

# Аномальное поведение туннельного магнетосопротивления в нанокompозитных пленочных структурах (CoFeV)<sub>x</sub>(LiNbO<sub>3</sub>)<sub>100-x</sub>/Si ниже порога перколяции: проявления со-туннельных и обменных эффектов<sup>1)</sup>

С. Н. Николаев<sup>a</sup>, К. Ю. Черноглазов<sup>a</sup>, А. В. Емельянов<sup>a</sup>, А. В. Ситников<sup>a,c</sup>, А. Н. Талденков<sup>a</sup>, Т. Д. Пацаев<sup>a</sup>,  
А. Л. Васильев<sup>a</sup>, Е. А. Ганьшина<sup>b</sup>, В. А. Демин<sup>a</sup>, Н. С. Аверкиев<sup>d</sup>, А. Б. Грановский<sup>b,e</sup>, В. В. Рыльков<sup>a,e,f 2)</sup>

<sup>a</sup>Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

<sup>b</sup>Физический факультет, МГУ имени М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

<sup>c</sup>Воронежский государственный технический университет, 394026 Воронеж, Россия

<sup>d</sup>Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе РАН, 194021 Санкт-Петербург, Россия

<sup>e</sup>Институт теоретической и прикладной электродинамики РАН, 125412 Москва, Россия

<sup>f</sup>Фрязинский филиал Института радиотехники и электроники им. В. А. Котельникова РАН, 141190 Фрязино, Россия

Поступила в редакцию 19 мая 2023 г.

После переработки 1 июня 2023 г.

Принята к публикации 2 июня 2023 г.

В диапазоне температур 3–250 К в полях до 14 Тл обнаружена сильно немонотонная температурная зависимость магнетосопротивления пленочных нанокompозитов (CoFeV)<sub>x</sub>(LiNbO<sub>3</sub>)<sub>100-x</sub> при содержаниях  $x \approx 40-48$  ат. % вблизи перколяционного перехода на изолирующей стороне. Магнетосопротивление имеет минимум при 40 К, резко возрастая при понижении температуры. Такое поведение магнетосопротивления объясняется сосуществованием в НК суперферромагнитных областей с обменно-связанными гранулами, отделенных областями из суперпарамагнитных гранул. При этом увеличение отрицательного магнетосопротивления при  $T > 40$  К обусловлено разрушением суперферромагнитного упорядочения, а рост магнетосопротивления при  $T < 40$  К связан с процессами упругого совместного туннелирования через цепочки гранул. В условиях насыщения намагниченности проявляется дополнительный отрицательный вклад, обусловленный, вероятно, эффектами квантовой интерференции. При  $T < 4$  К наблюдается двухъямный характер полевой зависимости магнетосопротивления, связанный с проявлением положительного вклада, конкурирующего с отрицательным магнетосопротивлением.

DOI: 10.31857/S1234567823130104, EDN: gbzzqc

**1. Введение.** Магнитные гранулированные нанокompозиты (НК) металл–диэлектрик  $M_xD_{100-x}$  представляют собой массив гранул из ферромагнитного (ФМ) металла, хаотически расположенных в диэлектрической матрице [1]. В зависимости от температуры, концентрации и формы, гранулы магнитного НК могут находиться в однодоменном, суперпарамагнитном или неоднородно-магнитном состоянии, сопровождаемом формированием ниже порога перколяции суперферромагнитных (СФМ) областей с межгранульным обменным взаимодействием ФМ-типа, подобных ФМ доменам в сплошной пленке

(см. [2, 3], а также обзор [4]). Такие системы обладают многими практически важными явлениями, такими как гигантское магнетосопротивление (МС) [5, 6], аномальный эффект Холла с гигантским коэффициентом [7–9], магниторефрактивный эффект [10], усиленный магнитооптический эффект Керра [11] и др.

В наших недавних исследованиях магнитных НК  $(Co_{40}Fe_{40}V_{20})_x(Al_2O_3)_{100-x}$  и  $(Co_{40}Fe_{40}V_{20})_x(LiNbO_3)_{100-x}$  (для краткости сплав  $Co_{40}Fe_{40}V_{20}$  будем обозначать как CoFeV) были обнаружены проявления эффектов СФМ упорядочения, туннельный аномальный эффект Холла, а в области относительно высоких температур не связанный с поправками слабой локализации логарифмический закон в температурной зависимости проводимости [12–15]. Кроме того, в этих

<sup>1)</sup>См. дополнительный материал к данной статье на сайте нашего журнала [www.jetpletters.ac.ru](http://www.jetpletters.ac.ru)

<sup>2)</sup>e-mail: [vvrylkov@mail.ru](mailto:vvrylkov@mail.ru); [rylkov\\_vv@nrcki.ru](mailto:rylkov_vv@nrcki.ru)

условиях в вертикальных структурах на основе НК  $(\text{CoFeB})_x(\text{LiNbO}_3)_{100-x}$  был обнаружен эффект многоуровневого резистивного переключения [14–16], что делает данные системы привлекательными для имитации синапсов в нейроморфных вычислительных системах [17, 18], к разработке которых в настоящее время проявляется повышенный интерес [19, 20].

Существенно, что пленочные НК  $(\text{CoFeB})_x(\text{LiNbO}_3)_{100-x}$  обладают необычными магнито-резонансными свойствами, объясняемыми наличием обменного взаимодействия магнитных ионов и ФМ-гранул [21]. Более того, межгранульный обмен в этом случае может значительно усиливаться [22] вследствие высокой диэлектрической проницаемости аморфной матрицы НК ( $\epsilon_d \approx 50\text{--}90$  для  $\alpha\text{-LiNbO}_3$  [23]); аморфность структуры была установлена ранее с помощью электронной микроскопии высокого разрешения [14, 16].

Однако, до сих пор в подобного рода НК с сильным межгранульным обменом ниже порога перколяции не было изучено поведение МС, тем более в сильных полях при температурах ниже гелиевых. Кроме того, эксперименты [12–15] проводились на НК пленках и структурах, синтезированных на аморфных ситалловых подложках. Вместе с тем более перспективной для использования в микроэлектронике являются подложки Si, которые обладают высокой теплопроводностью и являются кристаллическими, что может привести к заметным структурным изменениям синтезированных НК пленок.

В данной работе в пленках  $(\text{CoFeB})_x(\text{LiNbO}_3)_{100-x}$  на Si подложках, в отличие от типичного для НК отрицательного МС, монотонно убывающего с повышением температуры, обнаружено сильно немонотонное его температурное поведение, обусловленное, как мы полагаем, проявлением в НК ниже порога перколяции  $x_p$  эффектов совместного резонансного туннелирования [1, 24, 25] и СФМ упорядочения [2–4].

