

АТОМНЫЙ БЕСПОРЯДОК И МАГНИТНЫЕ, ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ И ОПТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА СПЛАВА ГЕЙСЛЕРА Co_2CrAl

А. Д. Связжин^{a,*}, Е. И. Шредер^a, В. И. Воронин^a, И. Ф. Бергер^{a,b}, С. Е. Данилов^a

^a Институт физики металлов Уральского отделения Российской академии наук
620990, Екатеринбург, Россия

^b Институт химии твердого тела Уральского отделения Российской академии наук
620990, Екатеринбург, Россия

Поступила в редакцию 26 июля 2012 г.

Исследованы два образца сплава Co_2CrAl , подвергнутые различным режимам термообработки. Методами рентгено- и нейтронографии было установлено точное распределение атомов по подрешеткам в образцах. Используя полученные данные, в приближении когерентного потенциала были рассчитаны плотности состояний и магнитные моменты образцов. Рассчитанные величины моментов сравниваются с полученными в эксперименте. Оптическими методами исследовано влияние атомного упорядочения на электронную структуру вблизи уровня Ферми. Обсуждаются возможные причины наблюдаемой температурной зависимости электросопротивления, нетипичной для металлических сплавов.

DOI: 10.7868/S0044451013030103

1. ВВЕДЕНИЕ

Сплавы Гейслера — интерметаллические соединения, описываемые формулами X_2YZ (кристаллическая структура $L2_1$) или XYZ (структура $C1_b$). Здесь X и Y — благородные или переходные металлы, Z — элемент III–V групп. Сплавы данного семейства привлекают пристальное внимание исследователей благодаря своим необычным физическим свойствам [1–3].

Другой причиной интенсивного исследования сплавов Гейслера является теоретически предсказанная в некоторых из них зонная структура полуметаллического ферромагнетика (ПМФ). Полуметаллический ферромагнетизм впервые был открыт в сплаве Гейслера NiMnSb де Гротом и др. [4], затем к ПМФ были отнесены многие другие сплавы Гейслера [5, 6]. Полуметаллические ферромагнетики имеют металлический характер зонного спектра в системе зон с одним направлением спина и щель в плотности состояний на уровне Ферми в другой системе зон. Такие сплавы Гейслера представляют особый интерес в связи с их возможным применением в технике быстро развивающейся спинтроники [7].

Согласно результатам зонных расчетов, сплав Co_2CrAl является ПМФ с магнитным моментом $3\mu_B$ на формульную единицу [8–13]. Кривые плотности состояний идеально упорядоченного сплава Co_2CrAl для постоянной решетки, полученной в нашей работе, представлены ниже на рис. 4. Ширина щели в системе зон со спинами «вниз» варьируется от 0.18 эВ [9] до 1.32 эВ [13], в зависимости от метода расчета и величины кулоновского корреляционного потенциала U . В этом сплаве щель возникает в результате сильной гибридизации между $3d$ -состояниями Co и Cr и ближайших друг другу атомов Co . Учет спин-орбитального взаимодействия приводит к формированию дополнительных состояний внутри щели, однако степень спиновой поляризации остается высокой (около 98 %) [9]. В работе [14] сообщалось даже об обнаружении 97-процентной спиновой поляризации на образцах пленок сплава Co_2CrAl , описанных в работе [15]. Однако качество данных образцов (по причинам, изложенным ниже) и, соответственно, результаты работы [14] вызывают серьезное сомнение.

Ни в одной из опубликованных на текущий момент экспериментальных работ не сообщалось об обнаружении в образцах Co_2CrAl величины магнитного момента, близкой к теоретическим $3\mu_B$. В подавляющем большинстве случаев его значение было

*E-mail: svyazhin@imp.uran.ru

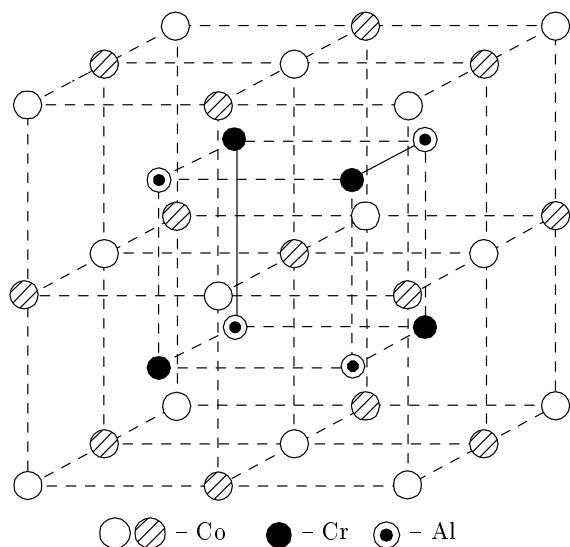


Рис. 1. Элементарная ячейка сплава Co_2CrAl . Кристаллическую решетку формируют четыре подрешетки трех разных типов

приблизительно в два раза меньше [12, 15–18]. Это двукратное отличие от теоретического значения до сих пор детально не обсуждалось. В работе [19] авторы связали низкую величину магнитного момента серии пленок сплавов $\text{Co}_2\text{Cr}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Al}$ с присутствием в них дополнительной ГПУ-фазы. Однако ни в одной другой работе присутствие данной фазы, обладающей характерной картиной рефлексов на рентгенограммах, отмечено не было.

