

PACS numbers: 07.05.Pj, 68.35.Ct, 68.37.Hk, 68.37.Ps, 68.55.J-, 68.65.Ac, 81.40.Ef

Вплив відпалу на структуру поверхні плівок Ni_2MnGa

Ю. Б. Скирта

*Институт магнетизму НАН та МОН України,
бульв. Акад. Вернадського, 36б,
03142 Київ, Україна*

Поверхню плівок Ni_2MnGa досліджено за допомогою атомно-силової, оптичної та електронної мікроскопій. Розраховано статистичні параметри поверхні плівок. Розроблено алгоритм виділення зерен на зображеннях. Досліджено закономірності впливу відпалу на параметри поверхні плівок.

Ключові слова: атомно-силова мікроскопія, оптична мікроскопія, електронна мікроскопія, структура поверхні, відпал.

Surface of Ni_2MnGa films is studied using atomic force, optical, and electron microscopies. Statistical parameters of images of films' surface are calculated. An algorithm for selection of grains in the images is developed. The regularities of the effect of annealing on the parameters of the films' surface are investigated.

Key words: atomic force microscopy, optical microscopy, electron microscopy, surface structure, annealing.

Поверхность плёнок Ni_2MnGa исследована при помощи атомно-силовой, оптической и электронной микроскопий. Рассчитаны статистические параметры изображений поверхности плёнок. Разработан алгоритм выделения зёрен на изображениях. Исследованы закономерности влияния отжига на параметры поверхности плёнок.

Ключевые слова: атомно-силовая микроскопия, оптическая микроскопия, электронная микроскопия, структура поверхности, отжиг.

Corresponding author: Yuriy Borysovyeh Skirta
E-mail: SkirtaYuri@ukr.net

*Institute of Magnetism, N.A.S. and M.E.S. of Ukraine,
36b Academician Vernadsky Blvd., UA-03142 Kyiv, Ukraine*

Please cite this article as: Yu. B. Skirta, Influence of Annealing on Structure of a Surface of Films of Ni_2MnGa , *Metallofiz. Noveishie Tekhnol.*, **38**, No. 9: 1179–1194 (2016) (in Ukrainian), DOI: 10.15407/mfint.38.09.1179.

(Отримано 29 вересня 2014 р.; остаточний варіант — 14 серпня 2016 р.)

1. ВСТУП

В останні роки феромагнетний Гойслерів стоп Ni_2MnGa , якому властивий термопружний мартенситний перехід та ефект пам'яті форми, параметрами яких можна керувати за допомогою зовнішнього магнетного поля, є одним з найбільш досліджуваних матеріалів. Саме в цьому стопі вперше спостерігалась значна пружна деформація в магнетному полі [1], яка може досягати 10% [2]. Вплив магнетного поля на мартенситний перехід у феромагнетних Гойслерових стопах викликаний магнетопружньою взаємодією, при якій зміна магнетної структури викликає структурні зміни [3]. При мартенситному переході Ni_2MnGa з аустенітного стану з кристалічною ОЦК-ґратницею переходить в мартенситний стан з тетрагональною кристалічною ґратницею. При такому переході змінюються характеристики матеріялу, зокрема електропровідність і магнетна проникність. Для більшості складів температура Кюрі вище температури зворотного мартенситного переходу, тому феромагнетними є обидва стани — мартенситний та аустенітний. Коли температура Кюрі близька до температури мартенситного переходу, перехід є магнетоструктурним; вплив поля в цьому випадку буде максимальним [2]. Зовнішнє магнетне поле змінює температуру мартенситного переходу і форму зразка за рахунок переулаштування доменної структури, що дозволяє керувати формою матеріялу не лише шляхом зміни температури, а й за допомогою магнетного поля.

Основні особливості стопу Ni_2MnGa та фазових переходів у ньому досліджені в монокристалічних і полікристалічних масивних зразках, плівки з Ni_2MnGa досліджено значно менше, хоч їх застосування має велике практичне значення. Властивості плівкових матеріалів залежать від структури їх поверхні. Плівка може бути суцільною або острівцевою, на її поверхні можуть бути певні текстури, суцільна поверхня може мати різну шерсткість. При цьому можуть змінюватись температури фазових переходів, оптичні характеристики поверхні, транспортні властивості плівки, зокрема, електричний опір. Тому при практичному застосуванні плівок важливо контролювати стан їх поверхні. У даній роботі ми досліджуємо морфологію поверхні плівок, залежно від їх складу, типу підкладки, товщини та термооброблення.

2. МЕТОДИКА ЕКСПЕРИМЕНТУ І ОДЕРЖАНІ РЕЗУЛЬТАТИ

У даній роботі досліджувалася структура поверхні плівок Ni_2MnGa товщиною 0,1, 0,2, 0,4, 0,6, 1,0 і 5,0 мкм, одержаних магнетронним

розпорошенням на скляних і полікристалічних підкладках Al_2O_3 . При напорошенні плівок використовувалися мішені стопів $\text{Ni}_{49,5}\text{Mn}_{28}\text{Ga}_{22,5}$ і $\text{Ni}_{52}\text{Mn}_{24}\text{Ga}_{24}$. В одержаних після напорошення плівках мартенситний перехід не спостерігався. За даними рентгенографічної аналізи [4] невідпалені плівки являють собою твердий розчин заміщення на основі ГЦК-ґратниці Ni з періодом $a = 0,3620$ нм. Середній розмір часток на підкладці з Al_2O_3 становить близько 10 нм, на скляних підкладках розміри ще менші. Щоб індукувати у плівках мартенситний перехід, вони відпалювалися у вакуумі протягом двох годин за температури 873 К (скляна підкладка) і 1273 К (підкладка з Al_2O_3). Після відпалу розмір кристалічних частинок збільшувався на скляних підкладках до 30 мкм і до декількох мікрон на підкладках з Al_2O_3 .

На підкладках з Al_2O_3 величина окремих кристалітів у відпалених плівках зростає з ростом товщини плівки. На рисунку 1 наведено приклад дифрактограми для плівки $\text{Ni}_{52}\text{Mn}_{24}\text{Ga}_{24}$ товщиною 5 мкм, яку було напорошено на підкладку з Al_2O_3 і відпалено за 1273 К. Рентгенограма складається з рефлексів мартенситної фази $\text{Ni}_{52}\text{Mn}_{24}\text{Ga}_{24}$ та підкладки Al_2O_3 , на рисунку у скобках наведено індекси Міллера рефлексів, для рефлексів підкладки додатково написано Al_2O_3 . Наявність рефлексів від плівки $\text{Ni}_{52}\text{Mn}_{24}\text{Ga}_{24}$ свідчить про те, що матеріал знаходиться у полікристалічному стані.

