

УДК 537.9

ВЛИЯНИЕ ОБЛУЧЕНИЯ ВЫСОКОЭНЕРГЕТИЧЕСКИМИ ЭЛЕКТРОНАМИ НА МАГНИТНЫЕ СВОЙСТВА ТОНКИХ ПЛЕНОК NI-MN-GA**Грибов И.В., Данилов С.Е., Дубинин С.С., Марченкова Е.Б., Немытова О.В., Носов А.П., Обухов С.И.***ФГБУН Институт физики металлов имени М.Н. Михеева Уральского отделения Российской академии наук, Екатеринбург, e-mail: nossov@imp.uran.ru*

Исследованы изменения магнитных свойств тонких пленок системы Ni-Mn-Ga с толщинами 200 и 400 нм, полученных магнетронным распылением на постоянном токе на монокристаллические подложки из A-Al₂O₃ с ориентацией (11-20), после облучения электронами с энергией 5 МэВ. Доза электронного облучения составляла 2×10^{18} см⁻². Выявлена систематическая зависимость температуры Кюри T_C пленок разной толщины от дозы электронного облучения. Экспериментально показано, что уменьшение T_C связано с толщиной пленки и составляет -100 К для пленок толщиной 200 нм и -122 К для пленок толщиной 400 нм. Результаты могут быть использованы при разработке методов и способов управления магнитными свойствами перспективных тонкопленочных приборов и наноструктур микро- и магнитоэлектроники.

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

EFFECT OF HIGH ENERGY ELECTRON IRRADIATION ON MAGNETIC PROPERTIES OF NI-MN-GA THIN FILMS**Gribov I.V., Danilov S.E., Dubinin S.S., Marchenkova E.B., Nemytova O.V., Nosov A.P., Obukhov S.I.***M.N. Mikheev Institute of Metal Physics, Ural Branch of the Russian Academy of Sciences, Ekaterinburg, e-mail: nossov@imp.uran.ru*

Evolution of magnetic properties of thin Ni-Mn-Ga films with the thicknesses of 200 and 400 nm grown by dc magnetron sputtering on the single-crystalline A-Al₂O₃ (11-20) substrates after irradiation with 5 MeV electrons was investigated. The fluence was 2×10^{18} cm⁻². Systematic dependence of the Curie temperature T_C of films with different thicknesses on fluence was revealed. It is shown experimentally that decrease of T_C is related to the thickness of the films and is equal -100K for 200 nm films and -122K for 400 nm films. The results can be used in development of advanced thin-film devices and nanostructures for micro- and magnetoelectronics.

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

Ресурс работы приборов и элементов магнито-, опто- и наноэлектроники, работающих в условиях воздействий различных видов радиационных излучений, определяется происходящими радиационно-стимулированными изменениями их структурных, транспортных и магнитных свойств. Воздействие различными видами радиационных излучений можно рассматривать как эффективный метод контролируемого неразрушающего управления рабочими характеристиками таких тонкопленочных приборов и элементов [1–3].

Понимание физических механизмов структурно-фазовых превращений в магнитных материалах, происходящих при радиационном облучении, например, нейтронами или потоками быстрых электронов с энергией в несколько МэВ, сильно затруднено сложностями учета взаимного влияния нескольких одновременно идущих процессов, таких как возникновение радиационных дефектов, их кластеров, рекомбинацией, взаимодействием, накоплением, миграцией.

Сравнительно более простые процессы происходят при облучении материалов потоками электронов с энергией в несколько МэВ. В этом случае, в отличие от облучения быстрыми нейтронами, не происходит образование каскадов атомных смещений, которое сопровождается сложными процессами формирования вакансионных кластеров, образующихся в каскадах смещений. В свою очередь каскады смещений являются эффективными стоками точечных дефектов, влияют на диффузионную длину свободной миграции дефектов и радиационно-индуцированные диффузионные процессы. Данные о радиационно-индуцированных структурно-фазовых изменениях в магнитных материалах и особенно в тонких пленках немногочисленны и зачастую противоречивы.