В сплавах Гейслера отклонение величины магнитного момента от теоретически предсказанного для идеального случая традиционно связывается с неизбежным присутствием атомного беспорядка в реальных образцах. Действительно, для сплава Co_2CrAl теоретические расчеты предсказывают зависимость магнитного момента от типа и степени беспорядка [11, 12]. Некоторые типы беспорядка могут приводить к уменьшению магнитного момента сплава. В частности, как показали наши расчеты, в случае полного беспорядка между подрешетками Co и Cr (см. рис. 1) магнитный момент удастся снизить до $1.65\mu_B$.

Рассматривая совместно экспериментальные результаты и результаты расчетов для образцов с беспорядком, можно предположить очень низкую и очень похожую степень атомного упорядочения во всех образцах сплава Co_2CrAl , исследованных ранее. Это кажется маловероятным, хотя и возможным в принципе. Другая возможная причина — некорректное описание магнитных свойств сплава

Co_2CrAl методами расчета электронной структуры *ab initio*. Такая ситуация наблюдалась для сплава Гейслера Fe_2TiAl [3, 16]. Даже с учетом присутствия некоторого количества фазы Лавеса Fe_2Ti в образцах, экспериментально полученное значение величины магнитного момента было намного меньше теоретического. Если результаты расчетов *ab initio* некорректны и для Co_2CrAl , возможность его применения в устройствах спиновой электроники ставится под сомнение.

Для определения истинной причины низкой экспериментальной величины магнитного момента образцов Co_2CrAl необходимо обладать количественными данными об атомном упорядочении в исследуемых образцах. Однако исследование атомного порядка в образцах во всех опубликованных ранее статьях, по сути, не проводилось вовсе. Порядок определялся простой визуальной оценкой рентгенограмм; в некоторых работах рентгенограммы образцов вообще не были приведены. Кудрявцевым и др. [15] была предпринята самая серьезная на текущий момент попытка синтеза набора пленок данного сплава с различной, контролируемой степенью атомного упорядочения. По заявлению авторов, они получили пленки очень высокого качества, с высокой степенью дальнего порядка. Представленные же результаты структурных исследований и элементного анализа образцов говорят, скорее, об обратном. В пленках был отмечен переизбыток хрома (больше 12 ат. %), на рентгенограммах отсутствовали сверхструктурные пики, соответствующие формированию $L2_1$ - и $B2$ -фаз. Кроме того, данные об атомном распределении по подрешеткам представлены не были.

Таким образом, определить причину малой наблюдаемой экспериментально величины магнитного момента на основании опубликованных работ невозможно. В данной работе мы представляем результаты исследования двух массивных образцов сплава Гейслера Co_2CrAl , подвергнутых различной термообработке. Методами дифракции нейтронов и рентгеновских лучей в них были определены точные распределения атомов по подрешеткам. С помощью полученных данных были рассчитаны магнитные моменты образцов, которые затем сравнивались с экспериментальными.

Помимо причины низкой величины магнитного момента, значительный интерес вызывает взаимосвязь между атомным беспорядком и отрицательным температурным коэффициентом сопротивления (ТКС), ранее обнаруженным в образцах Co_2CrAl [15, 18]. Известно, что в спла-

вах, состоящих из металлических компонентов, отрицательный ТКС обычно является следствием сильного атомного беспорядка [20]. Имеются, однако, другие возможные физические причины наблюдаемого поведения [21], поэтому необходимы исследования электросопротивления образцов с хорошо определенной степенью атомного порядка. В работе представлены исследования температурной зависимости электросопротивления наших образцов, измеренной в интервале 4–700 К. Кроме того, для изучения влияния атомного упорядочения на электронную структуру вблизи уровня Ферми были проведены исследования оптических свойств образцов.

2. ДЕТАЛИ ЭКСПЕРИМЕНТА И РАСЧЕТОВ

Образцы сплава Co_2CrAl были выплавлены в индукционной печи, затем трижды переплавлены для лучшего перемешивания компонент сплава. Далее один из образцов (№ 1) был охлажден вместе с печью; второй образец (№ 2) был дополнительно отожжен при 920 К в течение 100 ч, затем также охлажден с печью. Рентгеновский флуоресцентный анализ, проведенный на спектрометре JEOL-733, определил точный состав обоих образцов как $\text{Co}_{1.98}\text{Cr}_{0.98}\text{Al}_{1.03}$.

Образцы для структурных, оптических, магнитных и электрических исследований вырезались из одного слитка электроискровым способом. Зеркальная поверхность для оптических исследований была получена механической шлифовкой на микропорошках карбида бора разной дисперсности, полированием на окиси хрома и электрополированием в хлорно-уксусном электролите.

Рентгеноструктурные исследования проведены на дифрактометре ДРОН-6 в K_α -излучении хрома и меди. Нейтронографические исследования проведены на стационарном исследовательском атомном реакторе ИВВ-2М [22]. Для измерений использовался нейтронный дифрактометр Д7а высокого разрешения, расположенный на горизонтальном канале реактора. Длина волны монохроматических нейтронов составляла 1.532 \AA , угловое разрешение дифрактометра $\Delta d/d = 0.2\%$. Уточнение структурных параметров выполнено методом полнопрофильного анализа Ритвельда [23] с использованием программного пакета «Fullprof» [24].

