Письма в ЖЭТФ, том 103, вып. 7, с. 539 – 546 © 2016 г. 10 апреля

Аномальный эффект Холла в поликристаллических пленках $Si_{1-x}Mn_x$ ($x \approx 0.5$) с самоорганизованным распределением кристаллитов по форме и размерам

К. Ю. Черноглазов[a], *С. Н. Николаев*[a], *В. В. Рыльков*[a,f 1)], *А. С. Семисалова*[b,c], *А. В. Зенкевич*[d], *В. В. Тугушев*[a], *А. Л. Васильев*[a], *Ю. М. Чесноков*[a], *Э. М. Пашаев*[a], *Ю. А. Матвеев*[d], *А. Б. Грановский*[b], *О. А. Новодворский*[e], *А. С. Веденеев*[f], *А. С. Бугаев*[d,f], *А. Драченко*[g 2)], *Ш. Жоу*[c,2)]

[a] *Национальный исследовательский центр "Курчатовский институт", 123182 Москва, Россия*

[b] *Московский государственный университет им. Ломоносова, 119991 Москва, Россия*

[c] *Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf, Institute of Ion Beam Physics and Materials Research, 01328 Dresden, Germany*

[d] *Московский физико-технический институт, 141700 Долгопрудный, Россия*

[e] *Институт проблем лазерных и информационных технологий РАН, 140700 Шатура, Россия*

[f] *Фрязинский филиал Института радиотехники и электроники им. Котельникова РАН, 141190 Фрязино, Россия*

[g] *Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses, UPR 3228, CNRS-UJF-UPS-INSA, Toulouse, France*

Поступила в редакцию 9 февраля 2016 г.
После переработки 24 февраля 2016 г.

Исследованы структурные, транспортные и магнитные свойства поликристаллических пленок $Si_{1-x}Mn_x$ ($x \approx 0.51$–0.52), полученных методом импульсного лазерного осаждения на подложках Al_2O_3 (0001) в "теневой" геометрии, когда элементы осаждаются при малой энергии за счет столкновения с атомами буферного газа. Намагниченность данных пленок определяется двумя ферромагнитными фазами: высокотемпературной с температурой Кюри $T_C \approx 370$ К и низкотемпературной с $T_C \approx 46$ К. При этом аномальный эффект Холла (АЭХ) с понижением температуры изменяет знак с положительного на отрицательный при температуре 30–50 К, зависящей от толщины Mn_xSi_{1-x} пленки. Результаты объясняются структурной самоорганизацией, связанной с формированием в процессе роста двух слоев, близких по химическому составу, но существенно различающихся по форме и размерам кристаллитов, что приводит к кардинальному отличию в T_C, величине и знаке АЭХ этих слоев.

DOI: 10.7868/S0370274X16070109

1. Аномальный эффект Холла (АЭХ) представляет собой сложное квантовое явление, обнаруженное в 1880 г., впервые объясненное в 1954 г. [1] и до сих пор активно исследуемое экспериментально и теоретически [2–14]. Данный эффект определяется спин-орбитальным взаимодействием (СОВ) и спиновой поляризацией носителей заряда. Наиболее сильно он проявляется в магнитных материалах (ферромагнитных металлах и полупроводниках, гранулированных металл-диэлектрических системах и т.п.), холловское сопротивление которых описывается суммой двух членов:

$$R_{\mathrm{H}} = \frac{R_0}{d}B + \frac{R_s}{d}M = R_{\mathrm{H}}^n + R_{\mathrm{H}}^a, \qquad (1)$$

где d – толщина слоя магнитного материала, R_0 – константа нормального эффекта Холла, обусловленного силой Лоренца, B – магнитная индукция, R_s – константа аномального эффекта Холла, определяемого влиянием СОВ на перенос спин-поляризованных носителей тока, M – намагниченность, $R_{\mathrm{H}}^n = \rho_{\mathrm{H}}^n/d$ и $R_{\mathrm{H}}^a = \rho_{\mathrm{H}}^a/d$ – компоненты сопротивления нормального и аномального эффектов Холла соответственно.

Одно из наиболее интересных направлений в исследованиях АЭХ связано с изучением зависимости аномальной компоненты удельного холловского сопротивления ρ_{H}^a от продольного удельного сопротивления $\rho_{xx} = \rho$, так называемого скейлингового поведения АЭХ: $\rho_{\mathrm{H}}^a \propto \rho^\alpha$, где α – показатель степени, определяемый механизмом АЭХ [2, 4–13]. Различают внешние (*extrinsic*) механизмы АЭХ, связан-

1) e-mail: vvrylkov@mail.ru
2) O. Drachenko, S. Zhou

ные со спин-зависимым рассеянием носителей заряда [15, 16] на дефектах в кристалле, и собственный (*intrinsic*) механизм [1], определяемый кривизной фазы Берри и топологическими свойствами блоховских состояний спиновых подзон в условиях СОВ [17, 18]. В металлических системах при упругом рассеянии носителей заряда (низкие температуры) $\alpha = 1$ для механизма асимметричного рассеяния (*skew scattering*) [15] и $\alpha = 2$ для механизма бокового смещения при рассеянии (*side-jump*) [16] и собственного механизма АЭХ [1, 17, 18]. В последнее время скейлинг часто выражают через холловскую проводимость: $\sigma^a_{\mathrm{H}} = \rho^a_{\mathrm{H}}/\rho^2 = \rho^a_{\mathrm{H}}\sigma^2$. В этом представлении $\sigma^a_{\mathrm{H}} \propto \sigma$ для механизма асимметричного рассеяния и $\sigma^a_{\mathrm{H}} = \mathrm{const}$ для механизма бокового смещения и собственного механизма АЭХ. Указанная выше классификация механизмов АЭХ, строго говоря, неприменима в сильно неупорядоченных проводниках (в частности, магнитных полупроводниковых и металлических материалах с невысокой проводимостью, $\sigma < 10^4\,\mathrm{Ом}^{-1}\cdot\mathrm{см}^{-1}$), в которых сравнительно недавно [5, 19–21] был обнаружен скейлинг иного типа, $\sigma^a_{\mathrm{H}} \propto \sigma^\gamma$ с $\gamma \approx 1.6$. Подобный скейлинг ($\gamma = 1.4-1.6$) наблюдался также в металл-диэлектрических нанокомпозитах вблизи порога перколяции, в том числе на диэлектрической стороне в режиме прыжковой проводимости [8, 12, 22]. В случае систем с металлической проводимостью он объясняется подавлением собственного механизма АЭХ в условиях сильного рассеяния носителей заряда [23]. Перечисленные выше типы скейлинга наблюдаются при изменении продольного сопротивления за счет изменения степени беспорядка (концентрации магнитных примесей или дефектов, флуктуаций потенциала и т.д.) или температуры. В последнем случае существенную роль может играть неупругое рассеяние электронов на фононах и/или магнонах, что сопровождается кардинальной модификацией скейлинга [4, 6, 7, 13, 24].