Металлические ферромагнитные сплавы системы Ni-Mn-Ga активно исследуются в настоящее время как интеллектуальные материалы нового поколения, свойствами которых можно управлять различными физическими воздействиями. В сплавах

этой системы наблюдаются обусловленные термоупругими мартенситными превращениями эффекты памяти формы и сверхупругости. Достоинством сплавов системы Ni-Mn-Ga является возможность управления эффектами памяти формы и сверхупругости как магнитным полем, так и температурой и механическими напряжениями. Основные характеристики ферромагнитных сплавов системы Ni-Mn-Ga зависят от числа валентных электронов, приходящихся на атом (e/a), и определяются особенностями магнитных взаимодействий. Изменение химического состава или легирование являются эффективными приемами влияния на физические свойства сплавов системы Ni-Mn-Ga. Кроме того, при неизменном химическом составе физические свойства сильно зависят от экстремальных внешних воздействий, таких как радиационные, температурные, деформационные, которые могут существенно влиять, в частности, на дефектность структуры, параметры дальнего атомного порядка и особенности магнитного упорядочения. В случае тонких пленок можно ожидать более сильной зависимости свойств по сравнению с объемными материалами аналогичного состава.

Ранее нами сообщалось о результатах исследований закономерностей изменений состава приповерхностных слоев и физических свойств тонких пленок системы Ni-Mn-Ga при их росте на монокристаллических подложках с различными параметрами решеток [4].

В настоящей работе сообщается об исследованиях изменений магнитных свойств тонких пленок системы Ni-Mn-Ga, полученных магнетронным распылением на монокристаллические подложки из $A\text{-Al}_2\text{O}_3(11\text{-}20)$ под действием облучения электронами с энергией 5 МэВ с дозой $2 \times 10^{18} \text{ см}^{-2}$.

Материалы и методы исследования

В качестве материала мишени был выбран состав $\text{Ni}_{50}\text{Mn}_{29}\text{Ga}_{21}$. Объемные образцы получали плавкой в атмосфере аргона. Аттестация состава объемных образцов методом электронно-зондового микроанализа подтвердила соответствие элементного состава формуле $\text{Ni}_{50}\text{Mn}_{29}\text{Ga}_{21}$. Величина температуры Кюри (T_c) мишени, определенная из данных по динамической магнитной восприимчивости, составила 362,5 К.

Тонкие пленки получали методом магнетронного распыления материала мишени на постоянном токе в атмосфере аргона. Толщину пленок контролировали непосредственно в процессе напыления методом кварцевого вибратора. Были получены серии пленок с толщинами 200 и 400 нм. В качестве подложек использовали эпитопированные монокристаллические пластины $A\text{-Al}_2\text{O}_3$ с ориентацией (11–20). Полученные пленки термообработывали в вакууме при температуре 673 К в течение 1 часа.

Магнитные измерения проводили в вибрационном магнетометре при ориентации магнитного поля в плоскости образца. Температурные измерения проводили в режиме охлаждения от температуры 400 К путем регистрации петель гистерезиса (зависимостей намагниченности образца от приложенного поля $M_{\text{sample}}(H)$) при каждой выбранной температуре после ее стабилизации с погрешностью лучше $\pm 0,5$ К.

Облучение исследованных образцов электронами с энергией 5 МэВ проводилось на ускорителе электронов ЛУЭ-5 в ИФМ УрО РАН в проточном гелиевом термостате в атмосфере очищенного гелия при температуре около 270 К. Плотность тока пучка электронов составляла 5 ± 10 мкА/см². Неоднородность распределения пучка электронов по площади облучения 10×10 мм² была лучше 15%. Накопленная доза (флюенс) облучения $2 \times 10^{18} \text{ см}^{-2}$ была получена при измерении прошедшего пучка цилиндром Фарадея.

Результаты исследования и их обсуждение

При типичной толщине подложки 0,4 мм и толщине пленки ~400 нм соотношение объемов пленки и подложки составляет порядка 10^5 . Поэтому при регистрации петель гистерезиса для тонкопленочных образцов основной вклад в сигнал вибрационного магнетометра дает подложка. Величина сигнала от подложки $M_{\text{substr.}}(H) = \chi H$ определяется ее магнитной восприимчивостью χ при заданной величине приложенного магнитного поля H . Для корректного учета вклада подложки при каждом значении температуры зависимость намагниченности для образца $M_{\text{sample}}(H)$ в области сильных (более 4 кЭ) полей аппроксимировали в линейном приближении, после чего вклад от пленки находили как $M(H) = M_{\text{sample}}(H) - M_{\text{substr.}}(H)$. Рис. 1 иллюстрирует эту процедуру. На нем приведена экспериментально полученная зависимость намагниченности образца от приложенного поля $M_{\text{sample}}(H)$ для необлученной пленки $\text{Ni}_{50}\text{Mn}_{29}\text{Ga}_{21}$ толщиной 400 нм на подложке $A\text{-Al}_2\text{O}_3(11\text{-}20)$, снятая при температуре 220 К. Заполненные символы соответствуют зависимости $M_{\text{sample}}(H)$. Сплошная линия – зависимость $M_{\text{substr.}}(H)$. Незаполненные символы – сигнал от пленки $M(H)$ после вычитания вклада подложки. Зависимости $M(H)$ имели вид, типичный для ферромагнитных материалов: сильные изменения в области слабых (менее 1 кЭ) магнитных полей с выходом на насыщение в области сильных (более 3 кЭ) полей. Значение намагниченности насыщения M_s при каждой температуре находили линейной экстраполяцией зависимости $M(H)$ из области сильных (более 4 кЭ) полей к нулевому значению магнитного поля.

