01,05,13

Магнитные и магнитокалорические свойства многослойных ферримагнитных пленок Gd/Co

© А.В. Свалов, А.В. Архипов, А.С. Русалина, А.Н. Горьковенко, Г.В. Курляндская

Институт естественных наук и математики, Уральский федеральный университет им. Б.Н. Ельцина, Екатеринбург, Россия

E-mail: andrey.svalov@urfu.ru

Поступила в Редакцию 6 марта 2025 г. В окончательной редакции 6 марта 2025 г. Принята к публикации 5 мая 2025 г.

> Представлены результаты исследования магнитных и магнитокалорических свойств многослойных ферримагнитных пленок Gd/Co в интервале температур, включающем температуру магнитной компенсации $T_{\rm comp}$. Сильное магнитное поле сдвигает величину $T_{\rm comp}$ в область более высоких температур, что связано с возникновением вблизи $T_{\rm comp}$ неколлинеарной магнитной структуры. Установлено, что при переходе через температуру компенсации изменяется знак магнитокалорического эффекта. Увеличение амплитуды внешнего магнитного поля подавляет смену знака магнитокалорического эффекта.

> Ключевые слова: многослойные магнитные пленки, ферримагнетики, магнитокалорический эффект, неколлинеарные магнитные структуры.

DOI: 10.61011/FTT.2025.06.60957.16HH-25

1. Введение

Изучение магнитокалорических материалов в тонкопленочном состоянии началось примерно 30 лет назад [1]. Интерес к данным исследованиям обусловлен как возможностью проследить влияние размерного фактора на особенности магнитокалорического эффекта (МКЭ), так и предполагаемыми разработками низкоразмерных устройств магнитного охлаждения [2,3]. Большинство опубликованных работ посвящено пленкам тяжелых редкоземельных элементов (Gd, Tb, Dy, Ho) [4-12] и их ферримагнитным сплавам с Со [13-16]. Кроме того, на примере многослойных структур типа Gd/SFM, где SFM — слои ферромагнитного материала с высокой температурой Кюри, было показано, что за счет межслойного обменного взаимодействия эффективность магнитного охлаждения в таких системах может существенно превосходить значения, характерные для однородных магнетиков [17-20]. Известно также, что в ферримагнетиках вблизи состояния магнитной компенсации наблюдается смена знака МКЭ [21,22]. В настоящей работе приведены результаты исследований магнитных и магнитокалорических свойств многослойных ферримагнитных пленок Gd/Co в области температур, включающей температуру магнитной компенсации.

2. Методика исследований

Многослойные пленки [Gd/Co]₆ были осаждены на стеклянные подложки методом магнетронного распыления соответствующих мишеней в атмосфере аргона. Толщина всех слоев была 7 nm. Для предотвращения окисления многослойные пленки Gd/Co были защище-

ны буферным и покрывающим слоями W толщиной 5 nm. Осаждение пленок происходило в присутствии постоянного магнитного поля напряженностью 0.02 T, ориентированного в плоскости подложки. Данные о микроструктуре образцов были получены методом рентгеновской дифракции (дифрактометр PHILIPS X'PERT PRO, излучение CuK_{α}). Для определения качества и реальной толщины слоев были проведены измерения рентгеновской рефлектометрии (XRR) с помощью автоматического дифрактометра Rigaku Smartlab. Магнитные измерения проводились на измерительном комплексе PPMS DynaCool 9T.

