

05,11

## Магнитные свойства и магнитокалорический эффект в пленках и микропроводах Gd

© О.В. Коплак<sup>1</sup>, С.Н. Кашин<sup>1</sup>, Д.В. Королев<sup>2,3</sup>, М.В. Жидков<sup>1</sup>, В.П. Пискорский<sup>2</sup>, Р.А. Валеев<sup>2</sup>, Р.Б. Моргунов<sup>1,2,3</sup>

<sup>1</sup> Федеральный исследовательский центр проблем химической физики и медицинской химии РАН, Черноголовка, Россия

<sup>2</sup> Всероссийский научно-исследовательский институт авиационных материалов Национального исследовательского центра „Курчатовский институт“, Москва, Россия

<sup>3</sup> Балтийский федеральный университет им. Иммануила Канта, Калининград, Россия

E-mail: spintronics2022@yandex.ru

Поступила в Редакцию 29 ноября 2022 г.

В окончательной редаккции 29 ноября 2022 г.

Принята к публикации 6 декабря 2022 г.

Проведен анализ температурных и полевых зависимостей намагниченности пленок и микропроводов Gd, а также изотермическое измерение магнитной части энтропии при температуре Кюри. Магнитокалорический эффект (МКЭ), измеряемый, как изотермический прирост магнитной части энтропии, в микропроводах демонстрирует два пика на температурной зависимости магнитной части энтропии, в отличие от одного пика в пленках. В пленках и микропроводах максимум энтропии при 286–293 К, отвечающий температуре Кюри, зависит от магнитного поля, одинаково смещаясь в пленках и микропроводах с ростом поля при ориентации подложки MgO (111), обеспечивающей максимальные механические напряжения в Gd. В микропроводах второй максимум не меняет температуры 320 К при увеличении поля до 9 Т, однако его амплитуда линейно растет с полем. Этот максимум может быть вызван спин-переориентационным переходом.

**Ключевые слова:** микропровода, тонкие пленки, магнитная энтропия, магнитная анизотропия, спин-переориентационный переход, температура Кюри.

DOI: 10.21883/FIT.2023.03.54741.538

### 1. Введение

Как известно, в мире на охлаждение тратится даже больше энергии, чем на обогрев. Химическая опасность легко испаряемых газов, а также сложность и хрупкость разветвленной сети каналов в холодильной камере заставляют искать более чистые технологии. Например, сейчас активно развивается стратегия охлаждения твердых тел с помощью механической деформации [1] или магнитного поля [2]. Магнитокалорический эффект (МКЭ) в ферромагнетиках и других магнитоупорядоченных структурах имеет особое практическое значение потому, что он способен проявляться при температурах, близких к комнатной температуре, и обеспечивать сильное понижение температуры рабочего тела на 20–30 К [3–6]. После открытия аномально высокого изменения магнитной части энтропии  $\Delta S_M$  в гадолинии и его сплавах [3–6] стало ясно, что эти материалы пригодны для развития новых технологий магнитных машин. Для совершенствования магнитокалорических сплавов гадолиния в основном используют их химическую модификацию, добавляя к гадолинию другие переходные и редкоземельные металлы, а также термообработку, позволяющую добиться оптимального фазового состава. Поскольку поиски материалов с увеличенным МКЭ

продолжаются уже длительное время, эти два подхода во многом исчерпали себя.

Еще один сравнительно современный подход к совершенствованию таких сплавов заключается в поиске МКЭ в нано- и микроструктурах тех сплавов, которые демонстрируют наилучшие свойства в макроскопическом состоянии [7–10]. Это объясняется следующими дополнительными факторами, способными оптимизировать МКЭ в нано- или микроструктурах: высокими микронапряжениями, присутствием долгоживущих неравновесных метастабильных фаз, не существующими в макроскопических образцах, значительным улучшением теплообмена в мелкодисперсной среде, состоящей из микро- или наноструктур.

Кроме того, значительная анизотропия намагниченности в микропроводах и пленках, возникающая из-за текстурирования материала, может быть использована для совершенствования конструкции холодильной машины. В частности, в [11,12] показано, что изменение кристаллографической ориентации подложки гадолиниевой пленки и соответствующих внутренних напряжений, создаваемых подложкой в пленке, способно приводить к значительному изменению МКЭ. В объемных образцах гадолиния кристаллическая анизотропия намагниченности значительно меньше, чем это наблюдается в пленках

и микропроводах. В [13] в гадолиниевых микропроводах была обнаружена сложная температурная зависимость магнитной анизотропии, содержащая два максимума энтропии, что указывает на сложно-напряженное состояние или двухфазную структуру. В нано- и микроструктурах значительной величины МКЭ можно достигать не только при внесении образца в магнитное поле или при включении поля, но и при изменении ориентации постоянного магнитного поля по отношению к образцу. Это обеспечивает отсутствие энергозатратной процедуры включения поля или перемещения образца, позволяя просто вращать его в магнитном поле постоянного магнита. Сравнение МКЭ в микропроводах и пленках в [11–13] показывает, что при постоянном химическом составе и температурных режимах приготовления микро- и наноструктуры могут демонстрировать значительно отличающийся по величине МКЭ, что вызвано вариациями фазового состава и внутренними микронапряжениями. Разумеется, при оценке МКЭ следует учитывать так же и фактор размагничивания, зависящий от формы образца, как это убедительно показано в [14,15]. Основное отличие микроструктур от наноструктур с точки зрения их использования в МКЭ-устройствах, очевидно, связано с разными механизмами перемагничивания. В наноструктурах, как правило, наблюдается однодоменная структура, а перемагничивание реализуется путем одномоментного изменения направления намагниченности. В микроструктурах обычно предел однодоменности не достигается, а перемагничивание происходит путем зарождения зародышей намагниченности, либо путем распространения доменных стенок. Это приводит к вовлечению в процесс перемагничивания доменов, динамика которых существенно влияет на энергетический баланс рабочего тела магнитоохлаждающей машины.