Результаты измерений температурных зависимостей намагниченности насыщения для необлученных образцов тонких пленок представлены на рис. 2. Значения температур Кюри составили: 350 К для пленки тол-

щиной 200 нм и 352 К для пленки толщиной 400 нм. Эти значения близки к величине 362,5 К, соответствующей T_C мишени.

Результаты измерений температурных зависимостей намагниченности насыщения для облученных образцов тонких пленок представлены на рис. 3. Значения темпера-

тур Кюри (T_C) составили: 250 К для пленки толщиной 200 нм и 230 К для пленки толщиной 400 нм. Таким образом, для пленки толщиной 200 нм понижение T_C в результате облучения высокоэнергетическими электронами составило 100 К, а для пленки толщиной 400 нм – 122 К.

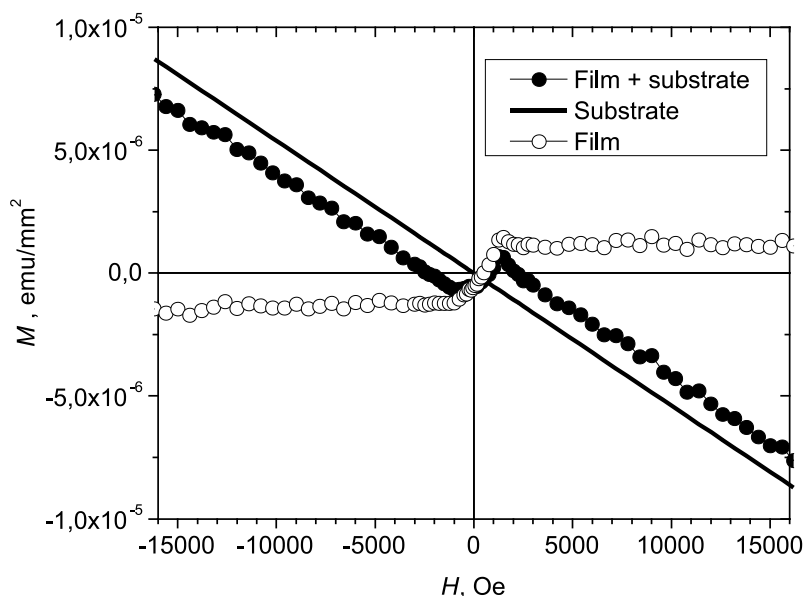


Рис. 1. Зависимость намагниченности от приложенного поля для необлученной пленки $Ni_{50}Mn_{29}Ga_{21}$ толщиной 400 нм на подложке $A-Al_2O_3(11-20)$. Данные для температуры 220 К. Заполненные символы – суммарный сигнал от пленки и подложки. Сплошная линия – парамагнитный вклад подложки. Незаполненные символы – сигнал от пленки после вычитания вклада подложки