Другой необычный случай нарушения известных типов скейлинга имеет место в условиях изменения знака АЭХ с понижением температуры при неизменном знаке нормального эффекта Холла [5, 10, 11, 24–26]. Объяснение механизма смены знака АЭХ носит, как правило, качественный характер, поскольку в общем случае этот параметр определяется многими факторами: особенностями зонной структуры материала, положением уровня Ферми, взаимной ориентацией орбитального и спинового моментов, а также типом рассеивающего потенциала (притягивающий или отталкивающий) [27]. В частности, по этой причине знак АЭХ может отличаться от знака нормального эффекта Холла. Так, например, для Fe знак АЭХ положителен, тогда как в Ni он отрицателен. Наиболее часто изменение знака АЭХ связывается с особенностями в электронной плотности состояний на уровне Ферми и изменением его положения при изменении температуры [5, 25, 26] либо с конкуренцией температурно-зависящих механизмов, определяющих знак АЭХ [10, 11, 24].

В данной работе обнаружена смена знака АЭХ в нестехиометрических пленках $\mathrm{Mn}_x\mathrm{Si}_{1-x}$ ($x \approx \approx 0.51-0.52$), в которых ранее нами наблюдался высокотемпературный ферромагнетизм (ВТ ФМ), сопровождаемый проявлением положительного АЭХ, усиливающегося с уменьшением температуры [28, 29]. Пленки [28, 29] были выращены методом импульсного лазерного осаждения (ИЛО) в “прямой” геометрии (ВПГ-пленки), когда лицевая сторона подложки обращена к лазерному факелу. В отличие от ВПГ-пленок [28, 29], исследованные в данной работе слои $\mathrm{Mn}_x\mathrm{Si}_{1-x}$ ($x \approx 0.51-0.52$) были выращены методом ИЛО в так называемой теневой геометрии (ВТГ-пленки), когда атомы Mn и Si осаждаются на подложку в результате столкновения с атомами буферного газа [30]. При этом могут достигаться низкие энергии осаждаемых атомов и, одновременно, высокие скорости их осаждения. Исследования магнитных свойств ВТГ-пленок [30] выявили наличие в них двух ферромагнитных фаз: низкотемпературной (НТ) с $T_{\mathrm{C}} \approx 46\,\mathrm{K}$ и ВТ с $T_{\mathrm{C}} \approx 370\,\mathrm{K}$, обусловленных формированием двух слоев с существенно отличающимися размерами кристаллитов. В данной работе детально исследованы магнитотранспортные свойства ВТГ-пленок. Обнаружено, что данные пленки, так же как и ВПГ-пленки [28, 29], обладают положительным АЭХ при комнатных температурах, который, однако, с понижением температуры изменяет знак при $T \approx (30-50)\,\mathrm{K}$ в зависимости от толщины пленки.

2. Пленка ВТГ $\mathrm{Mn}_x\mathrm{Si}_{1-x}$ была получена в теневой геометрии в присутствии газа Kr (давление $\sim 10^{-2}$ мбар) на $\mathrm{Al_2O_3}$ (0001) подложке размером $10 \times 15\,\mathrm{мм}^2$ с использованием стехиометрической мишени MnSi [30]. Температура подложки (340 °C) при осаждении поддерживалась такой же, как и в случае получения ВПГ $\mathrm{Mn}_x\mathrm{Si}_{1-x}$ слоев. Однако скорость роста пленки в этом случае была существенно выше (≥ 7 нм/мин). Для определения состава и толщины пленки использовался метод спектроскопии обратного резерфордовского рассеяния (ОРР) [30]. Толщина осаждаемой пленки d зависела от расстояния до мишени L и с ростом L уменьшалась от $d \approx 270$ до 70 нм на длине $\mathrm{Al_2O_3}$ подложки $\delta L \approx 15$ мм. При этом содержание Mn увеличивалось от 0.506 до 0.517. При уменьшении d от 160 до 70 нм ($\delta L \approx 10$ мм) состав пленки слабо зависел от L ($x \approx 0.514-0.517$).

Структурные особенности пленок были исследованы методами рентгеновского дифракционного анализа на дифрактометре Rigaku SmartLab, просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ) и просвечивающей растровой электронной микроскопии (ПРЭМ) высокого разрешения на электронном микроскопе TITAN 80-300 (FEI, США) с корректором сферической аберрации зонда в режимах светлого и темного поля. В последнем случае при сканировании образца использовался высокоугловой темнопольный кольцевой детектор рассеянных электронов (*high angle annular dark field*, HAADF). Использование такого детектора позволяет получать изображения с контрастом, зависящим от номера элемента, или Z-контрастом. Ускоряющее напряжение составляло 300 кВ. Обработка изображений была проведена с помощью программного обеспечения Digital Micrograph (Gatan, США).

Для транспортных и магнитных исследований Mn_xSi_{1-x}/Al_2O_3 структура, полученная на большой площади, была разрезана на 7 полосок размером $\approx 2 \times 10$ мм^2 с разной толщиной Mn_xSi_{1-x} пленок. Исследования эффекта Холла проводились в геометрии двойного холловского креста с использованием вакуумированной вставки со сверхпроводящим соленоидом в диапазоне температур 5–100 К в магнитном поле до 2.5 Тл [28, 29]. Контакты создавались пайкой индием. Расстояние между потенциальными зондами на боковых гранях образца ≈ 2.5 мм. Измерения намагниченности были выполнены на образцах размером 2×1.5 мм^2 с помощью СКВИД-магнитометра MPMS-3 (SQUID-VSM) в полях до 1.5 Тл в диапазоне температур 5–400 К. При измерениях поле было ориентировано параллельно плоскости образцов. Ниже представлены результаты транспортных и магнитных исследований для наиболее удаленных от мишени образцов 1–4 с близкими значениями $x \approx 0.517$, 0.516, 0.515 и 0.514 и разной толщиной пленки $d \approx 70$, 90, 110 и 160 нм соответственно.