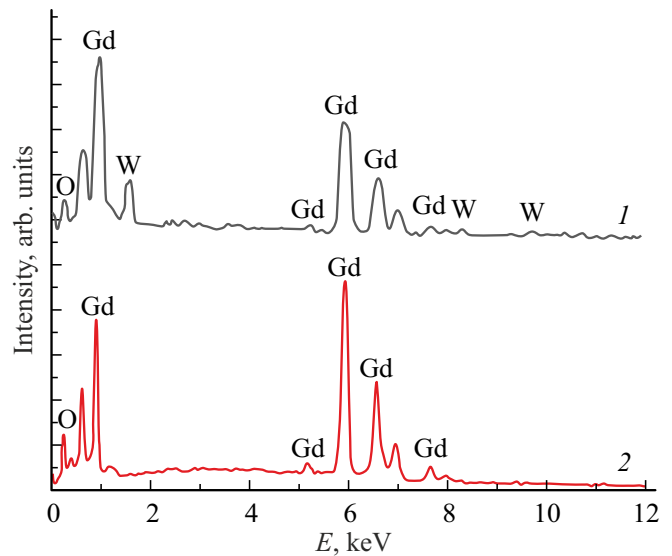
Цель настоящей работы заключалась в сравнении структуры, фазового и химического состава, магнитных свойств и параметров магнитокалорического эффекта в субмикронных пленках и микропроводах Gd.

## 2. Методика и образцы

В экспериментах МКЭ обычно исследуют в двух предельных режимах [1–5]:

- в адиабатическом режиме, когда магнитное поле изменяется так быстро, что последующая переориентация спинов в образце приводит к изменению его температуры  $\Delta T$ , а магнитная часть энтропии поддерживается постоянной  $\Delta S_M = \text{const}$ ;

- в изотермическом режиме, когда изменение внешнего магнитного поля происходит настолько медленно, что температура рабочего тела поддерживается постоянной, равной температуре теплового резервуара, в котором находится ферромагнетик,  $\Delta T = \text{const}$ . При этом значительно изменяется магнитная часть энтропии, которая связана с изменением намагниченности  $M$  известными соотношениями Максвелла [16].



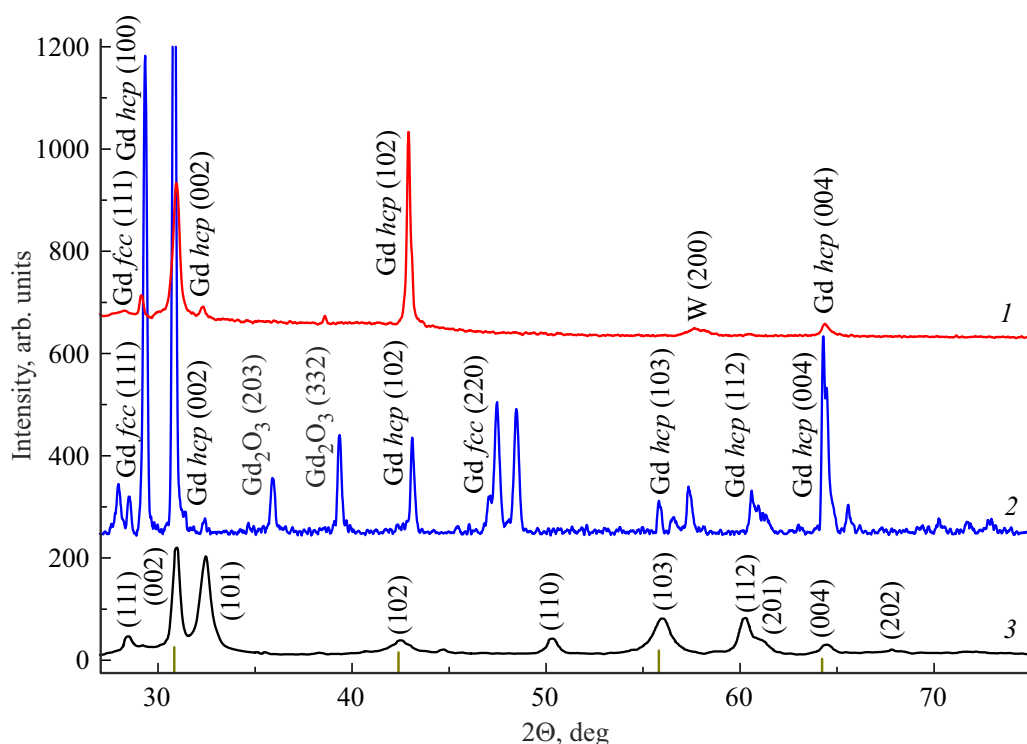
**Рис. 1.** Энергодисперсионные спектры EDX пленки гадолиния 300 nm MgO (100) в составе слоистой гетероструктуры W/Gd/W/MgO (1) и микропровода Gd (2).

Разумеется, оба случая МКЭ, регистрируемых по изменению температуры или по магнитной части энтропии, дают характеристики, прямо пропорциональные друг другу, и увеличение одной из них путем модификации рабочего тела ведет к пропорциональному увеличению другой.

В настоящей работе для обоих случаев микропроводов и пленок гадолиния был выбран изотермический режим, который реализовывали в гелиевой атмосфере магнетометра SQUID MPMX Quantum Design с функцией термостатирования с точностью до 0.1 К. Магнитное поле 0–5 Т медленно изменялось при переходе от одного значения к другому, так что температура образца всегда успевала выравниваться при записи изотермических полевых зависимостей намагниченности  $M(H)$ . В ряде экспериментов использовали также вибрационный магнетометр Lake Shore, в котором максимальное магнитное поле достигало 9 Т.

