

МАГНИТОТРАНСПОРТНЫЕ СВОЙСТВА ТОНКИХ ПЛЕНОК $\text{Ni}_{49.7}\text{Fe}_{17.4}\text{Co}_{4.2}\text{Ga}_{28.7}$

М. И. Блинов^{a*}, *В. А. Черненко*^{b,c**}, *В. Н. Прудников*^a, *И. Р. Асегуинолаза*^{b***},
Ж. М. Барандиаран^{b****}, *Э. Ладеранта*^{d†}, *В. В. Ховайло*^e, *А. Б. Грановский*^{a,e,f‡}

^a Физический факультет Московского государственного университета им. М. В. Ломоносова
119991, Москва, Россия

^b Университет Страны Басков
48080, Бильбао, Испания

^c Научный фонд Страны Басков
48009, Бильбао, Испания

^d Технологический университет Лаппеенранты
53851, Лаппеенранта, Финляндия

^e Национальный исследовательский технологический университет «МИСиС»
119049, Москва, Россия

^f Институт теоретических и прикладных проблем электродинамики Российской академии наук
125412, Москва, Россия

Поступила в редакцию 23 ноября 2020 г.,
после переработки 17 декабря 2020 г.
Принята к публикации 17 декабря 2020 г.

В широком температурном интервале, включающем мартенситный переход, исследованы магнитные и магнитотранспортные свойства тонких пленок сплавов Гейслера $\text{Ni}_{49.7}\text{Fe}_{17.4}\text{Co}_{4.2}\text{Ga}_{28.7}$, осажденных на подложках $\text{MgO}(100)$. Для данного состава мартенситный переход не сопровождается магнитным фазовым переходом, так как мартенситная и аустенитная фазы являются ферромагнетиками с близкими значениями намагниченности. Сопротивление не испытывает резких изменений при мартенситном переходе. Магнитосопротивление отрицательно, уменьшается по величине при увеличении температуры в диапазоне 100–250 К, соответствующем мартенситному переходу, а затем увеличивается до -1% . Полевые зависимости сопротивления Холла имеют характерный вид для однородных ферромагнитных сплавов. Определены коэффициенты нормального и аномального эффектов Холла. Показано, что коэффициент аномального эффекта Холла описывается зависимостью $R_s = \alpha\rho + \beta\rho^2$, где ρ — сопротивление и второй член меньше первого, что указывает на важную роль интерференционного примесного-фононного механизма рассеяния.

DOI: 10.31857/S0044451021030159

1. ВВЕДЕНИЕ

Сплавы Гейслера обладают уникальными многофункциональными и важными для разнообразных

практических применений свойствами, что и определяет непрерывно возрастающий интерес к этим системам [1, 2]. Сплавы семейства Ni-Mn-X , где $X = \text{Ga, In, Sb}$, определенного концентрационного состава испытывают мартенситный переход (МП) из высокотемпературной кубической фазы (аустенит) в низкотемпературную фазу с тетрагональными искажениями (мартенсит) при характерной температуре T_M и обратно, при повышении температуры, при температуре T_A , что сопровождается температурным гистерезисом. Этот переход ответствен за