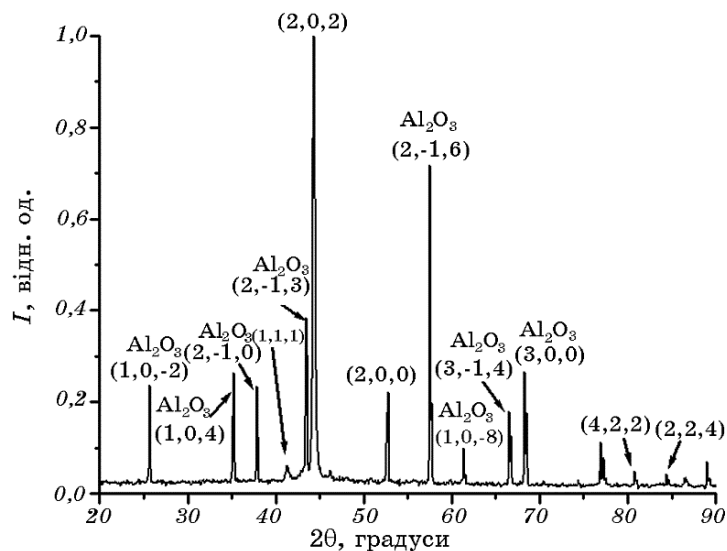


Рис. 1. Дифрактограма плівки $\text{Ni}_{52}\text{Mn}_{24}\text{Ga}_{24}$ товщиною 5 мкм, відпаленої за 1273 К на підкладці з Al_2O_3 .

Fig. 1. Diffraction pattern of film $\text{Ni}_{52}\text{Mn}_{24}\text{Ga}_{24}$ with thickness of 5 μm annealed at 1273 K on Al_2O_3 substrate.

При розшифруванні спектру використовувалися роботи [5–8].

Вимірювання чотирозондовою методою залежності опору плівок від температури показали, що залежності для відпалених плівок мають характерний злам, який відповідає мартенситному переходу, у залежностях невідпалених зразків такої особливості немає, перехід у них не спостерігається.

Далі структура поверхні плівок досліджувалась методами атомно-силової, оптичної та електронної мікроскопії. Найбільш цікаві результати було одержано за допомогою атомно-силової мікроскопії (мікроскоп Solver-Pro-M фірми NT-MDT) в напівконтактному режимі. Під час зйомки вибиралися великі ділянки квадратної форми зі стороною 95 мкм для одержання більш повного уявлення про характер поверхні. Одержані зображення оброблялися як у стандартній програмі керування мікроскопом Nova, так і в спеціально розробленій нами програмі Pattern, яка використовувалася для виділення меж зерен. Наша програма складається з оболонки, призначеної для зчитування, запису та відображення даних з мікроскопу, і набору динамічних бібліотек, що містять функції обробки зображень. Всі атомно-силові зображення плівок на скляній підкладинці мають суцільну, відносно рівну поверхню, без помітного розділу на окремі зерна. Структура поверхні плівок мало залежить від складу, товщини і температурної обробки. Зображення структури поверхні відпалених плівок на Al_2O_3 мають яскраво виражений рельєф, характер якого, у першу чергу, залежить від товщини плівки (рис. 2). Зображення структури поверхні плівок складається з двох груп деталей, які розділені між собою за рахунок зміни висоти рельєфу. Для плівки товщиною $h = 0,1$ мкм структура поверхні складається з окремих ізольованих високих областей, розділених западинами. При $h = 0,2$ мкм ці більш високі області, схоже, з'єднуються і утворюють непереривну сітку, хоча між ними залишаються досить широкі області меншої висоти. Приблизно така структура поверхні спостерігається і в плівках товщиною 0,4 і 0,6 мкм, при цьому відносні розміри площі більш високих областей зростають із збільшенням товщини. При більшій товщині високі області рельєфу домінують і зображення поверхні складається з великих плоских областей, розділених вузькими, неглибокими межами.

У перших двох випадках для виділення меж зерен добре підходить звичайний пороговий метод — визначається середня висота плівки, обчислюється поріг (ми брали 0,1 від середньої висоти), все, що вище, — зерно, перепад — межа. Для товстих плівок ми розробили наступний алгоритм. Спочатку все зображення оброблялося медіальним фільтром з шириною вікна 5 пікселів для згладжування і зменшення шумів [9]. Після цього для кожного пікселя зображення аналізуються 4 відрізки, центром яких він є, довжиною 5 пікселів, спрямовані горизонтально, вертикально і під кутом 45