3. На рис. 1 в нормированном виде представлены температурные зависимости удельного сопротивления $\rho(T)$ для образцов 1 и 4 ($d \approx 70$ и 160 нм). Там же для сравнения показана зависимость $\rho(T)$ для монокристалла MnSi со структурой B20 (далее для краткости ε-MnSi), взятая из [31]. В обоих образцах сопротивление уменьшается с понижением температуры, причем тем сильнее, чем толще пленка: $r(11.5\,\text{K}) = \rho(11.5\,\text{K})/\rho(290\,\text{K}) \approx 0.29$ и 0.21 ($\rho \approx 3.4 \cdot 10^{-5}$ и $2.75 \cdot 10^{-5}$ Ом $\cdot$ см при 11.5 К) для образцов с $d \approx 70$ и 160 нм соответственно. Уменьшение

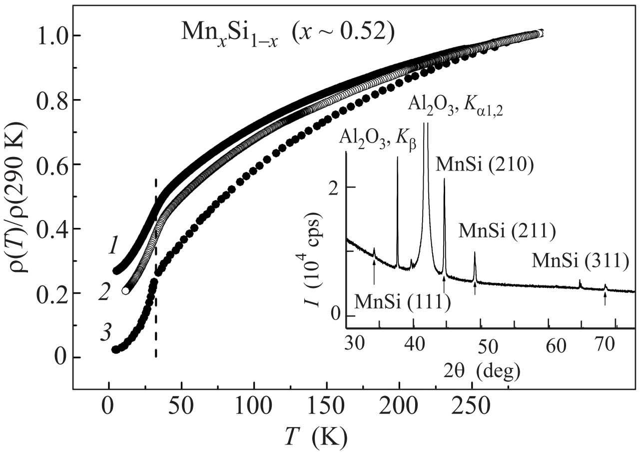

Рис. 1. Температурные зависимости удельного сопротивления $\rho(T)$ для Mn_xSi_{1-x}/Al_2O_3 образцов с $d \approx \approx 70$ нм (*1*) и 160 нм (*2*), а также зависимость $\rho(T)$ для ε-MnSi (*3*), взятая из [31]. На вставке – спектр рентгеновской дифракции $Mn_xSi_{1-x}/Al_2O_3(0001)$ структуры до ее резки на отдельные полоски

сопротивления в пленках ε-MnSi на порядок выше ($r \approx 0.02$ [31]), а $\rho(T)$ имеет такой же вид, что и в полученных пленках Mn_xSi_{1-x} (резкий спад $\rho(T)$ ниже ≈ 30 К [31, 32]). Следовательно, в образцах заметно присутствие фазы типа ε-MnSi. Данный факт подтверждается результатами рентгеновских дифракционных измерений $Mn_xSi_{1-x}/Al_2O_3(0001)$ структуры до ее резки на отдельные полоски (см. вставку к рис. 1). На дифракционной кривой проявляется более четырех пиков. Самый интенсивный пик наблюдается при угле $2\theta = 44.46^\circ$ от MnSi(210) для линии CuK_α. Ширина кривой качания на половине высоты пика (FWHM$_\omega$) при $2\theta = 44.46^\circ$ составляет ≈ 550 arcsec, тогда как для монокристаллической пленки величина FWHM$_\omega$ должна изменяться от 64 до 245 arcsec при изменении толщины пленки от 70 до 270 нм. Столь широкий пик свидетельствует о сильной мозаичности исследуемой пленки и/или о высоком содержании в ней кристаллических дефектов.

На рис. 2a показано светлопольное ПЭМ-изображение $Mn_xSi_{1-x}/Al_2O_3(0001)$ структуры с толщиной Mn_xSi_{1-x} пленки $d \approx 250$ нм. Видно, что пленка в целом состоит из слоя зерен в виде колонок с поперечным размером около 50 нм. При детальном исследовании границы раздела между колонками и Al_2O_3 подложкой обнаруживаются тонкие приграничные (*interfacial*) прослойки (см. рис. 2b), которые наиболее ярко проявляются при исследованиях изображений ПЭМ в режиме темного поля (рис. 2c). Толщина граничного слоя согласно данным этих исследований составляет $\sim 7-10$ нм.

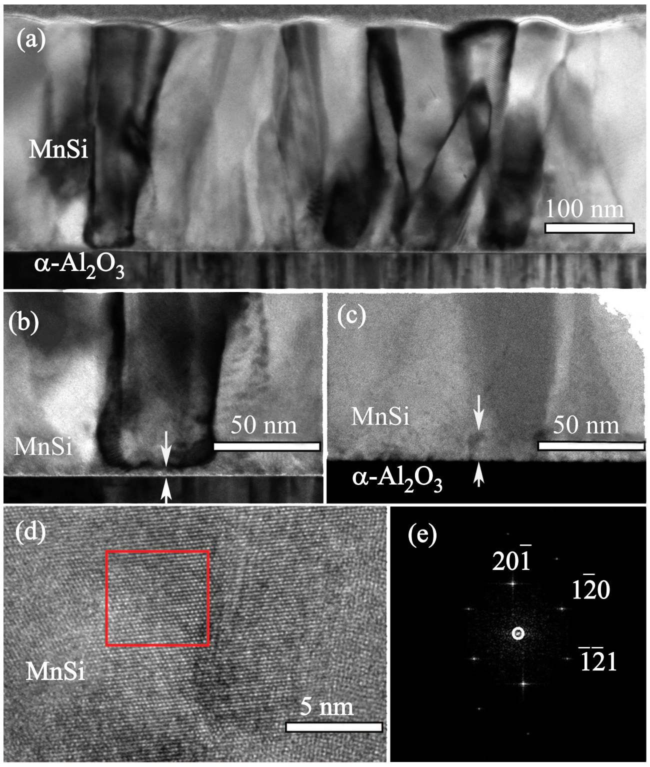

Рис. 2. (Цветной онлайн) (a) – Светлопольное ПЭМ-изображение $Mn_xSi_{1-x}/Al_2O_3(0001)$ структуры с толщиной пленки $Si_{1-x}Mn_x$ $d \approx 250$ нм. (b) – Увеличенное ПЭМ-изображение границы раздела; стрелками показан слой MnSi с размером зерен 5–10 нм. (c) – Темнопольное ПРЭМ-изображение границы раздела с регистрацией электронов, рассеянных на большие углы. (d) – Светлопольное ПЭМ изображение колоннообразного зерна пленки с разрешением на уровне кристаллической решетки. Красным квадратом выделена область зерна, от которой получен двумерный спектр Фурье (e), характерный для структуры B20 в проекции [214]

Результаты высокоразрешающих исследований ПЭМ (рис. 2d) с применением анализа Фурье (рис. 2e) однозначно указывают на принадлежность колоннообразных зерен соединению ε-MnSi, что согласуется с результатами рентгеновских измерений. Анализ данных высокоразрешающей ПЭМ показывает, что приграничный слой состоит из округлых зерен диаметром $\sim 5-7$ нм, которые также принадлежат силициду ε-MnSi со структурой B20.