**2. Образцы и методы исследований.** Пленочные структуры  $(\text{CoFeB})_x(\text{LiNbO}_3)_{100-x}/\text{Si}$  с толщиной слоя НК  $\approx 150$  нм синтезированы методом ионно-лучевого распыления с использованием составной мишени из пластины литого сплава  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{V}_{20}$  с неравномерно расположенными на ней навесками оксида  $\text{LiNbO}_3$ . Такая мишень позволяла в едином цикле синтезировать НК с различным соотношением ФМ сплава в диапазоне 10–50 ат. % (см. детали в [14, 15]). Осаждение пленок осуществлялось в атмосфере аргона ( $P_{\text{Ar}} \approx 4 \cdot 10^{-4}$  Торр) со скоростью около 15 нм/мин с добавлением в процессе роста кислоро-

да в режиме заданного потока (парциальное давление  $P_{\text{O}_2} \approx 8 \cdot 10^{-6}$  Торр) без использования принудительного охлаждения подложкодержателя. Перед осаждением подложки подвергались очистке ионами аргона (время 15–20 с, энергия 2 кВ).

Транспортные и магнитные свойства НК изучались на универсальных образцах, выполненных с использованием взрывной (lift-off) фотолитографии в форме двойного холловского креста шириной проводящего канала  $w = 1.2$  мм и расстоянием между потенциальными зондами  $l = 1.4$  мм на боковых гранях [14]. Исследования проводимости, МС и намагниченности выполнялись с помощью универсальной измерительной системы PPMS Dynacool-14 в температурном диапазоне  $T = 3\text{--}200$  К в магнитных полях до 14 Тл. При исследованиях МС точность измерения сопротивления была не менее 0.1 %. Прецизионные измерения намагниченности выполнялись с помощью СКВИД магнитометра Quantum Design MPMS-XL7.

Для исследования структурных особенностей НК образцов были приготовлены их поперечные сечения с помощью фокусированного ионного пучка (ФИП)  $\text{Ga}^+$  в электронно-ионном микроскопе “Helios NanoLab<sup>tm</sup> 600i” (Thermo Fisher Scientific, США). Изображения высокого разрешения были получены при ускоряющем напряжении 200 кэВ с помощью просвечивающего/растрового электронного микроскопа (ПЭМ/ПРЭМ) “Теснаи Osiris” (Thermo Fisher Scientific, США), снабженного энергодисперсионным рентгеновским спектрометром (ЭРС) “Super-X” (Bruker, США) и высокоугловым кольцевым темнопольным детектором (ВКТД) (Fischione, США).

**3. Результаты и обсуждение.** Согласно данным электронной микроскопии пленки НК представляют собой ансамбль хаотично расположенных  $\text{CoFeB}$  гранул размером  $a_g \approx 2.5\text{--}4$  нм в матрице  $\text{LiNbO}_3$ . При этом вытянутость гранул в направлении нормали к пленке (отношение поперечного размера гранул к их латеральному размеру) в среднем составляла около 1.5, что существенно меньше, чем в случае пленок НК  $(\text{CoFeB})_x(\text{LiNbO}_3)_{100-x}$ , полученных на ситалле, где этот параметр достигал 4–5 [14]. Другое важное отличие заключается в том, что ранее методами высокоразрешающей электронной микроскопии (ВРЭМ) мы наблюдали кристалличность отдельных гранул  $\text{CoFeB}$  в ОЦК структуре с постоянной элементарной ячейки  $a_c = 0.284$  нм [14]. Однако, в исследованных НК пленках подобные наблюдения оказались затруднительны, что указывает на заметно большее содержание в гранулах атомов

бора, способствующего их аморфизации [26]. Результаты ВРЭМ также показали, что пленка НК была отделена от подложки Si тонким переходным слоем  $\text{SiO}_x$  толщиной  $\approx 10$  нм (см. дополнительные материалы).

При исследованиях температурных зависимостей удельного сопротивления  $\rho(T)$  в области относительно высоких температур было выявлено сильное его уменьшение при  $T \geq 300$  К (см. вставку к рис. 1), свидетельствующее о шунтирующем влиянии Si под-

ложки на ситалловых и Si подложках, было показано, что при температурах ниже 250 К шунтирующее влияние Si подложки практически полностью подавляется. Поэтому далее представлены результаты исследования транспортных свойств НК пленок  $(\text{CoFeB})_x(\text{LiNbO}_3)_{100-x}$  при  $T \leq 250$  К.

На рисунке 1 приведены температурные зависимости проводимости  $\sigma(T)$  в координатах  $\sigma - \log T$  (рис. 1a) и  $\ln \sigma - (1/T)^{1/2}$  (рис. 1b) для образцов НК  $(\text{CoFeB})_x(\text{LiNbO}_3)_{100-x}$  с различным содержанием ФМ сплава ( $x = 40-48$  ат. %) (кривые 1-5). Для НК с содержанием металла  $x \approx 44-48$  ат. % температурная зависимость проводимости  $\sigma$  в широком диапазоне температур ( $T \approx 10-110$  К) хорошо описывается логарифмической функцией:  $\sigma = \sigma^* + \beta \cdot \ln T$ , где  $\sigma^*$  и  $\beta$  – параметры. В [27] (см. также обзор [1]) показано, что такого рода зависимость может наблюдаться в гранулированной системе ниже порога  $x_p$  при туннельном контакте между соседними гранулами  $G_t$ , заметно превышающем квант проводимости:  $g = G_t/(2e^2/h) \geq 1$ . Логарифмический закон в проводимости не связан с поправками за счет слабой локализации, а объясняется перенормировкой кулоновского взаимодействия [1]. Поэтому для его наблюдения температура не должна быть слишком низкой и высокой:  $g\delta \ll k_B T \ll E_c$ , где  $\delta = (vV)^{-1}$  – средний энергетический зазор между уровнями размерного квантования в грануле,  $V = \pi a_g^3/6$ ,  $v$  – плотность состояний на уровне Ферми,  $k_B$  – постоянная Больцмана,  $E_c = e^2/(\epsilon_d \cdot a_g)$  – зарядовая энергия (кулоновской блокады) отдельной гранулы. Полагая  $\epsilon_d \approx 50$  (как для  $\alpha\text{-LiNbO}_3$  на частотах 0.1–1 МГц [23]), при среднем размере гранул  $a_g \approx 3$  нм получим  $E_c/k_B \approx 110$  К, что хорошо согласуется с верхней температурой наблюдения закона  $\sigma(T) \propto \ln T$  (см. рис. 1a). Параметр  $\beta$  определяется радиусом корреляции перколяционной сетки  $L$  [12, 14]:  $\beta \sim 2e^2 a/\hbar \pi k L^2$ , где  $k$  – эффективное число контактов гранулы с ближайшими соседями. Найденный из эксперимента для образца с  $x \approx 48$  ат. % параметр  $b \approx 14$  (Ом·см) $^{-1}$  и занимает промежуточное значение между сильно вытянутыми и округлыми гранулами  $\beta \approx 6$  и 30 (Ом·см) $^{-1}$ , соответственно [14].