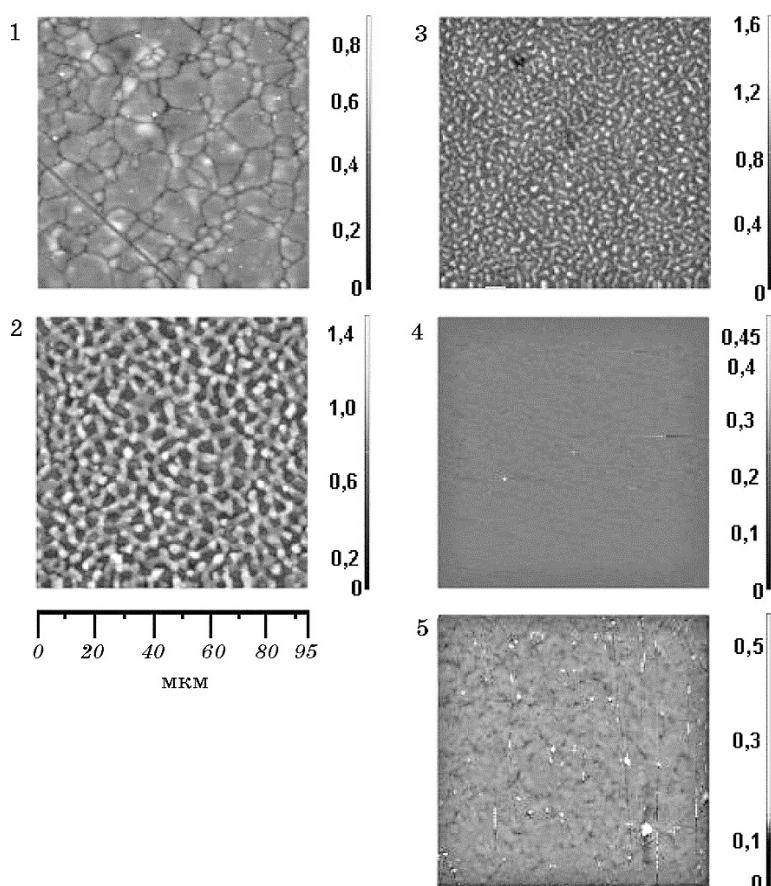


Рис. 2. Морфологія поверхні плівок, одержана напівконтактним методом на атомно-силовому мікроскопі: 1 — плівка Ni_{49,5}Mn₂₈Ga_{22,5} товщиною $h = 5,0$ мкм на підкладинці Al₂O₃, відпал $T = 1273$ К; 2 — плівка Ni₅₂Mn₂₄Ga₂₄ на підкладинці Al₂O₃, $h = 0,2$ мкм, відпал $T = 1273$ К; 3 — Ni₅₂Mn₂₄Ga₂₄ на підкладинці Al₂O₃, $h = 0,1$ мкм, відпал $T = 1273$ К; 4 — Ni₅₂Mn₂₄Ga₂₄ на склі, $h = 1,0$ мкм, без відпалу; 5 — Ni₅₂Mn₂₄Ga₂₄ на склі, $h = 5,0$ мкм, відпал $T = 873$ К.

Fig. 2. Films' surface morphology obtained by semi-contact method with atomic force microscope: 1—Ni_{49,5}Mn₂₈Ga_{22,5}-film with thickness $h = 5.0$ μm on Al₂O₃-substrate, annealing at $T = 1273$ K; 2—Ni₅₂Mn₂₄Ga₂₄-film on Al₂O₃-substrate, $h = 0.2$ μm , annealing at $T = 1273$ K; 3—Ni₅₂Mn₂₄Ga₂₄-film on Al₂O₃-substrate, $h = 0.1$ μm , annealing at $T = 1273$ K; 4—Ni₅₂Mn₂₄Ga₂₄-film on substrate from glass, $h = 1.0$ μm , without annealing; 5—Ni₅₂Mn₂₄Ga₂₄-film on substrate from glass, $h = 5.0$ μm , annealing at $T = 873$ K.

градусів (рис. 3).

Для кожного відрізка перевіряється виконання 4-х умов:

0		0		0
	1	1	1	
0	1	2	3	4
	3	3	3	
4		4		4

Рис. 3. Виділення меж зерен: пронумеровано 4 відрізки або масив пікселів; номер 2 — центральний піксель, для якого виконується перевірка.

Fig. 3. Finding grain boundaries: 4 segments or an array of pixels are numbered; number 2 is the central pixel, for which the test is performed.

$$\begin{aligned}
 V_1 + V_3 - 2V_2 &< H, \\
 V_0 + V_3 - V_1 - V_2 &< H, \\
 V_0 + V_4 - V_2 - V_3 &< H, \\
 V_0 + V_4 - \frac{1}{3}(V_1 + V_2 + V_3) &< H,
 \end{aligned} \tag{1}$$

де V_n — значення пікселя, H — поріг, що визначається виходячи з середнього значення. Якщо виконується хоча б одна умова хоч для одного відрізка, піксель належить межі, інакше — зерну. Одержане сегментоване зображення зберігається в графічному файлі стандартного формату, який можна редагувати вручну для усунення окремих збоїв алгоритма. Розміри зерен визначаються за сегментованим зображенням, для визначення характеристик самих зерен сегментоване зображення накладається на початкове.

Аналіза шерсткості поверхні плівок проводилася за допомогою модуля Image Analysis [10] програми керування мікроскопом Nova. Для кожного зображення виконувалася корекція площини шляхом віднімання поверхні 3-го порядку для виключення впливу непласкопаралельного закріплення зразка та теплового дрейфу. Після цього обчислювалися статистичні характеристики зображення (N — кількість елементів зображення, h_i — висота одного елемента, p_i — ймовірність, з якою елемент набуває заданого значення; табл. 1).

Середня висота поверхні —

ТАБЛИЦЯ 1. Статистичні характеристики атомно-силових зображень поверхні плівок. Прочерк в колонці $T_{\text{відп}}$ — плівка без відпалу.

TABLE 1. Statistical properties of atomic-force images of films' surfaces. A dash in a column $T_{\text{відп}}$ corresponds to film without annealing.

Склад	h , мкм	$T_{\text{відп}}$, К	H_a , нм	R_a , нм	σ , нм	R_{sk}	R_{ka}	I
Ni _{49,5} Mn ₂₈ Ga _{22,5} на склі	0,6	873	108,188	6,480	9,985	2,456	46,661	7,754
Ni _{49,5} Mn ₂₈ Ga _{22,5} на Al ₂ O ₃	5,0	1273	538,239	71,607	94,174	-0,651	1,470	11,202
Ni _{49,5} Mn ₂₈ Ga _{22,5} на склі	0,6	—	66,082	10,147	14,174	1,989	19,872	8,199
Ni ₅₂ Mn ₂₄ Ga ₂₄ на Al ₂ O ₃	0,1	1273	701,203	214,956	257,855	0,824	0,641	12,296
Ni ₅₂ Mn ₂₄ Ga ₂₄ на Al ₂ O ₃	0,2	1273	211,028	53,975	68,245	2,129	12,850	9,768
Ni ₅₂ Mn ₂₄ Ga ₂₄ на склі	0,2	—	106,612	5,621	9,479	2,670	107,72	7,425
Ni ₅₂ Mn ₂₄ Ga ₂₄ на Al ₂ O ₃	0,4	1273	636,826	215,645	243,485	0,104	-1,129	12,374

$$H_a = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N h_i. \quad (2)$$

Середня шерсткість поверхні —

$$R_a = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (h_i - H_a). \quad (3)$$

Середньоквадратичне відхилення висоти поверхні —

$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (h_i - H_a)^2}. \quad (4)$$

