

УДК 537.9

МАГНИТНЫЕ И ТРАНСПОРТНЫЕ СВОЙСТВА ТОНКИХ ПЛЕНОК NI-MN-GA ПОЛУЧЕННЫХ МАГНЕТРОННЫМ РАСПЫЛЕНИЕМ

¹Носов А.П., ¹Грибов И.В., ¹Данилов С.Е., ¹Дубинин С.С., ¹Марченкова Е.Б.,
¹Немытова О.В., ¹Обухов С.И., ²Логинов Б.А., ²Беспалов В.А.

¹ФГБУН «Институт физики металлов им. М.Н. Михеева» Уральского отделения РАН,
Екатеринбург, e-mail: nossov@imp.uran.ru;

²Национальный исследовательский университет «МИЭТ», Москва, e-mail: b-loginov@mail.ru

Исследованы магнитные и транспортные свойства тонких пленок системы Ni-Mn-Ga полученных магнетронным распылением на монокристаллические подложки из A-Al₂O₃(11–20), SrTiO₃(100), MgO(100) и Gd₃Ga₅O₁₂(100). Показано, что пленки имеют островковую морфологию поверхности и характеризуются малыми значениями средней ($Ra=0,29$ нм) и среднеквадратичной ($Rms=0,3733$ нм) шероховатости рельефа. Выявлена систематическая зависимость температуры Кюри пленок от степени структурных несоответствий в системе «пленка-подложка». Экспериментально показано, что наблюдаемые изменения температур Кюри коррелируют с величиной несоответствия параметров решеток в системе пленка – подложка. При этом температура Кюри максимальна в случае минимальных отличий параметров решеток в системе пленка – подложка. Результаты могут быть использованы при разработке тонкопленочных приборов и наноструктур микро- и магнитоэлектроники.

Ключевые слова: сплавы Ni-Mn-Ga, магнетронное распыление, тонкие пленки, магнитные свойства

MAGNETIC AND TRANSPORT PROPERTIES OF NI-MN-GA THIN FILMS PREPARED BY MAGNETRON SPUTTERING

¹Nosov A.P., ¹Gribov I.V., ¹Danilov S.E., ¹Dubinin S.S., ¹Marchenkova E.B.,
¹Nemytova O.V., ¹Obukhov S.I., ²Loginov B.A., ²Bespalov V.A.

¹M.N. Miheev Institute of Metal Physics, Ural Branch of the Russian Academy of Sciences,
Yekaterinburg, e-mail: nossov@imp.uran.ru;

²National Research University of Electronic Technology MIET, Moscow, e-mail: b-loginov@mail.ru

Magnetic and transport properties of Ni-Mn-Ga thin films prepared by magnetron sputtering on the single-crystalline A-Al₂O₃(11–20), SrTiO₃(100), MgO(100), and Gd₃Ga₅O₁₂(100) substrates were investigated. It is shown that the films have an island-like surface morphology and are characterized by small values of the average ($Ra=0,29$ nm) and mean square ($Rms=0,3733$ nm) surface roughness. Systematic dependence of the Curie temperature of the films on the lattice mismatch in the “thin film-substrate” system is revealed. It is shown experimentally that the observed variations of the Curie temperatures correlate with the value of lattice parameters mismatch in the thin film – substrate system. The Curie temperature is maximum in the case of minimal differences between lattice parameters of a film and a substrate. The results can be used in development of thin-film devices and nanostructures for micro- and magnetoelectronics.

Keywords: Ni-Mn-Ga alloys, magnetron sputtering, thin films, magnetic properties

В последние годы активно ведутся поиски новых путей эффективного управления свойствами тонкопленочных приборов и устройств магнито-, опто- и наноэлектроники. Одним из видов таких воздействий может являться механическая деформация. В современной научной литературе сформировался новый термин – «стрейнэлектроника», под которым подразумевают направление научных исследований, находящееся на стыке электроники и микросистемной техники, использующее физические эффекты в твердых телах, обусловленные деформациями (strain). Экспериментально показано, что посредством деформаций в тонкопленочной системе ферромагнетик/сегнетоэлектрик можно эффективно управлять свойствами магнитного слоя [1]. С использованием эффектов и структур стрейнэлектроники могут быть разработаны

