

# МАГНИТОКАЛОРИЧЕСКИЙ ЭФФЕКТ В НАНОСИСТЕМАХ НА ОСНОВЕ ФЕРРОМАГНЕТИКОВ С РАЗЛИЧНЫМИ ТЕМПЕРАТУРАМИ КЮРИ

*M. A. Кузнецов<sup>a,b\*</sup>, A. B. Дровосеков<sup>c\*\*</sup>, A. A. Фраерман<sup>a\*\*\*</sup>*

*<sup>a</sup> Институт физики микроструктур Российской академии наук  
603950, Нижний Новгород, Россия*

*<sup>b</sup> Нижегородский государственный университет им. Лобачевского  
603950, Нижний Новгород, Россия*

*<sup>c</sup> Институт физических проблем им. П. Л. Капицы Российской академии наук  
119334, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 14 мая 2020 г.,

после переработки 31 июля 2020 г.

Принята к публикации 9 сентября 2020 г.

В рамках теории среднего поля рассчитан магнитокалорический эффект в наносистемах на основе обменно-связанных ферромагнетиков с различными температурами Кюри. Для плоскослоистой структуры Fe/Gd/Fe продемонстрировано хорошее согласие результатов теории среднего поля и теории Ландау, справедливой вблизи критической температуры фазового перехода. Показана принципиальная возможность достижения высокой эффективности магнитного охлаждения в этой системе и доказана справедливость соотношения Максвелла, что делает возможным экспериментальную проверку сделанных предсказаний. Развитая для плоскослоистых структур теория обобщена на гранулированную среду.

**DOI:** 10.31857/S0044451021010089

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Магнитокалорический эффект заключается в обратном изменении температуры магнитного материала при его адиабатическом намагничивании или размагничивании. Эффект был открыт более ста лет назад [1] и по-прежнему вызывает значительный интерес [2]. Этот интерес связан с возможностью создания «магнитного» холодильника, в котором роль рабочего тела будет выполнять магнитный материал с сильным магнитокалорическим эффектом. Несмотря на успехи в создании таких материалов (см., например, работу [3]), проблема магнитного охлаждения при комнатной температуре остается, на наш взгляд, нерешенной. Принципиальная сложность для однородных магнитокалоричес-

ких материалов заключается в необходимости приложения очень большого (1–10 Тл) магнитного поля для достижения заметного (1 К) изменения температуры. Таким образом, рекордные на сегодняшний день значения эффективности магнитного охлаждения составляют 10 К/Тл [2].

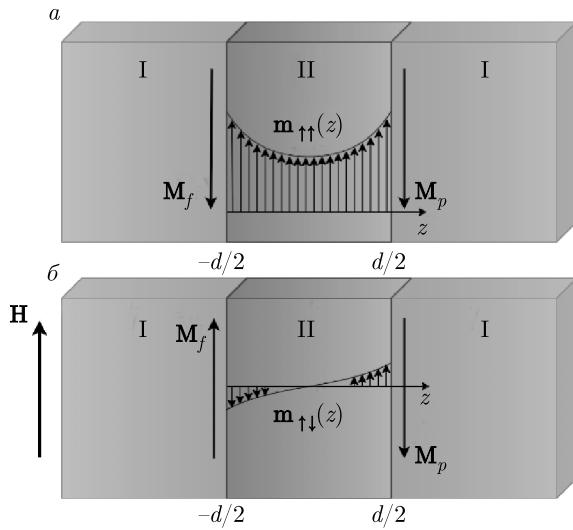
В работе [4] предложен новый подход к проблеме снижения напряженности магнитного поля и повышения эффективности магнитного охлаждения. В качестве магнитного материала предлагается использовать многослойные структуры, состоящие из пленок с различными температурами Кюри. Тогда «сильный» ферромагнетик, имеющий большую температуру Кюри  $\Theta$  за счет эффекта магнитной близости [5] будет подмагничивать «слабый» ферромагнетик ( $T_C < \Theta$ ) даже в том случае, если последний находится в парамагнитной фазе, т. е.  $T_C < T$ . Более того, для многослойной структуры, в которой «слабый» ферромагнетик зажат между слоями «сильного» ферромагнетика, размагничивание (намагничивание) прослойки зависит от взаимной ориентации магнитных моментов в берегах, которой можно управлять посредством приложения маг-

---

\* E-mail: kuznetsov@ipmras.ru

\*\* E-mail: drovosekov@kapitza.ras.ru

\*\*\* E-mail: andr@ipm.sci-nnov.ru



**Рис. 1.** Схематическое изображение трехслойной структуры с АФМ-обменом на границах раздела для случая параллельной (а) и антипараллельной (б) ориентаций намагниченности боковых слоев: I — ферромагнитный слой; II — парамагнитный слой;  $M_f$  — намагниченность свободного ферромагнитного слоя;  $M_p$  — намагниченность «закрепленного» ферромагнитного слоя,  $m_{\uparrow\uparrow}(z)$  и  $m_{\uparrow\downarrow}(z)$  — намагниченности прослойки

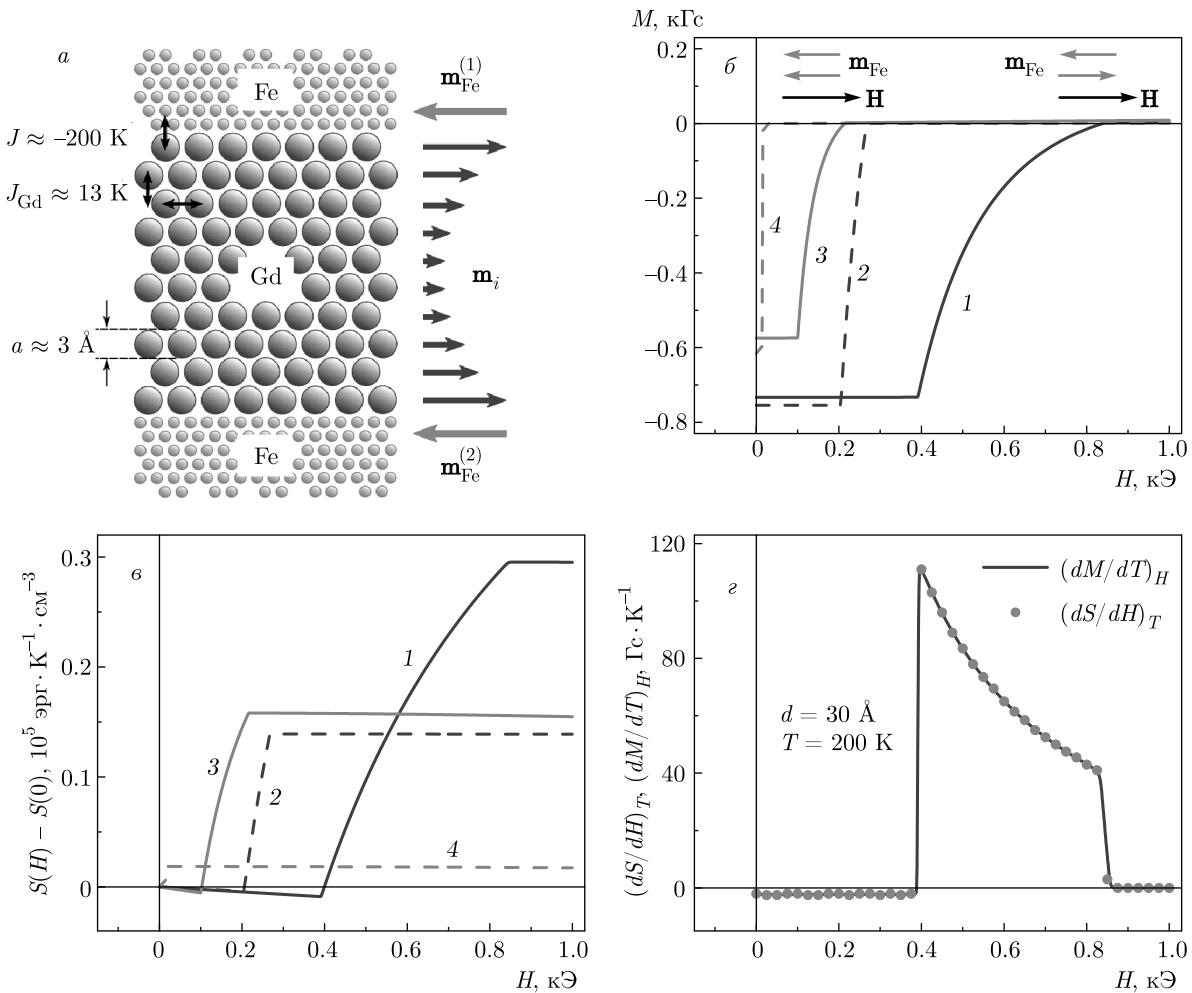
нитного поля (рис. 1). При параллельной ориентации намагниченностей берегов прослойка имеет большую (в среднем по толщине) намагниченность, чем при антипараллельной ориентации. Величина поля, необходимого для переключения взаимной ориентации намагниченостей, порядка  $10^{-2}$  Тл (см. ниже рис. 2б). Эффективность такого способа изменения намагниченности (энтропии) «слабого» ферромагнетика возрастает с уменьшением его толщины и может достигать гигантских значений. Эффект носит «обменный» характер, и увеличение эффективности охлаждения достигается за счет реконфигурации обменных полей на границах пленок. В работах [6–9] проведены эксперименты, подтвердившие возможность усиления магнитокалорического эффекта в многослойных структурах «сильный»/«слабый» ферромагнетик. Однако величина эффекта в десятки раз ниже значений, предсказываемых теорией.

Центральным моментом развиваемого нами подхода является предположение об обменном взаимодействии на границе ферромагнетиков. Величина этого взаимодействия заранее не известна, и требуется аккуратная обработка экспериментальных данных, которая позволит эту обменную константу определить. Для проведения сравнения нужно

иметь количественную теорию магнитокалорического эффекта в таких неоднородных системах, построению которой и посвящена настоящая работа. В качестве отправной точки нами использовано приближение среднего поля, хорошо зарекомендовавшее себя при анализе статических и динамических магнитных свойств многослойных структур Fe/Gd [10]. В разд. 2 этой статьи в рамках приближения среднего поля приведены расчеты распределений намагниченности, энтропии и величины магнитокалорического эффекта в трехслойных структурах Fe/Gd/Fe. В разд. 3.1 для расчета термодинамических характеристик системы используется теория фазовых переходов Ландау, справедливая при температурах, близких к  $T_C$ , для которых магнитокалорический эффект максимальен. Проводится сравнение с результатами разд. 2. Кроме того, получены условия применимости приближенных аналитических решений для параллельной и антипараллельной ориентаций магнитных моментов ферромагнитных берегов. В разд. 3.2 полученные приближенные решения используются для оценки магнитокалорического эффекта в системе ферромагнитных гранул, помещенных в парамагнитную матрицу. В Заключении обсуждаются возможности усиления магнитокалорического эффекта в ферромагнитных наносистемах.