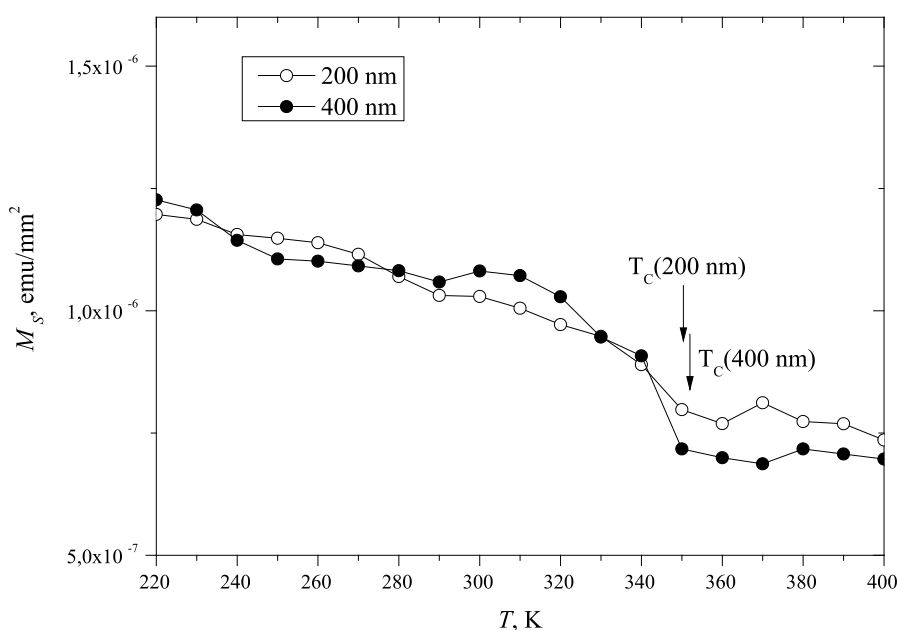


Рис. 2. Температурные зависимости намагниченности насыщения M_s для необлученных пленок $Ni_{50}Mn_{29}Ga_{21}$ толщиной 200 и 400 нм на подложках $A-Al_2O_3(11-20)$. Стрелками указаны значения температур Кюри T_C

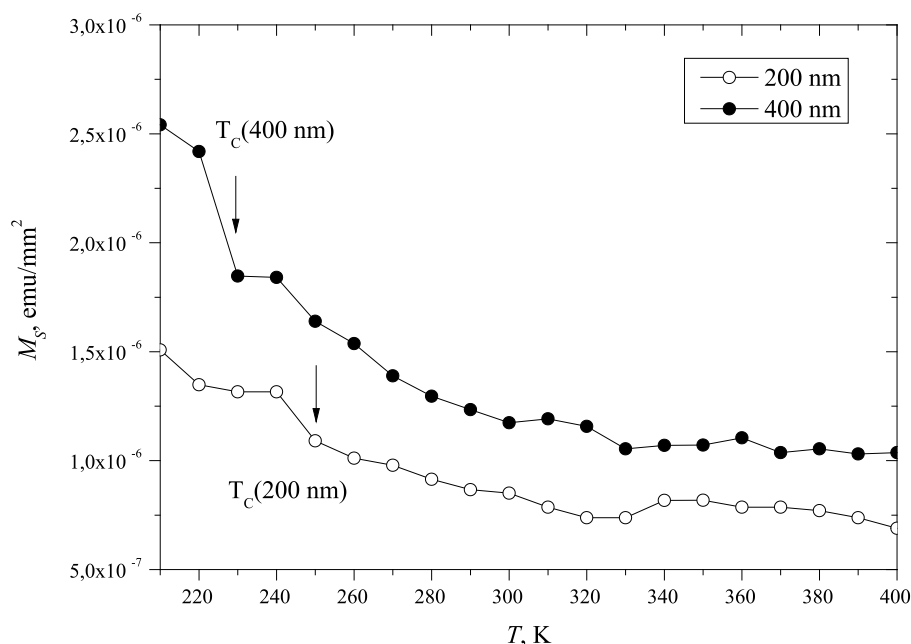


Рис. 3. Температурные зависимости намагниченности насыщения M_s для пленок $Ni_{50}Mn_{29}Ga_{21}$ толщиной 200 и 400 нм на подложках $A-Al_2O_3(11-20)$ после облучения электронами с энергией 5 МэВ с дозой $2 \times 10^{18} \text{ см}^{-2}$. Стрелками указаны значения температур Кюри T_c

Полученные значения уменьшения температуры Кюри вследствие облучения высокоэнергетическими электронами типичны для ферромагнетиков на основе 3d металлов. Сопоставимые по величине изменения температуры Кюри наблюдались в [5] для аморфного ферромагнитного сплава состава $Co_{67.25}Fe_{4.5}Si_{12.25}B_{15}$. Следует отметить повышение намагниченности насыщения в результате облучения. Об этом свидетельствуют величины намагниченности при температуре 220 К (см. рис. 1, 2). Аналогичные закономерности в изменениях намагниченности насыщения наблюдались в [5] для сравнительно малых флюенсов. С ростом величины флюенса намагниченность насыщения уменьшалась. Как показано в работе [6], такой рост в металлических материалах на основе 3d металлов может быть связан с радиационно – стимулированными явлениями рекристаллизации и образованием новых фазовых включений при температурах порядка 298 К и ниже. Существенным является то обстоятельство, что кинетика и конечные продукты этих процессов существенно отличаются от таковых, наблюдаемых при только термических воздействиях.