Пленочные гетероструктуры W/Gd/W/MgO были получены методом магнетронного напыления в условиях высокого вакуума, как это описано в [11,12]. Толщина слоя гадолиния составляла 300 nm. В качестве подложки использовался MgO с кристаллографической ориентацией (100). Микропровода гадолиния были получены методом экстракции висящей капли расплава с последующим сверхбыстрым охлаждением на водоохлаждающемся вращающемся диске [13].

Локальный химический состав микропровода и тонких пленок Gd вблизи поверхности на глубине  $\sim 10$  nm был оценен методом энергодисперсионного анализа (EDX). EDX спектры пленок и микропроводов представлены на рис. 1. В спектре EDX-тонкой пленки хорошо различимы элементы Gd, Mg, O и W, что подтверждает заявленный



**Рис. 2.** Спектры рентгеновской дифракции: 1 — пленки с толщиной слоя Gd 300 nm и ориентацией подложки MgO (100); 2 — микропровода Gd; 3 — толстой пленки гадолиния в [17]. Вертикальными штрихами на горизонтальной оси показаны положения пиков поликристаллического Gd из базы данных рентгеновской дифракции (карта PDF4+ № 01-080-6667).

состав исследуемых образцов гетероструктур (спектр 1 на рис. 1). В EDX-спектре микропровода различимы рефлексы гадолиния и кислорода (спектр 2 на рис. 1). Наличие линии кислорода в спектрах пленок и микропроводов может свидетельствовать о том, что часть материала оказывалась окисленной.

Для определения структуры образцов был применен рентгеноструктурный (XRD) анализ. Спектры XRD тонкой пленки толщиной 300 nm (линия 1) и микропровода (линия 2) представлены на рис. 2.

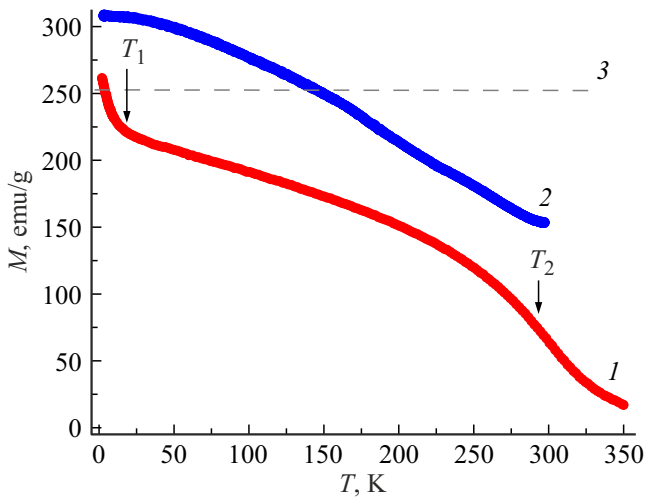
Основной стабильной фазой в тонких пленках и микропроводах Gd является гексагональная плотноупакованная (*hcp*) с параметрами  $a = 3.606 \text{ \AA}$  и  $c = 5.786 \text{ \AA}$  для объемного материала. Присутствующая в образцах гранецентрированная кубическая фаза (*fcc*) с параметром решетки  $a = 5.336 \text{ \AA}$ , является метастабильной и часто обнаруживается в тонких пленках и микроструктурированных образцах гадолиния [18].

В тонких пленках гадолиния, выращенных на подложке MgO, формируются стабильная *hcp* фаза Gd и метастабильная *fcc* фаза. В полученных гетероструктурах на межфазной границе возникают внутренние напряжения в слое Gd, которые могут приводить к изменению магнитной энтропии. В микропроводах Gd в результате быстрой закалки формируются фазы *hcp* и *fcc* гадолиния и оксида гадолиния  $\text{Gd}_2\text{O}_3$ . Наличие оксида Gd связано с присутствием кислорода в камере при быстрой закалке из расплава.

### 3. Экспериментальные результаты

На рис. 3 приведены температурные зависимости намагниченностей пленки (кривая 1) и микропровода (кривая 2) в магнитном поле 10 кОе. Пунктиром показано известное из литературы [1–5] значение намагниченности насыщения объемного гадолиния при комнатной температуре (пунктир 3). Видно, что намагниченность микропроводов выше, чем намагниченность пленки. Лишь при низких температурах намагниченности пленок и микропроводов становятся близки друг к другу. В пленке можно выделить две критические температуры: одна вблизи 290 К соответствует температуре Кюри гадолиния, а другая при 20–30 К ближе к температуре Кюри оксида  $\text{Gd}_2\text{O}_3$  либо метастабильной кубической фазы *fcc*, идентифицированной рентгеноструктурным анализом (рис. 2). В микропроводах эти особенности на температурной зависимости намагниченности не видны. Занижение значений намагниченности по сравнению с известными значениями можно объяснить тем, что поле 10 кОе не является полем насыщения при высоких температурах, но приближается к нему при охлаждении.

На рис. 4 приведены зависимости намагниченностей тонкой пленки Gd на подложке MgO (100) и микропровода Gd от внешнего магнитного поля, приложенного вдоль его оси. Эти серии зависимостей записаны в изотермическом режиме с шагом 5 К в режиме нагрева образца от 250 К с последующим отогревом до 350 К



**Рис. 3.** Температурные зависимости магнитного момента *I* — пленки Gd 300 nm на подложке MgO (100) и 2 — микропровода Gd, записанные в поле 10 kOe (FC). Для сравнения горизонтальной пунктирной линией показано значение намагниченности насыщения при 300 K для чистого объемного гадолиния по данным [1–5]. Стрелками показаны критические температуры переходов.

