin.* **74** 147303 (in Chinese) [姚亮, 芦光辉, 杜杰, 刘永昌, 郗学奎, 王文洪 2025 物理学报 **74** 147303]
- [34] Kresse G, Furthmüller J 1996 *Phys. Rev. B* **54** 11169
- [35] Kresse G, Hafner J 1994 *Phys. Rev. B* **49** 14251
- [36] Kresse G, Joubert D 1999 *Phys. Rev. B* **59** 1758
- [37] Blöchl P E 1994 *Phys. Rev. B* **50** 17953
- [38] Perdew J P, Burke K, Ernzerhof M 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 3865
- [39] Monkhorst H J, Pack J D 1976 *Phys. Rev. B* **13** 5188
- [40] Hobbs D, Kresse G, Hafner J 2000 *Phys. Rev. B* **62** 11556
- [41] Marsman M, Hafner J 2002 *Phys. Rev. B* **66** 224409
- [42] Wang X, Wu R, Wang D S, Freeman A J 1996 *Phys. Rev. B* **54** 61
- [43] Wu R, Freeman A J 1999 *J. Magn. Magn. Mater.* **200** 498
- [44] Zhang Y, Wu R 2011 *IEEE T. Magn.* **47** 4044
- [45] Yang Y M, Li J, Ma H R, Yang G, Mao X J, Li C C 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 046101 (in Chinese) [杨艳敏, 李佳, 马洪然, 杨广, 毛秀娟, 李聪聪 2019 物理学报 **68** 046101]
- [46] Gu B X, Zhang S Y, Du Y W 2001 *Chin. Phys. Lett.* **18** 598
- [47] Wurmehl S, Fecher G H, Ksenofontov V, Casper F, Stumm U, Felser C, Lin H J, Hwu Y 2006 *J. Appl. Phys.* **99** 08J103
- [48] Umetsu R Y, Okubo A, Kainuma R 2012 *J. Appl. Phys.* **111** 073909
- [49] Kourov N I, Marchenkov V V, Perevozchikova Y A, Weber H W 2017 *Phys. Solid State* **59** 898

# Magnetostriction in Fermi-level-tuned half-metallic Co-based Heusler alloys\*

YAO Liang<sup>1)2)</sup> WU Pengju<sup>1)</sup> DU Jie<sup>1)</sup> LAU Yongchang<sup>2)3)</sup>  
 XI Xuekui<sup>2)†</sup> WANG Wenhong<sup>1)‡</sup>

1) (*School of Electronics and Information Engineering, Tiangong University, Tianjin 300387, China*)

2) (*Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

3) (*University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

( Received 20 November 2025; revised manuscript received 31 December 2025 )

## Abstract

Magnetostriction and spin polarization are two fundamental yet typically uncorrelated properties of magnetic materials. While magnetostriction reflects the strength of magnetoelastic coupling, spin polarization is determined by the spin-resolved electronic states near the Fermi level. Establishing a link between these two properties remains a significant challenge. In this work, we demonstrate that Fermi-level engineering in  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  Heusler alloys provides an effective route to simultaneously enhance spin polarization, magnetostriction and temperature stability. First-principles calculations reveal that  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  exhibits a strongly suppressed density of states in the minority-spin channel near the Fermi level across the entire composition range, characteristic of a minority-spin pseudogap. With increasing Al/Si ratio, the Fermi level shifts continuously from the lower edge of the pseudogap ( $x = 1$ ) to the upper edge ( $x = 0$ ), and resides close to the center of the pseudogap at  $x \approx 0.5$ . This electronic configuration leads to the highest calculated spin polarization and the maximum magnetostriction coefficient, both showing pronounced non-monotonic composition dependence. Polycrystalline samples across  $x = 0-1$  were synthesized to verify these predictions. Room-temperature magnetostriction measurements confirm that the saturation magnetostriction  $\lambda_s$  peaks at  $x \approx 0.5$ , in excellent agreement with theoretical calculations. Temperature-dependent measurements (80–300 K) show that the magnetostriction of all compositions follows the Bloch  $T^{3/2}$  law, indicating that thermal excitation of spin waves is one of the primary mechanisms responsible for the temperature-induced reduction of magnetostriction. The extracted decay constant  $\beta$  is significantly reduced for intermediate compositions compared with the end-member alloys, and the low-temperature enhancement ratio  $R$  is also markedly smaller in this composition range, reflecting superior magnetostriction stability against thermal excitations. This enhanced stability can be attributed to the improved stability of spin polarization when the Fermi level resides near the center of the minority-spin pseudogap, which in turn weakens the impact of thermally excited spin waves on the magnetoelastic response. Further analysis indicates that the enhanced effectiveness of spin-orbit-coupling-induced modulation of magnetocrystalline anisotropy in this electronic configuration constitutes the key microscopic mechanism linking spin and lattice degrees of freedom, thereby enabling strong magnetoelastic coupling. These results establish an electronic-structure-based mechanism linking magnetostriction and spin polarization and provide a design principle for multifunctional Heusler materials with coupled magnetic and magnetoelastic performance.