## 2. ПЛОСКОСЛОИСТАЯ СТРУКТУРА В МОДЕЛИ СРЕДНЕГО ПОЛЯ

Идея применения метода среднего поля для расчета магнитных характеристик слоистых структур была предложена Кэмли в работах [11–13]. Исследования были прежде всего направлены на выяснение особенностей магнетизма систем на основе переходных (ПМ) и редкоземельных (РЗМ) ФМ-металлов, таких как Fe/Gd. Характерной особенностью этих систем является возможность сильнонеоднородного распределения намагниченности внутри слоев РЗМ, что обусловлено конкуренцией нескольких факторов: сильным АФМ-обменом на границе раздела ПМ/РЗМ, относительно низкой температурой Кюри и малой обменной жесткостью слоев РЗМ. Предложенный подход позволял на качественном уровне описать основные особенности поведения слоистых структур ПМ/РЗМ и даже достичь определенного количественного согласия с экспериментом [14–17]. Ниже мы используем метод среднего поля для оценки величины магнитокалорического эффекта в многослойных структурах на примере системы Fe/Gd,



**Рис. 2.** (В цвете онлайн) *a)* Схематичное изображение модельной слоистой структуры Fe/Gd/Fe и распределения намагниченности по атомным слоям внутри прослойки Gd. Показаны кривые намагничивания (*б*) и полевые зависимости энтропии (*в*), полученные в модели среднего поля для структур Fe(35 Å)/Gd( $d$ )/Fe(35 Å) с толщиной прослойки  $d = 30 \text{ \AA}$  (кривые 1 и 2) и  $d = 50 \text{ \AA}$  (кривые 3 и 4). Сплошные кривые соответствуют температуре  $T = T_C = 200 \text{ K}$ , штриховые —  $T = T_C = 210 \text{ K}$ . На графике (*г*) продемонстрировано выполнение в рассматриваемой задаче соотношения Максвелла  $(dS/dH)_T = (dM/dT)_H$

магнитные свойства которой достаточно хорошо изучены [18, 19].

Рассмотрим трехслойную структуру  $\text{Fe}(d_{\text{Fe}})/\text{Gd}(d)/\text{Fe}(d_{\text{Fe}})$  с толщинами слоев  $d$ ,  $d_{\text{Fe}}$  порядка нескольких нанометров при температурах  $T$  в окрестности температуры Кюри  $T_C$  гадолиния. Заметим, что в тонких слоях Gd величина  $T_C$  может быть заметно подавлена по сравнению с объемным значением 293 К. Так, в работах [10, 20, 21] для  $d \approx 50 \text{ \AA}$  получено значение  $T_C \approx 200 \text{ K}$ . В рассматриваемых условиях слои Fe можно считать однородно намагниченными до насыщения. При этом большой АФМ-обмен на границах Fe-Gd

(обменная константа  $J \approx -200 \text{ K}$  в расчете на атом Gd [10, 20]) приводит к сильной магнитной поляризации приграничных атомов Gd. В то же время существенно более слабое ФМ-взаимодействие атомов Gd внутри прослойки ( $J_{\text{Gd}} \approx 13 \text{ K}$  [20]) приводит к быстрому (на масштабах около 20 Å) разрушению магнитного порядка при удалении от границы Fe-Gd из-за сильных тепловых флюктуаций вблизи  $T_C$ . Таким образом, внутри прослойки Gd формируется сильнонеоднородный профиль распределения намагниченности с максимумами вблизи границ Fe-Gd и минимумом в глубине слоя. Экспериментально наличие такого распределения

намагниченности в слоях Gd было доказано при исследовании сверхрешеток Fe/Gd методом рентгеновского резонансного магнитного рассеяния (см., например, работы [15, 20]).

Для теоретического моделирования этого распределения по методу среднего поля мы рассматриваем разбиение прослойки Gd на «атомные» подслои толщиной  $a = 3 \text{ \AA}$  и с намагниченностью  $\mathbf{m}_i$ , где  $i$  — номер слоя (рис. 2а). Выбранное значение толщины элементарного слоя  $a = 3 \text{ \AA}$  приближенно соответствует расстоянию между атомными плоскостями (0001) ГПУ-кристалла Gd. Эффективное поле  $\mathbf{H}_i$ , действующее на атомы  $i$ -го слоя, складывается из внешнего поля  $\mathbf{H}$  и обменных «молекулярных» полей со стороны близлежащих атомов того же слоя ( $\gamma_{ii}\mathbf{m}_i$ ) и соседних слоев ( $\gamma_{ii\pm 1}\mathbf{m}_{i\pm 1}$ ):

$$\mathbf{H}_i = \mathbf{H} + \gamma_{ii}\mathbf{m}_i + \gamma_{ii-1}\mathbf{m}_{i-1} + \gamma_{ii+1}\mathbf{m}_{i+1}, \quad (1)$$

где  $\gamma_{ij}$  — константы среднего поля. Заметим, что в однородном случае  $\mathbf{m}_i = \mathbf{m}$ , и мы получаем обычное выражение для молекулярного поля Вейсса  $H + \gamma m$ , где  $\gamma = \gamma_{ii} + \gamma_{ii-1} + \gamma_{ii+1}$ .

Для характеристики распределения обменных взаимодействий между атомом Gd заданного слоя с атомами того же слоя и соседних слоев удобно ввести параметр  $\zeta = \gamma_{ii\pm 1}/\gamma$ , который можно рассматривать как отношение числа ближайших атомов в соседних слоях к их полному количеству. Так, например, для ГПУ-моноцистала гадолиния  $\zeta = 1/4$  [15], в случае же аморфной структуры этот параметр может несколько отличаться [10]. Принимая во внимание такое определение  $\zeta$ , выражение для эффективного поля внутри Gd можно переписать в виде

$$\mathbf{H}_i = \mathbf{H} + \gamma \mathbf{m}_i + \gamma \zeta a^2 \frac{\mathbf{m}_{i+1} - 2\mathbf{m}_i + \mathbf{m}_{i-1}}{a^2}. \quad (2)$$

Из такой записи видно, что первые два слагаемых представляют собой случай однородной намагниченности, а третье слагаемое определяет «градиентный» вклад в эффективное поле. Это слагаемое в континуальном пределе пропорционально второй производной намагниченности  $d^2\mathbf{m}/dz^2$  в направлении нормали к пленке  $z$  и, таким образом, дает связь констант среднего поля с обменной жесткостью материала  $D = \gamma \zeta a^2$ .

Необходимо также определить эффективные поля, действующие на границах раздела Fe-Gd. Поверхностная плотность энергии обменного АФМ-взаимодействия на интерфейсе Fe-Gd записывается в виде

$$E_{ex} = J \frac{\mathbf{m}_{Fe} \cdot \mathbf{m}_{Gd}}{m_{Fe} m_s}, \quad (3)$$

где  $J$  — обменная константа,  $\mathbf{m}_{Fe}$  и  $\mathbf{m}_{Gd}$  — векторы намагниченности Fe и приграничного слоя Gd,  $m_{Fe}$  и  $m_s$  — намагниченности насыщения Fe и Gd. Отсюда получаем эффективное поле, действующее со стороны слоя Fe на приграничный слой Gd,

$$\mathbf{H}_{Gd} = - \frac{J \mathbf{m}_{Fe}}{m_{Fe} m_s a},$$

и эффективное поле, действующее со стороны Gd на слой Fe,

$$\mathbf{H}_{Fe} = - \frac{J \mathbf{m}_{Gd}}{m_{Fe} m_s d_{Fe}}.$$

Равновесное направление намагниченности в каждом из атомных слоев Gd определяется условием

$$\mathbf{m}_i \parallel \mathbf{H}_i, \quad (4)$$

а абсолютная величина —

$$m_i = m_s B_j \left( \frac{\mu H_i}{k_B T} \right), \quad (5)$$

где  $B_j$  — функция Бриллюэна для полного момента  $j$ ,  $\mu$  — магнитный момент на атом Gd,  $k_B$  — константа Больцмана. Направление намагниченности слоев Fe может задаваться фиксированным (в случае «закрепленного» слоя), либо определяться из условия, аналогичного (4):  $\mathbf{m}_{Fe} \parallel (\mathbf{H} + \mathbf{H}_{Fe})$  (в случае «свободного» слоя). Результатирующее равновесное распределение величины и направления намагниченности по слоям структуры рассчитывается численно при заданных  $H$  и  $T$ .

Полученное распределение намагниченности позволяет вычислить полный магнитный момент  $\mathbf{M}$  и энтропию  $S$  единицы объема системы. Полная намагниченность системы, очевидно, определяется формулой

$$\mathbf{M} = \frac{d_{Fe} \left( \mathbf{m}_{Fe}^{(1)} + \mathbf{m}_{Fe}^{(2)} \right) + a \sum_i \mathbf{m}_i}{d + 2d_{Fe}} \quad (6)$$

(отсюда, в частности, можно определить компоненту намагниченности  $M$  вдоль магнитного поля). Для вычисления энтропии  $S$  учтем, что слои Fe не вносят вклада в  $S$ , а энтропия единицы объема  $i$ -го слоя Gd в модели среднего поля имеет вид [22, 23]

$$s_i =$$

$$= \frac{m_s}{\mu} k_B \left[ \ln \left( \frac{\operatorname{sh} \left( \frac{2j+1}{2j} \frac{\mu H_i}{k_B T} \right)}{\operatorname{sh} \left( \frac{1}{2j} \frac{\mu H_i}{k_B T} \right)} \right) - \frac{m_i}{m_s} \frac{\mu H_i}{k_B T} \right]. \quad (7)$$

Таким образом, средняя энтропия слоя Gd на единицу объема равна

$$s = \frac{a}{d} \sum_i s_i, \quad (8)$$

а полная энтропия всей системы Fe/Gd/Fe на единицу объема —

$$S = \frac{a}{d + 2d_{\text{Fe}}} \sum_i s_i. \quad (9)$$

На рис. 2 приведены примеры расчета кривых намагничивания и полевых зависимостей энтропии для системы Fe/Gd/Fe в случае, когда намагченность первого слоя Fe фиксирована в направлении, противоположном полю, а второй слой Fe свободен. В этой ситуации, благодаря взаимодействию через прослойку Gd, в нулевом поле оказывается выгодной параллельная ориентация магнитных моментов слоев Fe. Однако при приложении определенного магнитного поля происходит переориентация свободного слоя Fe, что приводит к антипараллельной ориентации слоев Fe. При этом существенно меняется форма профиля намагченности внутри прослойки Gd (см. ниже рис. 3). Для расчета использованы параметры, полученные в работе [10] для сверхрешетки [Fe(35 Å)/Gd(50 Å)]<sub>12</sub>:  $m_{\text{Fe}} = 1270$  Гс,  $m_s = 1150$  Гс,  $J = 40$  эрг/см<sup>2</sup>,  $j = 7/2$ ,  $\mu = 7\mu_B$ ,  $\gamma = 870$ ,  $\zeta = 0.33$ ,  $T_C = 200$  К; для обоих слоев железа  $d_{\text{Fe}} = 35$  Å. Расчеты проведены для случаев  $d = 30$  Å и  $d = 50$  Å при  $T = T_C = 200$  К и  $T = 210$  К.