* E-mail: mi.blinov@physics.msu.ru

** V. A. Chernenko

*** I. R. Aseguinolaza

**** J. M. Barandiaran

† E. Lahderanta

‡ E-mail: granov@magn.ru

многие свойства, в частности за гигантские деформации [3], гигантский магнитокалорический эффект [4], гигантский аномальный эффект Холла [5], магнитный эффект памяти формы [6] и др. Недавно в сплавах семейств Ni–Mn–Ga и Ni–Mn–In обнаружены скирмионы [7, 8] и соответствующий им топологический эффект Холла [9]. Принято считать, что МП связан с действием коллективного эффекта Яна–Теллера, при котором выигрыш в энергии за счет понижения симметрии решетки компенсируется проигрышем в энергии электронной подсистемы. Хотя ряд экспериментальных фактов (см., например, работу [10]) и теоретические расчеты (см., например, работу [11]) подтверждают эту концепцию, существуют данные, ей противоречащие. Так, пропорциональный плотности состояний на уровне Ферми электронный вклад в теплоемкость в сплавах Ni–Mn–In незначительно меняется при МП [12], также малы изменения магнитооптического эффекта Керра [13], не найден электронный вклад в магнитокалорический эффект [4]. Это указывает на достаточно сложный и до конца не понятый характер перестройки электронной структуры при МП. Одними из наиболее эффективными зондами-индикаторами фазовых переходов и изменений электронной и магнитной структур являются магнитотранспортные эффекты, такие как магнитосопротивление и эффект Холла. Эти явления, особенно эффект Холла с выделением нормальной и аномальной составляющих, были изучены только для единичных составов сплавов Гейслера, испытывающих ярко выраженный МП. Были выявлены изменение типа носителей при МП [14], перераспределение d -состояний со спинов вдоль и против намагниченности [15], сильные антиферромагнитные корреляции [16]. Изучение аномального эффекта Холла, являющегося центральным в группе спонтанных гальваномагнитных явлений и ярким представителем спин-зависящих явлений переноса, в сплавах Гейслера имеет и самостоятельное значение, так как до сих пор продолжают дискуссии о роли различных механизмов в формировании этого эффекта [17]. Например, недавно в работе [18] утверждалось, что аномальный эффект Холла в сплавах Ni–Mn–Ga связан с асимметричным рассеянием, тогда как в работах [14–16] показано, что ни асимметричное рассеяние, ни механизм бокового смещения или собственный механизм не позволяют объяснить эксперимент для сплавов на основе Ni–Mn–In и сплава Ni_{47.3}Mn_{30.6}Ga_{22.1}.

В настоящей работе в широком интервале температур, включающем область МП, исследованы магнитные свойства, сопротивление, магнитосо-

противление, сопротивление Холла тонких пленок Ni_{49.7}Fe_{17.4}Co_{4.2}Ga_{28.7}. Выбор данного состава сплавов, принадлежащего к классу магнитных сплавов с эффектом памяти формы, определяется следующими факторами. Во-первых, для этого состава детально исследованы структурные свойства [19, 20]. Во-вторых, МП в этих сплавах выражен не так ярко, как для сплавов Ni–Mn–In или Ni–Mn–Ga, для которых ранее изучались транспортные свойства. Более того, МП в этом сплаве происходит в ферромагнитной фазе, т. е. при МП нет резких изменений намагниченности или сопротивления, и можно сказать, что это пример «скрытого» МП. В-третьих, высокая температура Кюри, обусловленная наличием кобальта, и температурный интервал МП выше азотной температуры позволяют исследовать аномальный эффект Холла в широкой области температур. Нами показано, что поведение магнитосопротивления, сопротивления Холла, коэффициентов нормального и аномального эффектов Холла в пленках Ni–Fe(Co)–Ga кардинально отличается от имеющих место в сплавах Ni–Mn–In и Ni–Mn–Ga.

2. МЕТОДИКА ИЗМЕРЕНИЙ И ОБРАЗЦЫ

2.1. Образцы

Поликристаллические пленки сплава Гейслера Ni_{49.7}Fe_{17.4}Co_{4.2}Ga_{28.7} (ат. %) толщиной 1 мкм были получены распылением исходной мишени на подложки MgO(001), нагретые до температуры 773 К. Детали изготовления пленок и их структурные свойства описаны в работах [19, 20]. На основе структурных измерений методами рентгеновского структурного анализа, рентгеновской фотоэлектронной спектроскопии и магнитного кругового дихроизма, ферромагнитного резонанса [19, 20] было получено, что в пленках происходят прямой и обратный МП без изменения типа магнитного упорядочения (т. е. МТ происходит внутри ферромагнитной фазы) и пленки характеризуются тремя ферромагнитными фазами: кубической $L2_1$ -упорядоченной аустенитной, тетрагональной мартенситной и неупорядоченной кубической γ -фазой.

2.2. Магнитные и транспортные измерения

Измерения намагниченности выполнены на вибрационном магнитометре Lake Shore VSM при температуре 80–400 К в магнитных полях до 16 кЭ. Ниже мы определяем намагниченность M как маг-

нитный момент холловского образца в виде полоски размерами 2×6 мм. Магнитное поле прикладывалось перпендикулярно плоскости тонкопленочного образца, т. е. в холловской геометрии.