Коефіцієнт асиметрії розподілу, що характеризує переки розподілу ймовірностей (для симетричного щодо математичного очікування розподілу він дорівнює нулю) [10] —

$$R_{sk} = \frac{1}{N\sigma^3} \sum_{i=1}^N (h_i - H_a)^3. \quad (5)$$

Коефіцієнт ексцесу, для нормального розподілу дорівнює нулю. Якщо крива розподілу густини ймовірності має більш гостру і високу вершину, ніж нормальний розподіл, ексцес додатній, коли більш низьку і полого — від'ємний [9]:

$$R_{ka} = \frac{1}{N\sigma^4} \sum_{i=1}^N (h_i - H_a)^4. \quad (6)$$

Ентропія зображення, що характеризує хаотичність розподілу висот задається виразом

$$I = -\sum_{i=1}^N p_i \log_2 p_i. \quad (7)$$

Нами були побудовані гістограми розподілу висот на зображенні поверхні плівок різного типу (рис. 4). Було виявлено істотну різ-

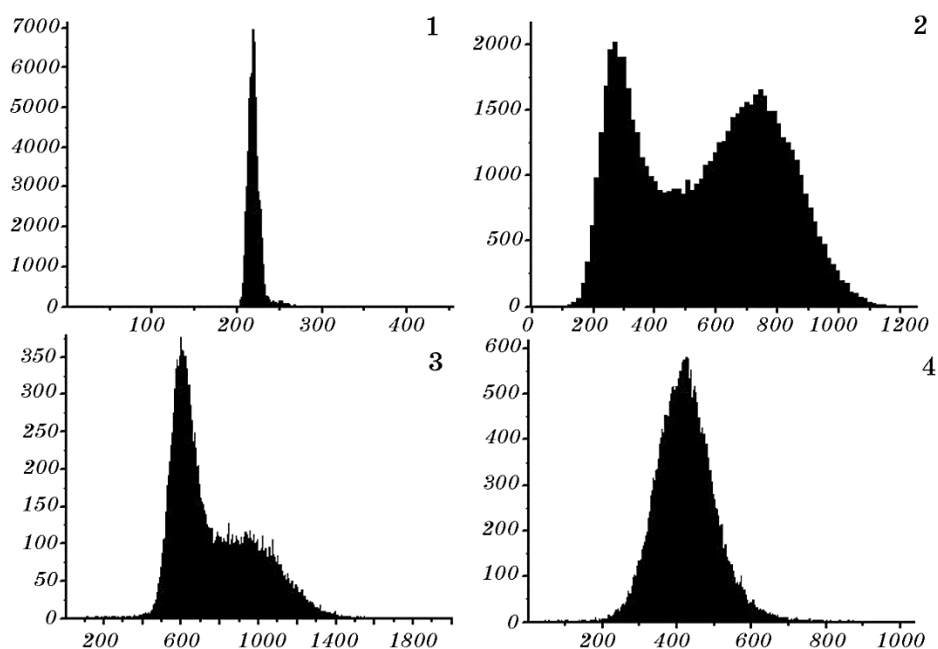


Рис. 4. Гістограми розподілу висот на зображенні поверхні плівок (по осі X — висота в нм, по осі Y — кількість відповідних пікселів на зображенні): 1 — плівка $\text{Ni}_{52}\text{Mn}_{24}\text{Ga}_{24}$ товщиною $h = 0,2$ мкм на склі, без відпалу; 2 — $\text{Ni}_{52}\text{Mn}_{24}\text{Ga}_{24}$ на підкладинці Al_2O_3 , $h = 0,2$ мкм, відпал $T = 1273$ К; 3 — $\text{Ni}_{52}\text{Mn}_{24}\text{Ga}_{24}$ на підкладинці Al_2O_3 , $h = 0,1$ мкм, відпал $T = 1273$ К; 4 — $\text{Ni}_{49,5}\text{Mn}_{28}\text{Ga}_{22,5}$ на підкладинці Al_2O_3 , $h = 5,0$ мкм, відпал $T = 1273$ К.

Fig. 4. Histograms of the heights distribution on image of films' surface (axis X —height in nm, axis Y —number of corresponding pixels on image): 1— $\text{Ni}_{52}\text{Mn}_{24}\text{Ga}_{24}$ -film with thickness of $h = 0.2$ μm on substrate from glass without annealing; 2— $\text{Ni}_{52}\text{Mn}_{24}\text{Ga}_{24}$ -film on Al_2O_3 -substrate, $h = 0.2$ μm , annealing at $T = 1273$ K; 3— $\text{Ni}_{52}\text{Mn}_{24}\text{Ga}_{24}$ -film on Al_2O_3 -substrate, $h = 0.1$ μm , annealing at $T = 1273$ K; 4— $\text{Ni}_{49,5}\text{Mn}_{28}\text{Ga}_{22,5}$ -film on Al_2O_3 -substrate, $h = 5.0$ μm , annealing at $T = 1273$ K.

ницю у формі гістограм для плівок на скляній підкладинці та на Al₂O₃, в останньому випадку гістограми відрізняються і для плівок різної товщини: 0,1 мкм, 0,2 мкм і 5,0 мкм. Гістограми розподілу висот для плівок на склі у всіх випадках мають форму одного вузького піка, розподіл має великий додатній ексцес, тобто він вужчий та гостріший за нормальний розподіл. Гістограми розподілу плівок на Al₂O₃ товщиною 0,1–0,4 мкм мають два піки, які відповідають розподілу висот власне зерен напорошеної плівки і проміжків між зернами. Для плівок 0,1 мкм пік, який відповідає проміжкам, значно вищий за той, що відповідає зернам. Далі, зі збільшенням товщини плівки, висоти піків вирівнюються. При товщині плівки 5,0 мкм гістограма має тільки один пік, оскільки у таких плівках зерна розміщені суцільно. Розподіл для таких плівок значно ближчий до нормального, ніж у плівках на склі, тобто рельєф поверхні у них більш різноманітний.

Ентропія зображення суттєво відрізняється для плівок на склі (7,4–8,2) та на Al₂O₃ (9,8–12,3). Для характеристики поверхні плівок на Al₂O₃ доцільно використовувати середню висоту, середню шерсткість та середньоквадратичний відхил висоти поверхні, дві останні величини мають близькі числові значення і схожий фізичний зміст. Ці величини мають великі значення для плівки з окремих острівців (за товщини плівки 0,1 мкм), зменшуються при утворенні неперервної сітки (0,2 мкм), далі зростають зі збільшенням товщини (0,4 мкм) і знову зменшуються при утворенні суцільної плівки (5,0 мкм). У всіх випадках величини R_a та σ в декілька разів більші для плівок на Al₂O₃, ніж на склі. Коефіцієнти асиметрії та ексцесу мають фізичний зміст тільки у випадку розподілу з одним піком і можуть характеризувати відмінність рельєфу поверхні плівок на різних підкладинках.

