

УДК 537.9

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

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

<sup>1</sup>*ФГБУН Институт физики металлов имени М.Н. Михеева Уральского отделения  
Российской академии наук, Екатеринбург, e-mail: nossov@imp.uran.ru;*

<sup>2</sup>*Национальный исследовательский университет «МИЭТ», Москва, Зеленоград, 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-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(11-20), SrTiO<sub>3</sub>(100), MgO(100) и Gd<sub>3</sub>Ga<sub>5</sub>O<sub>12</sub>(100). Выявлена систематическая зависимость температуры Кюри пленок от степени структурных несоответствий в системе «пленка-подложка». Показано, что пленки имеют островковую морфологию поверхности и характеризуются малыми значениями характеристик шероховатости.

**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**

**<sup>1</sup>Nosov A.P., <sup>1</sup>Gribov I.V., <sup>1</sup>Danilov S.E., <sup>1</sup>Dubinina S.S., <sup>1</sup>Marchenkova E.B.,  
<sup>1</sup>Nemytova O.V., <sup>1</sup>Obukhov S.I., <sup>2</sup>Loginov B.A., <sup>2</sup>Bespalov V.A.**

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

<sup>2</sup>*National Research University of Electronic Technology MIET, Moscow, Zelenograd, 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-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(11-20), SrTiO<sub>3</sub>(100), MgO(100), and Gd<sub>3</sub>Ga<sub>5</sub>O<sub>12</sub>(100) substrates were investigated. Systematic dependence of the Curie temperature of the films on the lattice mismatch in the «thin film-substrate» system is revealed. It is shown that the films have a discontinuous morphology of the surface and are characterized by low values of roughness.

**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 стрейнэлектронного 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-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(11-20), SrTiO<sub>3</sub>(100), MgO(100) и Gd<sub>3</sub>Ga<sub>5</sub>O<sub>12</sub>(100) с различными соотношениями между структурными параметрами пленки и подложек.

**Материалы и методы исследования**

В качестве материала мишени был выбран состав Ni<sub>33</sub>Mn<sub>22</sub>Ga<sub>25</sub>. Объемные образцы получали плавкой

в атмосфере аргона. Аттестация состава объемных образцов методом электронно-зондового микроанализа подтвердила соответствие элементного состава формуле  $Ni_{53}Mn_{22}Ga_{25}$ . 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  $A-Al_2O_3(11-20)$ ,  $SrTiO_3(100)$ ,  $MgO(100)$  и  $Gd_3Ga_5O_{12}(100)$  (GGG). Методом энергодисперсионного рентгеновского микроанализа при возбуждении электронным пучком определяли элементный состав пленок, который соответствовал  $Ni_{52}Mn_{24}Ga_{24}$ , 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  $Ni_{49,3}Mn_{27,8}Ga_{22,9}$  пленка, полученная методом магнетронного распыления, имела состав  $Ni_{52,5\pm 0,9}Mn_{19,5\pm 0,7}Ga_{28,0\pm 0,5}$ .

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  $Ni_{52}Mn_{24}Ga_{24}$  на подложке  $SrTiO_3(100)$ . 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 значения  $Ra = 0,29$  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.

Температурные измерения намагниченности  $M(T)$  были проведены в режимах нагрева/охлаждения в интервале температур от 410 К до 80 К и приложенном магнитном поле 100 Э. Температуру Кюри ( $T_c$ ) для исследованных пленок определили из нормированных зависимостей  $M(T)/M(80K)$ , где

$M(80K)$  – величина намагниченности при температуре  $T = 80$  К, как показано на рис. 2.

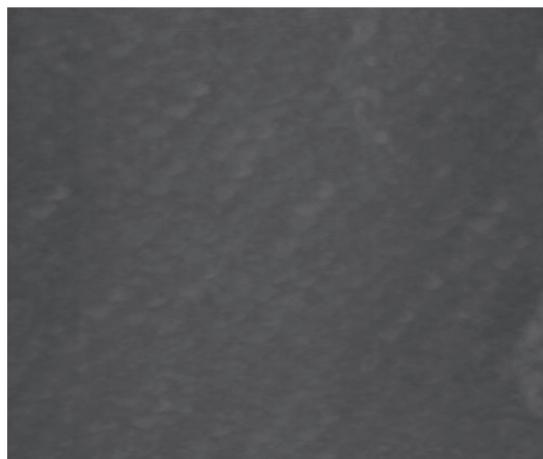


Рис. 1. АСМ изображение поверхности пленки  $Ni_{52}Mn_{24}Ga_{24}$  на подложке  $SrTiO_3(100)$ . Размер кадра 528 нм × 460 нм

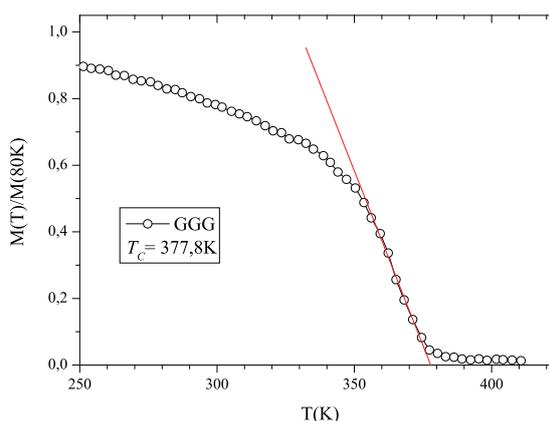


Рис. 2. Определение температуры Кюри ( $T_c$ ) для пленки  $Ni_{52}Mn_{24}Ga_{24}$  на подложке  $GGG(100)$