При содержании металлических гранул ниже некоторой критической величины  $x_c$  безразмерный кондактанс  $g$  оказывается меньше 1. В этих условиях согласно [1] происходит переход металл-изолятор (ПМИ), ниже которого наблюдается закон Эфроса–Шкловского “1/2”:  $\ln \sigma \propto -(T_0/T)^{1/2}$ , обусловленный совместным туннелированием (или со-туннелированием от англ. *co-tunneling*) электронов через цепочки “резонансных” гранул. В этих

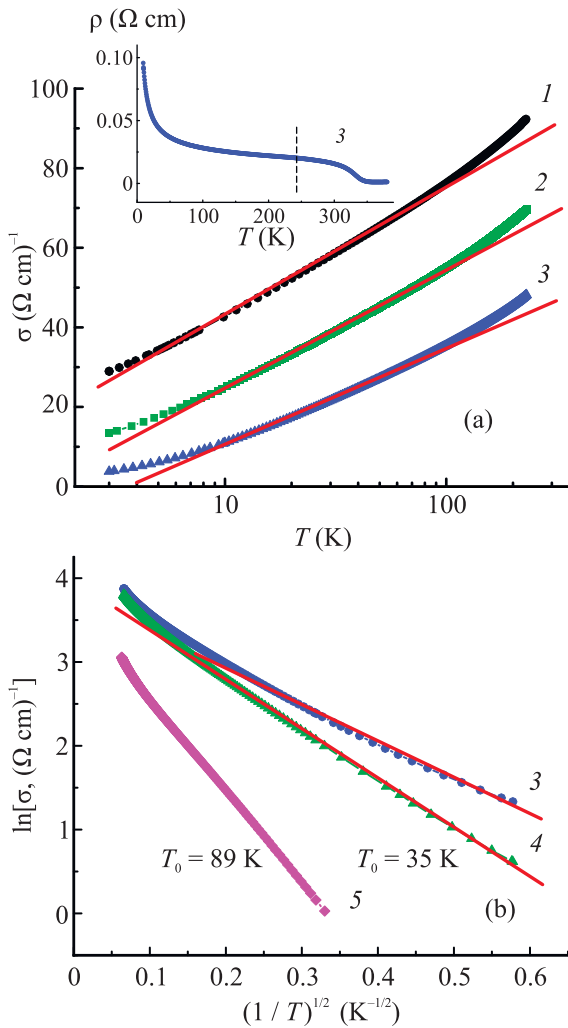


Рис. 1. (Цветной онлайн) Температурные зависимости проводимости НК  $(\text{CoFeB})_x(\text{LiNbO}_3)_{100-x}$   $\sigma(T)$  в координатах: (a) –  $\log T$ ; (b) –  $\ln \sigma - (1/T)^{1/2}$ . Зависимости получены для образцов с различным содержанием ФМ сплава (кривые 1–5): 1 – 48; 2 – 46; 3 – 44; 4 – 42; 5 – 40 ат. %

ложки из-за недостаточно хороших изолирующих свойств сформированного поверхностного слоя  $\text{SiO}_x$ . Из сравнения зависимостей  $\rho(T)$  пленок НК, полу-

условиях существенно снижается энергия активации прыжка в сравнении с энергией кулоновской блокады изолированной гранулы  $E_c$ , причем тем сильнее, чем больше гранул в резонансной цепочке. При этом параметр  $T_0$  увеличивается с уменьшением  $x$  из-за уменьшения длины локализации электрона на гранулах.

Описанный переход к закону “1/2” хорошо наблюдается и в нашем случае (см. рис. 1b). Параметр  $T_0$  достаточно резко увеличивается с уменьшением  $x$ , более чем в 2 раза при уменьшении  $x$  от 42 к 40 ат. %. При этом образец с  $x \approx 44$  ат. % оказывается пограничным и одинаково хорошо “на глаз” описывается законом  $\sigma(T) \propto \ln T$  (при относительно высоких температурах, рис. 1a) и законом  $\ln \sigma \propto -(T_0/T)^{1/2}$  (при относительно низких температурах, рис. 1b). Отметим, что вероятной причиной подъема в зависимости  $\ln \sigma$  от  $(1/T)^{1/2}$ , наблюдаемого при высоких температурах (малых  $1/T^{1/2}$ ; рис. 1b) в образцах с  $x \approx 44$  и 42 ат. % является переход в прыжковой проводимости от режима со-туннелирования электронов через цепочки “резонансных” гранул к режиму прыжка на ближайшего соседа, что обусловлено небольшой величиной  $T_0$  в этих образцах [1].

На рисунке 2 представлены в нормированном виде зависимости продольного удельного сопротивления  $\rho(B)/\rho(0)$  от магнитного поля для образца  $(\text{CoFeB})_x(\text{LiNbO}_3)_{100-x}$  с  $x \approx 44$  ат. % при различных температурах в диапазоне  $T = 3\text{--}200$  К. Можно выделить три температурные области, в которых поведение величины магниторезистивного эффекта  $M_R[\%] = 100 \cdot [\rho(B)/\rho(0) - 1]$  кардинально отличаются друг от друга. Высокотемпературная область (ВТ)  $T \approx 50\text{--}200$  К (рис. 2a), в которой величина  $|M_R|$  падает с уменьшением температуры, хотя обычно в наногранулированных системах этот эффект растет [28, 29]. Для сравнения на рис. 2a показана также зависимость отношения  $\rho(B)/\rho(0)$  при  $T = 10$  К, которое в поле 14 Тл совпадает с величиной  $\rho(B)/\rho(0)$  при  $T = 200$  К.

В области промежуточных температур (ПТ)  $T \approx 6\text{--}40$  К тенденция в поведении МС изменяется на противоположное (рис. 2b) – в этой области абсолютное значение  $M_R$  резко увеличивается с понижением температуры: от 0.44 % при  $T = 40$  К до 2.0 % при  $T = 6$  К. Ранее значительное увеличение МС эффекта при  $T \leq 40$  К наблюдалось в НК Co-Al-O, которое было описано в рамках спин-зависимых процессов со-туннелирования [24]. В нашем случае, однако, начинает заметно проявляться вклад в отрицательном МС, не насыщающийся в поле до 14 Тл, что указывает на его не магнитную (спин-зависимую) природу