Дисперсия действительной части диэлектрической проницаемости $\epsilon_1(\omega)$ и оптической проводимости $\sigma(\omega)$ (ω — циклическая частота световой вол-

ны) в области спектра $E = (0.1\text{--}4) \text{ эВ}$ измерена эллипсометрическим методом Битти при комнатной температуре. Магнитные измерения проведены на СКВИД-магнитометре (Quantum Design) в интервале температур $T = 4\text{--}293 \text{ К}$. Температуры Кюри определены из температурной зависимости ac -восприимчивости в поле 10 Э при частоте 80 Гц в интервале 280–400 К. Температурная зависимость электросопротивления $\rho(T)$ в диапазоне 4.2–700 К измерялась с применением стандартной четырехконтактной методики.

Расчеты упорядоченных и разупорядоченных структур проведены с использованием спин-поляризованного релятивистского метода Корринги–Кона–Ростокера в приближении когерентного потенциала в пакете SPRKKR [25]. Неприводимая часть зоны Бриллюэна разбивалась на сетку $10 \times 10 \times 10$ точек. Обменно-корреляционный функционал был взят в виде, предложенном в работе [26]. Расчеты для упорядоченных и разупорядоченных сплавов проведены в симметрии $Fm - 3m$; атомы Co, Cr, Al размещены соответственно в позициях $8c$ (0.25, 0.25, 0.25), $4b$ (0.5, 0.5, 0.5), $4a$ (0, 0, 0). Во всех расчетах использовались постоянные решетки, полученные в эксперименте. При расчете плотности состояний к энергии добавлялась малая мнимая часть 0.001 Ry.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

3.1. Исследование структуры и атомного порядка

Визуальный контроль рентгенограмм показывает, что дифракционные картины обоих образцов соответствуют формированию $L2_1$ -фазы (см. рис. 2б, 3б). Во многих работах сообщалось о мультифазном характере образцов сплава Co_2CrAl (например, $L2_1 + B2 + A2$ [27], $A2 + B2$ [28]). Более того, в работе [29] авторы утверждают, что сплав стехиометрического состава Co_2CrAl в однофазном состоянии получить невозможно. В наших образцах существование других фаз отмечено не было: если таковые и присутствуют, то их объемная доля лежит за пределами чувствительности дифракционных методов.

Различные соотношения интенсивностей пиков на рентгенограммах указывают на различное количество антиузельных атомов (атомов, находящихся не в своей подрешетке) в образцах. Чтобы определить действительное распределение атомов трех типов по трем подрешеткам, необходимы три типа излучения. Однако в случае Co_2CrAl атомы Co и Cr

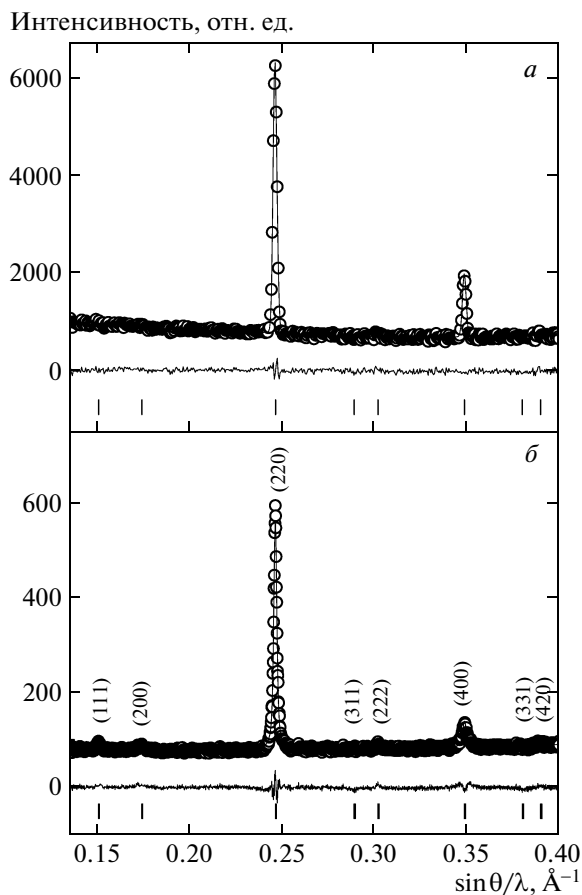


Рис. 2. Нейтроно- (а) и рентгенограммы (б) образца № 1. Светлые точки — экспериментальные данные, огибающая их линия — расчетная нейтронограмма, нижняя линия — разность между экспериментом и расчетом, штрихи — угловое положение рефлексов

имеют близкие амплитуды рассеяния рентгеновских лучей, а атомы Cr и Al — близкие амплитуды рассеяния нейтронов (см. табл. 1). Это обстоятельство позволяет определить расселение атомов в наших образцах по подрешеткам из рентгено- и нейтронограмм. Рентгенограммы и нейтронограммы, полученные для каждого из образцов, обрабатывались согласованно. Заполнение каждой кристаллографической позиции атомами связывалось с общим количеством атомов в решетке. (Поскольку отклонение состава от стехиометрического было незначительным, в расчетах он принимался идеальным.) Дифрактограммы исследованных образцов совместно с результатами расчетов приведены на рис. 2 и 3. Для обоих образцов наблюдается хорошее согласие между расчетами и экспериментом. Уточненные структурные параметры образцов приведены в табл. 2.