Вероятной причиной формирования приграничного слоя являются разная симметрия подложки α-Al_2O_3 (гексагональная) и ε-MnSi (кубическая) и возникающее в этом случае существенное рассогласование решеток (около 10 % при предпочтительном направлении роста [111]). (При оценке рассогласования мы учли, что расстояние между $\{1120\}_{\alpha\text{-}Al_2O_3}$ плоскостями $d = 2.38$ Å, а между $\{111\}_{\mathrm{MnSi}}$ – $d = 2.63$ Å.)

Поскольку в полученной пленке Mn_xSi_{1-x} преобладает фаза ε-MnSi, она должна обладать отрицательным АЭХ [33]. В случае ε-MnSi модуль холловского сопротивления имеет максимум в окрестности ФМ-перехода ($|\rho^a_{\mathrm{H}}| \approx 0.14$ мкОм · см при $T_{\mathrm{C}} \approx$ ≈ 30 K), а при $T < T_{\mathrm{C}}$ существенно падает (до $|\rho^a_{\mathrm{H}}| \sim$ ~ 0.01 мкОм · см при $T \approx 10$ K) [33, 34]. Кардинально иное поведение АЭХ наблюдается в нашем случае.

На рис. 3a представлены магнитополевые зависимости удельного холловского сопротивления $\rho_{\mathrm{H}}(B)$ для образца 1 ($d \approx 70$ нм), полученные при различных температурах. Видно, что АЭХ имеет положительный знак и наблюдается вплоть до комнатной температуры, так же как и в ВПГ-пленках $Si_{1-x}Mn_x$ ($x \approx 0.5$) [28, 29]. Однако в данном случае холловское сопротивление при температурах ниже $T \approx 200$ K сильно уменьшается с понижением T (примерно в 10 раз при $T = 5$ K) в отличие от ВПГ-пленок, в которых $\rho_{\mathrm{H}}(B) \approx \mathrm{const}$ в диапазоне $T = (5-200)$ K (см. вставку к рис. 3a).

Из сравнения зависимостей $\rho_{\mathrm{H}}(B)$ для образца 1 ($d \approx 70$ нм) и более толстого образца 2 ($d \approx 90$ нм), приведенных на рис. 3b, становится очевидным, что вклад в АЭХ в данной системе вносят компоненты положительного и отрицательного знака. Роль последней возрастает с увеличением толщины пленки, особенно при температурах ниже 50 K. Это, в частности, проявляется в том, что эффект Холла в образце 2 имеет отрицательный знак при низких температурах ($T \leq 30$ K) в полях $B \geq 1$ Тл (см. рис. 3b и 4). При температуре $T = 9$ K петля гистерезиса в зависимости $\rho_{\mathrm{H}}(B)$ приобретает необычную форму (рис. 3b). Несложно показать, что такой вид гистерезисной кривой есть результат суперпозиции двух компонент сопротивления АЭХ $\rho^a_{\mathrm{H}} = R_s M$, одна из которых с $\rho^a_{\mathrm{H1}} > 0$ имеет гистерезисный характер, а вторая с $\rho^a_{\mathrm{H2}} < 0$ не испытывает гистерезиса в полевом поведении $\rho^a_{\mathrm{H2}}(B)$, как в случае геликоидального ε-MnSi [33, 34]. При этом, однако, данная составляющая, вероятно определяемая верхним достаточно толстым слоем (рис. 2a–c), подобным ε-MnSi с малым отрицательным АЭХ [33], вносит основной вклад в проводимость образца. Отметим также, что нормальный эффект Холла в ε-MnSi является положительным [33, 34]. Поэтому неудивительно, что линейный ход зависимости $\rho_{\mathrm{H}}(B)$ в полях $B \geq 0.7$ T соответствует дырочной проводимости (рис. 3b).

В образце 3 с $d \approx 110$ нм гистерезис зависимостей $\rho_{\mathrm{H}}(B)$ уже не проявляется (рис. 3c). В этом слу-