Полученные результаты и обсуждение

На дифрактограммах присутствуют два ярких пика (рис. 1, а). Один из них был идентифицирован как соответствующий линии (002) ГПУ решетки Co (hcp (002)), а второй пик может быть суперпозицией двух пиков, один из которых соответствует линии (100) ГПУ решетки Со (hcp (100)), а второй — линии (110) ОЦК решетки W (bbc (110)). Определенный с помощью формулы Шеррера по параметрам пика Со (hcp (002) средний размер кристаллитов составил 5 nm для слоев Со. Отсутствие на дифрактограмме других линий свидетельствует о том, что слои Gd находятся в рентгеноаморфном состоянии, т.е. средний размер кристаллитов Gd не превышает 2 nm. Экспериментальную рефлектограмму пленки W(5 nm)/[Gd(7 nm)/Co(7 nm)]₆/W(5 nm) удалось удовлетворительно описать, используя номинальные толщины слоев (рис. 1, b). При этом среднеквадратичная шероховатость межслойных границ Gd/Co составила 1 nm.



Рис. 1. Дифрактограмма (a) и рефлектограмма (символы) и результат расчета (сплошная линия) (b) для пленки W(5 nm)/[Gd(7 nm)/Co(7 nm)]₆/W(5 nm).

Полевые зависимости намагниченности M(H), измеренные в различных направлениях в плоскости образца, показали, что в пленках сформировалась наведенная магнитная анизотропия, ориентация оси легкого намагничивания (ОЛН) которой совпадает с ориентацией магнитного поля, присутствовавшего в плоскости подложки в процессе напыления пленочных структур. Все последующие измерения, описанные в работе, проводились при ориентации магнитного поля вдоль ОЛН.

Температурная зависимость намагниченности M(T) пленки [Gd/Co]₆ имеет характерный для ферримагнетиков минимум вблизи температуры компенсации $T_{\rm comp} \approx 165 \,\mathrm{K}$ (рис. 2).

При $\mu_0 H = 0.02 \,\mathrm{T}$ величина намагниченности практически обращается в ноль при $T = T_{\text{comp}}$. Это можно рассматривать как косвенное подтверждение химической и структурной однородности слоев пленки [Gd/Co]₆ [23]. Зависимости M(T), измеренные при других значениях поля, показывают, что увеличение поля измерения приводит к размытию минимума, а намагниченность не достигает нуля, что является признаком нарушения антипараллельного упорядочения магнитных моментов слоев Gd и Co и возникновения неколлинеарной магнитной структуры в сильном магнитном поле [24,25]. Определенным подтверждением возникновения такой магнитной структуры при увеличении поля выше некоторого критического H_{cr} являются характерные изломы на кривых намагничивания (рис. 3). Видно, что при приближении к T_{comp} величина H_{cr} ожидаемо уменьшается.

Изменение магнитной части энтропии ΔS_M было определено по данным измерений магнитных изотерм на основе соотношения Максвелла:

$$\Delta S_M = -\int\limits_{H_2}^{H_1} \left(\frac{\partial M}{\partial T}\right) dH,\tag{1}$$

где H — магнитное поле, M — намагниченность, T — температура. Магнитные изотермы были измерены с шагом по температуре 5 К при изменении магнитного поля до 7 Т. Температурные зависимости $-\Delta S_M(T)$ для различных величин амплитуды изменения поля представлены на рис. 4.

При $\mu_0 H < 5$ Т при переходе через T_{comp} изменяется знак $\Delta S_M(T)$ на зависимости $-\Delta S_M(T)$. Как было отмечено выше, пленки [Gd/Co]₆ являются искусственным ферримагнетиком, и поведение $-\Delta S_M(T)$ можно описать



Рис. 2. Температурная зависимость намагниченности пленки [Gd/Co]₆, измеренная при различных значениях внешнего магнитного поля.



Рис. 3. Кривые намагничивания пленки [Gd/Co]₆, измеренные при разных температурах.



Рис. 4. Температурные зависимости изменения магнитной части энтропии пленки [Gd/Co]₆ для разной амплитуды внешнего магнитного поля.