перспективные устройства памяти произвольного доступа нового поколения с улучшенными рабочими характеристиками [2]. В простейшем случае однослойной пленки на подложке эффекты стрейтронного типа возникают уже на начальных стадиях роста пленки, поскольку, как правило, кристаллические структуры и параметры решеток пленки и подложки различны. Металлические сплавы системы Ni-Mn-Ga активно исследуются в настоящее время как активные материалы нового поколения, свойствами которых можно управлять внешними полями. Поэтому представляет большой интерес исследование закономерностей изменений физических свойств тонких пленок системы Ni-Mn-Ga при их росте на монокристаллических подложках с параметрами решеток, не соответствующим параметрам решеток материала пленок.

В настоящей работе исследованы магнитные и транспортные свойства тонких пленок системы Ni-Mn-Ga полученных магнетронным распылением на монокристаллические подложки из $A\text{-Al}_2\text{O}_3(11\text{-}20)$, $\text{SrTiO}_3(100)$, $\text{MgO}(100)$ и $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}(100)$ с различными соотношениями между структурными параметрами пленки и подложек.

Материалы и методы исследования

В качестве материала мишени был выбран состав $\text{Ni}_{53}\text{Mn}_{22}\text{Ga}_{25}$. Объемные образцы получали плавкой в атмосфере аргона. Аттестация состава объемных образцов методом электронно-зондового микроанализа подтвердила соответствие элементного состава формуле $\text{Ni}_{53}\text{Mn}_{22}\text{Ga}_{25}$. Величина температуры Кюри, определенная из данных по магнитной восприимчивости, составила 364,5 К. Тонкие пленки получали методом магнетронного распыления материала мишени на постоянном токе в атмосфере аргона при температуре подложки 673 К. Как показано в работе [3] при температурах подложки менее 673 К не удается получить пленки высокого качества. Типичная толщина пленок составляла 400 нм. В качестве подложек использовали серию монокристаллических пластин $A\text{-Al}_2\text{O}_3(11\text{-}20)$, $\text{SrTiO}_3(100)$, $\text{MgO}(100)$ и $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}(100)$ (GGG). Методом энергодисперсионного рентгеновского микроанализа при возбуждении электронным пучком определяли элементный состав пленок, который соответствовал $\text{Ni}_{52}\text{Mn}_{24}\text{Ga}_{24}$, то есть состав пленок отличался от элементного состава мишени. Такие отличия наблюдались при использовании метода магнетронного распыления. Так, в работе [4] при номинальном составе мишени $\text{Ni}_{49,3}\text{Mn}_{27,8}\text{Ga}_{22,9}$ пленка, полученная методом магнетронного распыления, имела состав $\text{Ni}_{52,5\pm 0,9}\text{Mn}_{19,5\pm 0,7}\text{Ga}_{28,0\pm 0,5}$.

Для получения изображения морфологии поверхности подложек использовался сканирующий зондовый микроскоп СММ-2000 в высоковакуумной системе «Plasmoscope-2М» ЦКП МСТИЭКБ МИЭТ (г. Зеленоград, Россия). Измерения проводили в полуконтактном режиме методом атомно-силовой микроскопии (АСМ) кантилеверами с радиусом острия менее 10 нм.

Магнитные измерения проводили в вибромагнетометре при ориентации магнитного поля в плоскости образца. Электрические измерения проводили в криостате на образцах пленок с контактными площадками из серебра, полученными магнетронным распылением на постоянном токе.

Результаты исследования и их обсуждение

На рис. 1 представлено изображение поверхности пленки $\text{Ni}_{52}\text{Mn}_{24}\text{Ga}_{24}$ на подложке $\text{SrTiO}_3(100)$. Полученные изображения были обработаны с помощью программы анализа, входящей в комплект поставки микроскопа. Для характеристики морфологии поверхности использовали следующие параметры: средняя шероховатость Ra и среднеквадратичная шероховатость Rms . Экспериментально получены значе-

ния $Ra=0,29$ нм и $Rms=0,3733$ нм, что свидетельствует о высоком качестве пленки. Морфологию поверхности пленок можно характеризовать как островковую с типичными размерами островков порядка 12 нм. Аналогичные результаты были получены и для пленок на других типах подложек.