Магнитотранспортные свойства измерялись стандартным четырехзондовым методом в магнитных полях до 21 кЭ при 80–400 К. Для исключения четных по намагниченности эффектов при определении коэффициентов Холла измерения сопротивления Холла при каждой температуре проводились при двух противоположных направлениях поля и тока.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

3.1. Намагниченность

Температурные зависимости намагниченности $M(T)$ в магнитных полях 50 Э и 16 кЭ приведены на рис. 1а и хорошо коррелируют с результатами предыдущих исследований этих пленок (см. рис. 3 в работе [19]). МП начинается при 250 К (рис. 1а), намагниченность изменяется при МП незначительно и монотонно. Завершение МП происходит при $T < 80$ К, что также согласуется с результатами работы [19]. МП проявляется только в слабых магнитных полях. Следует отметить, что величина намагниченности при низких температурах почти в два раза больше при 16 кЭ, чем при 50 Э, что указывает на наличие при низких температурах в слабых полях неколлинеарных структур, обусловленных конкуренцией ферромагнитного и антиферромагнитного обменных взаимодействий.

Полевые зависимости намагниченности представлены на рис. 1б. Эти данные используются для определения коэффициентов нормального и аномального эффектов Холла.

3.2. Электрическое сопротивление и магнитосопротивление

На рис. 2 показана температурная зависимость сопротивления при нагреве и охлаждении.

МП очень слабо проявляется в температурной зависимости сопротивления. Расхождение кривых при нагреве и охлаждении происходит приблизительно при 250 К, т. е. при той же температуре, что и в температурной зависимости намагниченности. Отметим две особенности поведения сопротивления. Во-первых, оно мало: меньше, чем 150 мкОм·см при всех температурах, т. е. эти сплавы, несмотря на то

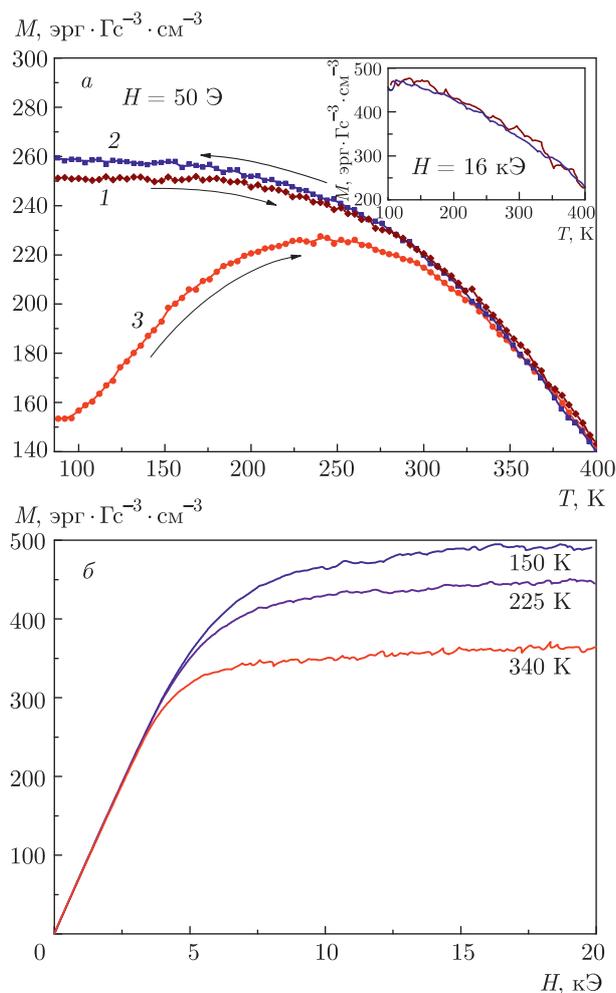


Рис. 1. (В цвете онлайн) Зависимости намагниченности тонких пленок $\text{Ni}_{49.7}\text{Fe}_{17.4}\text{Co}_{4.2}\text{Ga}_{28.7}$ от а) температуры при нагреве (кривая 1) и охлаждении (кривая 2) в магнитном поле 50 Э (на вставке то же при 16 кЭ) и при нагреве после охлаждения в нулевом поле (кривая 3); б) от магнитного поля при температурах 150, 225, 340 К

что они поликристаллические, четырехкомпонентные и многофазные, являются низкорезистивными. Во-вторых, температурный коэффициент сопротивления практически постоянен во всем исследованном интервале температур.

На рис. 3 показана температурная зависимость магнитосопротивления $\text{MR} = (\rho(H) - \rho(0))/\rho(0)$.

Магнитосопротивление отрицательно и меньше 1 %, при повышении температуры сначала уменьшается, а затем выше 250 К увеличивается, демонстрируя широкий минимум. Такое поведение является необычным, так как магнитосопротивление в окрестности структурных фазовых переходов, как правило, имеет четко выраженные экстремумы в той же области, где происходит переход.