по аналогии с объемным ферримагнетиком [26]. При T < T_{сотр} магнитный момент подсистемы слоев Gd сонаправлен с внешним магнитным полем, поэтому в слоях Gd происходит парапроцесс "ферромагнитного" типа, и поле уменьшает магнитную часть энтропии, тогда как при $T > T_{comp}$, где магнитные моменты слоев Gd и внешнее магнитное поле антипараллельны, возникает парапроцесс "антиферромагнитного" типа, внешнее поле разрушает магнитный порядок в слоях Gd и увеличивает магнитную часть энтропии. Аналогичная ситуация происходить с магнитной подсистемой слоев Со, только в обратном порядке относительно Т_{сотр}. Однако в рассматриваемом температурном интервале подсистема слоев Gd имеет более выраженную температурную зависимость намагниченности и находится в более разупорядоченном состоянии, чем слои Со, поэтому при воздействии внешнего поля в ней возникает большой парапроцесс, а, следовательно, и большой МКЭ, превосходящий МКЭ, связанный с магнитной системой слоев Со. Следовательно, смена знака на зависимости $-\Delta S_M(T)$ вблизи $T_{\rm comp}$ обусловлена сменой знака МКЭ подсистемы слоев Gd.

В объемных ферримагнетиках и пленках сплавов P3-ПМ (редкая земля-переходный металл) смена знака МКЭ происходит практически при $T = T_{comp}$ [15,26]. В нашем случае, $T_{comp} \approx 165$ К, если определять T_{comp} как температуру минимума на зависимости M(T) при $\mu_0 H = 0.02$ Т (рис. 2). Однако смена знака МКЭ происходит при более высоких температурах, причем величина температуры смены знака увеличивается с ростом H (см. рис. 4). Это связано с тем, что возникновение вблизи T_{comp} неколлинеарной магнитной структуры в сильном магнитном поле сдвигает величину T_{comp} в область более высоких температур (рис. 2). При $\mu_0 H \approx 5$ Т и выше эволюция неколлинеарной фазы при переходе через $T_{\rm comp}$ происходит, видимо, таким образом, что подавляющая часть полевой компоненты намагниченности слоев Gd сонаправлена с внешним полем. Это приводит к почти полному исчезновению минимума на зависимостях M(T), а форма зависимости $-\Delta S_M(T)$ становится похожей на зависимость для ферромагнетиков вблизи температуры Кюри (рис. 2 и 4).

4. Заключение

В ферримагнитных пленках Gd/Co наблюдается смена знака магнитокалорического эффекта при переходе через температуру компенсации. Поведение МКЭ в области $T_{\rm comp}$ определяется в основном магнитным моментом подсистемы слоев Gd, подобно кристаллическим ферримагнетикам и аморфным ферримагнитным пленкам P3–ПМ, содержащим магнитную подсистему Gd. Основной причиной, определяющей характер температурной зависимости изменения магнитной части энтропии для многослойных пленок Gd/Co, является возникновение неколлинеарной магнитной фазы вблизи $T_{\rm comp}$ под влиянием внешнего магнитного поля.

Финансирование работы

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 24-29-00199, https://rscf.ru/project/24-29-00199/.

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- D.T. Morelli, A.M. Mance, J.V. Mantese, A.L. Micheli. J. Appl. Phys. 79, 373 (1996).
- [2] V.V. Khovaylo, V.V. Rodionova, S.N. Shevyrtalov, V. Novosad. Phys. Status Solidi B 251, 2104 (2014).
- [3] W. He, Y. Yin, Q. Gong, R.F.L. Evans, O. Gutfleisch, B.-X. Xu, M. Yi, W. Guo. Small 19, 2300333 (2023).
- [4] V.D. Mello, A.L. Dantas, A.S. Carriço. Solid State Commun. 140, 447 (2006).
- [5] C.W. Miller, D.V. Williams, N.S. Bingham, H. Srikanth. J. Appl. Phys. 107, 09A903 (2010).
- [6] A.V. Svalov, V.O. Vas'kovskiy, J.M. Barandiarán, K.G. Balymov, I. Orue, G.V. Kurlyandskaya. Phys. Status Solidi A 208, 2273 (2011).
- [7] A.V. Svalov, V.V. Vas'kovskiy, K.G. Balymov, J. Alonso, M.L. Fdez-Gubieda, G.V. Kurlyandskaya. IEEE Trans. Magn. 50, 2302204 (2014).
- [8] D. Doblas, L.M. Moreno-Ramírez, V. Franco, A. Conde, A.V. Svalov, G.V. Kurlyandskaya. Mater. Des. 114, 214 (2017).
- [9] O. Koplak, R. Morgunov, R. Medapalli, E.E. Fullerton, S. Mangin. Phys. Rev B 102, 134426 (2020).
- [10] M.S. El Hadri, V. Polewczyk, Y. Xiao, S. Mangin, E. Fullerton. Phys. Rev. Mat. 4, 124404 (2020).