(выше температуры Кюри 294 K). Эта процедура отогрева унифицирует исходное состояние, из которого стартует запись зависимостей  $M(T)$ . Видно, что при высоких температурах намагниченность микропроводов и пленок не достигает насыщения, а при понижении температуры уровень намагниченности насыщения в микропроводах и пленках различается, что, по-видимому, обусловлено различным фазовым составом: присутствием кубической метастабильной фазы в пленках и оксида гадолиния в микропроводах.

Величину МКЭ можно определить по изменению магнитной части энтропии  $\Delta S_M$ , определяемой величиной производной намагниченности по температуре, складываемой при разных полях вплоть до текущего конечного значения. Эта связь устанавливается соотношением Максвелла [16]:

$$\Delta S_M(T, H) = \int_0^H \left( \frac{\partial M}{\partial T} \right)_H dH. \quad (1)$$

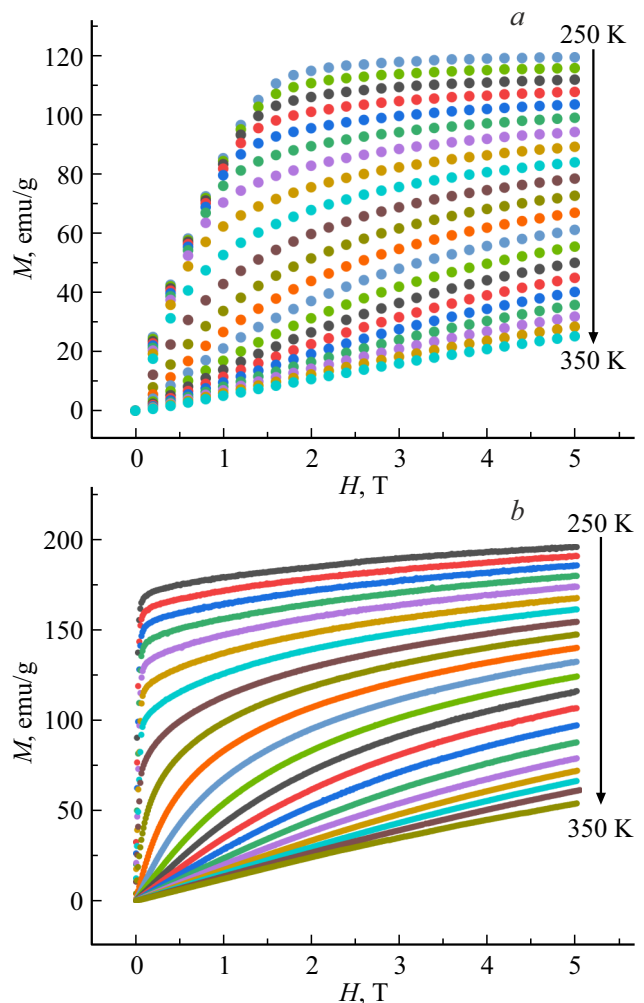
Поскольку экспериментальные точки зависимости  $M(H)$  записываются дискретно, вместо выражения (1) обычно используют формулу [16]:

$$\Delta S_M(T, H) = \sum_i \frac{M_{i+1}(T_{i+1}, H) - M_i(T_i, H)}{T_{i+1} - T_i} \Delta H. \quad (2)$$

Пример одной из таких зависимостей, рассчитанных нами по формуле (2) для серии полевых зависимостей  $\Delta S_M(T)$  в пленке гадолиния на подложке MgO (100) показан на рис. 5. Для определения параметров зависимостей  $\Delta S_M(T)$  было необходимо подобрать модель

аппроксимации, которая бы позволяла определять амплитуду и ширину пиков  $\Delta S_M(T)$ . Мы использовали два подхода, разработанных в рамках теории молекулярного поля, в которой фонная часть энтропии записывается в соответствии с моделью Дебая [19] и моделью среднего поля, в которой обменное взаимодействие представлено в виде внутреннего поля, добавляемого ко внешнему полю в функции Бриллюэна [20]. На рис. 5 сплошными линиями (1) и (2) показаны аппроксимации соответствующими функциями, предложенными в [19,20].

Видно, что теоретические рассуждения, учитывающие разброс обменного взаимодействия и фонного спектра в упомянутых моделях, предсказывают заметно более узкие зависимости  $\Delta S_M(T)$ , чем наблюдается в экспериментах. Следовательно, ширина зависимости максимума зависимости  $\Delta S_M(T)$  определяется не внутренними физическими причинами, связанными с магнетизмом кристаллической решетки или фонным



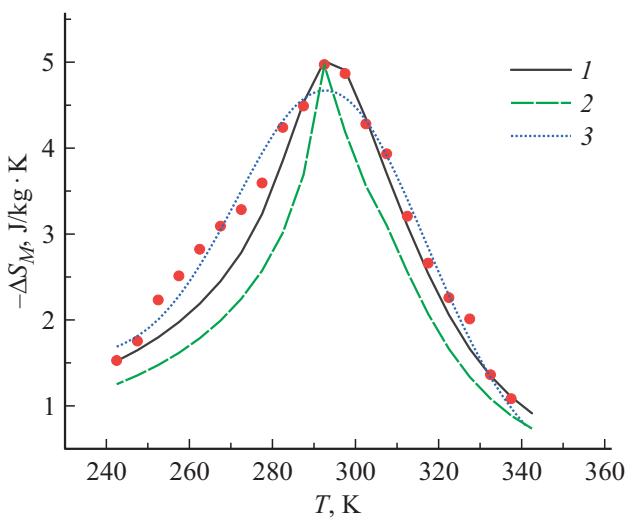
**Рис. 4.** Зависимости намагниченности от магнитного поля пленки Gd 300 nm на подложке MgO (100) (a) и микропровода Gd (b), записанные с шагом 5 K в температурном диапазоне 250–350 K. Магнитное поле лежит в плоскости пленки и вдоль микропровода.