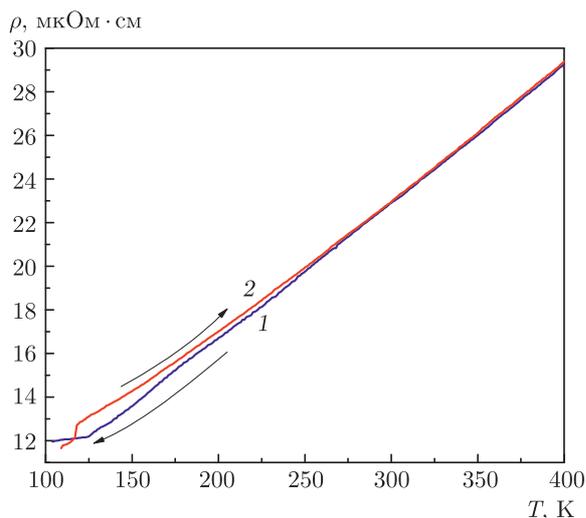


Рис. 2. Температурная зависимость электрического сопротивления пленок $Ni_{49.7}Fe_{17.4}Co_{4.2}Ga_{28.7}$ при нагреве (кривая 1) и охлаждении (кривая 2)

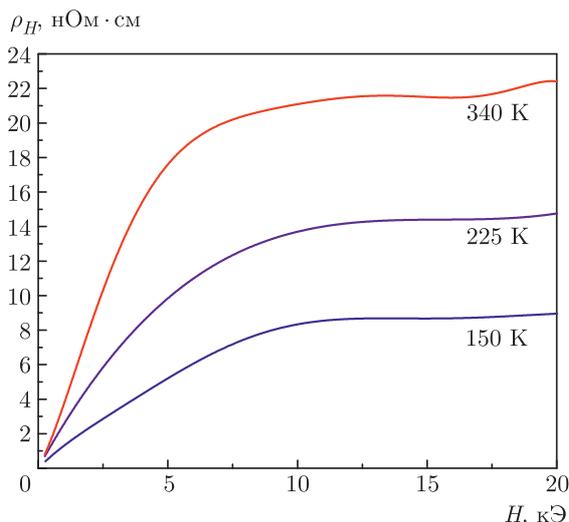


Рис. 4. Полевые зависимости сопротивления Холла пленок $Ni_{49.7}Fe_{17.4}Co_{4.2}Ga_{28.7}$ при 150, 225, 340 К

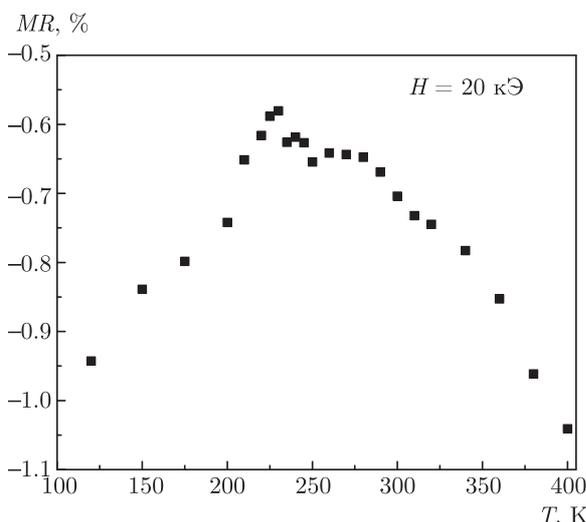


Рис. 3. Температурная зависимость магнитосопротивления пленок $Ni_{49.7}Fe_{17.4}Co_{4.2}Ga_{28.7}$

3.3. Эффект Холла

На рис. 4 показаны полевые зависимости сопротивления Холла ρ_H при температурах 150, 225, 340 К, т. е. в окрестности МП и в аустенитной фазе выше МП. Поведение сопротивления Холла типично скорее для однородных ферромагнетиков, чем для многофазных образцов или сплавов Гейслера с ярко выраженным МП. Сначала сопротивление Холла возрастает при увеличении поля, следуя изменению намагниченности, а затем насыщается в тех же полях, что и намагниченность.