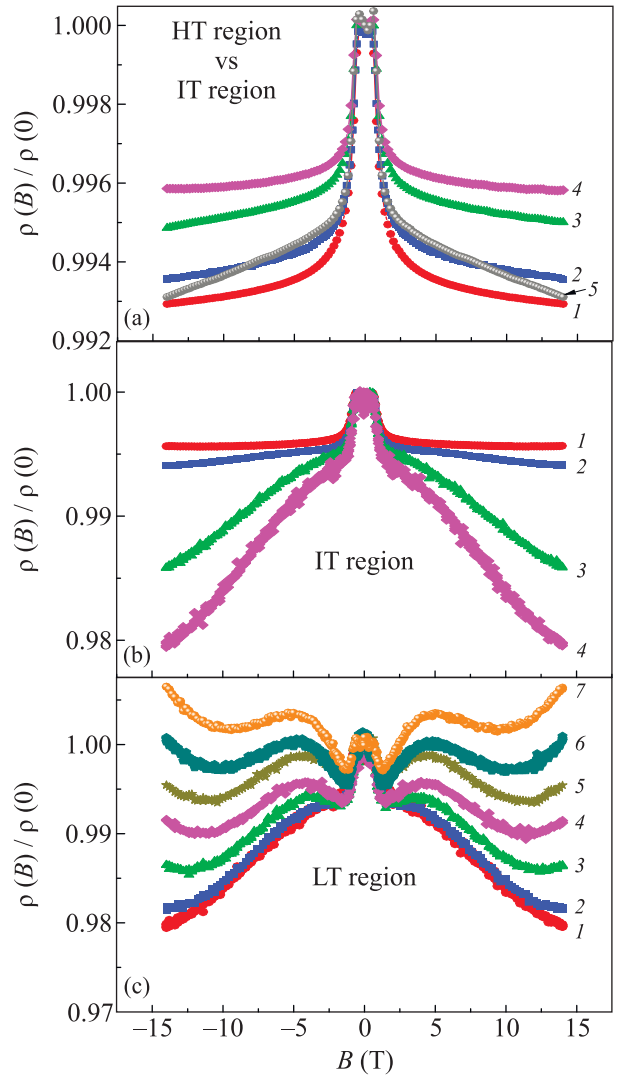


Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимости нормированного продольного удельного сопротивления  $\rho(B)/\rho(0)$  от магнитного поля при различных температурах для образца  $(\text{CoFeB})_x(\text{LiNbO}_3)_{100-x}$  с  $x \approx 44$  ат. % в трех областях. (a) – ВТ область  $T \approx 50\text{--}200$  К (НТ), в которой величина отрицательного МС падает с уменьшением температуры (кривые 1–5): 1 – 200; 2 – 160; 3 – 100; 4 – 50; 5 – 10 К. Для сравнения на рисунке показана зависимость отношения  $\rho(B)/\rho(0)$  при  $T = 10$  К, которое в поле 14 Тл совпадает с величиной  $\rho(B)/\rho(0)$  при  $T = 200$  К. (b) – Область ПТ  $T \approx 6\text{--}40$  К (ИТ), в которой величина МС резко увеличивается с понижением температуры (кривые 1–6): 1 – 40; 2 – 20; 3 – 10; 4 – 6 К. (c) – Область низких температур  $T \approx 3\text{--}6$  К (ЛТ), где наблюдается переход к положительному МС, сопровождаемый проявлением двух минимумов в зависимости  $\rho(B)/\rho(0)$  (кривые 1–7): 1 – 6.0; 2 – 4.5; 3 – 3.8; 4 – 3.4; 5 – 3.3; 6 – 3.0; 7 – 2.8 К. Поле в экспериментах направлено перпендикулярно плоскости пленки НК

ду. Подтверждением тому являются результаты по изучению корреляции в изменении  $M_R$  и намагниченности  $M$  на примере образца с  $x \approx 44$  ат. % при варьировании температуры от 5 до 10 К (рис. 3а). Из данных рис. 3а следует, что как сама величина  $M$ , так и ее изменение  $\Delta M = M(5 \text{ К}) - M(10 \text{ К})$  насыщаются в полях  $\mu_0 H \geq 1.5$  Тл. При этом, однако, величина изменения МС  $\Delta M_R(B) = 100 \cdot [\rho(B, 10 \text{ К}) - \rho(B, 6 \text{ К})]/\rho(0)$  испытывает рост с увеличением  $B$  вплоть до 14 Тл (верхняя вставка рис. 3а). Иными словами, в сильных полях отсутствует корреляция в поведении  $M_R$  и  $M$ .

Наконец, необычная модификация кривых МС наблюдается при дальнейшем понижении температуры при  $T \leq 6$  К (ЛТ область; рис. 2с). Ниже 4 К в зависимости  $\rho(B)/\rho(0)$  начинают проявляться два минимума, причем тем ярче, чем ниже температура. Насколько нам известно, ранее подобное двухъямное поведение МС было обнаружено в сильно легированном (до вырождения) компенсированном полупроводнике InSb, где оно объяснялось суперпозицией двух вкладов в МС разных знаков — отрицательного и положительного [30]. Если двухъямный характер МС в нашем случае связывать с проявлением положительного МС, то его относительный вклад максимален в образце с промежуточным содержанием  $x \approx 44$  ат. %, что вытекает из данных рис. 3б, где представлены для сравнения зависимости  $\rho(B)/\rho(0)$  при  $T \approx 3$  и 4 К для образцов с  $x \approx 42, 44$  и 48 ат. %. Изменение величины  $M_R$  в поле  $B = 14$  Тл для этих образцов при увеличении температуры от 3 до 4 К  $\Delta M_R = 100 \cdot [\rho(B, 3 \text{ К}) - \rho(B, 4 \text{ К})]/\rho(0)$  составляет: 1.3, 2 и 0.9 %, соответственно. В образце с наименьшим содержанием  $x \approx 40$  ат. % при  $T = 4$  К положительный вклад в МС практически не проявляется. При этом  $\rho(B)/\rho(0)$  в сильных полях описывается корневым законом,  $\Delta\rho(B)/\rho(0) \propto -B^{1/2}$ , который, например, может наблюдаться в немагнитных неупорядоченных системах в режиме прыжковой проводимости с переменной длиной прыжка (*variable-range-hopping or VRH regime*) [31]. Заметим, что сильно немономонное полевое поведение МС недавно наблюдалось в антиферромагнетике типа RB12 с сильными электронными корреляциями (см. рис. 2 в [32]). Однако, в этом случае в полях  $B \leq 1$  Тл МС является положительным и при низких температурах не изменяет свой знак с ростом  $B$ .

Рассмотренное выше на примере образца с  $x \approx 44$  ат. % температурное поведение эффекта МС наблюдается для всех образцов из диапазона  $x \approx 40-48$  ат. % (рис. 4а). Во всех случаях минимальная величина  $|M_R|$  наблюдается при  $T_{\min} \sim 40$  К, при