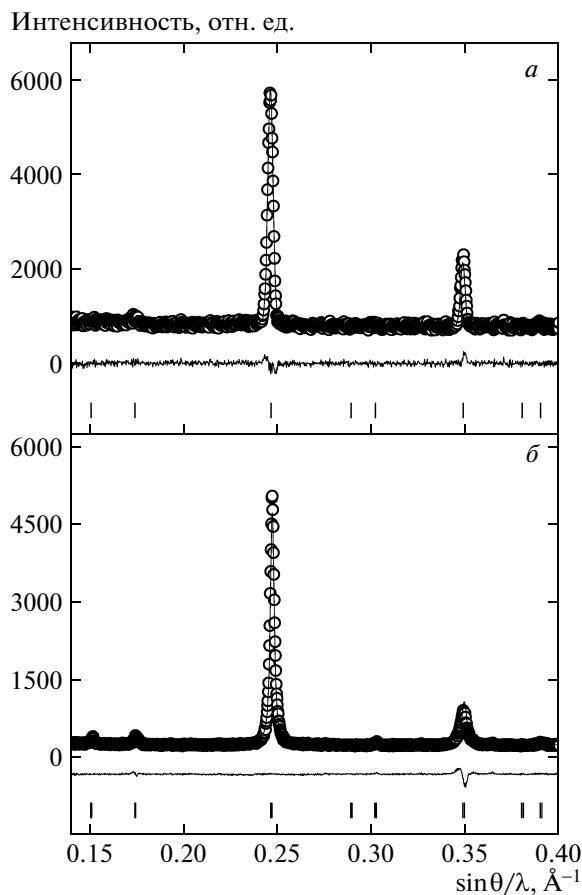


Рис. 3. Нейтроно- (а) и рентгенограммы (б) образца № 2. Обозначения те же, что и на рис. 2

Таблица 1. Амплитуды рассеяния рентгеновских лучей и нейтронов компонентами Co₂CrAl

Атом	Рентген. лучи	Нейтроны
Co	0.24	0.25
Cr	0.27	0.36
Al	0.13	0.35

В табл. 3 приводится рассчитанное распределение атомов по подрешеткам в исследованных образцах. Из таблицы следует, что образец № 2 упорядочен значительно лучше образца № 1. В образце № 1 атомы Cr равномерно распределены между четырьмя подрешетками. Подрешетка Cr заселена преимущественно атомами Co. В образце № 2 атомы Cr почти полностью занимают свою подрешетку и лишь небольшую ее часть — антиузельные атомы Co. Ко-

Таблица 2. Параметр решетки, изотропный фактор Дебая–Валлера, факторы сходимости для исследуемых образцов сплава Co_2CrAl

		Образец №1	Образец №2
$a, \text{Å}$		5.7309 ± 0.0002	5.7322 ± 0.0003
$B, \text{Å}^{-2}$		0.72(3)	0.46(2)
Нейтроны	R_w	2.41	2.57
	R_{wp}	3.02	3.36
	R_B	5.85	5.61
	χ^2	1.28	1.63
Рентген-лучи	R_w	6.9	7.7
	R_{wp}	8.04	10.1
	R_B	6.59	8.0
	χ^2	0.97	3.2

Таблица 3. Распределение атомов по подрешеткам в исследуемых образцах

		Подрешетка		
		Co	Cr	Al
Образец №1	Co	1.25	0.75	—
	Cr	0.50	0.25	0.25
	Al	0.25	—	0.75
Образец №2	Co	1.54	0.17	0.29
	Cr	0.17	0.83	—
	Al	0.29	—	0.71

личество антиузельных атомов Al примерно одинаково для обоих образцов, они занимают позиции исключительно в подрешетке Co.

3.2. Магнитные свойства: эксперимент и теория

Экспериментальные исследования магнитной восприимчивости показали, что оба образца являются обычными ферромагнетиками. Никаких свидетельств присутствия антиферромагнитного упорядочения в образцах обнаружено не было. Температура Кюри образца №1 составляет 334 К, образца №2 — 330 К. Магнитный момент, полученный из зависимости $M(H)$ при $T = 4$ К, равен $1.56\mu_B$ и $1.53\mu_B$ соответственно для образцов №1 и №2. С учетом результатов структурных исследований можно утверждать, что магнитные свойства

сплава не зависят от атомного порядка. Как отмечалось выше, все образцы, исследованные ранее, имеют практически те же значения магнитных моментов, что и в нашем случае.

Используя данные табл. 3, мы провели расчеты электронной структуры и магнитных моментов наших образцов. Рассчитанные спектры плотности состояний представлены на рис. 4. Конечная плотность состояний на уровне Ферми в щели для идеального кристалла возникает из-за добавки мнимой части к энергии в расчете. Порядок расположения рисунков выбран таким образом, чтобы продемонстрировать трансформацию спектров при переходе от наиболее к наименее упорядоченному сплаву. Как видно на рисунках, даже в наиболее упорядоченном образце №2 атомный беспорядок полностью замыкает щель. Это происходит, в основном, в результате выхода на уровень Ферми d -состояний «нормальных» и антиузельных атомов Co.

В табл. 4 (построенной по принципу табл. 3) приведены расчетные значения и направления магнитных моментов для каждого типа атомов в каждой подрешетке. В образце №1 магнитный момент уменьшается по сравнению со случаем идеального кристалла из-за значительного количества антиферромагнитно упорядоченных атомов Cr. Увеличение магнитного момента в образце №2 связано с большим количеством антиузельных атомов Co в подрешетке Al, формирующих ферромагнитный кластер с соседними атомами Co.