Температурные зависимости изменения энтропии единицы объема прослойки при переключении взаимной ориентации намагченностей слоев Fe приведены в разд. 3.1 (см. ниже рис. 5). Интересно отметить, что в рассматриваемой задаче выполняется соотношение Максвелла  $(dS/dH)_T = (dM/dT)_H$ , на котором основаны многочисленные эксперименты по измерению магнитокалорического потенциала (см. рис. 2г). Этот факт не является тривиальным. Действительно, выполнение соотношения Максвелла для однородных материалов очевидно. В неоднородных системах, к которым принадлежит рассмотренная трехслойная структура, намагченность является функцией координат и поэтому не может непосредственно входить в соотношение Максвелла. Однако, как нами было показано, это соотношение выполняется для намагченности (6) и энтропии (9), относящихся ко всей системе.

### 3. ТЕОРИЯ ЛАНДАУ ДЛЯ ФАЗОВЫХ ПЕРЕХОДОВ ВТОРОГО РОДА

Ранее мы применяли теорию Ландау для фазовых переходов к плоскослоистой структуре

Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>/Ni<sub>x</sub>Cu<sub>100-x</sub>/Co<sub>40</sub>Fe<sub>40</sub>B<sub>20</sub> ( $x \approx 70$  ат. %) [9]. В настоящей работе мы проделаем расчеты для структуры Fe/Gd/Fe, а также получим значительно более простые приближенные решения с целью их сравнения с точными и использования такого подхода для описания гранулированной среды (см. разд. 3.2).

#### 3.1. Плоскослоистая структура

В рамках теории Ландау для фазовых переходов свободную энергию  $F$ , приходящуюся на единицу площади, можно записать в виде функционала [9]

$$F[m] = \int_{-d/2}^{d/2} \left( \frac{l_0^2}{2} \left( \frac{dm}{dz} \right)^2 + \frac{\alpha\tau}{2} m^2 + \frac{\beta}{4m_s^2} m^4 \right) dz + \\ + \frac{l_J}{2} (m - \sigma m_s)^2 \Big|_{z=-\frac{d}{2}} + \frac{l_J}{2} (m - m_s)^2 \Big|_{z=\frac{d}{2}}. \quad (10)$$

Здесь  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $l_0$  и  $l_J$  — феноменологические постоянные,  $\tau = (T - T_C)/T_C$ ,  $\sigma = 1$  при параллельной ориентации намагченностей слоев Fe ( $\uparrow\uparrow$ ),  $\sigma = -1$  — при антипараллельной ( $\uparrow\downarrow$ ). Последние два слагаемых в формуле (10) описывают обменное взаимодействие прослойки с ферромагнитными берегами (см. рис. 1). В силу малости внешнего магнитного поля мы пренебрегаем членом  $-\mathbf{H} \cdot \mathbf{m}$  под знаком интеграла в формуле (10). Уравнение, отвечающее экстремуму функционала (10), и граничные условия имеют вид

$$\frac{d^2m}{dz^2} - \frac{1}{l^2} m - \frac{\beta}{l_0^2 m_s^2} m^3 = 0, \quad (11)$$

$$\frac{dm}{dz} \Big|_{z=\frac{d}{2}} = - \frac{l_J}{l_0^2} (m - m_s) \Big|_{z=\frac{d}{2}}, \quad (12)$$

$$\frac{dm}{dz} \Big|_{z=-\frac{d}{2}} = \frac{l_J}{l_0^2} (m - \sigma m_s) \Big|_{z=-\frac{d}{2}}, \quad (13)$$

где введено обозначение  $l = l_0/\sqrt{\alpha\tau}$ . Уравнению (11) удовлетворяют эллиптические функции Якоби dn и sn. Эти функции хорошо изучены [24]. Будем искать решения в виде

$$m_{\uparrow\uparrow} = a_{\uparrow\uparrow} m_s \operatorname{dn} \left( c_{\uparrow\uparrow} \left( \frac{z + z_0^{\uparrow\uparrow}}{l_0} \right), k_{\uparrow\uparrow} \right), \quad (14)$$

$$m_{\uparrow\downarrow} = \frac{\sqrt{a_{\uparrow\downarrow}} m_s}{c_{\uparrow\downarrow}} \operatorname{sn} \left( c_{\uparrow\downarrow} \left( \frac{z + z_0^{\uparrow\downarrow}}{l_0} \right), k_{\uparrow\downarrow} \right). \quad (15)$$

Здесь  $a_{\uparrow\uparrow(\uparrow\downarrow)}$ ,  $c_{\uparrow\uparrow(\uparrow\downarrow)}$  и  $z_0^{\uparrow\uparrow(\uparrow\downarrow)}$  — постоянные,  $k_{\uparrow\uparrow}$  и  $k_{\uparrow\downarrow}$  — эллиптические модули. Поскольку

$$a_{\uparrow\uparrow}m_s = m_{\uparrow\uparrow}|_{z=0}, \quad a_{\uparrow\downarrow}m_s^2 = l_0^2 (dm/dz|_{z=0})^2,$$

константы  $a_{\uparrow\uparrow}$  и  $a_{\uparrow\downarrow}$  — действительные числа (если  $z_0^{\uparrow\uparrow(\uparrow\downarrow)} = 0$ ). После подстановки  $m_{\uparrow\uparrow}$  и  $m_{\uparrow\downarrow}$  в уравнение (11) мы можем выразить все неизвестные постоянные через  $a_{\uparrow\uparrow(\uparrow\downarrow)}$ . В итоге получаем

$$\begin{aligned} m_{\uparrow\uparrow} &= \\ &= a_{\uparrow\uparrow}m_s \operatorname{dn} \left( i a_{\uparrow\uparrow} \sqrt{\frac{\beta}{2}} \frac{z}{l_0}, \sqrt{2 \left( 1 + \frac{\alpha\tau}{\beta a_{\uparrow\uparrow}^2} \right)} \right), \end{aligned} \quad (16)$$

$$\begin{aligned} m_{\uparrow\downarrow} &= -i \left( \frac{2a_{\uparrow\downarrow}}{\beta} \right)^{1/4} \eta_{\pm} m_s \times \\ &\times \operatorname{sn} \left( i \left( \frac{\beta a_{\uparrow\downarrow}}{2} \right)^{1/4} \frac{z}{\eta_{\pm} l_0}, \sqrt{2\tau_0 \eta_{\pm}^2 - 1} \right), \end{aligned} \quad (17)$$

где  $i$  — мнимая единица и введены обозначения

$$\eta_{\pm} = (\tau_0 \pm (\tau_0^2 - 1)^{1/2})^{1/2}, \quad \tau_0 = \alpha\tau/(2\beta a_{\uparrow\downarrow})^{1/2}.$$

Здесь было учтено, что константы  $z_0^{\uparrow\uparrow(\uparrow\downarrow)}$  могут быть выбраны равными нулю. Постоянные  $a_{\uparrow\uparrow}$  и  $a_{\uparrow\downarrow}$  определяются численно из граничных условий. Чтобы установить, какую из констант  $\eta_{\pm}$  следует выбрать, рассмотрим предельный случай бесконечно толстой прослойки ( $a_{\uparrow\downarrow} \rightarrow 0$ ). В этом пределе, используя определение функции  $y = \operatorname{sn}(u, k)$  [25],

$$u = \int_0^y \frac{dx}{\sqrt{(1-x^2)(1-k^2x^2)}} \quad (18)$$

и формулы (15) и (17), для  $\eta_+$  получим

$$m = -\sqrt{\frac{2\alpha\tau}{\beta}} \frac{m_s}{\operatorname{sh} \left( \frac{\tilde{z} + \tilde{z}_0}{l} \right)}, \quad (19)$$

где  $\tilde{z} = z + d/2$ , а постоянная  $\tilde{z}_0 = z_0^{\uparrow\downarrow} - d/2 - -l \operatorname{cth}^{-1}(1)$  должна быть конечным положительным числом, определяемым из граничных условий. Формула (19) соответствует намагниченности прослойки, индуцированной только одним ферромагнитным слоем, находящимся при  $\tilde{z} < 0$ . Таким образом, намагниченность (17) с  $\eta_+$  дает правильное предельное выражение. Для дальнейших расчетов мы будем пользоваться формулой (17) с  $\eta_+$ . Заметим, что от намагниченности (16) можно так же прийти к пределу (19), но, конечно, с обратным знаком.

Получим теперь более простые, но приближенные решения уравнения (11). В случае параллельной ориентации намагниченностей боковых слоев представим намагниченность прослойки  $m_{\uparrow\uparrow}$  в виде

$$m_{\uparrow\uparrow}(z) = m_0 + \xi(z), \quad \xi(0) = 0, \quad \xi \ll m_0.$$

Здесь  $m_0$  — постоянная,  $\xi(z)$  — функция координаты  $z$ . В линейном приближении по  $\xi$  уравнение (11) примет вид

$$\frac{d^2\xi}{dz^2} - \kappa^2(\xi + \xi_0) = 0, \quad (20)$$

где

$$\kappa^2 = \frac{1}{l_0^2} \left( \alpha\tau + \frac{3\beta m_0^2}{m_s^2} \right), \quad \xi_0 = \frac{m_0(\alpha\tau m_s^2 + \beta m_0^2)}{\alpha\tau m_s^2 + 3\beta m_0^2}.$$

Решением этого уравнения является функция

$$\xi = \xi_0 (\operatorname{ch} \kappa z - 1). \quad (21)$$

Граничные условия (12), (13) позволяют численно определить  $m_0$ . Если намагниченности ферромагнитных берегов антипараллельны, то, считая  $\beta m_{\uparrow\downarrow}^2/\alpha\tau m_s^2 \ll 1$ , можно пренебречь нелинейным слагаемым в уравнении (11). С учетом граничных условий получим

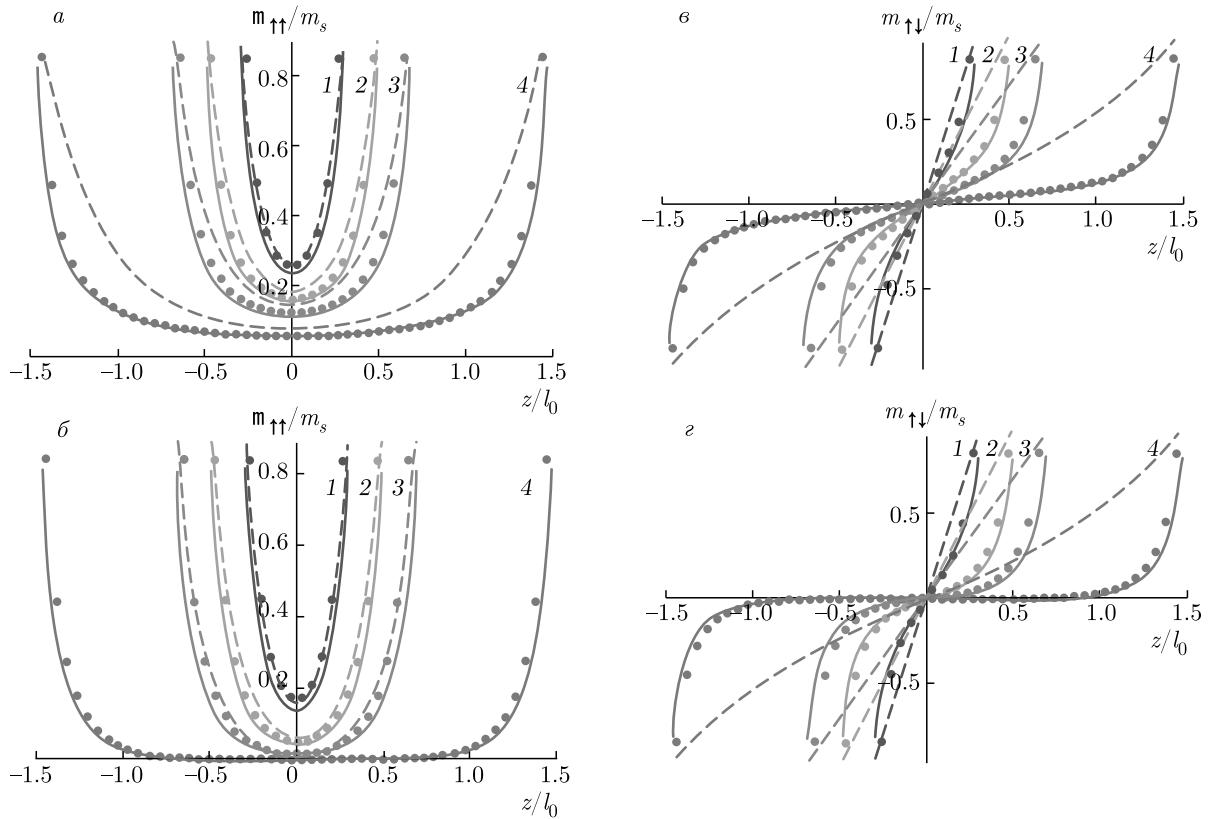
$$m_{\uparrow\downarrow} = \frac{l l_J m_s}{l_0^2 \operatorname{ch} \frac{d}{2l} + l l_J \operatorname{sh} \frac{d}{2l}} \operatorname{sh} \frac{z}{l}. \quad (22)$$