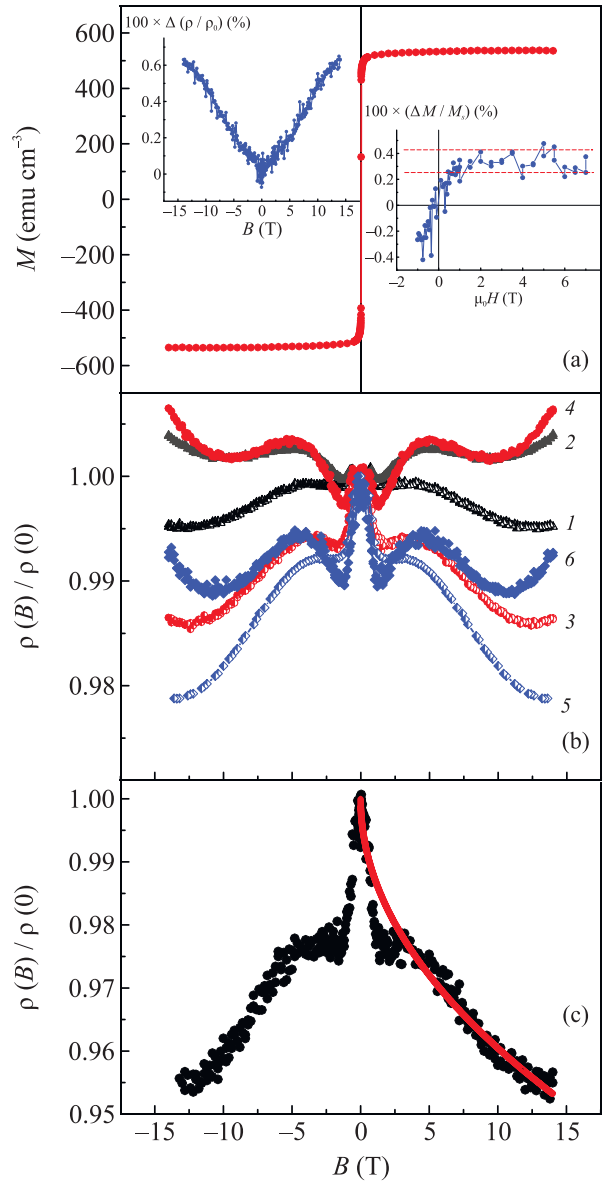


Рис. 3. (Цветной онлайн) (а) – Магнитополевая зависимость намагниченности в образце с  $x = 44$  ат. % при  $T = 5$  К. На вставке справа показана зависимость приращения намагниченности  $\Delta M(H)/M_s$  от магнитного поля при уменьшении  $T$  от 10 до 5 К, измеренная с помощью СКВИД магнетометра ( $M_s$  – намагниченность насыщения). На вставке слева – зависимость изменения отношения  $\Delta\rho(B)/\rho(0)$  от магнитного поля также при уменьшении  $T$  от 10 до 6 К. (б) – Сравнительные зависимости  $\rho(B)/\rho(0)$  для образцов с различным содержанием металла  $x = 48$  (кривые 1 и 2), 44 (кривые 3 и 4) и 42 ат. % (кривые 5 и 6) при  $T = 4.0$  (кривые 1, 3, 5) и 3.0 К (кривые 2, 4, 6). (с) – Зависимость  $\rho(B)/\rho(0)$  для образца с  $x = 40$  ат. % при  $T = 4.0$  К. Сплошная линия – результат подгонки корневой зависимостью:  $\Delta\rho(B)/\rho(0) = 1 - 0.0125 \cdot B^{1/2}$  [Тл]

этом наиболее сильный рост МС при уменьшении  $T$  от 40 до 6 К (более, чем в 4 раза) достигается в образце с наименьшим значением  $x \approx 40$  ат. %.

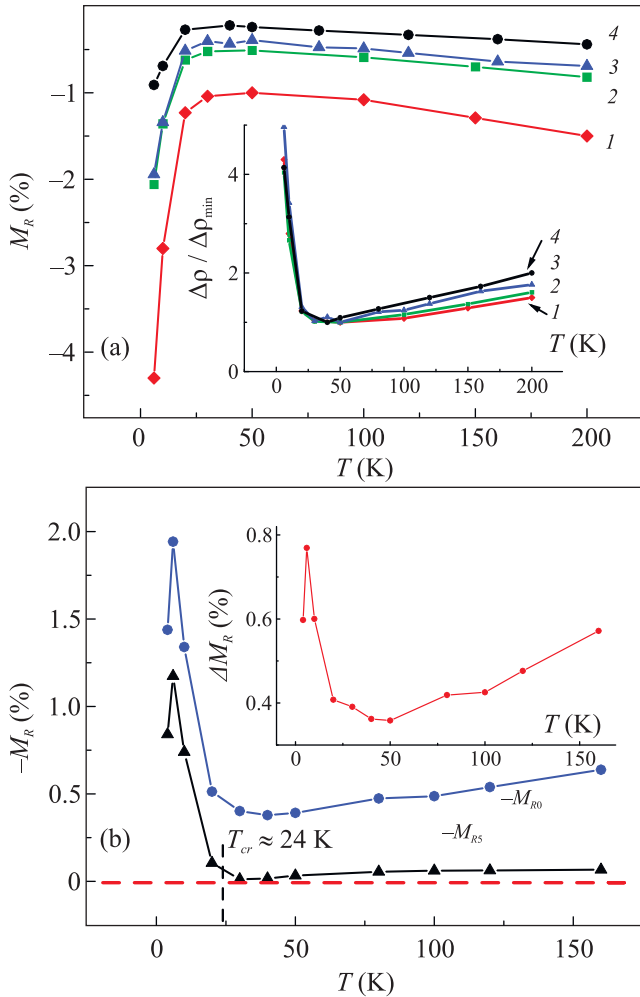


Рис. 4. (Цветной онлайн) (а) – Зависимости МС от температуры в диапазоне  $T = 6–200$  К для образцов с различным содержанием металла (кривые 1–4): 1 – 40; 2 – 42; 3 – 44; 4 – 48 ат. %;  $M_R = 100 \cdot [\rho(14 \text{ Тл}) - \rho(0)]/\rho(0) = 100 \cdot \Delta\rho/\rho_0$ . На вставке – температурные зависимости  $\Delta\rho/\rho_{\min}$  для тех же образцов ( $|\Delta\rho_{\min}|$  – минимальное значение  $|\Delta\rho|$  при изменении поля от 0 до 14 Тл). (б) – Инвертированные температурные зависимости МС для образца с  $x \approx 44$  ат. %, полученные в сильных полях при его изменении от 5 до 14 Тл:  $M_{R5} = 100 \cdot [\rho(14 \text{ Тл}) - \rho(5 \text{ Тл})]/\rho(5 \text{ Тл})$ , а также при изменении поля от 0 до 14 Тл ( $M_{R0}$ ). На вставке – температурная зависимость:  $\Delta M_R = (M_{R5} - M_{R0})$

Интересно проанализировать температурное поведение МС для образцов с разным  $x$  в нормированном виде:  $f(T) = \Delta\rho(T)/\Delta\rho_{\min}$ , где  $|\Delta\rho_{\min}|$  – минимальное значение  $|\Delta\rho|$  при изменении поля от 0 до 14 Тл при  $T_{\min} \approx 40$  К. Представленные на вставке

рис. 4а данные по зависимостям  $f(T)$  ясно показывают, что относительный рост  $f(T)$  с увеличением температуры (в диапазоне  $40 < T < 200$  К) максимален для образца с наибольшим  $x \approx 48$  ат. % и достигает 2 раз.

Столь необычная зависимость  $f(T)$  наводит на мысль о сосуществовании в НК пленках СФМ областей (с обменно-связанными гранулами), которые не образуют бесконечного перколяционного кластера и отделены друг от друга областями из слабо взаимодействующих суперпарамагнитных гранул (рис. 5а).