**Keywords:** magnetostriction, spin polarization, Co-based Heusler alloys

DOI: [10.7498/aps.75.20251581](https://doi.org/10.7498/aps.75.20251581)

CSTR: [32037.14.aps.75.20251581](https://cstr.cn/32037.14.aps.75.20251581)

\* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2024YFF0726700) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12274321, 12361141823).

† Corresponding author. E-mail: [xi@iphy.ac.cn](mailto:xi@iphy.ac.cn)

‡ Corresponding author. E-mail: [wenhongwang@tiangong.edu.cn](mailto:wenhongwang@tiangong.edu.cn)

## 费米能级调控半金属Co基Heusler合金的磁致伸缩效应

姚亮 吴鹏举 杜杰 刘永昌 郝学奎 王文洪

### Magnetostriction in Fermi-level-tuned half-metallic Co-based Heusler alloys

YAO Liang WU Pengju DU Jie LAU Yongchang XI Xuekui WANG Wenhong

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 75, 070705 (2026) DOI: 10.7498/aps.75.20251581

CSTR: 32037.14.aps.75.20251581

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.75.20251581>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

### 您可能感兴趣的其他文章

#### Articles you may be interested in

Heusler合金 $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$ 跨尺度结构有序度调控及其对磁致伸缩性能的影响

Control of cross-scale structural order of Heusler alloy  $\text{Co}_2\text{FeAl}_x\text{Si}_{1-x}$  and its influence on magnetostrictive properties

物理学报. 2025, 74(14): 147303 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250358>

缺陷对铁单质薄膜磁致伸缩与磁矩演化的影响

Effect of defects on magnetostriction and magnetic moment evolution of iron thin films

物理学报. 2022, 71(1): 017502 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211177>

基于各向异性散射的Andreev反射谱

Theory of Andreev reflection spectroscopy with anisotropic spin-dependent scattering

物理学报. 2026, 75(5): 017502 <https://doi.org/10.7498/aps.75.20251669>

$\text{Ni}_2\text{Cu}$ 基Heusler合金的电子结构、弹性参数与马氏体相变的第一性原理研究

First principles study of electronic structure, mechanical properties and possible martensitic transformation in  $\text{Ni}_2\text{Cu}$ -based Heusler alloys

物理学报. 2025, 74(4): 047101 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20241485>

Fe掺杂对Ni-Mn-Ti全d族Heusler合金马氏体相变和磁性能影响的研究

Effects of Fe doping on Martensitic Transformation and magnetic properties of Ni-Mn-Ti All-d-metal Heusler Alloy

物理学报. 2023, 72(4): 046301 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222037>

碱金属原子气室中自旋极化态的高时空分辨调制方法

A method of modulating spin-polarized states with high spatiotemporal resolution in alkali-metal atomic vapor cell

物理学报. 2025, 74(9): 090702 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20241634>