Очевидно, наблюдаемое расхождение экспериментальных и рассчитанных величин магнитных моментов не может быть объяснено неточностью вычислений. Между теоретическими и экспериментальными результатами имеются качественные и количественные различия. Во-первых, наблюдается значительная разница между рассчитанными и измеренными величинами магнитных моментов. Во-вторых, теоретически предсказанная зависимость магнитного момента от атомного беспорядка экспериментально не обнаружена: измеренные значения магнитных моментов наших образцов одинаковы.

Чтобы уменьшить расчетную величину магнитного момента до экспериментальных значений, мы варьировали радиус атомных сфер и величину кулоновского потенциала U . Это не привело ни к существенному уменьшению величин магнитных моментов, ни к их выравниванию. Мы также пытались найти другие комбинации взаимной ориентации атомных магнитных моментов, соответствующие другому минимуму полной энергии, устанавливая различ-

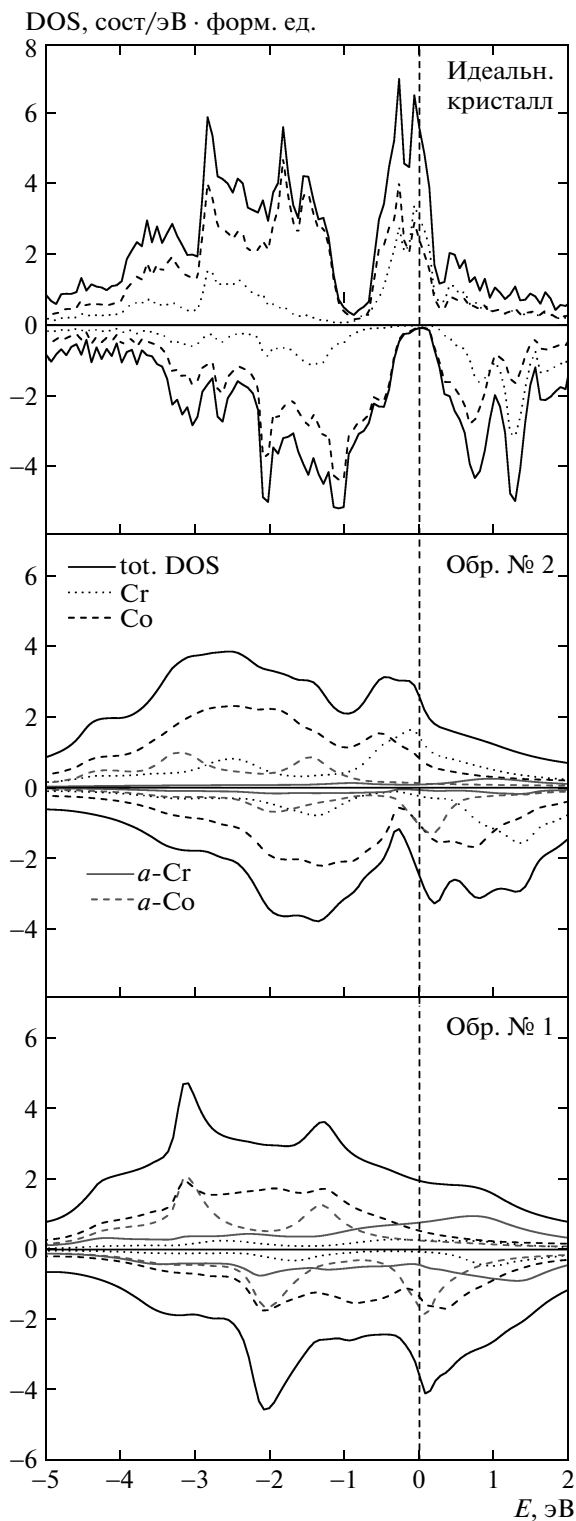


Рис. 4. Полные (tot. DOS) и парциальные плотности состояний «нормальных» и антиузельных (*a*-Cr, *a*-Co) атомов сплава Co_2CrAl . Уровень Ферми отмечен вертикальной штриховой линией. Обозначения линий для идеального кристалла и образца № 1 те же, что и для образца № 2

Таблица 4. Рассчитанные и экспериментальные величины магнитных моментов исследуемых образцов (все значения в μ_B)

		Подрешетка			Рассч.	Эксп.
		Co	Cr	Al		
Идеальный кристалл	Co	0.74	—	—	3.01	—
	Cr	—	1.64	—		
	Al	—	—	-0.11		
Образец № 1	Co	1.23	1.31	—	2.69	1.56
	Cr	-0.68	1.02	1.22		
	Al	0	—	0		
Образец № 2	Co	1.2	1.64	1.77	3.67	1.53
	Cr	-1.06	1.53	—		
	Al	0	—	0		

ные начальные направления моментов на атомах. Однако конечная ориентация магнитных моментов была в каждом случае одной и той же, свидетельствуя в пользу отсутствия другого минимума энергии для этой системы.

Сравнение магнитных свойств наших образцов с результатами расчетов приводит к выводу, что методы на основе теории функционала плотности некорректно описывают магнитные свойства сплава Co_2CrAl . Как следствие, результаты нашего исследования ставят под сомнение предсказанное теоретически существование зонного спектра ПМФ в сплаве Co_2CrAl в упорядоченном состоянии. К сожалению, в данный момент мы можем только констатировать этот факт, без построения гипотез о его причинах, без планирования направления дальнейших исследований.