Рис. 1. АСМ изображение поверхности пленки $\text{Ni}_{52}\text{Mn}_{24}\text{Ga}_{24}$ на подложке $\text{SrTiO}_3(100)$. Размер кадра 528 нм × 460 нм

Температурные измерения намагниченности $M(T)$ были проведены в режимах нагрева/охлаждения в интервале температур лот 410 К до 80 К и приложенном магнитном поле 100 Э. Температуру Кюри (T_C) для исследованных пленок определили из нормированных зависимостей $M(T)/M(80\text{K})$, где $M(80\text{K})$ – величина намагниченности при температуре $T=80$ К, как показано на рис. 2.

Для характеристики степени несоответствия параметров решеток в системе пленка – подложка (lattice mismatch) вводят параметр Δ , который определяют как

$$\Delta = 100\%(a_s - a_f)/a_f \quad (1)$$

где a_s – параметр решетки подложки, a_f – параметр решетки пленки.

При расчете этого параметра важна взаимная ориентация решеток пленки и подложки. Экспериментально показано [5], что в процессе роста тонких пленок системы Ni_2MnGa происходит поворот на 45° пленки относительно подложки. Поэтому для подложек $\text{SrTiO}_3(100)$ и $\text{MgO}(100)$ в качестве параметра решетки подложки в плоскости роста брались значения вдоль направлений $[110]$. В случае подложек $A\text{-Al}_2\text{O}_3$ и GGG параметры решеток подложек существенно больше, чем у пленки. Для этих подложек, по-видимому, имеет место рост пленок по механизму «domain-matching epitaxy» [6],

то есть, когда вдоль выбранного направления в плоскости подложки укладывается целочисленное значение постоянных решеток пленки. В случае подложки GGG величина параметра Δ равна 7,51% если в качестве параметра решетки подложки (с учетом поворота на 45°) взять величину, равную удвоенному расстоянию между атомами вдоль направления [110], а в качестве параметра решетки пленки взять величину равную шести постоянным решеткам пленки. В качестве постоянной решетки пленки бралась величина $a_f = 0,538$ нм (решетка типа I4/mmm), определенная экспериментально из рентгеноструктурных данных. В случае подложки Λ - Al_2O_3 величина параметра Δ равна $-4,9\%$

если в качестве параметра решетки (с учетом поворота на 45°) подложки взять величину, равную расстоянию между атомами вдоль направления [11-20], а в качестве параметра решетки пленки взять величину равную трем постоянным решеткам пленки. При этом отрицательный знак Δ указывает на то, что пленка будет расти под действием анизотропных в плоскости подложки (из-за отсутствия кубической симметрии в плоскости подложки) сжимающих механических напряжений. Положительный знак Δ указывает на то, что пленка будет расти под действием изотропных в плоскости подложки (из-за кубической симметрии в плоскости подложки) растягивающих механических напряжений.

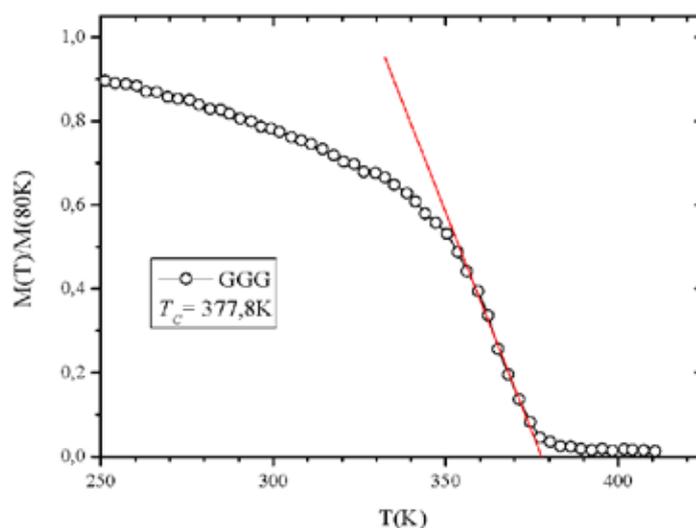


Рис. 2. Определение температуры Кюри (T_c) для пленки $\text{Ni}_{32}\text{Mn}_{24}\text{Ga}_{24}$ на подложке $\text{GGG}(100)$