Для плівок на підкладинці Al₂O₃ за допомогою нашої програми на зображенні структури поверхні було виділено окремі зерна та проведено аналіз їх розмірів. Для двох значень товщини — 0,1 мкм і 5,0 мкм було побудовано гістограми розподілу площі зерен і середніх перепадів висоти на їх поверхні (рис. 5). Гістограми в обох випадках мають схожу форму, загальна кількість зерен і перепад висот більше для плівки товщиною 0,1 мкм, площа зерен більше для плівки 5 мкм.

Для деяких плівок було розраховано статистичні характеристики зерен (табл. 2): N_g — середня кількість зерен на одному зображенні розміром 95 мкм на 95 мкм, S_g — середня площа зерна, S_{gmax} — максимальна площа зерна, H_g — середній перепад висот на поверхні зерна, H_{gmax} — максимальний перепад висот на поверхні зерна, S_g/S_0 — коефіцієнт заповнення, співвідношення суми площ всіх зерен та всієї площі зображення.

Всі проаналізовані плівки було напорошено на підкладинці Al₂O₃

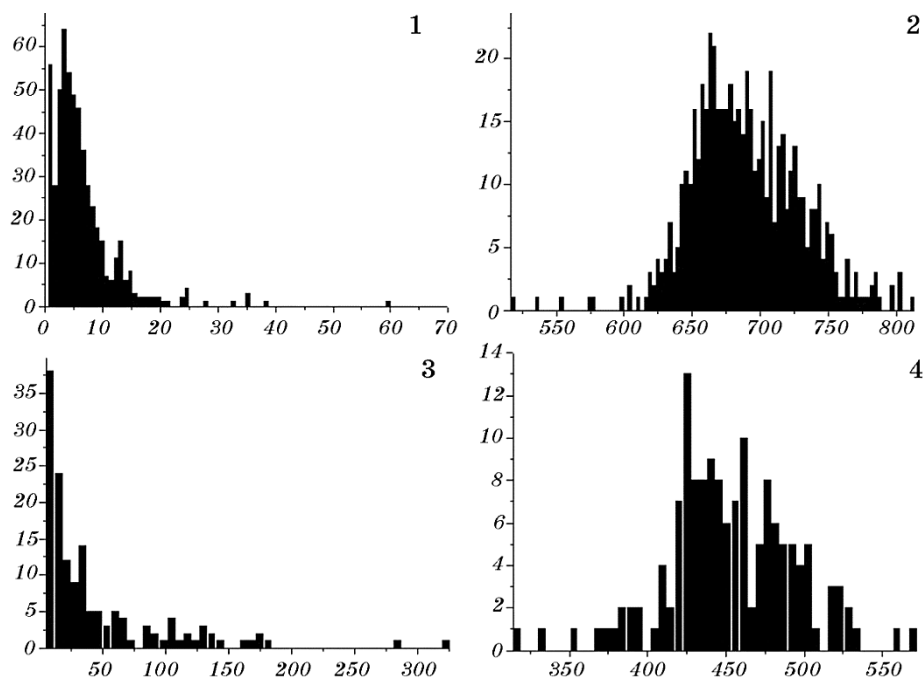


Рис. 5. Гістограми розподілу площі (ліворуч) та середнього перепаду висот (праворуч) на поверхні зерен плівок (по осі X — площа зерен у $\mu\text{м}^2$ та перепад висоти в нм , по осі Y — кількість відповідних зерен на зображенні): 1, 2 — плівка $\text{Ni}_{52}\text{Mn}_{24}\text{Ga}_{24}$ на підкладинці Al_2O_3 , $h = 0,1$ $\mu\text{м}$, відпал $T = 1273$ К ; 3, 4 — плівка $\text{Ni}_{49,5}\text{Mn}_{28}\text{Ga}_{22,5}$ на підкладинці Al_2O_3 , $h = 5,0$ $\mu\text{м}$, відпал $T = 1273$ К .

Fig. 5. Histograms of distribution of area (right) and average height difference (left) on the grains' surface of films (axis X —grain area in μm^2 and drop of height in nm , axis Y —number of corresponding grains on the image): 1, 2 — $\text{Ni}_{52}\text{Mn}_{24}\text{Ga}_{24}$ -film on Al_2O_3 -substrate, $h = 0.1$ μm , annealing at $T = 1273$ K ; 3, 4 — $\text{Ni}_{49,5}\text{Mn}_{28}\text{Ga}_{22,5}$ -film on Al_2O_3 -substrate, $h = 5.0$ μm , annealing at $T = 1273$ K .

та відпалено при 1273 К .

З наведених у табл. 2 даних видно, що кількість зерен на зображенні для плівки товщиною 0,1 $\mu\text{м}$ значно більше, ніж за товщини 5,0 $\mu\text{м}$, а їх площа, відповідно, менше. Для плівок проміжної товщини 0,2 і 0,4 $\mu\text{м}$ програма виділяла кластери з'єднаних зерен як одне ціле, чим обумовлена мала кількість зерен та їх велика площа. Середній перепад висот на поверхні зерен зменшується з ростом товщини плівки, співвідношення S_g/S_0 — зростає. Для плівки товщиною 0,1 $\mu\text{м}$, яка не проводить електричний струм, співвідношення S_g/S_0 менше порогу перколяції 0,5, для плівки товщиною 0,2 $\mu\text{м}$, яка суцільна та електропровідна — більше. Для плівки то-

ТАБЛИЦЯ 2. Статистичні характеристики атомно-силових зображень зерен.**TABLE 2.** Statistical characteristics of atomic-force images of grains.

Склад	H , мкм	N_g	S_g , мкм ²	S_{gmax} , мкм ²	H_g , нм	H_{gmax} , нм	S_g/S_0
Ni _{5,2} Mn _{2,4} Ga _{2,4}	0,1	559	5,499	195,687	994,689	2201,673	0,364
Ni _{5,2} Mn _{2,4} Ga _{2,4}	0,2	29,125	163,853	4501,759	813,481	1031,326	0,508
Ni _{5,2} Mn _{2,4} Ga _{2,4}	0,4	14,813	344,397	5348,954	801,453	993,868	0,548
Ni _{49,5} Mn ₂₈ Ga _{22,5}	5,0	186,75	32,439	323,482	542,678	895,740	0,667

вщиною 5,0 мкм величина S_g/S_0 — це співвідношення площі зерен без площі поглиблень (меж), які їх розділяють, до площі всієї поверхні, а для більш тонких плівок — це співвідношення площі всіх високих областей до всієї площі поверхні.