Начнем обсуждение экспериментальных данных с сопротивления. Сопротивление образцов примерно той же величины, что и для кристаллических сплавов на основе Ni и Fe [20]. Сильная температурная зависимость сопротивления, которая определяется рассеянием на фонах и магнитных неоднородностях, близка к линейной. Как хорошо известно, фоновый и магнитный вклады в сопротивление ферромагнетиков линейны по температуре в области температур выше дебаевской и ниже температуры Кюри. Для нашего состава температура Кюри составляет около 400 К (см. рис. 1а), а температуру Дебая по аналогии с данными для сплавов Ni_2MnGa и Ni_2MnIn (см. табл. 6 в работе [21]) можно оценить как 200–250 К. Наиболее важным фактом является весьма слабое изменение сопротивления при МП. Если МП связан с изменением электронной структуры, то плотность состояний на уровне Ферми, $g(E_F)$, должна изменяться, что подтверждается теоретическими расчетами [22]. Но это не проявляется в сопротивлении, зависящем от плотности состояний, согласно выражению Мотта [23], как $|V^2|/g(E_F)^3$, где V — потенциал рассеяния. По-видимому, изменение плотности состояний компенсируется изменением потенциала рассеяния. К сожалению, расчеты электронной структуры выполнены только для $T = 0$, и поэтому прямое сопоставление теории с экспериментом, не учитывающее температурные изменения плотности состояний, невозможно. Отметим, что поскольку намагниченность изменяется незначительно, трансформация d -состояний должна быть незначительной, а значит, $s-d$ -рассеяние принци-

ально не изменяется при МП в рассматриваемом случае.

Отрицательное магнитосопротивление связано с подавлением магнитным полем спиновых флуктуаций и магнитного беспорядка. В соответствии с этим механизмом этот вклад в магнитосопротивление растет при приближении к температуре Кюри (400 К) в аустенитной фазе, т. е. выше 250 К. Уменьшение же магнитосопротивления при 100–250 К, т. е. в области МП, выглядит неожиданным. Обращает на себя внимание также тот факт, что величина магнитосопротивления при низких температурах того же порядка, что и при высоких, хотя для рассеяния на магнонах должна быть много меньше. Мы связываем такое поведение магнитосопротивления с наличием антиферромагнитных корреляций, приводящих к неколлинеарным локальным структурам. Рассеяние на таких структурах подавляется в сильном магнитном поле, поэтому магнитосопротивление достаточно велико при низких температурах, где конкуренция между антиферромагнитным и ферромагнитным взаимодействиями существенна. При повышении температуры такие неколлинеарные образования постепенно исчезают в силу образования аустенитной фазы и кубической γ -фазы [19], что и приводит к уменьшению магнитосопротивления.

Сопротивление Холла в общем случае описывается соотношением

$$\rho_H = R_0 B_z + 4\pi R_s M_z + \Delta\rho_H, \quad (1)$$

Здесь первый член описывает нормальный эффект Холла, обусловленный действием силы Лоренца, R_0 — коэффициент нормального эффекта Холла и B_z — z -компонента магнитной индукции. Вторым членом в (1) характеризуется аномальный эффект Холла, который возникает за счет спин-орбитального взаимодействия, R_s — коэффициент аномального эффекта Холла. Третий член описывает возможный топологический и антиферромагнитный эффекты Холла (см., например, работу [16]). Полевая зависимость сопротивления Холла (рис. 4) имеет стандартный вид для ферромагнитных сплавов, хорошо коррелирует с полевой зависимостью намагниченности без каких-либо признаков топологического эффекта Холла или антиферромагнитного эффекта Холла, и далее этот вклад не рассматривается. Тогда, аппроксимируя данные для полевой зависимости сопротивления Холла (рис. 5) зависимостью намагниченности от магнитного поля (см. рис. 1б) и следуя определению сопротивления Холла (1) без последнего члена, можно определить коэффициенты