Приближенное решение (22) можно также получить из формулы (17), формально устремляя  $\beta$  к нулю. Для этого выразим  $\operatorname{sn}(u, k)$  через  $\operatorname{dn}(u, k)$  согласно формуле  $\operatorname{dn}^2(u, k) = 1 - k^2 \operatorname{sn}^2(u, k)$ . Далее, используя определение функции  $y = \operatorname{dn}(u, k)$  [25],

$$u = \int_1^y \frac{dx}{\sqrt{(1-x^2)(x^2 - 1 + k^2)}}, \quad (23)$$

придем к формуле (22). При этом  $z_0^{\uparrow\downarrow} = 0$ . Отметим еще, что приближенное и точное решения (21) и (16) имеют одинаковые разложения в степенные ряды (по крайней мере, до слагаемых второго порядка включительно).

Феноменологические постоянные  $\alpha$  и  $\beta$  были получены путем их выражения через параметры теории среднего поля. Для отдельной пленки Gd справедлива формула (5), где вместо  $m_i$  следует взять однородную намагниченность  $m$ . Раскладывая  $B_j(x)$  в ряд при  $x \ll 1$ , можно привести формулу (5) к уравнению  $\alpha\tau m + \beta m^3/m_s = 0$ , соответствующему в теории Ландау уравнению, которому



**Рис. 3.** (В цвете онлайн) Зависимости  $m_{\uparrow\uparrow}(z)$  при  $T = T_C$  (а),  $T - T_C = 10$  К (б) и  $m_{\uparrow\downarrow}(z)$  при  $T = T_C$  (в),  $T - T_C = 10$  К (г) для  $d = 3$  нм (кривые 1), 5 нм (2), 7 нм (3), 15 нм (4) в структуре Fe/Gd/Fe. Сплошными линиями изображены точные решения (16) и (17), штриховыми — приближенные решения (21) и (22), точками — расчеты по теории среднего поля

удовлетворяет намагниченность отдельной пленки магнетика в отсутствие внешнего поля. Тогда для постоянных  $\alpha$  и  $\beta$  получаются следующие формулы:

$$\alpha = \gamma = \frac{T_C}{c_C} \approx 870, \quad (24)$$

$$\beta = \frac{3}{10}\gamma \left(1 + \left(\frac{j}{j+1}\right)^2\right) \approx 420, \quad (25)$$

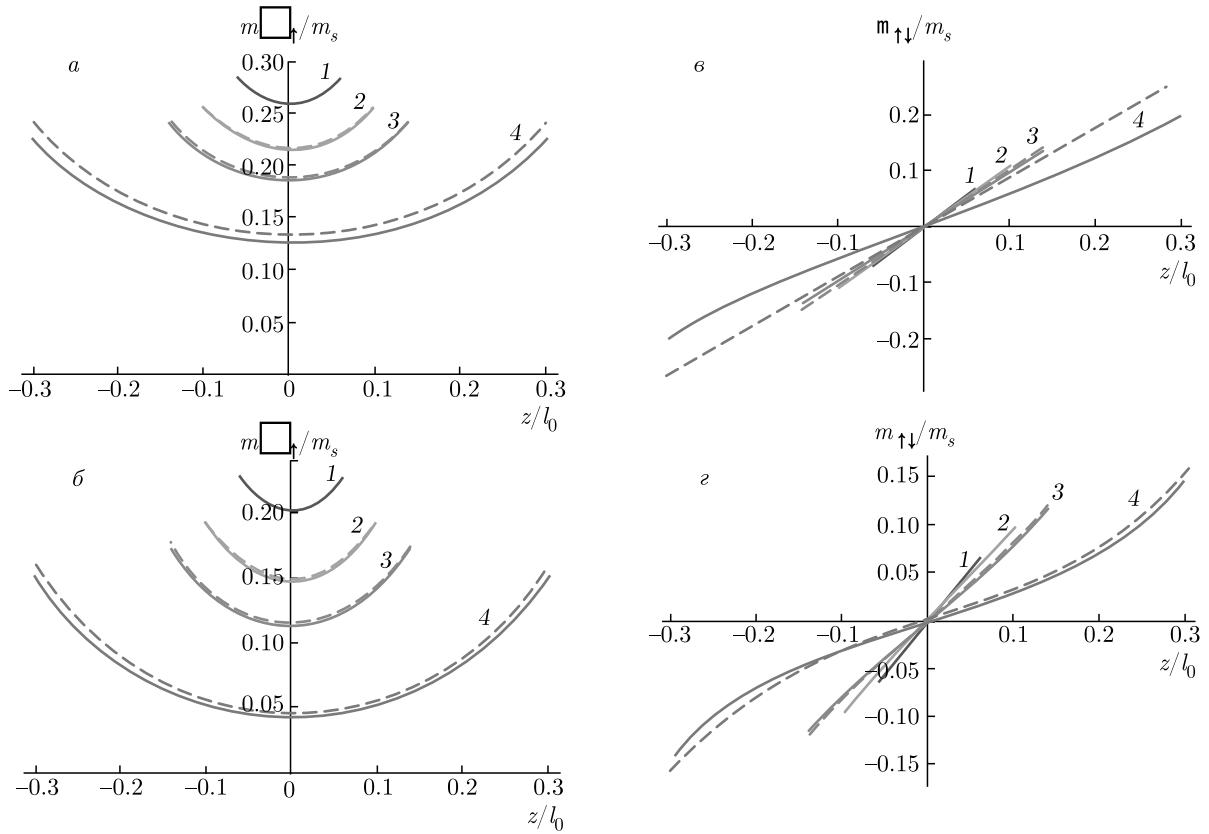
где  $c_C$  — постоянная Кюри. Постоянную  $l_0$  можно оценить как  $l_0 = (\gamma\zeta)^{1/2}a \approx 5.1$  нм. Постоянную  $l_J$ , характеризующую взаимодействие прослойки Gd со слоями Fe, мы оцениваем как  $l_J \sim J/m_s m_{\text{Fe}} \approx 280$  нм.

На рис. 3 представлены зависимости  $m_{\uparrow\uparrow}(z)$  и  $m_{\uparrow\downarrow}(z)$  для структуры Fe/Gd/Fe при различных толщинах прослойки и температурах. Как и следовало ожидать, между теориями существует достаточно хорошее согласие. Расхождения, однако, увеличиваются по мере возрастания намагниченности прослойки, поскольку начинает сказываться отсутствие отброшенных слагаемых более вы-

соких порядков в свободной энергии (10). Расчеты также показывают, что приближенные решения (21), (22) для многослойной структуры Fe/Gd/Fe дают довольно большую ошибку. Действительно, на рис. 3в видно, что зависимости  $m_{\uparrow\downarrow}(z)$  существенно нелинейны, в то время как приближенное решение (22) при  $T = T_C$  линейно по  $z$ . Увеличение корреляционной длины  $l_0$  приводит к лучшим результатам. Так, например, для многослойной структуры Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub>/Ni<sub>x</sub>Cu<sub>100-x</sub>/Co<sub>40</sub>Fe<sub>40</sub>B<sub>20</sub> ( $\alpha = 1300$ ,  $\beta = 750$ ,  $l_0 = 25$  нм,  $l_J = 30$  нм,  $m_s = 180$  эрг·Гс<sup>-1</sup>·см<sup>-3</sup>,  $T_C = 330$  К) [9] приближенные формулы правильно описывают распределение намагниченности (рис. 4).

Перейдем к вычислению энтропии в пересчете на единицу объема прослойки,  $s = -(\partial F/\partial T)/d$ . Безотносительно ориентации намагниченостей ферромагнитных берегов, справедлива формула

$$s = -\frac{\alpha}{2T_C} \frac{1}{d} \int_{-d/2}^{d/2} m^2 dz = -\frac{\alpha \overline{m^2}}{2T_C}, \quad (26)$$



**Рис. 4.** (В цвете онлайн) Зависимости  $m_{\uparrow\uparrow}(z)$  при  $T = T_C$  (а),  $T - T_C = 10$  К (б) и  $m_{\uparrow\downarrow}(z)$  при  $T = T_C$  (в),  $T - T_C = 10$  К (г) для  $d = 3$  нм (кривые 1), 5 нм (2), 7 нм (3), 15 нм (4) в структуре  $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}/\text{Ni}_x\text{Cu}_{100-x}/\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ . Сплошными линиями изображены точные решения (16) и (17), штриховыми — приближенные решения (21) и (22)

которую можно получить путем дифференцирования свободной энергии (10) с использованием формул (11)–(13). Здесь  $\overline{m^2}$  — средний квадрат намагниченности прослойки. Заметим, что формула (26) также может быть получена из связи энтропии  $s$ , внутренней  $U$  и свободной  $F$  энергий:  $F = U - Ts$ . Дальнейшие вычисления энтропии для случаев параллельной и антипараллельной ориентаций намагнитетостей ферромагнитных берегов приводят к следующим результатам:

$$s_{\uparrow\uparrow} = -\frac{\alpha l_0 a_{\uparrow\uparrow}^2 m_s^2}{T_C c_{\uparrow\uparrow} d} E \left( \operatorname{am} \left( \frac{c_{\uparrow\uparrow} d}{2l_0}, k_{\uparrow\uparrow} \right), k_{\uparrow\uparrow} \right), \quad (27)$$

$$s_{\uparrow\downarrow} = -\frac{\alpha a_{\uparrow\downarrow} m_s^2}{2T_C c_{\uparrow\downarrow}^2 k_{\uparrow\downarrow}^2} \times \\ \times \left( 1 - \frac{2l_0}{c_{\uparrow\downarrow} d} E \left( \operatorname{am} \left( \frac{c_{\uparrow\downarrow} d}{2l_0}, k_{\uparrow\downarrow} \right), k_{\uparrow\downarrow} \right) \right), \quad (28)$$