Заметим, что исследование, подобное нашему, следует провести и для близкого по составу сплава Гейслера $\text{Co}_2\text{Cr}_{0.6}\text{Fe}_{0.4}\text{Al}$, поскольку и для него найденная величина магнитного момента была ниже расчетной. Обнаружение в этом сплаве значительной спиновой поляризации электронов методом спин-детерминированной фотоэмиссии [30] не может служить доказательством формирования зонного спектра ПМФ. Например, в случае CrO_2 метод ультрафиолетовой фотоэлектронной спектроскопии показал полное отсутствие электронных состояний на уровне Ферми [31], тогда как метод андреевских отражений в точечном контакте выявил 100-процентную спиновую поляризацию носителей заряда [32].

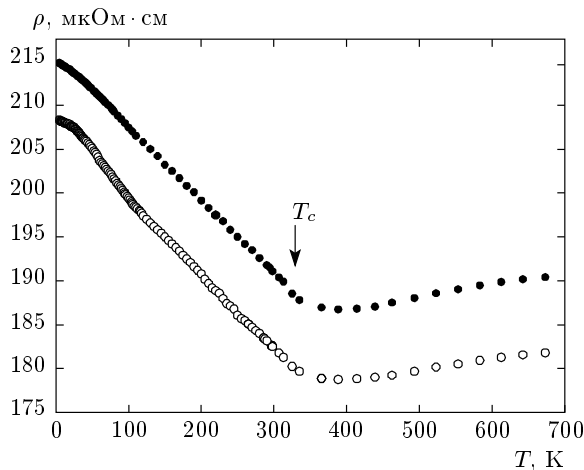


Рис. 5. Температурная зависимость электросопротивления исследованных образцов: ● — образец № 1, ○ — образец № 2. Стрелкой обозначена температура Кюри

3.3. Электрические свойства

Температурная зависимость электросопротивления $\rho(T)$ в области температур до 300 К была исследована в работах [15, 18]. Обе группы получили кривые, демонстрирующие отрицательный ТКС и достаточно высокие значения остаточного сопротивления ($\rho_0 \sim 200$ мкОм·см). Жанг и др. [33] получили образец с положительным ТКС и относительно низкими значениями ρ_0 , однако приведенная авторами рентгенограмма принадлежала неизвестной кристаллической структуре.

На рис. 5 представлена температурная зависимость электросопротивления исследуемых образцов Co_2CrAl . Кривые очень похожи и лишь слегка различаются по абсолютным значениям, что можно связать с различным количеством антиузельных атомов. Единственное качественное различие между двумя кривыми — присутствие излома при $T \approx 25$ К у образца № 2.

Отрицательный ТКС в низкотемпературной области в сплавах Гейслера объяснялся сильным рассеянием электронов проводимости из-за атомного беспорядка [20] и локализацией носителей заряда вблизи уровня Ферми [15]. Исходя из результатов нашего исследования, сильное рассеяние электронов как причина отрицательного ТКС может быть исключена. Во-первых, образец № 2 едва ли можно характеризовать как сильно разупорядоченный. Во-вторых, если бы рассеяние было причиной наблюдаемого отрицательного ТКС, то сопротивление должно было

бы уменьшаться с температурой. Изменение знака ТКС около температуры Кюри в отсутствие структурных превращений в этой области [29] указывает на другую причину наблюдаемого поведения.

Отсутствие корреляции между порядком и знаком ТКС в Co_2CrAl также косвенно подтверждается результатами, представленными в работе [34]: отрицательный ТКС наблюдался в образцах $\text{Co}_2\text{Cr}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Al}$ с высоким содержанием Cr ($x \leq 0.3$). В этих образцах ТКС изменял знак на положительный с увеличением содержания Fe одновременно с уменьшением атомного порядка. Интересно, что подобное поведение $\rho(T)$ было обнаружено в ряде сплавов Гейслера, содержащих Co и Cr [35], многие из которых обладали хорошо упорядоченной структурой. Возможно, что причина наблюдаемого отрицательного ТКС одна и та же во всех этих случаях.

В настоящий момент трудно определить точную физическую причину наблюдаемого поведения $\rho(T)$. По нашему мнению, псевдощелевой сценарий в одной или обеих спиновых подзонах может быть исключен: в первом случае величина магнитного момента должна быть близка к целому числу, тогда как во втором случае величина ρ_0 была бы намного выше. Локализация электронных состояний вблизи уровня Ферми кажется более вероятной причиной, но величина ρ_0 и в этом случае должна быть на порядок больше.

Еще одна возможная причина отрицательного ТКС в данном сплаве — кондо-подобное рассеяние носителей заряда на магнитных неоднородностях. Можно отметить поразительное сходство наших кривых с кривыми, полученными Устиновым и др. в сверхрешетках Fe/Cr [36]. Кривые почти совпадают по величине уменьшения сопротивления относительно ρ_0 и положению минимума. Близость минимума к температуре магнитного перехода в нашем исследовании говорит в пользу гипотезы о кондо-подобном рассеянии носителей тока. Однако в настоящий момент трудно предположить, что может являться кондовскими рассеивающими центрами в случае ферромагнитного Co_2CrAl .

Мы полагаем, что определенную ясность в понимание природы отрицательного ТКС можно внести спектроскопическими исследованиями валентной зоны и зоны проводимости сплава, проведенными при температурах выше и ниже минимума сопротивления. Так или иначе, как и в случае магнитных свойств, на характер $\rho(T)$ сплава Co_2CrAl атомное упорядочение влияния не оказывает.