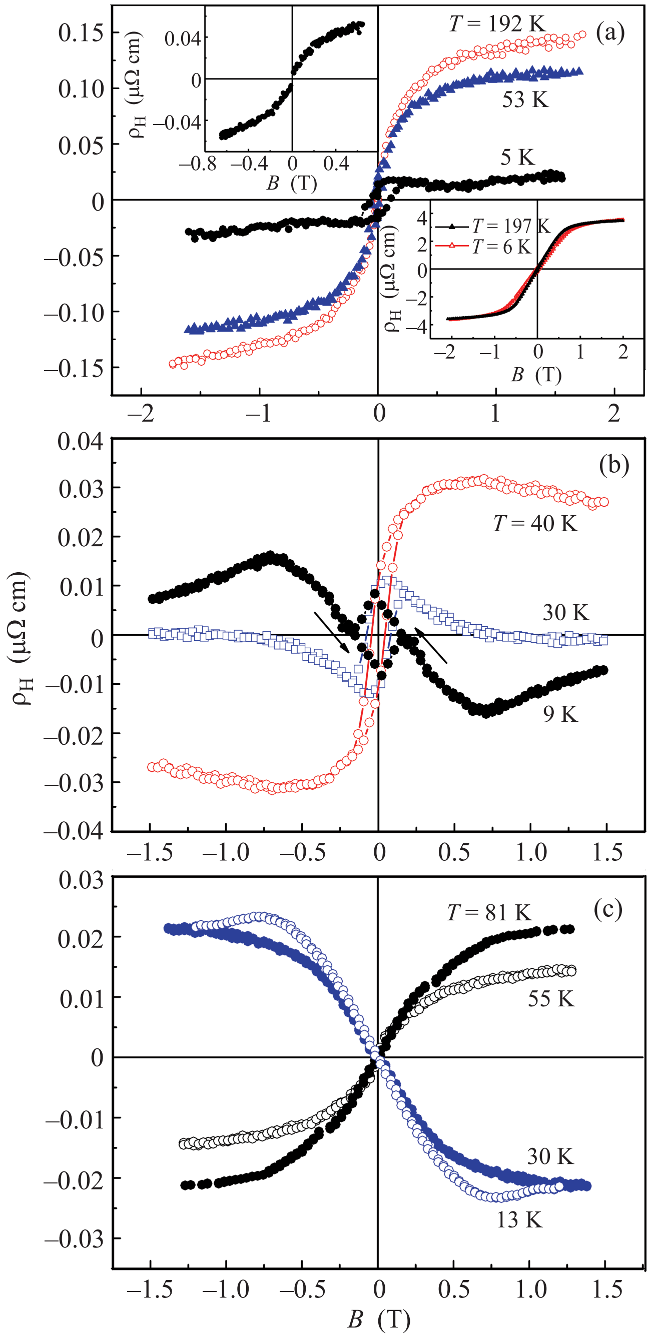

Рис. 3. (Цветной онлайн) Магнитополевые зависимости удельного холловского сопротивления $\rho_{\mathrm{H}}(B)$, полученные при различных температурах, для образцов с $d \approx 70$ (a), 90 (b) и 110 нм (c). На верхней вставке рис. 3a – зависимость $\rho_{\mathrm{H}}(B)$ при $T = 300$ K. На нижней вставке – кривые $\rho_{\mathrm{H}}(B)$ для пленки Mn_xSi_{1-x} ($x \approx 0.52$), полученной в "прямой" геометрии ИЛО-методом

чае при $T = 30$ K АЭХ имеет отрицательный знак во всем исследованном диапазоне полей.

На рис. 4 представлены температурные зависимости $\rho_{\mathrm{H}}(T)$, измеренные в поле $B = 1.2$ Тл, для образцов 2–4 с различной толщиной $Si_{1-x}Mn_x$ пленки ($d \approx 90$, 110 и 160 нм). Температура изменения знака АЭХ T_{sc} увеличивается с ростом толщины пленки от $T \approx 30$ до ≈ 50 K. При $T > 50$ K холловское сопротивление в образце 4 ($d \approx 160$ нм) оказывается достаточно малым, $\rho_{\mathrm{H}} \sim 0.01$ мкОм, на два порядка меньшим, чем в случае ВПГ-пленок $Si_{1-x}Mn_x$ ($x \approx 0.5$) (см. нижнюю вставку к рис. 3a и [28, 29]). Такое поведение T_{sc} с ростом d естественно связать с увеличением вклада в проводимость $Si_{1-x}Mn_x$ пленки от верхнего слоя, подобного ε-MnSi (с АЭХ < 0), при неизменном вкладе от нижнего (приграничного) слоя, который обладает существенно большим по величине положительным АЭХ, чем верхний слой, и хорошо наблюдается при комнатных температурах.

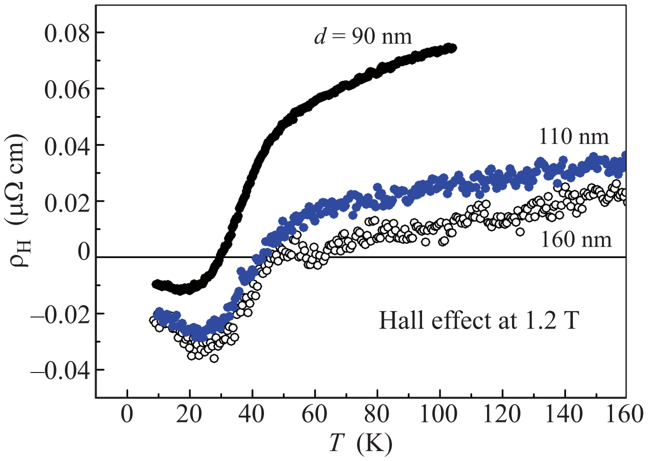

Рис. 4. (Цветной онлайн) Температурные зависимости холловского сопротивления $\rho_{\mathrm{H}}(T)$, измеренные в поле $B = 1.2$ Тл, для образцов 2–4 с различной толщиной $Si_{1-x}Mn_x$ пленки ($d \approx 90$, 110 и 160 нм)

Вывод о существовании в образцах двух ФМ-фаз, вклад одной из которых в магнитный момент J_m не зависит от толщины $Si_{1-x}Mn_x$ пленки, подтверждают исследования намагниченности. На рис. 5a приведены температурные зависимости поверхностной плотности магнитного момента $J_m(T)/A$ (где A – площадь структур), измеренные в поле $\mu_0 H = 1$ Тл для Mn_xSi_{1-x} образцов 2 и 4 ($x \approx 0.516$ и 0.514) с толщиной пленки $d \approx 90$ и 160 нм соответственно. Их вид свидетельствует о наличии в образцах двух магнитных фаз: фазы ВТ ФМ с $T_{\mathrm{C}} \approx 370$ K и низкотемпературной ферромагнитной фазы (НТ ФМ) с $T_{\mathrm{C}} \approx 46$ K. При этом относительный вклад последней возрастает с увеличением толщины пленки, а вклад ВТ ФМ-фазы остается практически неиз-