где  $E(u, k)$  и  $\operatorname{am}(u, k)$  — соответственно эллиптический интеграл второго рода и амплитуда эллиптического интеграла первого рода. В пределе большого

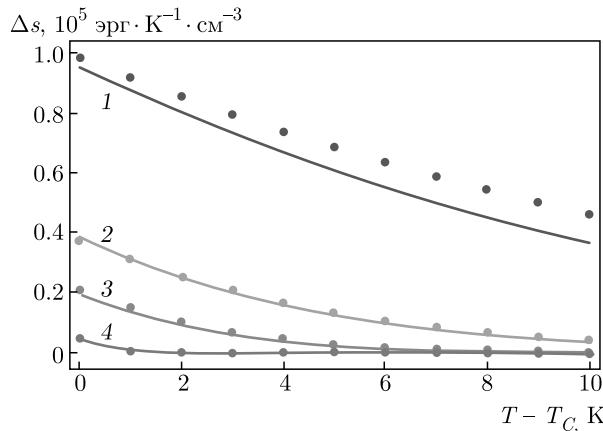
обмена ( $l_J \rightarrow \infty$ ) на границах прослойки из выражений (27) и (28) при  $T \sim T_C$  получаем

$$s_{\uparrow\uparrow} \approx -\frac{\alpha m_s^2}{2T_C}, \quad s_{\uparrow\downarrow} \approx 0. \quad (29)$$

Полученные формулы характеризуют максимально возможный магнитокалорический потенциал для данного материала прослойки — Gd:

$$\Delta s_{max} = \alpha m_s^2 / 2T_C \approx 3 \cdot 10^6 \text{ эрг} \cdot \text{К}^{-1} \cdot \text{см}^{-3}.$$

Заметим, что оценки  $\Delta s_{max}$  могут быть в значительной степени неточными, поскольку излагаемая теория плохо применима при больших величинах намагнитетости  $m$ . На рис. 5 сплошными линиями изображены зависимости магнитокалорического потенциала  $\Delta s(T) = s_{\uparrow\downarrow}(T) - s_{\uparrow\uparrow}(T)$  при различных толщинах прослойки, рассчитанные на основе формул (27) и (28) для Fe/Gd/Fe. Точками изображены соответствующие расчеты в рамках теории среднего поля на основе формулы (7). Можно видеть, что теории хорошо согласуются между собой.



**Рис. 5.** (В цвете онлайн) Зависимости  $\Delta s(T)$  для  $d = 3$  нм (кривые 1), 5 нм (2), 7 нм (3), 15 нм (4). Сплошными линиями изображены расчеты на основе теории Ландау, точками — на основе теории среднего поля. Приведенные зависимости соответствуют изменению магнитного поля, при котором осуществляется переключение взаимной ориентации намагниченностей ферромагнитных берегов ( $H \in (0, H_0)$ ,  $H_0 \approx 100$  Э)

Зная величину магнитокалорического потенциала, можно оценить адиабатическое изменение температуры  $\Delta T$  всей структуры при смене взаимной ориентации намагниченостей боковых слоев с параллельной до антипараллельной (см., например, работу [26]):

$$\Delta T = T_f - T = -\frac{Td}{(d + 2d_{Fe})c} \Delta s. \quad (30)$$

Здесь  $T_f$  — конечная температура,  $c$  — теплоемкость в пересчете на единицу объема системы, которая, вообще говоря, включает в себя вклады от решеточной и магнитной подсистем. Покажем, что вкладом магнитной подсистемы можно пренебречь, так что согласно закону Дюлонга–Пти  $c \approx \approx 1.2 \cdot 10^7$  эрг · К<sup>-1</sup> · см<sup>-3</sup>. Используя формулы (27) и (28), найдем магнитные вклады в теплоемкость при постоянном поле:

$$c_{\uparrow\uparrow(\uparrow\downarrow)} = T \left( \frac{\partial s_{\uparrow\uparrow(\uparrow\downarrow)}}{\partial T} \right)_H. \quad (31)$$

На рис. 6 изображены зависимости  $c_{\uparrow\uparrow(\uparrow\downarrow)}(T)$ , полученные численно для Fe/Gd/Fe. Можно видеть, что даже при  $T = T_C$  магнитные вклады в теплоемкость  $c_{\uparrow\uparrow(\uparrow\downarrow)}$  почти на порядок меньше вклада решеточной подсистемы. Приведем теперь оценки адиабатического изменения температуры для Fe/Gd/Fe (рис. 7). Мы не будем здесь уделять внимания тому факту, что в непосредственной окрестности точки перехода прослойка может перейти в ФМ-фазу

при изменении температуры вследствие приложения внешнего поля.

Таким образом, нам удалось получить профили намагниченности прослойки и магнитокалорические потенциалы в рамках двух подходов. Оба подхода хорошо согласуются между собой, несмотря на то, что при таких больших значениях намагниченности прослойки теорию Ландау, казалось бы, не следует использовать. Приведенные оценки изменения температуры системы при адиабатическом размагничивании в окрестности температуры Кюри для рассматриваемых толщин прослойки составляют 0.1–0.3 К. Это на порядок меньше  $\Delta T \approx 3$  К объемного Gd при его полном размагничивании, начиная с  $H = 1$  Тл [26]. Вместе с тем в случае структуры Fe/Gd/Fe переключение взаимной ориентации намагниченостей слоев Fe требует приложения магнитного поля величиной всего в несколько сотен эрстед (см. рис. 2), что дает выигрыши на 1–2 порядка по приложенному полю по сравнению с объемным Gd. Таким образом, эффективность магнитного охлаждения в рассматриваемой системе может существенно повыситься.

### 3.2. Гранулированная среда

Перейдем теперь к изучению магнитокалорических свойств среды, представляющей собой аморфную матрицу из «слабого» ферромагнетика, содержащую гранулы из «сильного» ферромагнетика (рис. 8). Последние представляют собой монокристаллы с одноосной магнитной анизотропией, характеризуемой постоянной  $K$ . Роль гранул состоит в намагничивании матрицы посредством обменного взаимодействия подобно тому, как ферромагнитные берега в плоскослоистой структуре намагничают прослойку при параллельной ориентации их намагниченностей. Магнитным состоянием системы также можно управлять внешним полем.

Будем считать, что все  $N$  гранул отличаются друг от друга только направлениями осей легкого намагничивания и имеют шарообразную форму с объемом  $V_g = (4/3)\pi R^3$ . Система помещена в однородное магнитное поле  $\mathbf{H}$ , направленное вдоль оси  $z$ . Тогда свободную энергию можно записать в виде

$$F[\mathbf{m}] = E_A + E_H + F_0[\mathbf{m}], \quad (32)$$

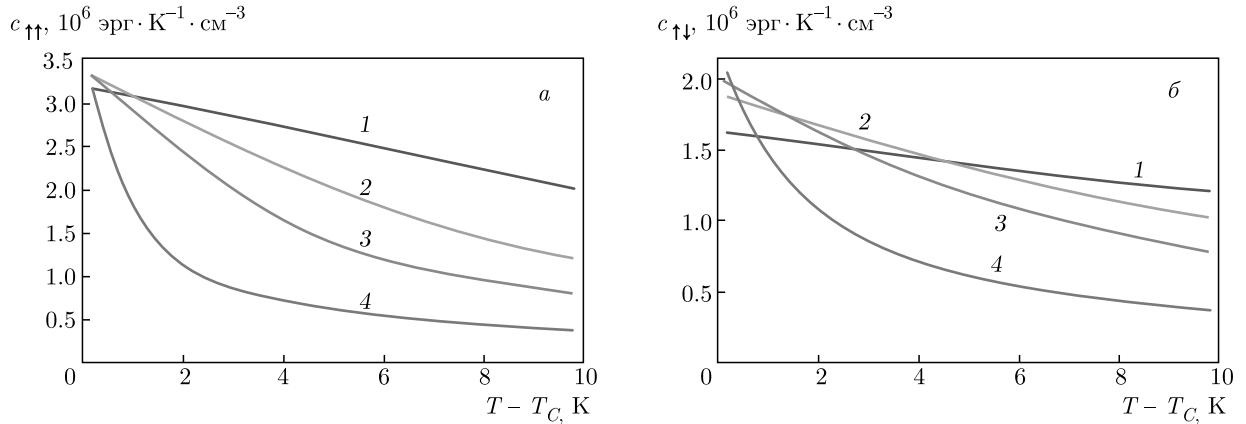
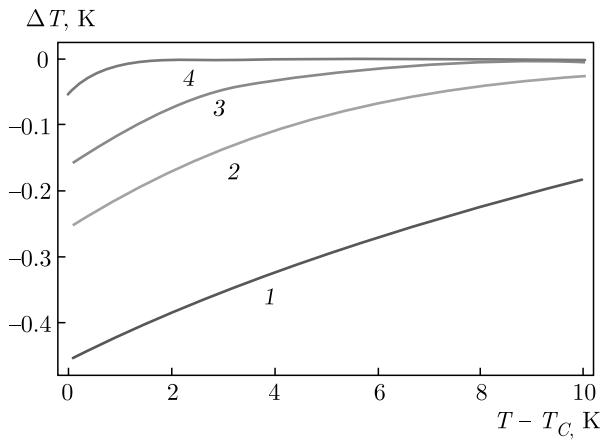
Рис. 6. Зависимости  $c_{\uparrow\uparrow(\uparrow\downarrow)}(T)$  при  $d = 3$  нм (1), 5 нм (2), 7 нм (3), 15 нм (4)

Рис. 7. Зависимости  $\Delta T(T)$  для  $d = 3$  нм (кривые 1), 5 нм (2), 7 нм (3), 15 нм (4). Приведенные зависимости соответствуют изменению магнитного поля, при котором осуществляется переключение взаимной ориентации намагниченностей ферромагнитных берегов ( $H \in (0, H_0)$ ,  $H_0 \approx 100$  Э)

$$F_0[\mathbf{m}] = \int \left( \frac{l_0^2}{2} \sum_{a=1}^3 \left( \frac{\partial \mathbf{m}}{\partial x_a} \right)^2 + \frac{\alpha\tau}{2} \mathbf{m}^2 + \frac{\beta}{4m_s^2} \mathbf{m}^4 \right) dV_m + \frac{l_J}{2} \sum_{i=1}^N \int (\mathbf{m} - \mathbf{m}_{si})^2 d\sigma_i, \quad (33)$$

$$E_A = -\frac{KV_g}{M^2} \sum_{i=1}^N (\mathbf{M}_i \cdot \mathbf{n}_i)^2, \quad (34)$$

$$E_H = -\mathbf{H} \cdot \sum_{i=1}^N \mathbf{M}_i, \quad (35)$$

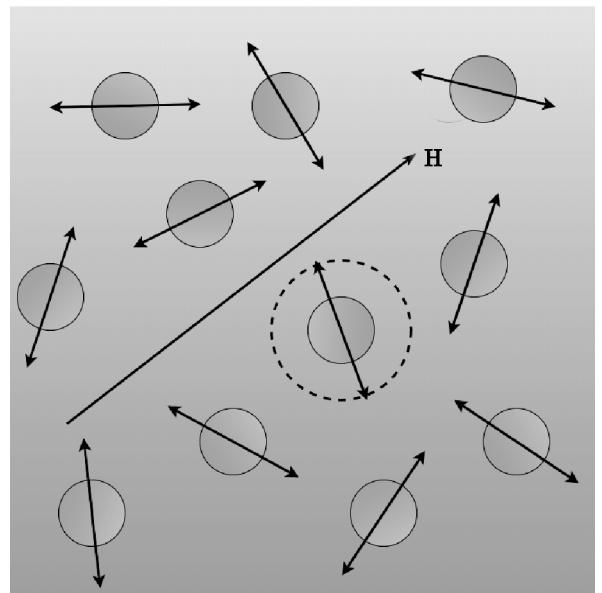


Рис. 8. Схематическое изображение гранул из «сильного» ферромагнетика, находящихся в матрице из «слабого» ферромагнетика. Двусторонними стрелками изображены оси легкого намагничивания. Штриховой окружностью изображена ячейка радиусом  $\lambda$ . Поле  $\mathbf{H}$  направлено вдоль оси  $z$