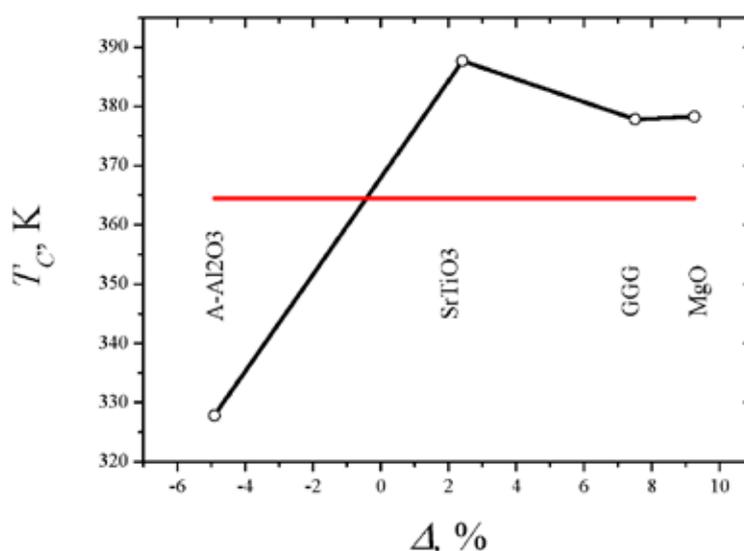


Рис. 3. Зависимость температур Кюри для пленок $\text{Ni}_{32}\text{Mn}_{24}\text{Ga}_{24}$ от величины параметра Δ . Красная сплошная линия – значение T_c для объемной мишени

Зависимость температуры Кюри для пленок $Ni_{52}Mn_{24}Ga_{24}$ на подложках $A-Al_2O_3$, $SrTiO_3$, GGG и MgO от параметра несоответствия постоянных решеток пленок и подложек Δ приведена на рис. 3. Сплошной красной линией на этом же рисунке показано значение температуры Кюри для мишени. Как видно из приведенных данных наибольшее значение температуры Кюри имеет пленка, выращенная в условиях минимального значения параметра Δ , т.е. на $SrTiO_3$. Присутствие в ходе роста изотропных в плоскости подложки растягивающих механических напряжений (подложки GGG и MgO) незначительно снижает величину температуры Кюри. С увеличением Δ при переходе от GGG к MgO величина температуры Кюри практически не меняется. Наиболее существенное уменьшение температуры Кюри наблюдается для пленки на $A-Al_2O_3$, т.е. в системе, в которой рост происходил в условиях наличия анизотропных в плоскости подложки сжимающих механических напряжений. Интересным обстоятельством является рост температуры Кюри, по сравнению с объемной мишенью, для пленок на $SrTiO_3$, GGG и MgO . С учетом фазовой диаграммы

системы Ni-Mn-Ga [7] это можно объяснить уменьшением содержания марганца в пленке по сравнению с мишенью. Однако данные для пленки на $A-Al_2O_3$ дают основания сделать вывод о том, именно наличие анизотропных в плоскости подложки сжимающих механических напряжений, а не изменения химического состава, приводят к существенному понижению температуры Кюри в случае этой подложки.

Результаты температурных измерений удельного сопротивления $\rho(T)$ представлены на рис. 4.

Вид зависимостей $\rho(T)$ для пленок, выращенных на различных подложках, существенно отличается. Наиболее сильно отличается зависимость $\rho(T)$ для пленки на $A-Al_2O_3$. Ранее было отмечено, что пленки имеют островковую морфологию с типичными размерами островков порядка 12 нм. По-видимому, границы островков дают вклад в транспортные свойства. Наблюдаемые отличия формы температурных зависимостей электросопротивления $\rho(T)$, скорее всего, отражают влияние микроструктуры пленок на их транспортные свойства.