спектром, а более грубыми механизмами, связанными с неоднородностью образцов. Поэтому в пленках и в микропроводах для аппроксимации зависимостей  $\Delta S_M(T)$  нами была использована функция Гаусса (рис. 5 кривая 3). В пленках после вычитания линейного фона зависимость  $\Delta S_M(T)$  была аппроксимирована одной функцией Гаусса (рис. 6, *a*), а в микропроводах — двумя такими функциями (рис. 6, *b*).

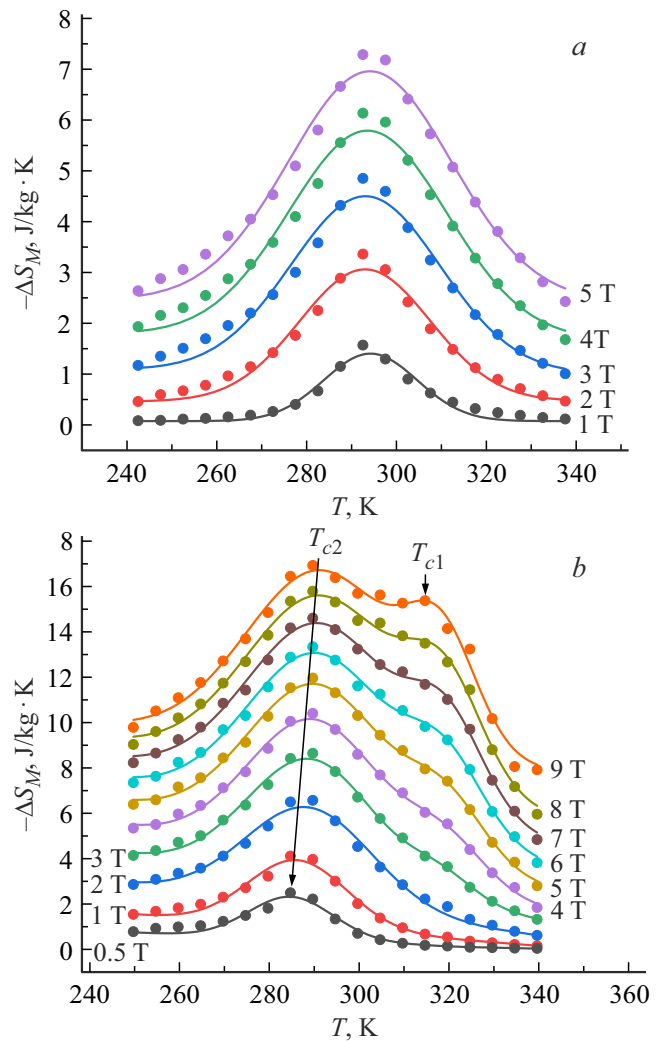
Из рис. 6, *a* видно, что максимум энтропии в пленках практически не сдвигается при увеличении поля, а его амплитуда при этом растет. Из рис. 6, *b* следует, что в микропроводах высокотемпературный максимум при  $T_{c1}$  не сдвигается, в то время, как низкотемпературный максимум при  $T_{c2}$  перемещается в сторону более высоких температур с ростом поля. Положение максимумов как функции температуры показаны для обоих максимумов в микропроводе (кривые 1 и 2 на рис. 7), а также для пленки Gd с двумя толщинами 100 nm и 300 nm, напыленной на подложки MgO разной кристаллографической ориентации.

На рис. 8 представлены зависимости ширины максимумов кривых  $\Delta S_M(T)$  на полувысоте (FWHM) от магнитного поля для первого (1) и второго (2) максимумов в микропроводе Gd и пленок Gd различной толщины на подложках с разной кристаллографической ориентацией MgO (кривые 3–8).

Видно, что с ростом поля ширины максимумов значительно растут, за исключением максимума 2 в микропроводах. Это говорит о росте относительной мощности охлаждения RCP, пропорциональной площади пика на кривой  $\Delta S_M(T)$ . Кроме того, с ростом поля увеличиваются амплитуды пиков.



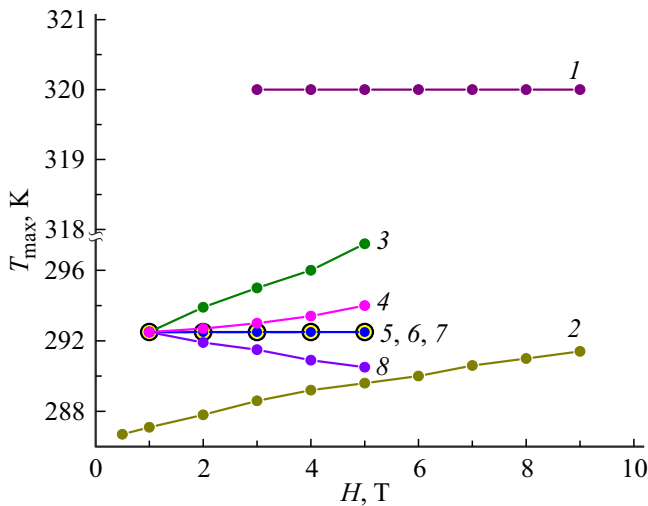
**Рис. 5.** Изменение магнитной части энтропии образца пленки Gd 100 nm на подложке MgO (100) в приложенном магнитном поле  $H = 5$  T. Точками показаны значения изменения энтропии, полученные в эксперименте. Сплошными линиями показаны аппроксимации, рассчитанные с помощью модели среднего поля (1), модели Дебая (2) и функцией Гаусса (3).