Оптичні виміри проводились за допомогою металографічного мікроскопа ЛОМО МЕТАМ Р-1, зображення знімалися цифровою камерою. На знімках видно такі самі особливості поверхні плівки, як і при вимірах за допомогою атомно-силового мікроскопа, за винятком того, що оптичний мікроскоп не дає значень висот рельєфу поверхні, яка досліджується, тому порівнювати можна тільки форму і горизонтальні розміри зерен. При обчисленні статистичних характеристик величина H_a , розрахована за формулою (2), має значення середньої яскравості зображення, всі статистичні характеристики у цьому випадку безрозмірні. Середня яскравість зображення при однакових умовах освітлення зразків буде пропорційна середньому коефіцієнту відбиття поверхні зразка для світла. Нижче наведено приклад оптичного зображення (рис. 6) та статистичні характеристики відповідних зображень поверхонь плівок (табл. 3).

Також зображення поверхні деяких зразків було знято за допомогою сканувального растрового електронного мікроскопу Селмі РЕМТ-103. Результат підтвердив існування рельєфу на поверхні відпалених плівок на підкладинці з Al₂O₃, величина H_a у цьому випадку пропорційна середньому коефіцієнту відбиття електронів від поверхні зразка при фіксованому значенні прискорювальної напруги. Нижче наведено приклад такого зображення для двох зразків плівки (рис. 7) та статистичні характеристики плівок (табл. 4).

3. ОБГОВОРЕННЯ ТА ВИСНОВКИ

При дослідженні поверхні плівок методами атомно-силової, оптичної та електронної мікроскопії була виявлена суттєва різниця морфології плівок Ni₂MnGa на підкладинках з Al₂O₃ та зі скла.

Поверхня плівок на скляній підкладинці має гладкозернисту структуру, після відпалу рельєф поверхні практично не змінюється.

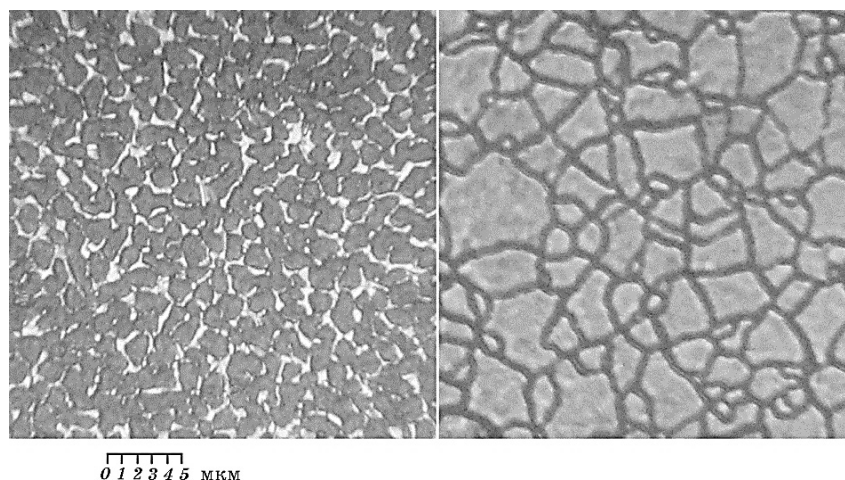


Рис. 6. Оптичне зображення поверхонь плівок: праворуч — плівка $\text{Ni}_{49.5}\text{Mn}_{28}\text{Ga}_{22.5}$ на підкладинці Al_2O_3 , $h = 5,0$ мкм, відпал $T = 1273$ К; ліворуч — плівка $\text{Ni}_{52}\text{Mn}_{24}\text{Ga}_{24}$ на підкладинці Al_2O_3 , $h = 0,2$ мкм, відпал $T = 1273$ К.

Fig. 6. Optical images of the films' surfaces: right— $\text{Ni}_{49.5}\text{Mn}_{28}\text{Ga}_{22.5}$ -film on Al_2O_3 -substrate, $h = 5.0 \mu\text{m}$, annealing at $T = 1273$ K; left— $\text{Ni}_{52}\text{Mn}_{24}\text{Ga}_{24}$ -film on Al_2O_3 -substrate, $h = 0.2 \mu\text{m}$, annealing at $T = 1273$ K.

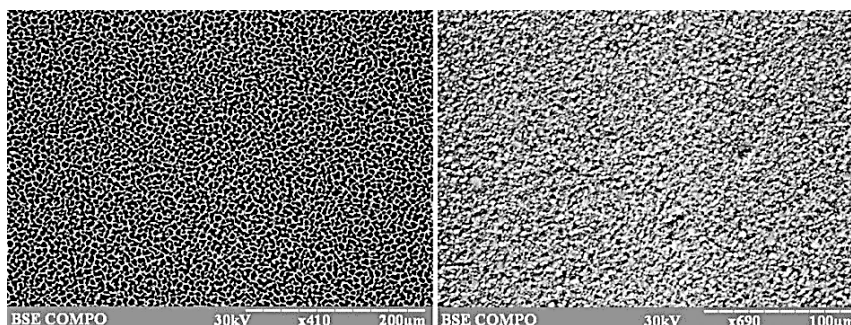


Рис. 7. Зображення структури поверхонь плівок, одержані за допомогою растрового електронного мікроскопу: праворуч — плівка $\text{Ni}_{52}\text{Mn}_{24}\text{Ga}_{24}$ на підкладинці Al_2O_3 , $h = 0,4$ мкм, відпал $T = 1273$ К; ліворуч — плівка $\text{Ni}_{49.5}\text{Mn}_{28}\text{Ga}_{22.5}$ на підкладинці Al_2O_3 , $h = 0,2$ мкм, відпал $T = 1273$ К.

Fig. 7. SEM-images of the surfaces' structure of films: right— $\text{Ni}_{52}\text{Mn}_{24}\text{Ga}_{24}$ -film on Al_2O_3 -substrate, $h = 0.4 \mu\text{m}$, annealing at $T = 1273$ K; left— $\text{Ni}_{49.5}\text{Mn}_{28}\text{Ga}_{22.5}$ -film on Al_2O_3 -substrate, $h = 0.2 \mu\text{m}$, annealing at $T = 1273$ K.

ТАБЛИЦЯ 3. Статистичні характеристики оптичних зображень структури поверхні плівок. Прочерк в колонці $T_{\text{відп}}$ — плівка без відпалу.