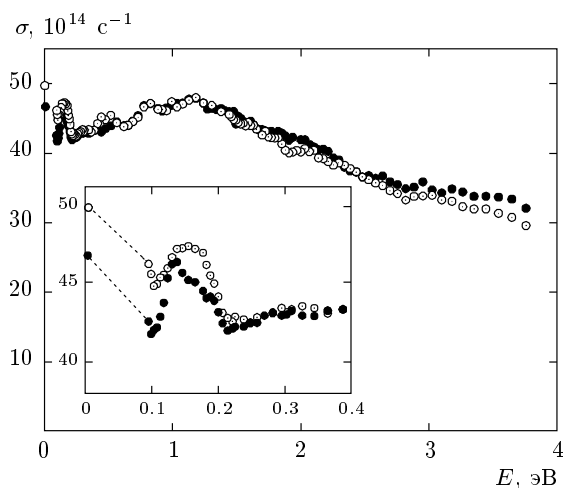


Рис. 6. Дисперсия оптической проводимости $\sigma(\omega)$ исследованных образцов. На оси ординат представлены значения статической проводимости при комнатной температуре: ● — образец № 1, ○ — образец № 2

3.4. Оптические свойства

Известно, что оптические свойства металлов в разных областях спектра определяются разными механизмами поглощения. В низкоэнергетической области (инфракрасные длины волн) основную роль в формировании оптических свойств играет механизм внутризонного ускорения электронов полем световой волны (вклад Друде). Этот вклад определяется параметрами электронов проводимости — плазменной частотой Ω и частотой релаксации γ . В видимой и ультрафиолетовой областях доминирует квантовое поглощение света, дающее информацию об электронном энергетическом спектре. Оба механизма сосуществуют в некоторой спектральной области.

Основной особенностью оптического спектра поглощения $\sigma(\omega)$ (рис. 6) является высокий уровень межзонного поглощения и отсутствие вклада Друде вплоть до конца исследованного интервала при $E = 0.1$ эВ. Пики межзонного поглощения в ИК-области при энергиях 0.15, 0.27, 0.5 и 0.65 эВ свидетельствуют о наличии низкоэнергетических щелей в зонном спектре сплава. Основной максимум поглощения расположен при энергии 1.2 эВ, затем наблюдается постепенное снижение оптической проводимости с увеличением энергии падающего света. Наблюдение вклада от свободных носителей ожидается при энергиях ниже 0.1 эВ.

На рис. 7 приведен график дисперсии действительной $\varepsilon_1(\omega)$ части диэлектрической проницаемости. Отрицательные значения ε_1 указывают на на-

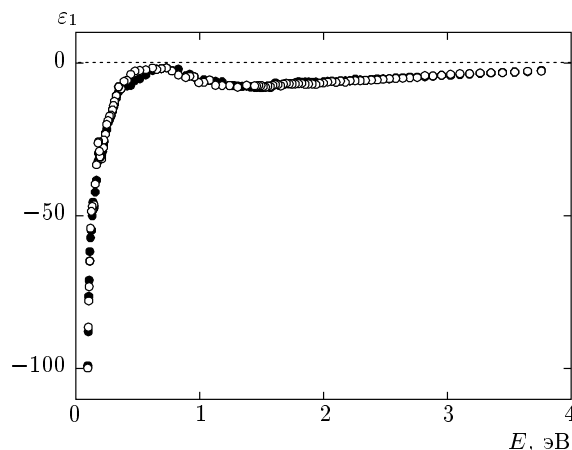


Рис. 7. Дисперсия действительной части $\varepsilon_1(\omega)$ комплексной диэлектрической проницаемости: ● — образец № 1, ○ — образец № 2

личие внутризонного поглощения, не проявившегося в спектре оптической проводимости $\sigma(\omega)$. Оценка квадрата плазменной частоты, полученная из равенства Друде $\varepsilon_1 = 1 - \Omega^2 / (\omega^2 + \gamma^2)$, выявила значение $\Omega^2 = 3.5 \cdot 10^{30} \text{ с}^{-2}$ для обоих образцов. Вычисленная эффективная концентрация носителей заряда $N_{eff} \sim 10^{21} \text{ см}^{-3}$. По сравнению с нормальными металлами, это значение ниже на 1–2 порядка.

Схожесть спектров оптической проводимости обоих образцов говорит о том, что электронная структура сплава Co_2CrAl вблизи уровня Ферми не изменяется существенно при изменении степени атомного порядка. Небольшие различия наблюдаются лишь на концах исследованной спектральной области. При очень низких энергиях $\sigma(\omega)$ образца № 1 чуть выше в сравнении с образцом № 2. Напротив, на высокоэнергетическом крае оптическая проводимость образца № 2 чуть выше, чем у образца № 1. Мы не нашли никаких доказательств существования щели или глубокой псевдощели, по крайней мере, вплоть до 0.1 эВ. Однако следует иметь в виду, что оптическое поглощение является суммой вкладов от обеих спиновых подзон. Если уменьшение плотности состояний в одной подзоне сопровождается увеличением в другой, тогда наличие щели не проявится в оптическом спектре.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведя исследование двух образцов сплава Гейслера Co_2CrAl с точно определенным распределением атомов по подрешеткам, можно сделать вывод, что, в противоположность предсказаниям теории, величина магнитного момента сплава не

зависит от атомного порядка. Это означает, что методы *ab initio* расчетов электронной структуры на основе теории функционала плотности не могут корректно описать магнитные свойства сплава. Данный вывод ставит под сомнение возможность использования сплава Co_2CrAl в устройствах спинтроники и мотивирует к поиску решений за пределами приближения функционала плотности. Температурная зависимость электросопротивления демонстрирует сложное поведение, более всего напоминающее Кондо-подобное рассеяние носителей заряда. Исследование оптических свойств не выявило наличия щели или псевдощели в зонном спектре сплава, хотя эффективная концентрация носителей заряда оказалась низкой. Ни одно из исследованных в работе физических свойств не демонстрирует существенной зависимости от атомного порядка.