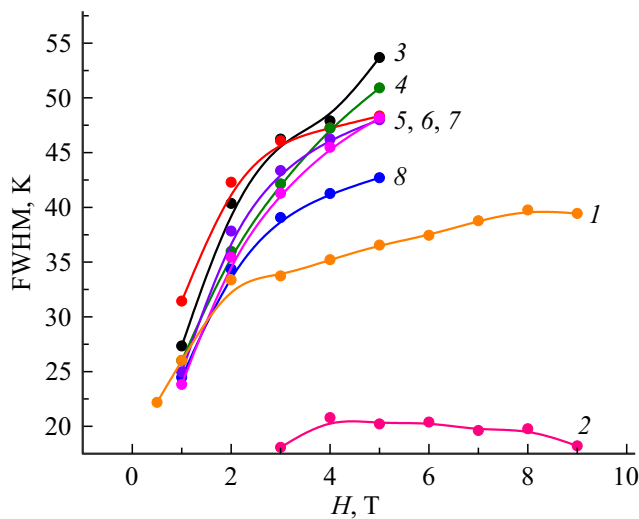
**Рис. 6.** Температурные зависимости изменения магнитной части энтропии *a* — пленки Gd 300 nm на подложке MgO (100) в магнитных полях, указанных справа от кривых, *b* — микропровода Gd. Точками показаны значения изменения энтропии, полученные в эксперименте. Сплошными линиями показаны аппроксимации функциями Гаусса.

Например, в микропроводах амплитуды обоих пиков  $\Delta S_{max}$  быстро увеличиваются с ростом поля, но в области слабых полей эти зависимости различаются (рис. 9). Амплитуда пика (1) растет квазилинейно, изменяясь в диапазоне 4–15 J/kg K с коэффициентом 1.83 J/kg K T (рис. 9). Обычно величина МКЭ, определяемая по изменению энтропии следует полевой зависимости вида аппроксимации функцией  $\Delta S_M(T) = a + bH^{2/3}$ , где  $a, b$  — не зависящие от поля коэффициенты [10]. Аппроксимации этой функцией зависимостей  $\Delta S_M(T)$  для обоих максимумов в микропроводах показаны на рис. 9 сплошными линиями. Видно, что только низкотемпературный максимум подчиняется этой закономерности. Поскольку зависимость  $\Delta S_M(T) \sim H^{2/3}$  является результатом применения теории среднего поля

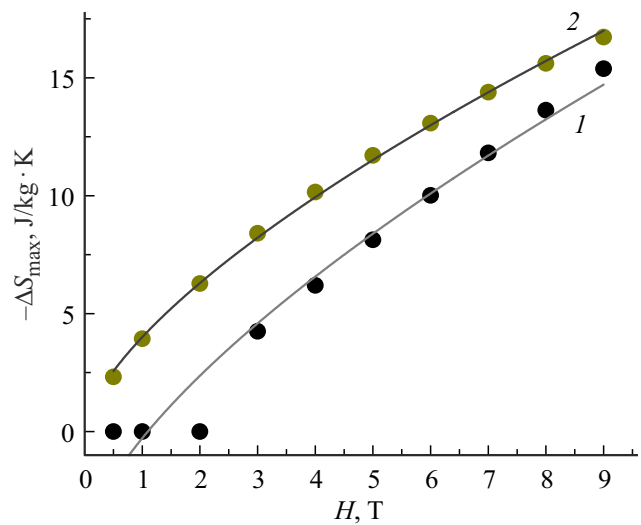
к переходу ферро-парамагнетик, ее применимость к низкотемпературному максимуму 2 означает, что он соответствует температуре Кюри. Очевидно, что спин-переориентационный переход описывается иной полевой



**Рис. 7.** Зависимости температур максимумов магнитной части энтропии  $T_{\max}$  от магнитного поля для микропровода Gd (1, 2) и пленок Gd различной толщины на разных подложках (3–8): 3 — пленка толщиной 100 nm на подложке MgO (111); 4 — пленка толщиной 300 nm на подложке MgO (111); 5 — пленка толщиной 100 nm на подложке MgO (100); 6 — пленка 100 nm на MgO (110); 7 — пленка 300 nm на MgO (100); 8 — пленка 300 nm на MgO (110).



**Рис. 8.** Зависимости ширин максимумов кривых  $\Delta S_M(T)$  на полувысоте (FWHM) от магнитного поля для первого (1) и второго (2) максимумов в микропроводе Gd и пленок Gd различной толщины на разных подложках (3–8): 3 — пленка толщиной 100 nm на подложке MgO (100); 4 — пленка толщиной 100 nm на подложке MgO (111); 5 — пленка толщиной 100 nm на подложке MgO (110); 6 — пленка 300 nm на MgO (110); 7 — пленка 300 nm на MgO (111); 8 — пленка 300 nm на MgO (100).



**Рис. 9.** Зависимость амплитуд максимумов (1) и (2) магнитной энтропии в микропроводе Gd (рис. 6, b) от магнитного поля по результатам разложения на две функции Гаусса. Сплошными линиями показаны аппроксимации функцией  $\Delta S_M(T) = a + bH^{2/3}$ .

зависимостью, зависящей от магнито-упругих констант, поля размагничивания и других факторов.

#### 4. Обсуждение

Двойные максимумы приращения магнитной части энтропии в сплавах с гадолинием нередко встречаются в литературе. Например, в [21] сообщается о наличии двойного пика в сплаве  $Gd_{1-x}Ho_xNi$ , который был получен методом спиннингования из быстро охлажденного расплава. Авторы установили, что дополнительный максимум энтропии появляется по мере добавления Ho, и при его нулевой концентрации отсутствует. Поскольку Ho имеет иную симметрию одно-ионной анизотропии по сравнению с Gd, имеет место конкуренция магнитной анизотропии двух редкоземельных подрешеток. С изменением температуры доминирование симметрии Gd сменяется на симметрию ионов Ho, и происходит спин-переориентационный переход, который, также как переход при температуре Кюри, дает прирост магнитной части энтропии.