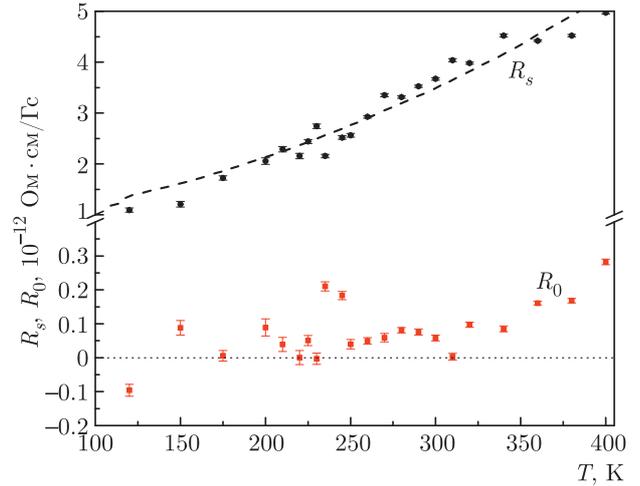


Рис. 5. Температурные зависимости коэффициентов нормального R_0 и аномального R_s эффектов Холла пленок $\text{Ni}_{49.7}\text{Fe}_{17.4}\text{Co}_{4.2}\text{Ga}_{28.7}$. Штриховая линия — аппроксимация с помощью соотношения $R_s = \alpha\rho + \beta\rho^2$, α [Гс^{-1}] = $4.92 \cdot 10^{-8} + 2.34 \cdot 10^{-22}$, β [$(\text{Ом} \cdot \text{см} \cdot \text{Гс})^{-1}$] = $4.48 \cdot 10^{-9} + 4.52 \cdot 10^{-25}$

нормального R_0 и аномального R_s эффектов Холла. Такая методика разделения вкладов этих эффектов описана в работе [14]. Результат такого разделения коэффициентов нормального и аномального эффектов Холла показан на рис. 5.

Коэффициент нормального эффекта Холла относительно слабо зависит от температуры по сравнению с ранее исследованными сплавами Гейслера, испытываемыми МП [14, 16]. Коэффициент аномального эффекта Холла монотонно растет при повышении температуры, как и в низкорезистивных металлах и сплавах. Для Ni коэффициент аномального эффекта Холла отрицателен, но в сплавах с другими металлами меняет знак в области средних концентраций [24], так что положительный знак этого коэффициента в рассматриваемом случае с содержанием Ni 49.7% не противоречит этой тенденции. Для температурной зависимости R_s соотношения вида $R_s \propto \rho^n$, где $n = 1$ для асимметричного рассеяния и $n = 2$ для собственного механизма и механизма бокового смещения [25], не применимы. Для рассматриваемого случая процедура аппроксимации приводит к $n = 0.7$, что подтверждает неприменимость соотношения вида $R_s \propto \rho^n$ для описания температурной зависимости R_s . Для температурной зависимости R_s в ферромагнитных сплавах в работе [26] была предложена зависимость вида

$$R_s = \alpha\rho + \beta\rho^2. \quad (2)$$

Здесь первый член описывает асимметричное рассеяние на примесях и интерференционный вклад примесного-фононного рассеяния, и он больше второго члена, описывающего рассеяние на фононах и вклады механизма бокового смещения и собственного механизма. Учет магнитного рассеяния, т. е. рассеяния на температурных флуктуациях магнитного момента, при повышенных температурах не меняет вида зависимости (2). На рис. 5 показано, что соотношение (2) хорошо описывает экспериментальные данные и второй член действительно меньше первого. Таким образом, приходим к выводу, что при «скрытом» МП в низкорезистивных сплавах Гейслера аномальный эффект Холла ведет себя аналогично однородным ферромагнитным сплавам и температурная зависимость коэффициента R_s определяется асимметричным рассеянием и интерференционным рассеянием на фононах и примесях.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Мартенситный переход в пленках $\text{Ni}_{49.7}\text{Fe}_{17.4}\text{Co}_{4.2}\text{Ga}_{28.7}$ является скрытым, так как происходит в широком диапазоне температур, не сопровождается магнитным фазовым переходом, а намагниченности мартенситной и аустенитной фаз различаются незначительно. Тем не менее мартенситный переход явно проявляется в поведении магнитосопротивления, которое уменьшается в диапазоне 100–250 К при повышении температуры в мартенситной фазе, а затем возрастает в аустенитной фазе. Такое поведение связывается с подавлением антиферромагнитных корреляций при низких температурах и рассеянием на флуктуациях магнитных моментов. Коэффициент аномального эффекта Холла хорошо описывается соотношением $R_s = \alpha\rho + \beta\rho^2$, характерным для однородных ферромагнитных сплавов. Второй член в этом выражении, соответствующий механизмам рассеяния на фононах, собственному механизму и механизму бокового смещения, существенно меньше первого члена. Это указывает на доминирующую роль асимметричного рассеяния и интерференционного примесного-фононного рассеяния для рассматриваемого низкорезистивного состава. Полученные в совокупности экспериментальные данные указывают на незначительные изменения как в суммарной плотности состояний на уровне Ферми, так и в распределении d -состояний с противоположными индексами спина при мартенситном переходе.