где  $E_A$  и  $E_H$  — соответственно энергия анизотропии и энергия Зеемана гранул;  $\sigma_i$ ,  $\mathbf{n}_i$  и  $\mathbf{M}_i$  ( $|\mathbf{M}_i| = M$ ) — соответственно площадь поверхности, единичный вектор, направленный вдоль оси легкого намагничивания, и намагниченность  $i$ -й гранулы. Постоянный вектор  $\mathbf{m}_{si}$  параллелен или антипараллелен вектору  $\mathbf{M}_i$  (в зависимости от знака обменного взаимодействия на границы гранулы),  $|\mathbf{m}_{si}| = m_s$ . Интегрирование в первом слагаемом формулы (33) ведется

по объему матрицы  $V_m$ . Мы снова пренебрегаем членом  $-\mathbf{H} \cdot \mathbf{m}$  под знаком интеграла первого слагаемого формулы (33). В рамках нашей модели слагаемые (34), (35) не зависят от температуры, поэтому не внесут вклада в энтропию и магнитокалорический потенциал системы. Уравнение, отвечающее экстремуму функционала (33), и граничное условие имеют вид

$$\Delta\mathbf{m} - \frac{1}{l^2}\mathbf{m} - \frac{\beta}{l_0^2 m_s^2} \mathbf{m}^3 = 0, \quad (36)$$

$$\sum_{i=1}^N \int \left( (\mathbf{e}_i \cdot \nabla) \mathbf{m} - \frac{l_J}{l_0^2} (\mathbf{m} - \mathbf{m}_{si}) \right) d\sigma_i = 0. \quad (37)$$

Здесь направление единичного вектора  $\mathbf{e}_i$  совпадает с направлением внешней нормали к поверхности  $i$ -й гранулы. Дальнейшее решение в общем виде затруднительно из-за отсутствия сферической симметрии и наличия сложного граничного условия (37), связывающего намагниченность матрицы на поверхностях всех гранул и векторы  $\mathbf{m}_{si}$ .

Чтобы продвинуться дальше, разделим объем системы на ячейки Вороного [27]. Они представляют собой многогранники, содержащие внутри себя одну гранулу. Все точки поверхностей этих многогранников ближе к своим внутренним гранулам, чем ко всем остальным. Будем считать, что намагниченность матрицы  $\mathbf{m}_i$  внутри  $i$ -й ячейки индуцируется в основном  $i$ -й гранулой, а на границах ячеек можно вводить граничные условия, которые будут описывать взаимодействие намагниченностей соседних ячеек. Это позволит из уравнения (37) получить отдельные для каждой ячейки граничные условия на поверхностях гранул. Однако этих упрощений недостаточно. Ячейки Вороного мы заменим на одинаковые сферы радиусом  $\lambda$ , равным половине среднего расстояния между центрами ближайших гранул (рис. 8). В силу возникшей сферической симметрии уравнение (36) и граничное условие (37) примут более простой вид:

$$\frac{d^2\mathbf{m}_i}{dR_i^2} + \frac{2}{R_i} \frac{d\mathbf{m}_i}{dR_i} - \frac{1}{l^2} \mathbf{m}_i - \frac{\beta}{l_0^2 m_s^2} \mathbf{m}_i^3 = 0, \quad (38)$$

$$\frac{d\mathbf{m}_i}{dR_i} \Big|_{R_i=R} = \frac{l_J}{l_0^2} (\mathbf{m}_i - \mathbf{m}_{si}) \Big|_{R_i=R}, \quad (39)$$

где введено обозначение  $R_i = |\mathbf{r} - \mathbf{r}_i|$ ,  $\mathbf{r}_i$  — радиус-вектор центра  $i$ -й гранулы. Условие на границе ячейки будет зависеть от взаимной ориентации намагниченостей гранул. Если приложить к системе магнитное поле  $H > K/M$ , величина которого порядка 10 Э [28], то намагниченности гранул будут

сонаправлены этому полю. Тогда можно ввести следующее условие на границе ячейки:

$$\frac{d\mathbf{m}_i^{\uparrow\uparrow}}{dR_i} \Big|_{R_i=\lambda} = 0. \quad (40)$$

Мы обозначили намагниченность  $i$ -й ячейки в этом случае как  $\mathbf{m}_i^{\uparrow\uparrow}$ . Если внешнее поле отсутствует, то в силу случайности направлений легких осей гранул намагниченность матрицы в среднем равна нулю. Тогда можно ввести следующее граничное условие для намагниченности  $\mathbf{m}_i^{\uparrow\uparrow}$  в  $i$ -й ячейке:

$$\mathbf{m}_i^{\uparrow\downarrow} \Big|_{R_i=\lambda} = 0. \quad (41)$$

Конечно, рассматривая систему обладает гистерезисом и при перемагничивании в состоянии с выключенным внешним полем может иметь ненулевую среднюю намагниченность. Вопрос о способах достижения полного размагничивания системы выходит за рамки данной статьи (см., например, работу [29]). Ясно, что «усредненные» граничные условия (40), (41) выполняются тем лучше, чем больше корреляционный радиус парамагнитной матрицы. Для решения уравнения (38) применим подход, описанный в разд. 3.1 для плоскослоистой структуры. Намагниченность  $\mathbf{m}_i^{\uparrow\uparrow}$  будем искать в виде

$$\mathbf{m}_i^{\uparrow\uparrow} = \mathbf{m}_{0i} + \boldsymbol{\xi}_i, \quad |\boldsymbol{\xi}_i| \ll m_s, \quad \boldsymbol{\xi}_i(\lambda) = 0.$$

Сохраняя только линейные слагаемые по  $\boldsymbol{\xi}_i$ , получим

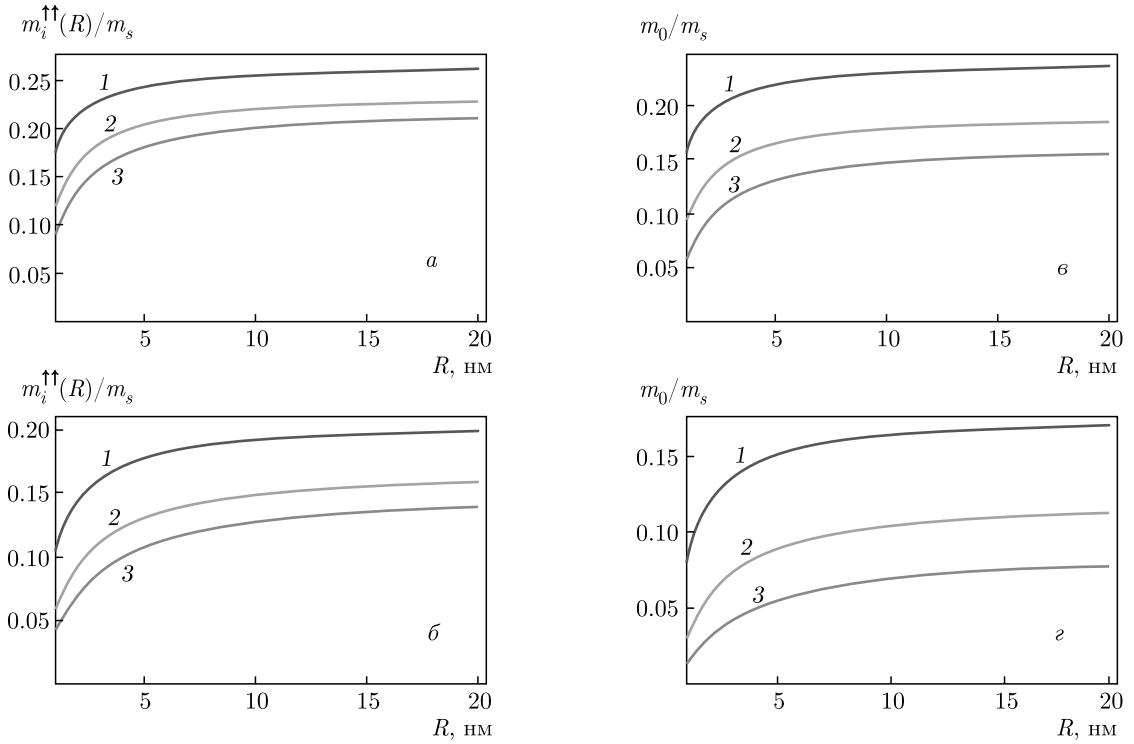
$$\frac{d^2\boldsymbol{\xi}_i}{dR_i^2} + \frac{2}{R_i} \frac{d\boldsymbol{\xi}_i}{dR_i} - \kappa^2 (\boldsymbol{\xi}_i + \boldsymbol{\xi}_{0i}) = 0, \quad (42)$$

где  $\boldsymbol{\xi}_{0i} = \mathbf{m}_{0i}(\alpha\tau m_s^2 + \beta m_0^2)/(\alpha\tau m_s^2 + 3\beta m_0^2)$ ,  $|\mathbf{m}_{0i}| = m_0$ . Решением линейного уравнения (42) с учетом граничного условия (40) является функция

$$\boldsymbol{\xi}_i = \boldsymbol{\xi}_{0i} \left( \frac{1}{\kappa R_i} (\kappa \lambda \operatorname{ch} \kappa(\lambda - R_i) - \operatorname{sh} \kappa(\lambda - R_i)) - 1 \right). \quad (43)$$

Постоянная  $\mathbf{m}_{0i}$  определяется численно из уравнения (39). Для нахождения намагниченности  $\mathbf{m}_i^{\uparrow\uparrow}$  пренебрежем нелинейным слагаемым в уравнении (38). Это можно сделать, если выполняется условие

$$\frac{\beta}{\alpha\tau} \left( \frac{\mathbf{m}_i^{\uparrow\uparrow}}{m_s} \right)^2 \ll 1. \quad (44)$$



**Рис. 9.** Зависимости  $m_i^{\uparrow\uparrow}(R)$  при  $T - T_C = 3$  К (а),  $T - T_C = 15$  К (δ) и  $m_0(R)$  при  $T - T_C = 3$  К (ε),  $T - T_C = 15$  К (ζ) для  $L = 3$  нм (1), 5 нм (2), 7 нм (3). Структура на основе  $\text{Ni}_x\text{Cu}_{100-x}/\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$