Накопленная доза облучения $2 \times 10^{18} \text{ см}^{-2}$ соответствует концентрации смещенных атомов на атом пленки (дефектов Френкеля) около 0,02% или $\sim 2 \times 10^{-4}$ смещений на атом. Длина пробега электронов с энергией 5 МэВ в сплавах с элементным

составом, близким к никелю, составляет около 5 нм. Поэтому можно полагать, что генерация дефектов Френкеля по объему пленок происходит однородно по всей площади поверхности и по глубине со степенью, определяемой однородностью пучка высокоэнергетических электронов. Если температура образца достаточно высока, то генерированные дефекты могут мигрировать, обуславливая тем самым радиационно-ускоренную диффузию и изменения, как химического состава, так и параметров магнитного взаимодействия. Дальнейшая эволюция дефектов может быть различной в зависимости от их подвижности, химического и примесного состава облучаемого материала. Также возможным физическим механизмом изменений магнитных свойств материалов на основе 3d металлов при облучении высокоэнергетическими электронами может быть изменение параметров магнитных характеристик и плотности незанятых состояний отдельных атомов. Как показано в [7], в результате облучения высокоэнергетическими электронами с энергией 1,2 МэВ у 3d металлов величины спинового и орбитального магнитных моментов могут изменяться сложным образом: орбитальный магнитный момент может существенно уменьшаться, при этом величина спинового магнитного момента может незначительно увеличиваться. Могут иметь место радиационно-стимулированные процессы переноса

заряда между разными атомами, а также изменения параметров локального ближнего упорядочения и электронной структуры. Уточнение механизмов воздействия радиационных дефектов на магнитные свойства сплавов на основе $3d$ металлов требует дальнейших исследований.

Заключение

Методом магнетронного распыления на постоянном токе получены тонкие пленки состава $\text{Ni}_{50}\text{Mn}_{29}\text{Ga}_{21}$ на подложках $\text{A-Al}_2\text{O}_3$ толщиной 200 и 400 нм. Исследовано влияние облучения электронами с энергией 5 МэВ и дозой 2×10^{18} см² на магнитные свойства. Экспериментально показано, что облучение пленок электронами приводит к уменьшению температуры Кюри. Изменение T_C составило -100 К для пленок толщиной 200 нм и -122 К для пленок толщиной 400 нм.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (проект № 15-02-01782). Работы на ускорителе электронов выполнены в рамках государственного задания ФАНО России (тема «Спин», № 01201463330). При выполнении температурных исследований использовано оборудование ИЦ НППМ ИФМ УрО РАН.

Список литературы

1. Krashennikov A.V., Nordlund K. Ion and electron irradiation-induced effects in nanostructured materials // Journal of Applied Physics. – 2010. – vol. 107. – 071301(70 p.).
2. Qin W., Nagase T., Umakoshi Y. Electron irradiation-induced nanocrystallization of amorphous Fe₈₅B₁₅ alloy: Evidence for athermal nature. Acta Materialia. – 2009. – vol. 57. – P. 1300–1307.
3. Devolder T., Barisic I., Eimer S., Garcia K., Adam J.-P., Ockert B., and Ravelosona D. Irradiation-induced tailoring of the magnetism of CoFeB/MgO ultrathin films // Journal of Applied Physics. – 2013. – vol. 113. – 203912 (4 p.).
4. Носов А.П. Магнитные и транспортные свойства тонких пленок Ni-Mn-Ga полученных магнетронным распылением. / Носов А.П., Грибов И.В., Данилов С.Е., Дубинин С.С., Марченкова Е.Б., Немытова О.В., Обухов С.И., Логинов Б.А., Беспалов В.А. // Международный журнал прикладных и фундаментальных исследований. – 2016. – № 12–9. – С. 1618–1622.
5. Chiriac Y., Rusu F. On electron-beam irradiation effect on the magnetic properties of $\text{Co}_{67.25}\text{Fe}_{4.5}\text{Si}_{12.25}\text{B}_{15}$ amorphous ribbons // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. – 1999. – Vol. 196–197. – P.156–158.
6. Takeshi Nagase, Yukichi Umakoshi. Temperature dependence in density-fluctuation-induced crystallization in metallic glass by MeV electron irradiation // Intermetallics. – 2010. – Vol. 18. – Iss. 10. – P. 1803–1808.
7. Yang L., Zhen L., Yan W.S., Xu C.Y., Sun X.Y., Shao W.Z. XMCD study of Fe-Cr-Co alloy under electron irradiation // Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena. – 2010. – Vol. 180. – P. 34–38.