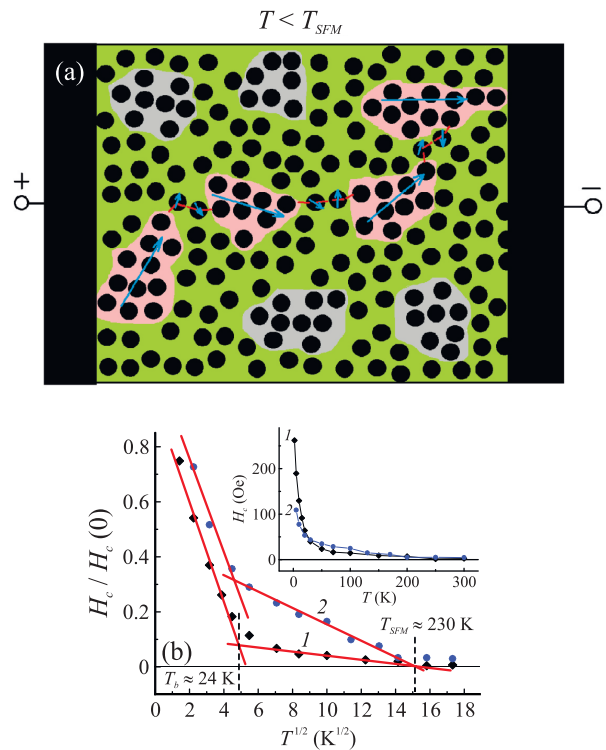


Рис. 5. (Цветной онлайн) (а) – Нанокompозитная перколяционная система с фазовым магнитным расслоением на обменно-связанные гранулированные области и области с преимущественным диполь-дипольным взаимодействием между гранулами. Розовым цветом выделены обменно-связанные области, определяющие путь электронного протекания. Стрелками изображены магнитные моменты областей и гранул. (б) – Нормированные зависимости коэрцитивной силы  $H_c/H_c(0)$  от  $T^{1/2}$  для образцов с  $x = 44$  (кривая 1) и 48 ат. % (кривая 2), подтверждающие наличие областей с высокими эффективными температурами Кюри  $T_{SFM} \approx 230$  К.  $H_c(0)$  – величина коэрцитивного поля при  $T \rightarrow 0$ . На вставке – зависимости  $H_c(T)$  для тех же образцов

При этом увеличение отрицательного МС при  $T > 40$  К естественно связать с разрушением магнитного упорядочения в СФМ областях, которое тем силь-



нее должно проявляться, чем ближе температура к температуре перехода областей из СФМ в суперпарамагнитное состояние  $T_{SFM}$  [3, 33]. При низких температурах, заметно меньших  $T_{SFM}$ , когда магнитные моменты гранул в SFM областях ориентированы почти одинаково, данный вклад в МС полностью поддается [3, 33].

Причины резкого увеличения МС при низких  $T < 40$  К заставляют предположить, что СФМ области не являются связанными, а отделены друг от друга областями из “изолированных” гранул с прыжковым характером транспорта электронов, который в нашем случае описывается закон “1/2” (рис. 1b), наблюдаемым при доминировании процессов резонансного со-туннелирования [1]. В этих условиях, как предсказано в [25], возможно резкое увеличение отрицательного МС интерференционной природы, возникающего с понижением температуры при переходе от режима неупругого резонансного со-туннелирования к режиму упругого. Данный переход характеризуется критической температурой [25]:

$$T_{cr} \sim \Lambda^{-1} (\delta E_c)^{1/2} \propto 1/a_g^2, \quad (1)$$

где  $\Lambda \sim 10$  – логарифмический фактор. В [25] для гранул Al размером  $a_g \sim 10$  нм получена оценка  $T_{cr} \sim 2$  К. В нашем случае средний размер гранул  $a_g \approx 3$  нм. Поэтому при прочих равных условиях из (1) следует, что величина  $T_{cr}$  в исследованных НК должна быть на порядок выше, т.е.  $T_{cr} \sim 20$  К.

Для оценки значения  $T_{cr}$  из эксперимента следует проанализировать поведение МС, найденного из изменения сопротивления в сильных полях в условиях насыщения намагниченности. На рисунке 4b показана в инвертированном виде температурная зависимость МС для образца с  $x \approx 44$  ат. %, полученная в сильных полях при его изменении от 5 до 14 Тл:  $M_{R5}(T) = 100 \cdot [\rho(14 \text{ Тл}) - \rho(5 \text{ Тл})] / \rho(5 \text{ Тл})$ . Там же для сравнения представлена зависимость  $M_{R0}(T)$ , найденная при изменении поля от 0 до 14 Тл, а также на вставке – температурная зависимость разницы:  $\Delta M_R = (M_{R5} - M_{R0})$ . Из приведенных данных следует, что высокополевое МС практически не наблюдается при  $T > 24$  К ( $M_{R5} < 0.1\%$ ) и резко увеличивается ниже температуры  $T \approx 24$  К, которая совпадает с приведенной выше оценкой  $T_{cr} \sim 20$  К. Отметим, что  $\Delta M_R$ , зависящее от намагниченности, растет как выше, так и ниже  $T_{\min} \sim 40$  К. При этом увеличение  $\Delta M_R$  при  $T < 40$  К достигает  $\approx 2$  раз, как в условиях спин-зависимого электронного со-туннелирования, обнаруженного в гранулированных пленках Co-Al-O в [24].

Иными словами, данные представленные на рис. 3а и 4 убедительно свидетельствуют о наличии в изученных НК существенного вклада в отрицательное МС, который не связан с магнитным состоянием системы и, скорее всего, обусловлен эффектами квантовой интерференции при переходе от режима неупругого к режиму упругого со-туннелирования [25]. Отметим также, что в этом случае в сильных полях также ожидается корневая зависимость МС от поля:  $\Delta \rho(B) / \rho(0) \propto -B^{1/2}$  [25], как в VRH режиме [31], что наблюдается в эксперименте (рис. 3с).

В основе объяснения наблюдения минимума в температурном поведении эффекта МС лежат представления о магнитном фазовом расслоении НК системы на обменно-связанные гранулированные СФМ области и области с преимущественным диполь-дипольным взаимодействием между гранулами (рис. 5а). Известно, что в этих условиях в НК системе существенно модифицируется закон Нееля-Броуна, описывающий температурное поведение коэрцитивного поля  $H_c$  [34, 35]. В этом случае в зависимости  $H_c$  от  $\sqrt{T}$  при некотором значении  $T_b^* \approx T_b$  наблюдается излом, после которого  $H_c$  следует с ростом  $T$  по тому же закону,  $H_c(T) \propto -\sqrt{T}$ , но с меньшим наклоном вплоть до пересечения с осью абсцисс ( $H_c = 0$ ) при  $T \approx T_{SFM}$ . (Здесь  $T_b$  – температура блокировки гранул в отсутствие взаимодействия.) Такое поведение, действительно, наблюдается в нашем случае (см. рис. 5b). Найденная по особенностям зависимости  $H_c$  от  $\sqrt{T}$  температура блокирования  $T_b \approx 24$  К, а величина  $T_{SFM} \approx 230$  К. Заметим, что полученное значение  $T_b$  хорошо совпадает с данными прямых измерений этой величины по изменению магнитного момента образцов с малым содержанием металла при их нагреве в слабом поле 10 мТл после охлаждения в нулевом поле (ZFC кривые). При  $x \approx 17$  ат. % наблюдается максимум в ZFC кривых, который дает параметр  $T_b \approx 25$  К (в условиях межгранульного взаимодействия при  $x \approx 42$  ат. % максимум сильно размывается  $T_b \approx 20$ –80 К; см. дополнительные материалы).