TABLE 3. Statistical characteristics of optical images of surface structure of the films. A dash in a column of $T_{\text{відп}}$ —film without annealing.

Склад	h , мкм	$T_{\text{відп}}$, К	H_a	σ	R_{sk}	R_{ka}	I
Ni _{49,5} Mn ₂₈ Ga _{22,5} на Al ₂ O ₃	0,1	1273	400,822	54,967	-0,291	-0,584	7,749
Ni _{49,5} Mn ₂₈ Ga _{22,5} на Al ₂ O ₃	0,2	1273	439,946	84,287	0,150	-0,344	8,410
Ni _{49,5} Mn ₂₈ Ga _{22,5} на Al ₂ O ₃	0,6	1273	470,934	48,499	-0,100	-0,310	7,604
Ni _{49,5} Mn ₂₈ Ga _{22,5} на Al ₂ O ₃	1,0	1273	449,993	79,775	0,633	0,162	8,270
Ni _{49,5} Mn ₂₈ Ga _{22,5} на Al ₂ O ₃	5,0	1273	441,408	63,896	-0,467	-0,686	7,862
Ni ₅₂ Mn ₂₄ Ga ₂₄ на Al ₂ O ₃	0,1	1273	458,860	28,973	1,180	4,031	6,748
Ni ₅₂ Mn ₂₄ Ga ₂₄ на Al ₂ O ₃	0,2	1273	453,864	72,936	0,896	1,154	8,075
Ni ₅₂ Mn ₂₄ Ga ₂₄ на Al ₂ O ₃	0,4	1273	501,213	40,949	0,195	-0,155	7,374
Ni ₅₂ Mn ₂₄ Ga ₂₄ на Al ₂ O ₃	0,6	1273	380,887	47,906	-0,159	-0,033	7,613
Ni ₅₂ Mn ₂₄ Ga ₂₄ на Al ₂ O ₃	5,0	1273	386,451	67,664	0,063	-0,355	8,108
Ni ₅₂ Mn ₂₄ Ga ₂₄ на склі	5,0	873	452,161	44,861	-0,031	-0,899	7,413
Ni _{49,5} Mn ₂₈ Ga _{22,5} на склі	5,0	—	447,271	53,603	-0,630	-0,120	7,648

ся. За даними рентгеноструктурної аналізи після відпалу плівки на обох типах підкладок стають полікристалічними, розмір кристалітів на підкладці з Al₂O₃ значно більший, ніж на підкладці зі скла [4].

Можна припустити, що ця різниця викликана більш високою температурою відпалу для плівок на підкладці з Al₂O₃, яка близька до температури плавлення, яка дорівнює 1380 К [3]. Як вказано у [11], рекристалізація металів проходить у дві стадії. На першому етапі відбувається виникнення невеликих, хаотично орієнтованих кристалів, які на другому етапі, при збірній рекристалізації, зростають, зливаючись і поглинаючи один одного. Другий етап відбувається при більш високій температурі. Температура початку рекристалізації залежить від складу стопу і становить до 0,8 темпера-

ТАБЛИЦЯ 4. Статистичні характеристики зображень структури поверхні плівок, одержаних за допомогою растрового електронного мікроскопу. Прочерк в колонці $T_{\text{відп}}$ — плівка без відпалу.

TABLE 4. Statistical characteristics of the image surface structure of films obtained by scanning electron microscope. A dash in a column of $T_{\text{відп}}$ —film without annealing.

Склад	h , мкм	$T_{\text{відп}}$, К	H_a	σ	R_{sk}	R_{ka}	I
Ni _{49,5} Mn ₂₈ Ga _{22,5} на Al ₂ O ₃	0,2	1273	273,898	199,927	0,618	-1,024	7,426
Ni ₅₂ Mn ₂₄ Ga ₂₄ на Al ₂ O ₃	0,2	1273	224,875	188,020	0,963	0,480	7,059
Ni ₅₂ Mn ₂₄ Ga ₂₄ на Al ₂ O ₃	0,4	1273	405,938	121,083	-0,069	0,091	7,375
Ni _{49,5} Mn ₂₈ Ga _{22,5} на склі	0,4	—	178,521	28,462	-0,052	-0,312	5,288
Ni _{49,5} Mn ₂₈ Ga _{22,5} на склі	0,4	873	580,406	112,022	-0,335	-0,351	7,047

тури плавлення [11]. Можна припустити, що для скляних підкладок при 873 К відбувається тільки перший етап рекристалізації, а для Al₂O₃ при 1273 К — обидва. Структури поверхонь плівок на Al₂O₃ дуже схожі на описані у роботі [12]. Етапи росту плівки: зародки, з яких утворюються острівці, які при зростанні у процесі коалесценції спочатку з'єднуються у неперервну сітчасту структуру, а при подальшому рості поступово заповнюють пусті місця і плівка стає суцільною.

Розмір окремих зерен зростає при збільшенні товщини плівки. У деяких випадках також можливе виникнення періодичних поверхневих структур за рахунок хаотичної зміни кута падіння продуктів напорошення на підкладку [13], але у даному випадку вплив цього механізму малоймовірний. Зі збільшенням товщини відпаленої плівки на Al₂O₃ збільшується розмір видимих на поверхні зерен, плівка з острівцевої стає суцільною. Така морфологія поверхні може утворюватися як при напорошенні плівки, так і при відпалі за температури 1273 К. Розрахунок статистичних характеристик дає можливість кількісно описати відмінності між плівками.

Запропоновані нами алгоритми виділення зерен деякою мірою схожі на описані у роботах [14, 15], але мають відмінності, обумовлені різницею морфології поверхні металевих плівок, одержаних магнетронним розпорошенням, і поверхні, утвореної осадженням наночастинок з розчину. Одержані атомно-силовим мікроскопом зображення вирівнювались окремо для кожного скану за допомогою поліномів 4-го порядку, алгоритм було запозичено з програми Gwyddion [16]. Це дозволяло зменшити вплив непласкопаралельно-

сти підкладинки та інструментальних факторів. Для зменшення шуму використовувався медіальний фільтр. У випадку бінаризації поріг, який відрізняє зерно і фон, обирався експериментально, з візуального порівняння початкового та бінаризованого зображення, а не з гістограми висоти, як у роботі [14]. Після виконання бінаризації у подальшій сегментації зображень не було потреби. Алгоритм, який було розроблено для більш товстих плівок, простіший за алгоритм водорозділу [15], працює швидше і не виділяє помилково межі, пов'язані з перепадами висот на поверхні самих зерен, але він може працювати тільки при великій різниці висоти зерна і проміжку між зернами, а також при малій ширині проміжків порівняно з лінійними розмірами зерен. Цей алгоритм при зміні ширини вікна і межових умов для відрізків може бути корисним і для аналізу плівок інших типів.