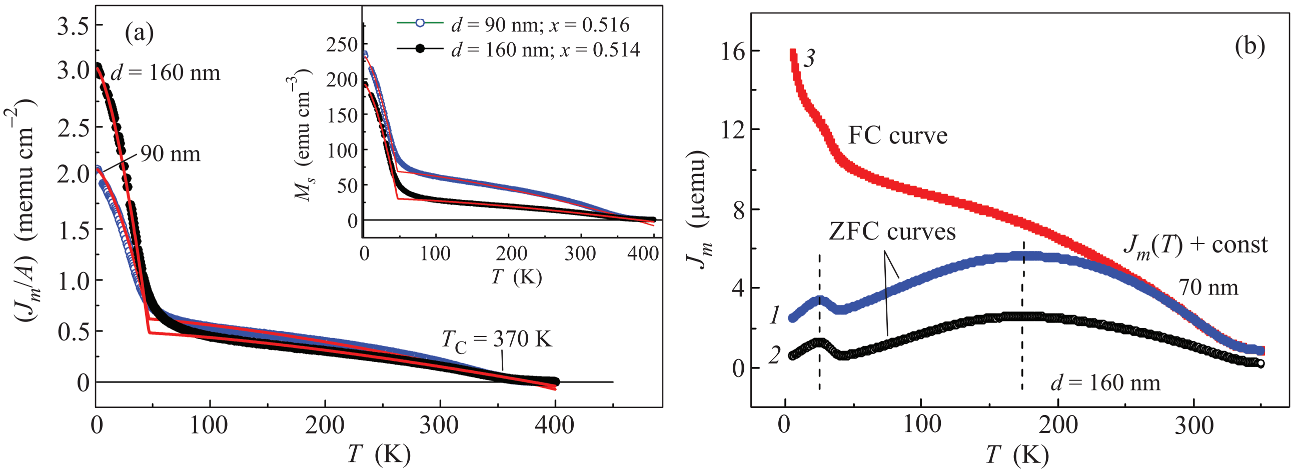

Рис. 5. (Цветной онлайн) (a) – Температурные зависимости поверхностной плотности магнитного момента $J_m(T)/A$ (A – площадь структур), измеренные в поле $\mu_0 H = 1$ Тл, для Mn_xSi_{1-x} образцов 2 и 4 с толщиной пленки $d \approx 90$ и 160 нм соответственно. На вставке – соответствующие температурные зависимости намагниченности насыщения $M_s(T)$ для этих образцов. (b) – Зависимости $J_m(T)$ для образцов 1 с $d \approx 90$ нм (*1*) и 4 с $d \approx 160$ нм (*2*), измеренные при их нагреве в слабом поле 10 мТл после охлаждения в нулевом поле (ZFC), а также зависимость $J_m(T)$ для образца 1 при 10 мТл (*3*), полученная после его охлаждения в поле 1 Тл (FC). Для удобства сравнения кривые *1* и *3* сдвинуты по оси ординат на постоянную величину

менным. Следовательно, ВТ ФМ-фаза формируется непосредственно на Al_2O_3 (0001) подложке, а затем уже образуется НТ ФМ-фаза ($T_C \approx 46$ K), подобная ε-MnSi. Отметим, что намагниченность насыщения $M_s \approx 190$ emu/см^3 в толстой пленке ($d \approx 160$ нм) при $T \approx 4$ K (см. вставку к рис. 5a) оказывается в несколько раз меньше, чем в ВПГ-пленке $Si_{1-x}Mn_x$ с $x \approx 0.52$ [30], и близка к величине $M_s \approx 146$ emu/см^3 для ε-MnSi [31].

На рис. 5b представлены зависимости магнитного момента для образцов 1 ($x \approx 0.517$, $d \approx 90$ нм) и 4 ($x \approx 0.514$, $d \approx 160$ нм), измеренные при их нагреве в слабом поле 10 мТл после охлаждения в нулевом поле (кривые ZFC). Там же для сравнения приведена зависимость $J_m(T)$ для образца 1, полученная после его охлаждения в поле 1 Тл (кривая FC). Проявление двух максимумов на кривых ZFC свидетельствует о блочном (поликристаллическом) характере системы и наличии в ней НТ и ВТ ФМ-фаз. Отметим, что положение максимумов не зависит от толщины пленки, что указывает на слабую зависимость магнитной структуры ВТГ-пленок от их толщины.

4. Представленные выше данные структурных ПЭМ-исследований убедительно доказывают наличие в образцах слоя зерен ε-MnSi в виде колонок с поперечным размером около 50 нм и структурой B20 (см. рис. 2). Монокристаллический ε-MnSi, как известно, обладает АЭХ < 0 и $T_C \approx 30$ K [33, 34]. Помимо этого, данные ПЭМ демонстрируют наличие приграничного слоя толщиной ~ 10 нм, расположенного на Al_2O_3 подложке, который состоит из округлых зерен малых размеров (~ 5 нм). Данные магнитных и транспортных исследований однозначно указывают на то, что именно этим приграничным слоем и определяется ВТ ФМ, сопровождаемый проявлением сильного положительного АЭХ. Таким образом, хотя из результатов ПЭМ-исследований не следует наличия четкой границы между ВТ ФМ- и НТ ФМ-слоями, это не нарушает формирования сплошного (*continuous*) проводящего канала в приграничном слое с положительным АЭХ. Проанализируем далее с учетом результатов структурных исследований данные магнитных и транспортных исследований в рамках двухслойной модели.

Прежде всего оценим магнитный момент на атом Mn в слоях, полагая толщину приграничного слоя ≈ 10 нм, а плотность нестехиометрической пленки Mn_xSi_{1-x} ($x \sim 0.52$) ≈ 5.82 г/см^3, как в объемном ε-MnSi. Вклады ВТ ФМ- и НТ ФМ-слоев в намагниченность найдем, аппроксимируя температурную зависимость намагниченности насыщения $M_s(T)$ с помощью часто используемой упрощенной функции Бриллюэна:

$$M_s(T) = M_s(0)[1 - (T/T_C)^n]. \qquad (2)$$

В нашем случае при $n = 1.5$ зависимость (2) хорошо описывает экспериментальные кривые $M_s(T)$ (см. рис. 5a). Используя найденные с помощью (2) вклады ВТ ФМ- и НТ ФМ-фаз, получим их магнитные моменты: $m = (1.3–1.75)$ и $(0.43–0.52)\mu_B$/Mn для

$x \approx 0.514{-}0.517$. Магнитный момент для НТ ФМ-фазы, $m = (0.43{-}0.52)\mu_B/\text{Mn}$, неплохо совпадает с эффективным магнитным моментом на ионе Mn в решетке ε-MnSi, $m \approx 0.4\mu_B/\text{Mn}$ [31, 33], с учетом того, что НТ ФМ-слой содержит избыточные ионы Mn, которые способствуют формированию дефектов с локализованным магнитным моментом (до $\sim 2\mu_B/\text{Mn}$ при $x \sim 0.51$ [29]). Отметим также, что магнитный момент ВТ ФМ-слоя $m = (1.3{-}1.75)\mu_B/\text{Mn}$, несколько выше, чем в случае ВПГ-пленок Mn_xSi_{1-x} ($x \approx 0.52$) с $T_C \approx 330$ К, $m \approx 1.1\mu_B/\text{Mn}$ [28].