Тогда с учетом граничных условий получим

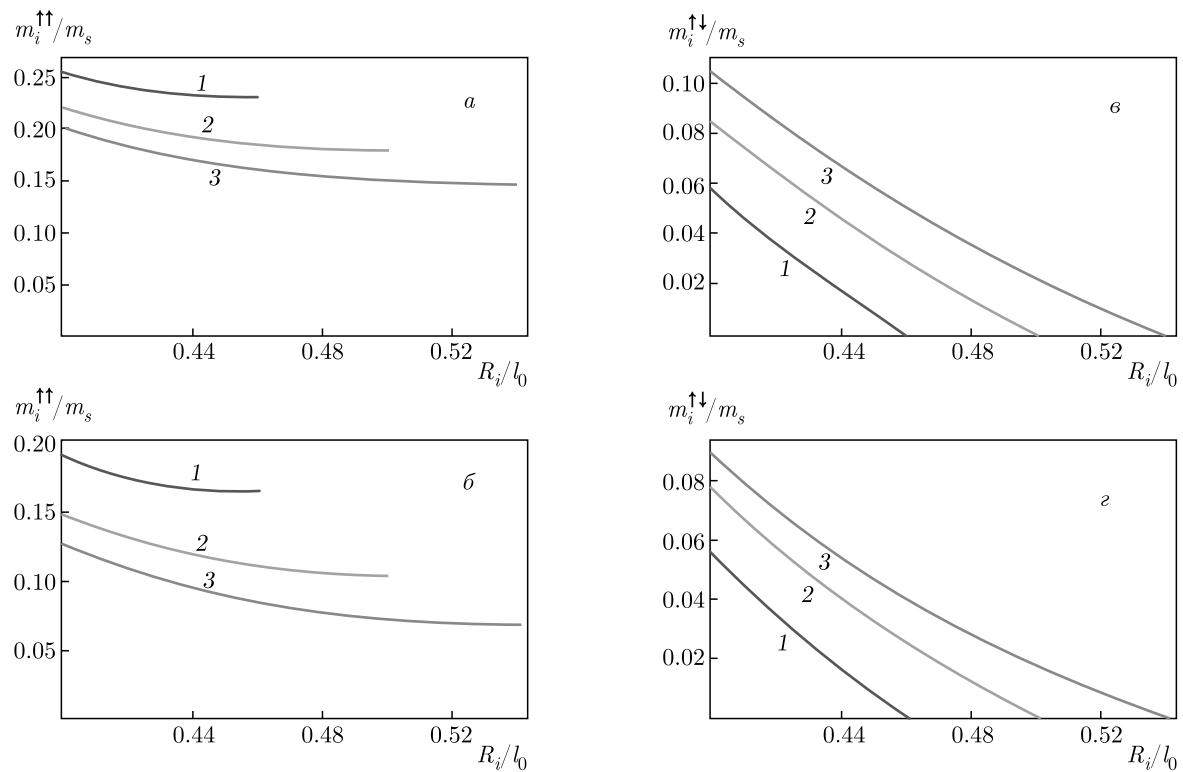
$$\mathbf{m}_i^{\uparrow\downarrow} = \frac{\mathbf{m}_{si} l_J R^2 \operatorname{sh} \frac{\lambda - R}{l}}{l_0^2 R_i \left( \left( 1 + \frac{l_J R}{l_0^2} \right) \operatorname{sh} \frac{\lambda - R}{l} + \frac{R}{l} \operatorname{ch} \frac{\lambda - R}{l} \right)}. \quad (45)$$

В этом разделе все дальнейшие расчеты будут сделаны для матрицы  $\text{Ni}_x\text{Cu}_{100-x}$  ( $x \approx 70$  ат. %) и гранул  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ . Для матрицы Gd и гранул Fe приведенные приближенные решения некорректны. Это связано с большой величиной взаимодействия на границе Fe и Gd, что приводит к нарушению условий применимости приближенных решений. Мы также будем считать, что все феноменологические параметры для плоскостистых структур совпадают с соответствующими параметрами гранулированных сред.

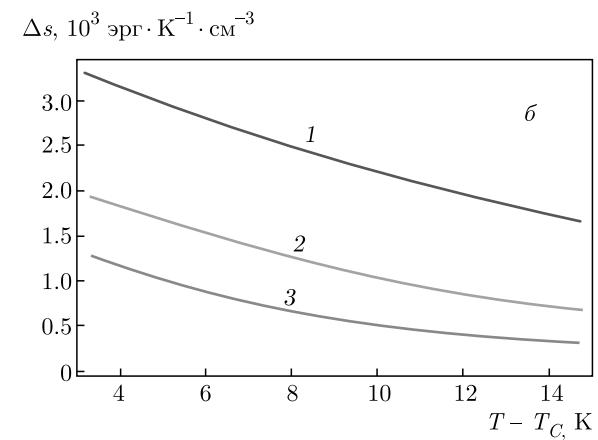
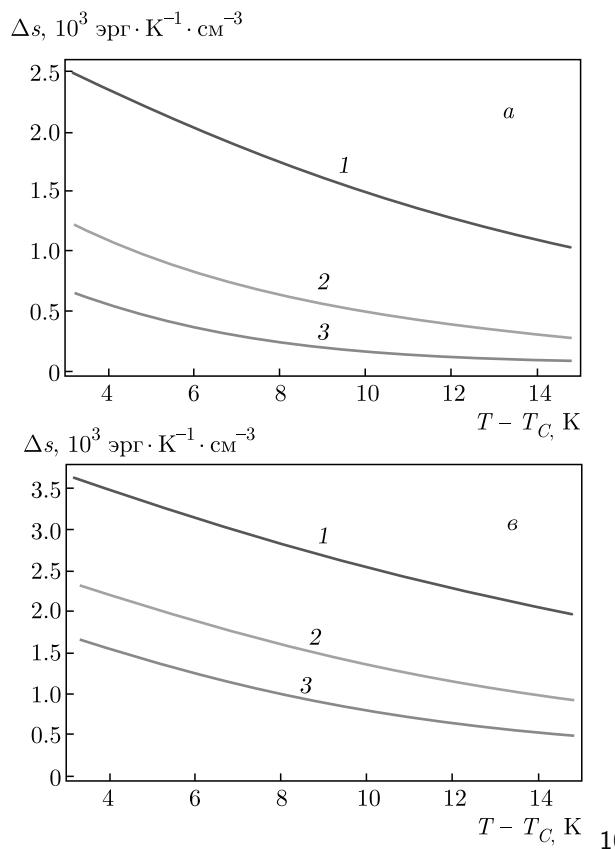
Рассмотрим вопрос о влиянии радиуса гранул на намагниченность в ячейке при условии постоянства среднего расстояния  $L$  между поверхностями соседних гранул,  $L = 2(\lambda - R)$ . Если радиус гранул мал, так что  $l_J R / l_0^2 \ll 1$ , то для любых  $L$  справедливо  $m_i^{\uparrow\downarrow}(R)/m_s \ll 1$ . В обратном слу-

чае,  $l_J R / l_0^2 \gg 1$ , возможны два варианта. Если  $l_0 \sqrt{\alpha \tau} \operatorname{cth}(L/2l) / l_J \ll 1$ , то  $m_i^{\uparrow\downarrow}(R) \approx m_s$ . Если, напротив,  $l_0 \sqrt{\alpha \tau} \operatorname{cth}(L/2l) / l_J \gg 1$ , то  $m_i^{\uparrow\downarrow}(R)/m_s \ll 1$ . Анализ величины  $m_i^{\uparrow\downarrow}$  несколько осложнен из-за необходимости прибегать к численным вычислениям постоянной  $m_0$ . Мы приводим зависимости  $m_i^{\uparrow\uparrow}(R)$  и  $m_0$  от радиуса  $R$  для различных температур и средних расстояний между поверхностями гранул (рис. 9). Мы видим, что увеличение размеров гранул с сохранением  $L$  приводит как к увеличению  $m_i^{\uparrow\uparrow}$ , так и к увеличению  $m_i^{\uparrow\downarrow}$  при некотором отношении других параметров. На данном этапе трудно сказать, какое это окажет влияние на магнитокалорический потенциал системы. Однако ясно, что увеличение размера гранул более 7–10 нм не имеет смысла.

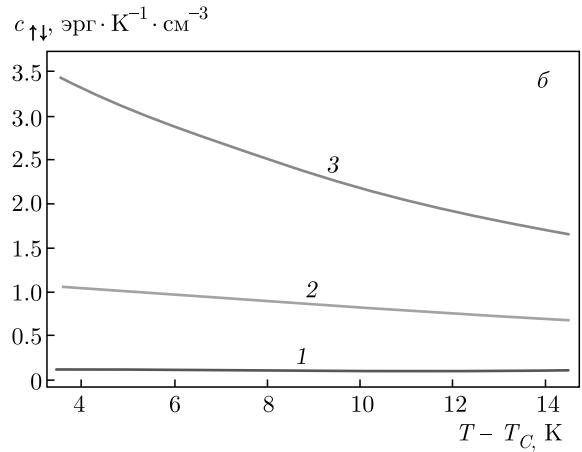
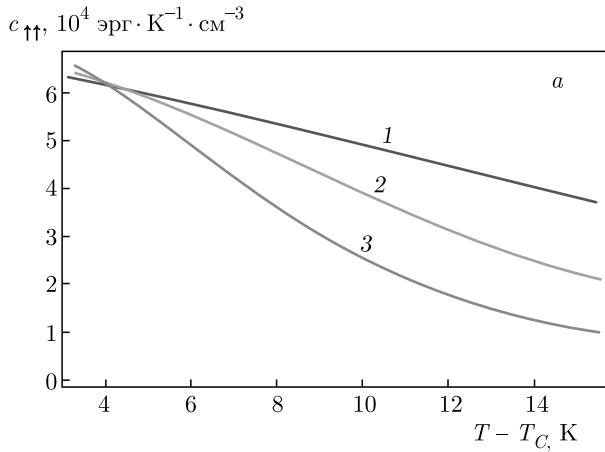
На рис. 10 изображены зависимости  $m_i^{\uparrow\uparrow}(R_i)$  и  $m_i^{\uparrow\downarrow}(R_i)$  при различных средних расстояниях между поверхностями ближайших гранул и при различных температурах. Радиус гранул  $R = 10$  нм. Зависимости магнитокалорического потенциала  $\Delta s(T)$  для гранулированной среды, полученные численно, изображены на рис. 11 для различных  $L$  и  $R$ . Увеличение радиуса гранул  $R$ , как можно видеть, приводит к увеличению  $\Delta s$ . Здесь мы ограничиваемся по-