В нулевом магнитном поле температура Кюри объемного монокристалла гадолиния  $T_c$  равна 294 K, а температура спиновой переориентации  $T_r$  равна 227 K. Авторами этой работы было обнаружено, что имеется два близко расположенных максимума анизотропии, один из которых соответствует температуре Кюри гадолиния, а другой — спин-переориентационному переходу в нем. При этом в диапазоне 2–7.5 T, величина  $T_c$  в Gd линейно увеличивается с коэффициентом 6 K/T, переход спиновой переориентации полностью гасится магнитными полями выше 2–2.5 T.

В [4] отмечается, что химическая чистота гадолиния играет важную роль в МКЭ и сильно влияет, как на  $T_c$ , так и на  $T_r$ . Обычно большое количество примесей имеется даже для образцов с коммерческим обозначением 99.9 wt.%. Примеси снижают температуру Кюри, а также расширяют температурный интервал парамагнитно-ферромагнитного перехода, маскируя спиновый переориентационный переход, который легче обнаруживается в монокристаллических образцах высокого качества. Поэтому критические температуры, установленные нами для микропроводов и пленок, могут быть сдвинуты относительно их значений в совершенных кристаллах гадолиния.

Можно предполагать, что пик 1 при 320 К соответствует спин-переориентационному переходу, смещенному от 235 К в результате микронапряжений и высокой доли примеси в микропроводах (рис. 6, *b*). Низкотемпературный пик 2 в микропроводах монотонно изменяет свое положение от 286 до 293 К в диапазоне полей 3–9 Т (кривая 2 на рис. 6, *b*), т.е. примерно с коэффициентом  $dT_c/dH = 1.17$  К/Т, что значительно меньше коэффициента  $dT_c/dH = 6$  К/Т, определенного в [4], где максимум энтропии соответствовал температуре Кюри. Пик 2 при 286–293 К, вероятно, и в нашей работе соответствует температуре Кюри, смещенной в более высокие температуры из-за высоких значений анизотропии формы и сильных микронапряжений, возникающих при высокой скорости охлаждения расплава.

В пленках при ориентации подложки MgO (111), обеспечивающей максимальное растяжение Gd, наблюдается рост температуры Кюри в диапазоне полей 1–5 Т с коэффициентом  $dT_c/dH = 1.25$  К/Т, близким к тому, что мы наблюдаем в микропроводах (рис. 7, кривая 3). Изменения ориентации подложки на (110) или (100) или ее толщины со 100 до 300 nm снижают механические напряжения в гадолинии и поэтому приводят к нулевому значению коэффициента или даже к его отрицательному значению (рис. 7, кривые 4–8). Температура пика 1 не зависит от поля, оставаясь равной 320 К вплоть до 9 Т.

В объемных образцах Gd спин-переориентационный переход хорошо известен и надежно верифицирован методом нейтронографии (см., например, [22]). Легкая ось намагничивания в Gd параллельна к гексагональной оси  $c$  между температурой Кюри ( $T_c = 293$  К) и температурой спиновой переориентации ( $T_r = 235$  К). Легкая ось удаляется от оси  $c$  ниже  $T_r$  и лежит на поверхности конуса оси  $c$  под некоторым углом, который равен 30–40° при низких температурах, увеличивается примерно до 70–90° в области 150–200 К, а затем резко уменьшается до 0° при  $T_r$ .

Влияние спин-переориентационного перехода на МКЭ было детально исследовано в [4] в образцах гадолиния разной чистоты и различного структурного совершенства (от поли- до монокристаллов). Температура спин-переориентационного перехода в разных источниках указывается 227 К [4], 232 К [22] и др., а

его положение может значительно сдвигаться под действием механических напряжений [23]. Теоретическое значение коэффициента смещения температуры  $T_r$  при наложении гидростатического давления  $P$  составляет  $dT_r/dP = -4.9$  К · kbar<sup>-1</sup>, что близко к экспериментальному значению  $dT_r/dP = -4.3$  К · kbar<sup>-1</sup> [23]. Отрицательное значение этого коэффициента не позволяет объяснить сдвиг температуры  $T_r$  к значению 320 К в нашей работе гидростатическим давлением, однако механические напряжения в микропроводе не являются гидростатическими, а сильно меняются, по-видимому, создавая мозаику участков с разнонаправленными напряжениями. Градиенты этих напряжений могут вызывать значительный сдвиг в сторону увеличения температур, как это установлено в наших опытах. Отметим, что в гадолинии ниже температуры Кюри наблюдается значительное влияние магнитного поля на модуль Юнга [24], что может приводить к значительным изменениям в магнито-упругой анизотропии, изменяя константу анизотропии  $K_1$ . При наложении поля в гадолинии наблюдается изменение упругой константы  $c_{33}$ , которое соответствует размягчению кристаллической решетки, что подтверждается также расчетами в рамках теории молекулярного поля и показывает, что этот эффект связан с магнито-упругими константами [24].

Необходимо отметить, что баланс разных видов магнитной анизотропии включает не только кристаллическую и магнитоупругую анизотропию, но также и анизотропию формы, которая способна, например, приводить к существенному смещению температуры Кюри и изменению величины МКЭ [25]. В микропроводах эта анизотропия формы может существенно смещать критические температуры  $T_c$  и  $T_r$ .

## 5. Выводы

1. На температурной зависимости магнитной части энтропии в микропроводах наблюдается два пика (низкотемпературный и высокотемпературный), в отличие от одного пика в пленках Gd.

2. В пленках гадолиния и в микропроводах наблюдается низкотемпературный максимум изменения магнитной части энтропии вблизи литературных значений температуры Кюри 286–293 К. Этот максимум в микропроводах сдвигается в сторону роста температуры Кюри с коэффициентом 1.17 К/Т, что значительно меньше коэффициента 6 К/Т, определенного для объемного гадолиния. В пленках наблюдается разнонаправленный сдвиг максимума при увеличении поля в зависимости от кристаллографической ориентации подложки и величины задаваемых ею напряжений. Причиной этого сдвига является отсутствие насыщения намагниченности вплоть до самых больших полей и рост поля намагничивания по мере увеличения внешнего поля.