Проанализируем теперь транспортные данные с учетом определенного сходства приграничного слоя с ВПГ-пленками, изученными в [28, 29]. При наличии двух параллельных проводящих слоев эффективное холловское сопротивление пленки определяется выражением [35]

$$R_H = \frac{\rho_{H2}\sigma_2^2 d_2 + \rho_{H1}\sigma_1^2 d_1}{(\sigma_1 d_1 + \sigma_2 d_2)^2}, \quad (3)$$

где индексы "1" и "2" относятся к нижнему (ВТ ФМ) и верхнему (НТ ФМ) слоям. Из (3) следует, что в толстых пленках ($d \sim d_2 \gg d_1$) можно ожидать изменения знака эффекта Холла, поскольку при температурах ниже $T_C \approx 46$ К для НТ ФМ-слоя доминирующую роль начинает играть аномальный вклад в эффект Холла, имеющий отрицательный знак ($\rho^a_{H2} < 0$) [33].

Полагая сопротивление АЭХ нижнего слоя $\rho^a_{H1} \approx$ $\approx +3.5 \cdot 10^{-6}$ Ом · см при $T < 200$ К, как в ВПГ-пленках [28], а сопротивление АЭХ верхнего слоя $\rho^a_{H2} \approx -(0.1{-}0.2) \cdot 10^{-6}$ Ом · см при $T = (25{-}40)$ К, как в случае ε-MnSi [33, 34], а также учитывая тот факт, что изменение знака эффекта Холла наблюдается при толщине пленки $d = d_2 + d_1 \approx (70{-}90)$ нм (см. рис. 3), найдем отношение проводимостей слоев: $\sigma_2/\sigma_1 \sim 2$. Другими словами, несмотря на то что размеры кристаллитов в нижнем слое значительно (≥ 10 раз) меньше, чем в верхнем, отличие в их проводимости при низких температурах не столь существенно. По-видимому, в нашем случае наблюдается тот же эффект, что и в ВПГ-пленках, в которых образование магнитных дефектов сопровождалось почти десятикратным увеличением подвижности носителей заряда при $T \sim 100$ К по сравнению с ε-MnSi, что связывалось в [28] с разрушением коллективных (кондовских или спин-поляронных) резонансов.

5. Наконец, обсудим особенности механизма ВТ ФМ в ВТГ-пленках. Ранее обнаруженный нами ВТ ФМ в нестехиометрических сплавах $Si_{1-x}Mn_x$ ($x \approx 0.52{-}0.55$) [28, 29] был объяснен формированием дефектов с локализованным магнитным моментом (ЛММ) и непрямым обменом ЛММ через парамагнитные флуктуации спиновой плотности согласно модели [36]. В случае ВТГ $Si_{1-x}Mn_x$ пленок распределение Mn по толщине пленки, согласно данным ПЭМ и ОРР [30], однородно. Может показаться, что развитый в [28] механизм ВТ ФМ в случае ВТГ-пленок не работает. В действительности, как показано в [28], благоприятные условия для формирования ЛММ создаются лишь тогда, когда избыток Mn в пленках сопровождается формированием в них вакансий Si. Только в этом случае достигаются высокие пиковые значения ЛММ (до $m = 2.58\mu_B$ при $x \approx 0.52$). В случае же внедрения иона Mn в междоузельное положение в решетке он оказывается "магнитомертвым" ($m = 0.09\mu_B$ при $x \approx 0.52$). Поэтому если предположить, что избыток Mn в слое, состоящем из колонкообразных зерен MnSi с "большим" (~ 50 нм) поперечным размером, связан с преимущественным междоузельным внедрением ионов Mn, то отмеченное выше противоречие снимается. Действительно, в приграничном слое с малыми (~ 5 нм) размерами гранул следует ожидать проявления эффектов гетерирования дефектов Mn на границах зерен и сильного возрастания величины ЛММ на этих границах (см. [36] и ссылки там). Существенную роль в формировании дефектов с ЛММ на границах зерен, по-видимому, играет и форма зерен. Так, недавно при исследовании разбавленных Mn_xSi_{1-x} ($x < 0.04$) сплавов было установлено, что обогащенные Mn преципитаты, выращенные в форме поперечных наноколонок, являются парамагнитными, тогда как преципитаты в форме "плоских брусков" проявляют ФМ-свойства вплоть до комнатной температуры [37]. При неоднородном распределении ЛММ по границам зерен глобальный ФМ-порядок может быть описан в рамках модели [36] в условиях, когда радиус зерен $r_0 \ll \zeta$, где ζ – корреляционная длина ФМ. Оценки показывают, что в нашем случае при малых размерах зерен (~ 5 нм) может достигаться ВТ ФМ с $T_C \sim (100{-}400)$ К.

Таким образом, представленные выше экспериментальные данные демонстрируют, что структурное своеобразие поликристаллических пленок $Si_{1-x}Mn_x$ ($x \approx 0.5$) целиком определяет особенности поведения в них аномального эффекта Холла, в частности знак АЭХ и его смену с понижением температуры. Показано, что смена знака АЭХ обусловлена конкуренцией двух вкладов, происходящих от разных областей образца (поверхностной и объемной), в отличие от других работ, в которых смена знака связывалась с особенностями электронной плотности состояний на уровне Ферми и изменением его положения при изменении температуры [5, 25, 26], либо с конкуренцией температурно-зависимых механизмов, определяющих знак АЭХ [10, 11, 24].

Работа выполнена при частичной поддержке грантов РФФИ (14-07-91332, 14-22-01063, 14-07-00688, 14-47-03605, 15-07-01160, 15-02-02077, 16-07-00657, 16-07-00798) и DFG (ZH 225/6-1).