Авторы благодарят Н. А. Скорикова, А. И. Потеряева и Н. И. Коурова за всестороннюю помощь в ходе подготовки статьи. Работа выполнена частично в рамках программы № 14.518.11.7020 Российского министерства образования и науки.

ЛИТЕРАТУРА

1. M. Kato, Y. Nishino, U. Mizutani et al., *J. Phys.: Cond. Mat.* **19**, 9153 (2000).
2. Y. Nishino, H. Sumi, and U. Mizutani, *Phys. Rev. B* **71**, 094425 (2005).
3. E. Shreder, S. Streltsov, A. Svyazhin et al., *J. Phys.: Cond. Mat.* **20**, 045212 (2008).
4. R. A. de Groot and F. M. Mueller, *Phys. Rev. Lett.* **50**, 2024 (1983).
5. I. Galanakis and Ph. Mavropoulos, *J. Phys.: Cond. Mat.* **19**, 315213 (2007).
6. M. I. Katsnelson, V. Yu. Irkhin, L. Chioncel et al., *Rev. Mod. Phys.* **80**, 315 (2008).
7. C. H. Marrows and B. J. Hickey, *Phil. Trans. Royal Soc. A* **369**, 3027 (2011).
8. S. Ishida, S. Kawakami, and S. Asano, *Mat. Trans.* **45**, 1065 (2004).
9. V. N. Antonov, H. A. Dürr, Yu. Kucherenko et al., *Phys. Rev. B* **72**, 054411 (2005).
10. G. H. Fecher, H. C. Kandpal, S. Wurmehl et al., *J. Phys.: Cond. Mat.* **17**, 7237 (2005).
11. Y. Miura, K. Nagao, and M. Shirai, *Phys. Rev. B* **69**, 144413 (2004).
12. S. Wurmehl, G. H. Fecher, K. Kroth et al., *J. Phys. D: Appl. Phys.* **39**, 803 (2006).
13. H. C. Kandpal, G. H. Fecher, and C. Felser, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **40**, 1507 (2007).
14. E. M. Rudenko, I. V. Korotash, Yu. V. Shlapak et al., *Low Temp. Phys.* **37**, 489 (2011).
15. Y. V. Kudryavtsev, V. N. Uvarov, V. A. Oksenenko et al., *Phys. Rev. B* **77**, 195104 (2008).
16. K. H. J. Buschow and P. G. van Engen, *J. Magn. Magn. Mater.* **25**, 90 (1981).
17. K. Yoshimura, A. Miyazaki, R. Vijayaraghavan et al., *J. Magn. Magn. Mater.* **53**, 189 (1985).
18. A. Husmann and L. J. Singh, *Phys. Rev. B* **73**, 172417 (2006).
19. R. Kelekar and B. M. Clemens, *Sol. St. Comm.* **145**, 223 (2008).
20. J. H. Mooij, *Phys. Stat. Sol. (a)* **17**, 521 (1973).
21. С. М. Подгорных, А. Д. Свяжин, Е. И. Шредер и др., *ЖЭТФ* **132**, 52 (2007).
22. B. N. Goshchitskii and A. Z. Menshikov, *Neutron News* **7**, 12 (1996).
23. H. M. Rietveld, *J. Appl. Cryst.* **2**, 65 (1969).
24. J. Rodrigues-Carvajal, *Physica B* **192**, 155 (1993).
25. The Munich SPR-KKR package, version 5.4, Ebert H, et al., <http://www.ebert.cup.uni-muenchen.de/SPRKKR>; *Rep. Prog. Phys.* **74**, 096501 (2011).
26. J. P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3865 (1996).
27. A. Hirohata, H. Kurebayashi, S. Okamura et al., *J. Appl. Phys.* **97**, 10C308 (2005).
28. S. V. Karthik, A. Rajanikanth, Y. K. Takahashi et al., *Appl. Phys. Lett.* **89**, 052505 (2006).
29. K. Kobayashi, R. Y. Umetsu, R. Kainuma et al., *Appl. Phys. Lett.* **85**, 4684 (2004).
30. M. Cinchetti, J.-P. Wüstenberg, M. Sanchez Albaneda et al., *J. Phys. D: Appl. Phys.* **40**, 1544 (2007).
31. C. A. Ventrice Jr., D. R. Borst, H. Geisler et al., *J. Phys.: Cond. Mat.* **19**, 315207 (2007).
32. T. Lofwander, R. Grein, and M. Eschrig, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 207001 (2010).
33. M. Zhang, Z. Liu, H. Ha et al., *J. Magn. Magn. Mater.* **277**, 130 (2004).
34. M. Zhang, A. L. Wolf, L. Zhang et al., *J. Appl. Phys.* **97**, 10C301 (2005).
35. K. A. Fomina, V. V. Marchenkov, E. I. Shreder et al., *Sol. St. Phenom.* **168–169**, 545 (2011).
36. V. V. Ustinov, L. N. Romashev, M. A. Milayev et al., *J. Magn. Magn. Mater.* **300**, 148 (2006).