ПОДЯКИ

Плівки, які нами було використано у роботі, було виготовлено в університеті Токіо, Сенсаї, Японія. Автори вдячні проф. В. А. Черненко (Університет Країни Басків, Іспанія) за надані зразки і допомогу в роботі над статтею.

ЦИТОВАНА ЛІТЕРАТУРА

1. K. Ullakko, J. K. Huang, C. Kantner, R. C. O'Handley, and V. V. Kokorin, *Appl. Phys. Lett.*, **69**: 1966 (1996).
2. В. Д. Бучельников, А. Н. Васильев, В. В. Коледов и др., *УФН*, **176**, № 8: 900 (2006).
3. А. Н. Васильев, В. Д. Бучельников, Т. Такаги, В. В. Ховайло, Э. И. Эстрин, *УФН*, **173**, № 6: 577 (2003).
4. А. Ф. Андреева, Н. Н. Крупа, Е. И. Крысюк и др., *Электронное строение и свойства тугоплавких соединений и сплавов, наносистемы и их роль в физическом материаловедении: Труды Института проблем материаловедения им. И. Н. Францевича НАН Украины* (Киев: ИПМ НАНУ: 2004), с. 121.
5. S. Guo, Y. Zhang, J. Li, B. Quan, Y. Qi, and X. Wang, *J. Mater. Sci. Technol.*, **21**, No. 2: 211 (2005).
6. S. Besseghini, T. Cavallin, V. Chernenko, E. Villa, V. Lvov, and M. Ohtsuka, *Acta Mater.*, **56**: 1797 (2008).
7. M. Suzuki, M. Ohtsuka, M. Matsumoto, Y. Murakami, D. Shindo, and K. Itagaki, *Mater. Transactions*, **43**, No. 5: 861 (2002).
8. F. Bernard, P. Delobelle, C. Rousselot, and L. Hirsinger, *Thin Solid Films*, **518**: 399 (2009).
9. В. Яншин, Г. Калинин, *Обработка изображений на языке C для IBM PC* (Москва: Мир: 1994).
10. *Модуль обработки изображений 'Image Analysis P9': Справочное руководство* <http://www.ntmdt.ru/data/media/files/manuals/Russian/>

- image_analysis_p9_rus_nov12.pdf
11. А. П. Гуляев, *Металловедение* (Москва: Metallurgiya: 1986).
 12. К. Л. Чопра, *Электрические явления в тонких плёнках* (Москва: Мир: 1972).
 13. І. О. Лисенко, В. О. Харченко, С. В. Кохан, А. В. Дворниченко, *Металлофиз. новейшие технол.*, **35**, № 6: 763 (2013).
 14. V. Gelinas and D. Vidal, *Powder Technol.*, **203**: 254 (2010).
 15. A. P. Chuklanov, S. A. Ziganshina, and A. A. Bukharaev, *Surf. Interface Anal.*, **36**: 679 (2006).
 16. D. Nečas and P. Klapetek, *Cent. Eur. J. Phys.*, **10**, No. 1: 181 (2012).

REFERENCES

1. K. Ullakko, J. K. Huang, C. Kantner, R. C. O'Handley, and V. V. Kokorin, *Appl. Phys. Lett.*, **69**: 1966 (1996).
2. V. D. Buchelnikov, A. N. Vasiliev, V. V. Koledov et al., *Uspekhi Fizicheskikh Nauk*, **176**, No. 8: 900 (2006) (in Russian).
3. A. N. Vasiliev, V. D. Buchelnikov, T. Takagi, V. V. Hovaylo, and E. I. Estrin, *Uspekhi Fizicheskikh Nauk*, **173**, No. 6: 577 (2003).
4. A. F. Andreeva, N. N. Krupa, E. I. Krysyuk et al., *Elektronnoe Stroenie i Svoistva Tugoplavkikh Soedineniy i Splavov, Nanosistemy i Ikh Rol' v Fizicheskoy Materialovedenii* [Electronic Structure and Properties of Refractory Compounds and Alloys, Nanosystems and Their Role in the Physical Materials Science]: *Proc. I. M. Frantsevich Institute for Problems of Materials Sciences of N.A.S. of Ukraine* (Kiev: 2004), p. 121 (in Russian).
5. S. Guo, Y. Zhang, J. Li, B. Quan, Y. Qi, and X. Wang, *J. Mater. Sci. Technol.*, **21**, No. 2: 211 (2005).
6. S. Besseghini, T. Cavallin, V. Chernenko, E. Villa, V. Lvov, and M. Ohtsuka, *Acta Mater.*, **56**: 1797 (2008).
7. M. Suzuki, M. Ohtsuka, M. Matsumoto, Y. Murakami, D. Shindo, and K. Itagaki, *Mater. Transactions*, **43**, No. 5: 861 (2002).
8. F. Bernard, P. Delobelle, C. Rousselot, and L. Hirsinger, *Thin Solid Films*, **518**: 399 (2009).
9. V. Yanshin and G. Kalinin, *Obrabotka Izobrazheniy na Yazyke C dlya IBM PC* (Moscow: Mir: 1994) (in Russian).
10. *Modul' Obrabotki Izobrazheniy 'Image Analysis P9': Spravochnoe Rukovodstvo* http://www.ntmdt.ru/data/media/files/manuals/Russian/image_analysis_p9_rus_nov12.pdf
11. A. P. Gulyaev, *Metallovedenie* (Moscow: Metallurgiya: 1986) (in Russian).
12. K. L. Chopra, *Elektricheskie Yavleniya v Tonkikh Plenkakh* (Moscow: Mir: 1972) (Russian translation).
13. І. О. Лисенко, В. О. Харченко, С. В. Кохан, and А. В. Дворниченко, *Металлофиз. Невейшие Текhnол.*, **35**, No. 6: 763 (2013) (in Ukrainian).
14. V. Gelinas and D. Vidal, *Powder Technol.*, **203**: 254 (2010).
15. A. P. Chuklanov, S. A. Ziganshina, and A. A. Bukharaev, *Surf. Interface Anal.*, **36**: 679 (2006).
16. D. Nečas and P. Klapetek, *Cent. Eur. J. Phys.*, **10**, No. 1: 181 (2012).