Рассмотрим теперь подробнее особенности поведения МС в низкотемпературной области ( $T \leq 6$  К), где проявляется два минимума в зависимости  $\rho(B) / \rho(0)$  (рис. 2 и 3). Как уже отмечалось, двухъямный характер поведения МС может быть обусловлен аддитивным проявлением двух магниторезистивных вкладов с противоположными знаками – отрицательным и положительным [30]. В случае НК при  $x \leq x_p$ , как было недавно обнаружено нами, может наблю-

даться относительно небольшой линейный положительный вклад в МС величиной до  $\sim 2 \cdot 10^{-2} \%$ /Тл при 65 К, который был описан влиянием эффекта Зеемана на высоту туннельного барьера из-за линейного по полю уменьшения энергии Ферми в гранулах [36, 37]. Согласно [36] этот вклад увеличивается с уменьшением температуры:  $M_R \propto T^{-1/2}$ . Иными словами, величина положительного МС при  $T \sim 3$  К может достигать  $M_R \sim 10^{-1} \%$ /Тл. Для проверки гипотезы о проявлении положительного вклада в МС мы прибавили к кривой отрицательного МС, наблюдаемого для образца с  $x \approx 44$  ат. % при повышенной температуре  $T = 4.5$  К (рис. 6), линейный поло-

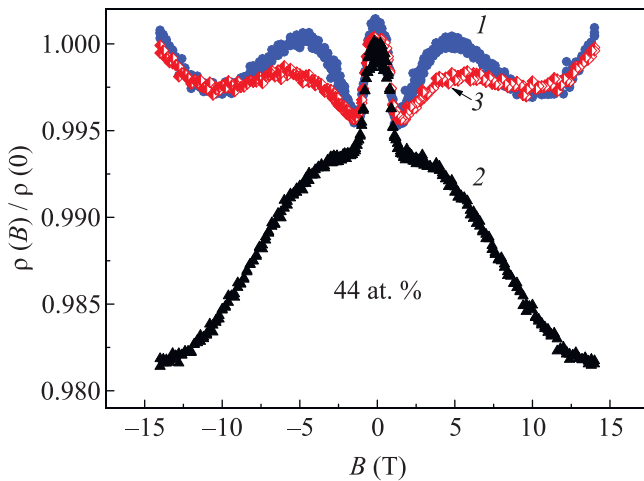


Рис. 6. (Цветной онлайн) Экспериментальные зависимости  $\rho(B)/\rho(0)$  для образца с  $x = 44$  ат. % при  $T = 3$  и  $4.5$  К (кривые 1 и 2). Для сравнения также показана расчетная зависимость  $\rho(B)/\rho(0)$  при  $T = 3.0$  К (кривая 3), полученная путем добавления к экспериментальной зависимости  $\rho(B)/\rho(0)$  при  $T = 4.5$  К линейного положительного вклада  $\rho(B)/\rho(0) = 0.0013 \cdot B$  [Тл]

жительный член  $\rho(B)/\rho(0) = c \cdot B$ . При  $c = 1.3 \cdot 10^{-1} \%$ /Тл экспериментальная кривая  $\rho(B)/\rho(0)$  при  $T = 3$  К довольно хорошо описывается полученной таким образом зависимостью:  $\rho(B, 3 \text{ К})/\rho(0) \approx (B, 4.5 \text{ К})/\rho(0) + 1.3 \cdot 10^{-3} \cdot B$  (рис. 6). Использование нелинейного по полю положительного вклада (квадратичного или корневого типа) приводит к заметно худшему описанию двухъямного МС, наблюдаемого нами при  $T \leq 4$  К (рис. 2с, 3б и 6). И хотя предложенное объяснение двухъямного МС представляется разумным, необходимо отметить, что для его наблюдения необходимо, чтобы линейный положительный вклад в МС резко возрастал ниже 4 К, причем не степенным (корневым) образом, как следует из [36]. Механизм сильного возрастания поло-

жительного МС пока не ясен. Возможно, это связано с аномальным поведением теплового коэффициента расширения Si, который при  $T \leq 150$  К оказывается отрицательным, а затем ниже  $T \leq 10$  К становится снова положительным, т.е. подложка резко сжимается (см. [38] и ссылки там).

Таким образом, обнаруженное в наноконструктивных пленочных структурах  $(\text{CoFeB})_x(\text{LiNbO}_3)_{100-x}/\text{Si}$  ниже порога перколяции проявление различных вкладов в магниторезистивном эффекте не противоречивым образом объясняется магнитным фазовым расслоением НК системы на обменно-связанные СФМ гранулированные области и области с преимущественным диполь-дипольным (антиферромагнитным) взаимодействием между гранулами. Одна из существенных причин, обуславливающих формирование СФМ областей, может быть связана с высокой диэлектрической проницаемостью матрицы ( $\epsilon_d \sim 50$ ), усиливающей межгранульное обменное взаимодействие [22], влияние которого ослабляется с повышением температуры и приводит к проявлению отрицательного МС [3, 33]. С другой стороны, аморфизирующее влияние бора в гранулах CoFeB может способствовать уменьшению в них плотности состояний на уровне Ферми и облегчать переход к упругому со-туннелированию, приводя при  $T \leq 20$  К к сильному увеличению отрицательного МС с понижением температуры [25], впервые обнаруженному в данной работе. При  $T \leq 4$  К выявлено также положительное линейное МС типа описанного в [36], причины резкого возникновения которого пока до конца не ясны и требуют дальнейших исследований.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (грант # 22-19-00171) в части исследования МС.

Данные по структуре пленок получены с использованием оборудования Ресурсного Центра НИЦ “Курчатовский Институт”.

1. I. S. Beloborodov, A. V. Lopatin, V. M. Vinokur, and K. B. Efetov, *Rev. Mod. Phys.* **79**, 469 (2007).
2. S. Bedanta, T. Eimuller, W. Kleemann, J. Rhensius, F. Stromberg, E. Amaladass, S. Cardoso, and P. P. Freitas, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 176601 (2007).
3. I. S. Beloborodov, A. Glatz, and V. M. Vinokur, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 066602 (2007).
4. S. Bedanta and W. Kleemann, *J. Phys. D* **42**, 013001 (2009).
5. A. Milner, A. Gerber, B. Groisman, M. Karpovsky, and A. Gladkikh, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 475 (1996).