3. В пленках обнаружено значительное влияние магнитного поля на положение максимума энтропии от

температуры, в отличие от микропроводов, где такая зависимость наблюдается лишь для одного из пиков. Наибольшее влияние магнитного поля на положение максимума энтропии в пленках наблюдается для ориентации подложки MgO (111) при наименьшей толщине пленки Gd, т.е. в условиях, когда механические напряжения, создаваемые подложкой максимальны. При этом коэффициенты линейного сдвига максимума энтропии с ростом поля совпадают в пределах погрешности эксперимента в пленках и микропроводах.

4. В микропроводах Gd высокотемпературный пик не меняет своего положения и находится при 320 К, однако его амплитуда линейно нарастает с полем, изменяясь в диапазоне 4–15 J/kg К с коэффициентом 1.83 J/kg КТ. Вероятным механизмом появления высокотемпературного пика является спин-переориентационный переход, значительно смещенный из низких температур в высокие температуры под действием высоких внутренних напряжений и при росте поля размагничивания в микропроводах вплоть до 9 Т.

#### Финансирование работы

Работа выполнена в рамках тематической карты Института проблем химической физики АААА-А19-119092390079-8. Р.Б. Моргунов и Д.В. Королев поддержаны грантом РНФ № 22-19-20157, <https://rscf.ru/project/22-19-20157/>, и грантом в виде субсидии из бюджета Калининградской области № 06-С/2022.

#### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

#### Список литературы

- [1] L. Mañosa, A. Planes. *Appl. Phys. Lett.* **116**, 5, 050501 (2020).
- [2] M. Balli, S. Jandl, P. Fournier, A. Kedous-Lebouc. *Appl. Phys. Rev.* **4**, 2, 021305 (2017).
- [3] V.K. Pecharsky, K.A. Gschneidner, Jr. *Phys. Rev. Lett.* **78**, 23, 4494 (1997).
- [4] S.Yu. Dan'kov, A.M. Tishin, V.K. Pecharsky, K.A. Gschneidner. *Phys. Rev. B* **57**, 6, 3478 (1998).
- [5] M. Tadout. *Crystals* **9**, 6, 278 (2019).
- [6] V.K. Pecharsky, K.A. Gschneidner, A.O. Tsokol. *Rep. Prog. Phys.* **68**, 1479 (2005).
- [7] J. Cheng, T. Li, S. ULLAH, F. Luo, H. Wang, M. Yan, G.P. Zheng. *Nanotechnology* **31**, 38 (2020).
- [8] M.H. Phan, M.B. Morales, C.N. Chinnaamy, B. Latha, V.G. Harris, H. Srikanth. *J. Phys. D* **42**, 11, 115007 (2009).
- [9] X. Chen, R.V. Ramanujan. *J. Alloys Compounds* **652**, 393 (2015).
- [10] D.N. Ba, Y. Zheng, L. Becerra, M. Marangolo, M. Almanza, M. LoBue. *Phys. Rev. Appl.* **15**, 6, 064045 (2021).
- [11] I.S. Williams, E.S.R. Gopal, R. Street. *Phys. Status Solidi A* **67**, 1, 83 (1981).
- [12] O.V. Koplak, S.N. Kashin, R.B. Morgunov. *J. Magn. Magn. Mater.* **564**, 2, 170164 (2022).
- [13] O.B. Коплак, С.Н. Кашин, Р.Б. Моргунов, Д.В. Королев, М.В. Жидков, В.П. Пискорский, Р.А. Валеев. *ФТТ* **64**, 11, 1774 (2022).
- [14] C.R.H. Bahl, K.K. Nielsen. *J. Appl. Phys.* **105**, 1, 013916 (2009).
- [15] H. Shen, L. Luo, D. Xing, S. Jiang, J. Liu, Y. Huang, S. Guo, H. Sun, Y. Liu, J. Sun, M. Phan. *Phys. Status Solidi A* **216**, 16, 1900090 (2019).
- [16] B.K. Banerjee. *Phys. Lett.* **12**, 1, 16 (1964).
- [17] E.A. Tereshina, S. Khmelevskiy, G. Politova, T. Kaminskaya, H. Drulis, I.S. Tereshina. *Sci. Rep.* **6**, 1, 22553 (2016).
- [18] T.P. Bertelli, E.C. Passamani, C. Larica, V.P. Nascimento, A.Y. Takeuchi, M.S. Pessoa. *J. Appl. Phys.* **117**, 20, 203904 (2015).
- [19] T. Hashimoto, T. Numasawa, M. Shino, T. Okada. *Cryogenics* **21**, 11, 647 (1981).
- [20] M. Hsini, M. Boutaleb. *Eur. Phys. J. Plus* **135**, 2, (2020).
- [21] J. Jiang, H. Ying, T. Feng, R. Sun, X. Li, F. Wang. *Current Appl. Phys.* **18**, 12, 1605 (2018).
- [22] J.W. Cable, W.C. Koehler. *J. Appl. Phys.* **53**, 3, 1904 (1982).
- [23] H. Klimker, M. Rosen. *Phys. Rev. B* **7**, 5, 2054 (1973).
- [24] V.Y. Bodryakov, V.M. Zverev, S.A. Nikitin. *JETP* **87**, 6, 1148 (1998).
- [25] V.I. Zverev, R.R. Gimaev, A.M. Tishin, Y. Mudryk, K.A. Gschneidner, V.K. Pecharsky. *J. Magn. Magn. Mater.* **323**, 20, 2453 (2011).

Редактор К.В. Емцев