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

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

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  $45^\circ$  пленки относительно подложки. Поэтому для подложек  $SrTiO_3(100)$  и  $MgO(100)$  в качестве параметра решетки подложки в плоскости роста брались значения вдоль направлений  $[110]$ . В случае подложек  $A-Al_2O_3$  и  $GGG$  параметры ре-

шетоков 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  $\Delta$  равна 7,51% если в качестве параметра решетки подложки (с учетом поворота на  $45^\circ$ ) взять величину, равную удвоенному расстоянию между атомами вдоль направления [110], а в качестве параметра решетки пленки взять величину равную шесту постоянных решеток 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 A-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> величина параметра  $\Delta$  равна - 4,9% если в качестве параметра решетки (с учетом поворота на  $45^\circ$ ) 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  $\Delta$  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  $\Delta$  указывает на то, что пленка будет расти под действием изотропных в плоскости подложки (из-за кубической симметрии в плоскости подложки) растягивающих механических напряжений.

Зависимость температуры Кюри для пленок Ni<sub>52</sub>Mn<sub>24</sub>Ga<sub>24</sub> на подложках A-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>,

SrTiO<sub>3</sub>, GGG и MgO от параметра несоответствия постоянных решеток пленок и подложек  $\Delta$  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  $\Delta$ , т.е. на SrTiO<sub>3</sub>. Присутствие в ходе роста изотропных в плоскости подложки растягивающих механических напряжений (подложки GGG и MgO) незначительно снижает величину температуры Кюри. С увеличением  $\Delta$  при переходе от GGG к MgO величина температуры Кюри практически не меняется. Наиболее существенное уменьшение температуры Кюри наблюдается для пленки на A-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 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<sub>3</sub>, 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<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 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.

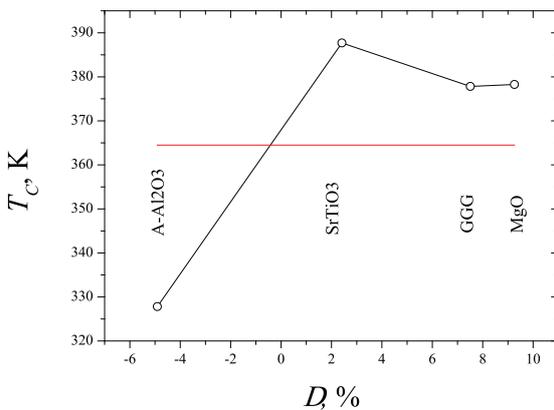


Рис. 3. Зависимость температур Кюри для пленок Ni<sub>52</sub>Mn<sub>24</sub>Ga<sub>24</sub> от величины параметра  $\Delta$ . Красная сплошная линия – значение  $T_C$  для объемной мишени

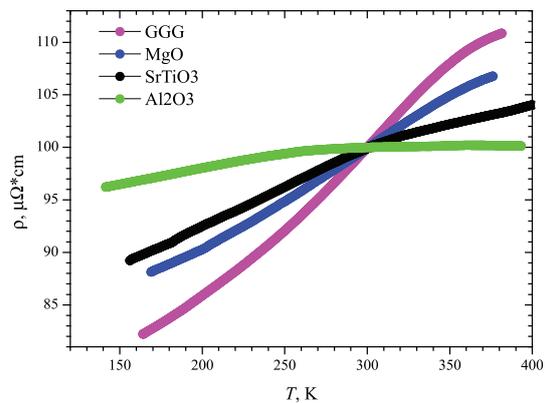


Рис. 4. Температурные зависимости удельного сопротивления пленок Ni<sub>52</sub>Mn<sub>24</sub>Ga<sub>24</sub> на подложках A-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, SrTiO<sub>3</sub>, GGG и MgO

Вид зависимостей  $\rho(T)$  для пленок, выращенных на различных подложках, существенно отличается. Наиболее сильно отличается зависимость  $\rho(T)$  для пленки на  $A\text{-Al}_2\text{O}_3$ . 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.

### Заключение

Методом магнетронного распыления на постоянном токе получены тонкие пленки состава  $\text{Ni}_{52}\text{Mn}_{24}\text{Ga}_{24}$  на подложках  $A\text{-Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SrTiO}_3$ , GGG и  $\text{MgO}$ . Пленки характеризуются малыми значениями средней ( $Ra = 0,29$  нм) и среднеквадратичной ( $Rms = 0,3733$  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. and Mazumder P. Straintronics-Based Random Access Memory as Universal Data Storage Devices // IEEE Transactions in Magnetics. 2015. Vol. 51, No. 5. 3400408 (8 P.).
3. Thomas M., Heczko O., Buschbeck J., Rosler U.K., J. McCord, N. Scheerbaum1, L. Schultz, and S. Fähler. Magnetically induced reorientation of martensite variants in constrained epitaxial Ni–Mn–Ga films grown on  $\text{MgO}(001)$  // New Journal of Physics. – 2008. V. 10. 023040 (20 p).
4. Ranzieri P., Fabbri S., Nasi L., et.al. Epitaxial Ni–Mn–Ga/ $\text{MgO}(100)$  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. P. 696-709.
6. Narayan J. and Larson B.C. Domain epitaxy: A unified paradigm for thin film growth // J. Appl. Phys. – 2003. V. 93. P. 278-285.
7. Lanska N., Soderberg O., Sozinov A., and Y. Gek. V. Ullakko, K. Lindroos. Composition and temperature dependence of the crystal structure of Ni–Mn–Ga alloys // Journal of Applied Physics. 2004. V. 95. P. 8074-8078.