6. N. Kobayashi, S. Ohnuma, T. Masumoto, and H. Fujimori, *J. Appl. Phys.* **90**, 4159 (2001).
7. A. Pakhomov, X. Yan, and B. Zhao, *Appl. Phys. Lett.* **67**, 3497 (1995).
8. Б. А. Аронзон, Д. Ю. Ковалев, А. Н. Лагарьков, Е. З. Мейлихов, В. В. Рьльков, М. В. Седова, N. Negre, M. Goiran, and J. Leotin, *Письма в ЖЭТФ* **70**, 87 (1999).
9. Б. А. Аронзон, А. Б. Грановский, Д. Ю. Ковалев, Е. З. Мейлихов, В. В. Рьльков, М. А. Седова, *Письма в ЖЭТФ* **71**, 687 (2000).
10. А. Б. Грановский, И. В. Быков, Е. А. Ганьшина, В. С. Гуцин, М. Инуе, Ю. Е. Калинин, А. А. Козлов, А. Н. Юрасов, *ЖЭТФ* **123**, 1256 (2003).
11. Е. А. Ганьшина, М. В. Вашук, А. Н. Виноградов, А. Б. Грановский, В. С. Гуцин, П. Н. Щербак, Ю. Е. Калинин, А. В. Ситников, Ч. О. Ким, Ч. Г. Ким, *ЖЭТФ* **125**, 1172 (2004).
12. V. V. Rylkov, S. N. Nikolaev, K. Yu. Chernoglazov, V. A. Demin, A. V. Sitnikov, M. Yu. Presnyakov, A. L. Vasiliev, N. S. Perov, A. S. Vedeneev, Yu. E. Kalinin, V. V. Tugushev, and A. B. Granovsky, *Phys. Rev. B* **95**, 144202 (2017).
13. V. V. Rylkov, A. V. Sitnikov, S. N. Nikolaev, V. A. Demin, A. N. Taldenkov, M. Yu. Presnyakov, A. V. Emelyanov, A. L. Vasiliev, Yu. E. Kalinin, A. S. Bugaev, V. V. Tugushev, A. B. Granovsky, *J. Magn. Magn. Mater.* **459**, 197 (2018).
14. В. В. Рьльков, С. Н. Николаев, В. А. Демин и др. (Collaboration), *ЖЭТФ* **153**, 424 (2018).
15. В. В. Рьльков, А. В. Емельянов, С. Н. Николаев, К. Э. Никируй, А. В. Ситников, Е. А. Фадеев, В. А. Демин, А. Б. Грановский, *ЖЭТФ* **158**, 164 (2020).
16. M. N. Martyshov, A. V. Emelyanov, V. A. Demin et al. (Collaboration), *Phys. Rev. Appl.* **14**, 034016 (2020).
17. A. V. Emelyanov, K. E. Nikiruy, A. V. Serenko, A. V. Sitnikov, M. Yu. Presnyakov, R. B. Rybka, A. G. Sboev, V. V. Rylkov, P. K. Kashkarov, M. V. Kovalchuk, and V. A. Demin, *Nanotechnology* **31**, 045201 (2020).
18. A. N. Matsukatova, A. I. Piyasov, K. E. Nikiruy, E. V. Kukueva, A. L. Vasiliev, B. V. Goncharov, A. V. Sitnikov, M. L. Znaveskin, A. S. Bugaev, V. A. Demin, V. V. Rylkov, and A. V. Emelyanov, *Nanomaterials* **12**, 3455 (2022).
19. W. Huang, X. Xia, C. Zhu, P. Steichen, W. Quan, W. Mao, J. Yang, L. Chu, and X. Li, *Nano-Micro Lett.* **13**, 85 (2021).
20. M. Lanza, A. Sebastian, W. D. Lu, M. L. Gallo, M.-F. Chang, D. Akinwande, F. M. Puglisi, H. N. Alshareef, M. Liu, and J. B. Roldan, *Science* **376**, 1066 (2022).
21. А. Б. Дровосеков, Н. М. Крейнес, О. А. Ковалев, А. В. Ситников, С. Н. Николаев, В. В. Рьльков, *ЖЭТФ* **162**, 426 (2022).
22. O. G. Udalov and I. S. Beloborodov, *Phys. Rev. B* **95**, 045427 (2017).
23. T. Mitsuyu and K. Wasa, *Jpn. J. Appl. Phys.* **20**, L48 (1981).
24. S. Mitani, S. Takahashi, K. Takanashi, K. Yakushiji, S. Maekawa, and H. Fujimori, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 2799 (1998).
25. M. V. Feigel'man and A. S. Ioselevich, *JETP Lett.* **81**, 227 (2005).
26. G. V. Swamy, H. Pandey, A. K. Srivastava, M. K. Dalai, K. K. Maurya, Rashmi, and R. K. Rakshit, *AIP Adv.* **3**, 072129 (2013).
27. K. B. Efetov and A. Tschersich, *Phys. Rev. B* **67**, 174205 (2003).
28. J. Inoue and S. Maekawa, *Phys. Rev. B* **53**, R11929 (1996).
29. X. Batlle and A. Labarta, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **35**, R15 (2002).
30. Б. А. Аронзон, Н. К. Чумаков, Т. Дитл, И. Врубель, *ЖЭТФ* **105**, 405 (1994).
31. H. L. Zhao, B. Z. Spivak, M. P. Celfand, and S. Feng, *Phys. Rev. B* **44**, 10760 (1991).
32. А. Л. Хорошилов, А. В. Богач, С. В. Демишев, К. М. Красиков, С. Е. Половец, Н. Ю. Шицевалова, В. Б. Филипов, Н. Е. Случанко, *Письма в ЖЭТФ* **115**, 150 (2022).
33. A. Glatz, I. S. Beloborodov, and V. M. Vinokur, *EPL* **82**, 47002 (2008).
34. A. A. Timopheev, S. M. Ryabchenko, V. M. Kalita, A. F. Lozenko, P. A. Trotsenko, V. A. Stephanovich, A. M. Grishin, and M. Munakata, *J. Appl. Phys.* **105**, 083905 (2009).
35. A. A. Timopheev, I. Bdikin, A. F. Lozenko, O. V. Stognei, A. V. Sitnikov, A. V. Los, and N. A. Sobolev, *J. Appl. Phys.* **111**, 123915 (2012).
36. M. I. Blinov, M. A. Shakhov, V. V. Rylkov, E. Lahderanta, V. N. Prudnikov, S. N. Nikolaev, A. V. Sitnikov, and A. B. Granovsky, *J. Magn. Magn. Mater.* **469**, 155 (2019).
37. Е. А. Фадеев, М. А. Шахов, Е. Лахдеранта, А. Н. Талденков, А. Л. Васильев, А. В. Ситников, В. В. Рьльков, А. Б. Грановский, *ЖЭТФ* **160**(6), 903 (2021).
38. A. P. Zhernov, *Low Temp. Phys.* **26**, 908 (2000).