Финансирование. Работа поддержана Академией Финляндии (грант № 333805), а также Министерством науки, инноваций и университетов Испании (проект № RTI2018-094683-B-C53-54) и Правительством Страны Басков, Департамент образования (проект № IT1245-19). Один из авторов (М. И. Б.) выражает признательность за поддержку со стороны Фонда развития теоретической физики «БАЗИС» (Россия). Эта работа была частично поддержана Программой НИТУ «МИСиС» от Правительства РФ (грант № К2-2020-018).

ЛИТЕРАТУРА

1. *Heusler Alloys. Properties, Growth, Applications*, ed. by C. Felser and A. Hirohata, Springer Ser. Mater. Sci. **222** (2016).
2. I. Dubenko, N. Ali, S. Stadler et al., in *Novel Functional Magnetic Materials: Fundamentals and Applications*, ed. by A. Zhukov, Springer Ser. Mater. Sci. **231** (2016).
3. O. Heczko, A. Sozinov, and K. Ullakko, *IEEE Trans. Mag.* **36**, 3266 (2000).
4. J. Liu, T. Gottschall, K. P. Skokov et al., *Nature Mater* **11**, 620 (2012).
5. I. Dubenko, N. Ali, S. Stadler et al., *Phys. Rev. B* **80**, 092408 (2009).
6. V. A. L'vov, V. A. Chernenko, J. M. Barandiaran, in *Novel Functional Materials: Fundamentals and Applications*, ed. by A. Zhukov, Springer Ser. Mater. Sci. **231** (2016).
7. C. Phatak, O. Heinonen, M. De Graef, and A. Petford-Long, *Nano Lett.* **16**, 4141 (2016).
8. X. Xiao, L. Peng, X. Zhao et al., *Appl. Phys. Lett.* **114**, 142404 (2019).
9. W. Zhang, B. Balasubramanian, A. Ullah et al., *Appl. Phys. Lett.* **115**, 172404 (2019).
10. P. J. Brown, A. Y. Bargawi, J. Crangle et al., *J. Phys.: Condens. Matter* **11**, 4715 (1999).
11. P. Klaer, H. C. Herper, P. Entel et al., *Phys. Rev. B* **88**, 174414 (2013).
12. T. Kihara, X. Xu, W. Ito et al., *Phys. Rev. B* **90**, 214409 (2014).
13. A. Novikov, A. Sokolov, E. A. Gan'shina et al., *J. Magn. Magn. Mater.* **432**, 455 (2017).

14. M. Blinov, A. Aryal, S. Pandey et al., *Phys. Rev. B* **101**, 094423 (2020).
15. S. Pandey, M. I. Blinov, A. Aryal et al., *J. Magn. Magn. Mater.* **481**, 25 (2019).
16. M. I. Blinov, V. A. Chernenko, V. N. Prudnikov et al., *Phys. Rev. B* **102**, 064413 (2020).
17. А. Б. Грановский, В. Н. Прудников, А. П. Казаков и др., *ЖЭТФ* **142**, 916 (2012).
18. F. Li, F. Chen, M. Zhang et al., *J. Supercond. and Nov. Magn.* **32**, 3183 (2019).
19. V. A. Chernenko, I. R. Aseginolaza, V. Golub et al., *J. Phys. D* **50**, 455006 (2017).
20. T. Waeckerle, H. Fraisse, and Q. Furnemont, *J. Magn. Magn. Mater.* **290–291**, 1584 (2005).
21. H. Rached, D. Rached, R. Khenata et al., *Phys. St. Sol. (b)* **246**, 1580 (2009).
22. K. Sumida, K. Shirai, S. Zhu et al., *Phys. Rev. B* **91**, 134417 (2015).
23. N. F. Mott and E. A. Davis, *Electron Processes in Non-Crystalline Materials*, Clarendon Press, Oxford (1979).
24. А. Н. Волошинский, А. Г. Обухов, Н. В. Рыжанова, Л. Ю. Вишенков, *ФММ* **56**, 1070 (1983).
25. N. Nagaosa, J. Sinova, S. Onoda et al., *Rev. Mod. Phys.* **82**, 1539 (2010).
26. Е. И. Кондорский, А. В. Черемушкина, А. К. Курбаниязов, *ФТТ* **539** (1964).