- [11] С.Н. Кашин, О.В. Коплак, Р.А. Валеев, В.П. Пискорский, М.В. Бурканов, Р.Б. Моргунов. ФТТ 65, 782 (2023).
- [12] С.Н. Кашин, Р.Б. Моргунов, Р.А. Валеев, В.П. Пискорский, М.В. Бурканов, Д.В. Королев, В.В. Королев, О.В. Балмасова. ФТТ 66, 222 (2024).
- [13] M. Kim, M.-H. Jung, C.M. Kim, S.H. Lim. Physica B 476, 175 (2015).
- [14] M. Tadout, C.-H. Lambert, M.S. El Hadri, A. Benyoussef, M. Hamedoun, M. Benaissa, O. Mounkachi, S. Mangin. Crystals 9, 278 (2019).
- [15] А.В. Свалов, А.В. Архипов, В.Н. Лепаловский, Е.А. Степанова, В.О. Васьковский, Г.В. Курляндская. ФТТ 63, 1325 (2021).
- [16] G.J. Kumar, Z. Guo, L. Gu, J. Feng, K. Kamala Bharathi, K. Wang, J. Appl. Phys. 135, 123904 (2024).
- [17] N.I. Polushkin, I.Y. Pashenkin, E. Fadeev, E. Lähderanta, A.A. Fraerman. J. Magn. Magn. Mater. 491, 165601 (2019).
- [18] М.А. Кузнецов, А.Б. Дровосеков, А.А. Фраерман. ЖЭТФ 159, 95 (2021).
- [19] А.А. Фраерман. Письма в ЖЭТФ 113, 353 (2021).
- [20] И.Ю. Пашенькин, Н.И. Полушкин, М.В. Сапожников, Е.С. Демидов, Е.А. Кравцов, А.А. Фраерман. ФТТ 64, 1359 (2022).
- [21] К.П. Белов, Е.В. Талалаева, Л.А. Черникова, А.С. Андреенко, В.И. Ивановский. ЖЭТФ **66**, 655 (1974).
- [22] S.A. Nikitin, N.Yu. Pankratov, A.I. Smarzhevskaya, J. Ćwik, Yu.S. Koshkid'ko, A.Yu. Karpenkov, D.Yu. Karpenkov, Yu.G. Pastushenkov, K. Nenkov, K. Rogacki. J. Alloys Compd. 854, 156214 (2021).
- [23] A.V. Svalov, A.S. Rusalina, E.V. Kudyukov, V.N. Lepalovskij, E.A. Stepanova, A.A. Yushkov, V.O. Vas'kovskiy, G.V. Kurlyandskaya, J. Non-Cryst. Solids 640, 123116 (2024).
- [24] В.О. Васьковский, А.В. Свалов, К.Г. Балымов, Г.В. Курляндская, А.Н. Сорокин. ФТТ 50, 1424 (2008).
- [25] А.Б. Дровосеков, Д.И. Холин, Н.М. Крейнес. ЖЭТФ 158, 151 (2020).
- [26] А.С. Андреенко, К.П. Белов, С.А. Никитин, А.М. Тишин. УФН 158, 553 (1989).

Редактор А.Н. Смирнов