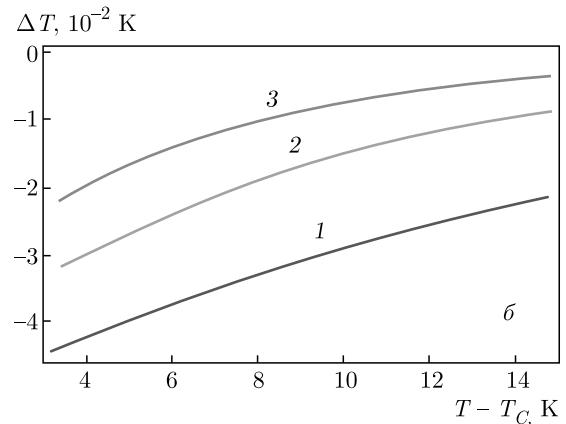
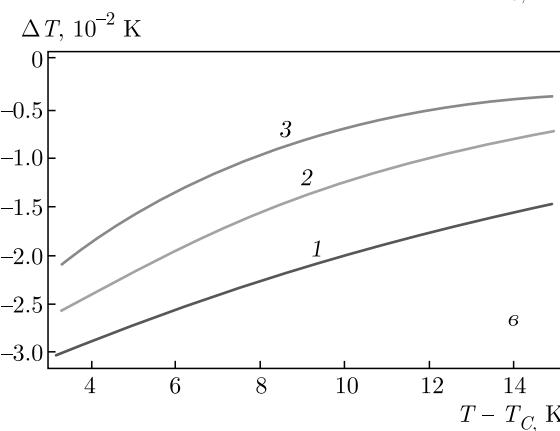
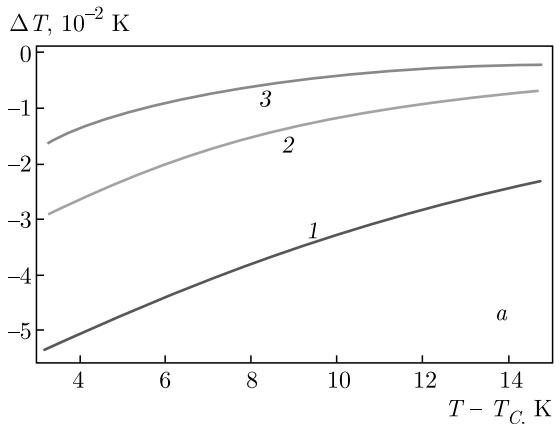
**Рис. 10.** Зависимости  $m_i^{\uparrow\uparrow}(R_i)$  при  $T - T_C = 3$  К (*а*),  $T - T_C = 15$  К (*б*) и  $m_i^{\uparrow\downarrow}(R_i)$  при  $T - T_C = 3$  К (*в*),  $T - T_C = 15$  К (*г*) для  $L = 3$  нм (1), 5 нм (2), 7 нм (3). Структура на основе  $\text{Ni}_x\text{Cu}_{100-x}/\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$



**Рис. 11.** Зависимости  $\Delta s(T)$  для  $L = 3$  нм (1), 5 нм (2), 7 нм (3) при  $R = 2$  нм (*а*), 5 нм (*б*), 10 нм (*г*). Структура на основе  $\text{Ni}_x\text{Cu}_{100-x}/\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ . Приведенные зависимости соответствуют изменению магнитного поля, при котором осуществляется перемагничивание системы ( $H \in (0, H_0)$ ,  $H_0 \approx 10$  Э [29])



**Рис. 12.** Зависимости  $c_{\uparrow\uparrow(\downarrow\downarrow)}(T)$  для  $L = 3$  нм (1), 5 нм (2), 7 нм (3) при  $R = 10$  нм. Структура на основе  $\text{Ni}_x\text{Cu}_{100-x}/\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$



**Рис. 13.** Зависимости  $\Delta T(T)$  для  $L = 3$  нм (1), 5 нм (2), 7 нм (3) при  $R = 2$  нм (а), 5 нм (б), 10 нм (в). Структура на основе  $\text{Ni}_x\text{Cu}_{100-x}/\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ . Приведенные зависимости соответствуют изменению магнитного поля, при котором осуществляется перемагничивание системы ( $H \in (0, H_0)$ ,  $H_0 \approx 10$  Э [29])

строением решения вне окрестности точки перехода, там, где можно применять приближенные формулы (43) и (45), на которых основаны вычисления  $\Delta s$ .

Приведем теперь расчеты вкладов в теплоемкость от магнитной подсистемы в пересчете на единицу объема матрицы (рис. 12). В отсутствие внешнего поля теплоемкость оказывается на четыре порядка меньше, чем в состоянии параллельной ориентации намагниченности всех гранул. Это мож-

но объяснить значительно меньшей температурной чувствительностью намагниченности ячейки в отсутствие поля. Мы снова видим, что магнитным вкладом в теплоемкость можно пренебречь. Тогда адиабатическое изменение температуры системы примет вид

$$\Delta T = T_f - T = -\frac{T(\lambda^3 - R^3)}{\lambda^3 c} \Delta s. \quad (46)$$

На рис. 13 изображены зависимости  $\Delta T(T)$  при различных  $L$  и  $R$ . При достаточно высокой плотности гранул ( $L = 3\text{--}5$  нм) наблюдается увеличение  $\Delta T$  с уменьшением  $R$ , несмотря на увеличение  $\Delta s$ . Приведенные оценки  $\Delta T$  достаточно малы, что связано со сравнительно небольшой величиной взаимодействия  $l_J$ .

Таким образом, развитый в разд. 3.1 приближенный подход был обобщен на гранулированную среду. Полученные для гранулированной среды магнитокалорические потенциалы сравнимы с соответствующими потенциалами трехслойной структуры [9].

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На основе теории Ландау и теории среднего поля нами было показано, что магнитокалорический потенциал в плоскослоистой структуре Fe/Gd/Fe может достигать достаточно больших значений. Так, например,  $\Delta s \approx 10^5$  эрг  $\cdot$  К $^{-1}$   $\cdot$  см $^{-3}$  для тонкой прослойки толщиной 3 нм при критической температуре, что в три раза меньше магнитокалорического потенциала объемного Gd, соответствующего полному размагничиванию (начиная с  $H = 1$  Тл) при  $T \sim T_C$  [26]. Оценки адиабатического изменения температуры на порядок меньше результата для объемного Gd при тех же условиях. Однако чтобы переключить взаимную ориентацию намагниченностей ферромагнитных берегов, необходимо приложить поле величиной всего в несколько сотен эрстед, что дает выигрыши на 1–2 порядка по приложенному полю. Обе приведенные теории хорошо согласуются между собой. Теория Ландау имеет ограничения (например, должно быть  $\tau \ll 1$ ), но позволяет получить аналитические формулы. Нами также были получены оценки  $\Delta s$  для гранулированной среды (гранулы Co<sub>40</sub>Fe<sub>40</sub>B<sub>20</sub>, матрица Ni<sub>x</sub>Cu<sub>100-x</sub>,  $x \approx 70$  ат. %). Эти оценки оказались близки к магнитокалорическому потенциалу аналогичной плоскослоистой системы [9].

Заметим, что гранулированная структура имеет ряд преимуществ по отношению к плоскослоистой. Во-первых, ей легче придать макроскопический объем, что необходимо для использования в холодильных устройствах. Во-вторых, в реальных экспериментах кроме самой прослойки и двух соседних с ней ферромагнитных слоев присутствуют и другие слои, а также подложка. Все эти элементы являются «лишними» в смысле уменьшения магнитокалорического потенциала в пересчете на объем всей системы. Для усиления магнитокалорического

эффекта в обменно-связанных магнитных системах необходим поиск пар материалов с еще большей величиной обменного взаимодействия на границе раздела. Сам твердотельный хладагент должен обладать, с одной стороны, значительным внутренним обменным взаимодействием, с другой, — большой намагниченностью насыщения.

**Финансирование.** Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 20-02-00356), а также с использованием средств государственного бюджета по государственному заданию на 2019–2021 гг. (№ 0035-2019-0022-С-01). Расчеты магнитокалорического эффекта по методу среднего поля выполнены в рамках Программы фундаментальных исследований Президиума РАН «Актуальные проблемы физики низких температур».

#### ЛИТЕРАТУРА

1. P. Weiss and A. Piccard, *J. Phys. Theor. Appl.* **7**, 103 (1917).
2. A. M. Tishin and Y. I. Spichkin, *The Magnetocaloric Effect and its Application*, Bristol and Philadelphia, USA (2003).
3. V. K. Pecharsky and K. A. Gschneidner, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 4494 (1997).
4. А. А. Фраерман, И. А. Шерешевский, Письма в ЖЭТФ **101**, 693 (2015).
5. D. Schwenk, F. Fishman, and F. Schwabl, *Phys. Rev. B* **38**, 11618 (1988).
6. S. N. Vdovichev, N. I. Polushkin, I. D. Rodionov et al., *Phys. Rev. B* **98**, 014428 (2018).
7. D. M. Polischuk, Yu. O. Tykhonenko-Polischuk, E. Holmgren et al., *Phys. Rev. Mater.* **2**, 114402 (2018).
8. N. I. Polushkin, I. Y. Pashenkin, E. Fadeev et al., *J. Magn. Magn. Mater.* **491**, 165601 (2019).
9. M. A. Kuznetsov, I. Y. Pashenkin, N. I. Polushkin et al., *J. Appl. Phys.* **127**, 183904 (2020).
10. A. B. Drovosekov, N. M. Kreines, A. O. Savitsky et al., *J. Phys.: Condens. Matter* **29**, 115802 (2017).
11. R. E. Camley, *Phys. Rev. B* **35**, 3608 (1987).
12. R. E. Camley and D. R. Tilley, *Phys. Rev. B* **37**, 3413 (1988).

13. R. E. Camley, Phys. Rev. B **39**, 12316 (1989).
14. M. Sajieddine, P. Bauer, K. Cherifi et al., Phys. Rev. B **49**, 8815 (1994).
15. N. Hosoi, H. Hashizume, and N. Ishimatsu, J. Phys.: Condens. Matter **14**, 5289 (2002).
16. P. N. Lapa, J. Ding, J. E. Pearson et al., Phys. Rev. B **96**, 024418 (2017).
17. T. D. C. Higgs, S. Bonetti, H. Ohldag et al., Sci. Rep. **6**, 30092 (2016).
18. R. E. Camley, *Handbook of Surface Science*, North-Holland, Amsterdam (2015), Vol. 5, Ch. 6, pp. 243–295.
19. А. Б. Дровосеков, Д. И. Холин, Н. М. Крейнес, ЖЭТФ **158**, 151 (2020).
20. Y. Choi, D. Haskel, R. E. Camley et al., Phys. Rev. B **70**, 134420 (2004).
21. A. B. Drovosekov, A. O. Savitsky, D. I. Kholin et al., J. Magn. Magn. Mater. **475**, 668 (2019).
22. Д. Смарт, *Эффективное поле в теории магнетизма*, Мир, Москва (1968), с. 17.
23. J. A. Tusynski and W. Wierzbicki, Amer. J. Phys. **59**, 555 (1991).
24. Н. И. Ахиезер, *Элементы теории эллиптических функций*, Наука, Москва (1970), с. 91.
25. А. М. Журавский, *Справочник по эллиптическим функциям*, Изд-во АН СССР, Москва–Ленинград (1941), сс. 69, 72.
26. A. Smith, C. R. H. Bahl, R. Bjørk et al., Adv. Energy Mater. **2**, 1288 (2012).
27. V. S. Kumar and V. Kumaran, J. Chem. Phys. **123**, 114501 (2005).
28. F. Yildiz, S. Kazan, B. Aktas et al., J. Magn. Magn. Mater. **305**, 24 (2006).
29. P. Allia, M. Coisson, M. Knobel et al., Phys. Rev. B **60**, 12207 (1999).