1. R. Karplus and J. M. Luttinger, Phys. Rev. **95**, 1154 (1954).
2. N. Nagaosa, J. Sinova, S. Onoda, A. H. MacDonald, and N. P. Ong, Rev. Mod. Phys. **82**, 1539 (2010).
3. С. Н. Николаев, Б. А. Аронзон, В. В. Рыльков, В. В. Тугушев, Е. С. Демидов, В. П. Лесников, В. В. Подольский, Письма в ЖЭТФ **89**, 707 (2009).
4. Y. Tian, L. Ye, and X. Jin, Phys. Rev. Lett. **103**, 087206 (2009).
5. D. Chiba, A. Werpachowska, M. Endo, Y. Nishitani, F. Matsukura, T. Dietl, and H. Ohno, Phys. Rev. Lett. **104**, 106601 (2010).
6. X. Liu, S. Shen, Z. Ge, W. L. Lim, M. Dobrowolska, and J. K. Furdyna, Phys. Rev. B **83**, 144421 (2011).
7. A. Shitade and N. Nagaosa, J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 083704 (2012).
8. Ю. А. Михайловский, Д. Е. Меттус, А. П. Казаков, В. Н. Прудников, Ю. Е. Калинин, А. С. Ситиников, А. Гербер, Д. Бартов, А. Б. Грановский, Письма в ЖЭТФ **97**, 544 (2013).
9. D. Bartov, A. Segal, M. Karpovski, and A. Gerber, Phys. Rev. B **90**, 144423 (2014).
10. Л. Н. Овешников, В. А. Кульбачинский, А. Б. Давыдов, Б. А. Аронзон, Письма в ЖЭТФ **100**, 648 (2014).
11. S. A. Meynell, M. N. Wilson, J. C. Loudon, A. Spitzig, F. N. Rybakov, M. B. Johnson, and T. L. Monchesky, Phys. Rev. B **90**, 224419 (2014).
12. Yu. O. Mikhailovsky, V. N. Prudnikov, K. Yu. Chernoglazov, V. V. Rylkov, S. N. Nikolaev, A. V. Sitnikov, Yu. E. Kalinin, D. Bartov, A. Gerber, and A. B. Granovsky, Sol. State Phenomena **233–234**, 403 (2015).
13. D. Hou, G. Su, Y. Tian, X. Jin, S. A. Yang, and Q. Niu, Phys. Rev. Lett. **114**, 217203 (2015).
14. A. V. Vedyayev, N. V. Ryzhanova, N. Strelkov, and B. Dieny, Phys. Rev. Lett. **110**, 247204 (2013).
15. J. Smit, Physica **21**, 877 (1955).
16. L. Berger, Phys. Rev. B **2**, 4559 (1970).
17. T. Jungwirth, Q. Niu, and A. H. MacDonald, Phys. Rev. Lett. **88**, 207208 (2002).
18. M. Onoda and N. Nagaosa, J. Phys. Soc. Jpn. **71**, 19 (2002).
19. T. Fukumura, H. Toyosaki, K. Ueno, M. Nakano, T. Yamasaki, and M. Kawasaki, Jpn. J. Appl. Phys. **46**(1), L642 (2007).
20. A. Fernández-Pacheco, J. M. De Teresa, J. Orna, L. Morellon, P. A. Algarabel, J. A. Pardo, and M. R. Ibarra, Phys. Rev. B **77**, 100403(R) (2008).
21. M. Glunk, J. Daeubler, W. Schoch, R. Sauer, and W. Limmer, Phys. Rev. B **80**, 125204 (2009).
22. Б. А. Аронзон, Д. Ю. Ковалев, А. Н. Лагарьков, Е. З. Мейлихов, В. В. Рыльков, М. В. Седова, N. Negre, M. Goiran, and J. Leotin, Письма в ЖЭТФ **70**, 87 (1999).
23. S. Onoda, N. Sugimoto, and N. Nagaosa, Phys. Rev. Lett. **97**, 126602 (2006); Phys. Rev. B **77**, 165103 (2008).
24. J. G. Checkelsky, M. Lee, E. Morosan, R. J. Cava, and N. P. Ong, Phys. Rev. B **77**, 014433 (2008).
25. Z. Fang, N. Nagaosa, K. S. Takahashi, A. Asamitsu, R. Mathieu, T. Ogasawara, H. Yamada, M. Kawasaki, Y. Tokura, and K. Terakura, Science **302**, 92 (2003).
26. M. Eginligil, G. Kim, Y. Yoon, J. P. Bird, H. Luo, and B. D. McCombe, Physica E **40**, 2104 (2008).
27. А. В. Ведяев, А. Б. Грановский, О. А. Котельникова, *Кинетические явления в неупорядоченных ферромагнитных сплавах*, Изд-во МГУ, М. (1992), 158 с.
28. В. В. Рыльков, С. Н. Николаев, К. Ю. Черноглазов, Б. А. Аронзон, К. И. Маслаков, В. В. Тугушев, Э. Т. Кулатов, И. А. Лихачев, Э. М. Пашаев, А. С. Семисалова, Н. С. Перов, А. Б. Грановский, Е. А. Ганьшина, О. А. Новодворский, О. Д. Храмова, Е. В. Хайдуков, В. Я. Панченко, Письма в ЖЭТФ **96**, 272 (2012).
29. V. V. Rylkov, E. A. Gan'shina, O. A. Novodvorskii, S. N. Nikolaev, A. I. Novikov, E. T. Kulatov, V. V. Tugushev, A. B. Granovskii, and V. Ya. Panchenko, Europhys. Lett. **103**, 57014 (2013).
30. S. N. Nikolaev, A. S. Semisalova, V. V. Rylkov, V. V. Tugushev, A. V. Zenkevich, A. L. Vasiliev, E. M. Pashaev, K. Yu. Chernoglazov, Yu. M. Chesnokov, I. A. Likhachev, N. S. Perov, Yu. A. Matveyev, O. A. Novodvorskii, E. T. Kulatov, A. S. Bugaev, Y. Wang, and S. Zhou, AIP Advances **6**, 015020 (2016).
31. S. V. Demishev, V. V. Glushkov, I. I. Lobanova, M. A. Anisimov, V. Yu. Ivanov, T. V. Ishchenko, M. S. Karasev, N. A. Samarin, N. E. Sluchanko, V. M. Zimin, and A. V. Semeno, Phys. Rev. B **85**, 045131 (2012).
32. F. P. Mena, D. van der Marel, A. Damascelli, M. Fath, A. A. Menovsky, and J. A. Mydosh, Phys. Rev. B **67**, 241101(R) (2003).
33. M. Lee, Y. Onose, Y. Tokura, and N. P. Ong, Phys. Rev. B **75**, 172403 (2007).
34. A. Neubauer, C. Pfleiderer, R. Ritz, P. G. Niklowitz, and P. Boni, Physica B **404**, 3163 (2009).
35. Е. В. Кучис, *Гальваномагнитные эффекты и методы их исследования*, Радио и связь, М. (1990), 264 с.
36. V. N. Men'shov, V. V. Tugushev, S. Caprara, and E. V. Chulkov, Phys. Rev. B **83**, 035201 (2011).
37. S. Kahwaji, W. Bowman, M. D. Robertson, and T. L. Monchesky, J. Appl. Phys. **113**, 063910 (2013).