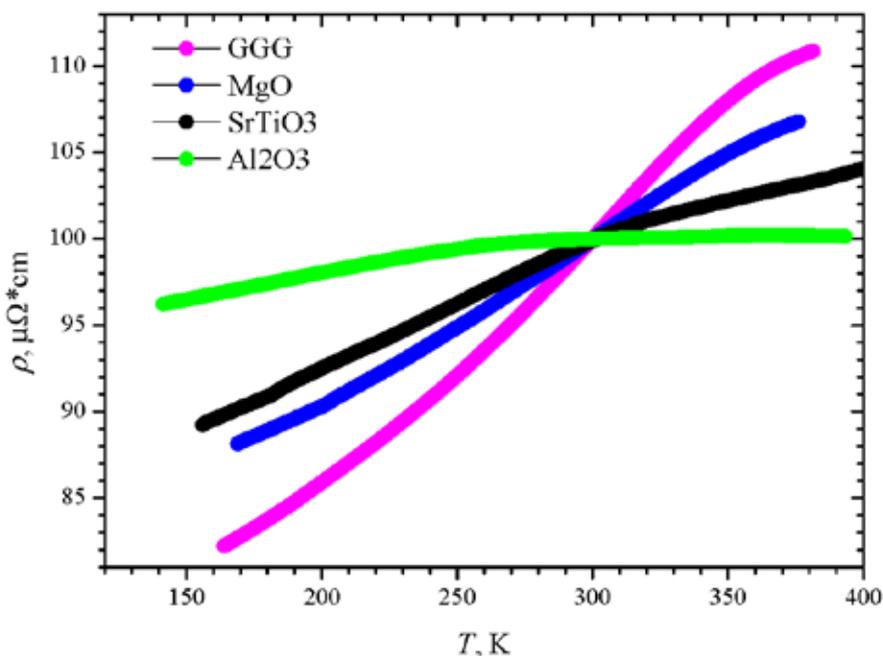


Рис. 4. Температурные зависимости удельного сопротивления пленок $Ni_{52}Mn_{24}Ga_{24}$ на подложках $A-Al_2O_3$, $SrTiO_3$, GGG и MgO .

Заключение

Методом магнетронного распыления на постоянном токе получены тонкие пленки состава $\text{Ni}_{52}\text{Mn}_{24}\text{Ga}_{24}$ на подложках Al_2O_3 , SrTiO_3 , GGG и MgO. Пленки характеризуются малыми значениями средней ($R_a = 0,29$ нм) и среднеквадратичной ($R_{ms} = 0,3733$ нм) шероховатости рельефа поверхности. Исследовано влияние несоответствия параметров решеток пленки и подложек на магнитные (температура Кюри) и транспортные (температурные зависимости удельного сопротивления) свойства. Экспериментально показано, что наблюдаемые изменения температур Кюри коррелируют с величиной несоответствия параметров решеток в системе пленка – подложка. При этом температура Кюри максимальна в случае минимальных отличий параметров решеток в системе пленка – подложка.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (проект № 15-02-01782) в рамках государственного задания ФАНО России (тема «Спин», № 01201463330).

Список литературы

1. Wen-ChinLin, Chia-WeiHuang, Yi-ChiehTing, Fang-YuhL, Ming-YauChern. Modulation of magnetic coercivity in Ni thin films by reversible control of strain // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. 2015. Vol. 381. P.446–450.
2. Barangi M., Mazumder P. Straintronics-Based Random Access Memory as Universal Data Storage Devices // IEEE Transactions in Magnetism. 2015. Vol. 51, No. 5. 3400408 (8 PP).
3. Thomas M., Heczko O., Buschbeck J., Rosler U.K., McCord J., Scheerbaum I N., Schultz L, Fähler S. Magnetically induced reorientation of martensite variants in constrained epitaxial Ni–Mn–Ga films grown on MgO(001) // New Journal of Physics. – 2008. V. 10. 023040 (20pp).
4. Ranzieri P., Fabbri S., Nasi L. et.al. Epitaxial Ni–Mn–Ga/MgO(100) thin films ranging in thickness from 10 to 100 nm. // Acta Materialia. – 2013. V.61. P.263–27.
5. Backen A., Yeduru S.R., Diestel A., Schultz L., Kohl M., and Fahler S. Epitaxial Ni_Mn_Ga Films for Magnetic Shape Memory Alloy Microactuators // Adv.Eng.Mater. – 2012. V. 14. No.8. PP. 696–709.
6. Narayan J., Larson B.C. Domain epitaxy: A unified paradigm for thin film growth // J. Appl. Phys. – 2003. V. 93. – PP. 278–285.
7. Lanska N., Soderberg O., Sozinov A., Gek Y., Ullakko V., Lindroos K. Composition and temperature dependence of the crystal structure of Ni–Mn–Ga alloys // Journal of Applied Physics. 2004. V. 95. P. 8074–8078.