05,08

Магнитокалорический эффект в структуре ферромагнетик|антиферромагнетик с обменной связью

© М.А. Кузнецов

Институт физики микроструктур Российской академии наук,
Нижний Новгород, Россия

E-mail: kuznetsovm@ipmras.ru

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

В рамках теории Ландау фазовых переходов второго рода рассмотрена структура ферромагнетик|антиферромагнетик, в которой ферромагнитный и антиферромагнитный слои связаны обменным взаимодействием. В окрестности температуры Нееля такое взаимодействие приводит к модификации параметра порядка антиферромагнетика. Рассчитан магнитокалорический эффект (изотермическое изменение магнитной энтропии) рассматриваемой системы при изменении направления намагниченности ферромагнетика относительно легкой оси анизотропии антиферромагнетика. Рассмотрены случаи скомпенсированной и нескомпенсированной границ антиферромагнетика. Полученные результаты позволяют говорить о возможности использования многослойной структуры ферромагнетик|антиферромагнетик для охлаждения устройств микро- и наноэлектроники.

Ключевые слова: магнитное охлаждение, эффект магнитной близости, антиферромагнетики, температура Нееля.

DOI: 10.61011/FTT.2025.06.60960.6HH-25

1. Введение

Магнитокалорический эффект (МКЭ) заключается в изменении температуры магнитного материала при его адиабатическом намагничивании или размагничивании [1]. На основе этого эффекта можно организовать цикл магнитного охлаждения, результатом работы которого будет отвод тепла от нагрузки во внешнюю среду, в т.ч. при комнатной температуре [2]. Ожидается, что такие холодильные устройства будут отличаться экологичностью, компактностью и энергоэффективностью [3,4]. Отметим, что даже в случае необратимости МКЭ существует возможность организации цикла магнитного охлаждения [5]. Одной из причин, по которой технология магнитного охлаждения до сих пор не получила широкого распространения, является необходимость приложения очень больших магнитных полей для достижения необходимой величины МКЭ. Так, даже для изменения температуры эталонного магнитокалорического материала — Gd — всего на 1 K, необходимо приложить поле около 10 kOe, а для изменения температуры на 10 K потребуется уже около 50 kOe [6].

Проблему необходимости приложения очень больших полей можно обойти, если перейти от объемных магнитокалорических материалов к наноструктурированным, которые в принципе можно использовать для охлаждения устройств микро- и наноэлектроники. Так, в работе [7] рассмотрена многослойная структура ферромагнетик|парамагнетик, в которой обменные поля, возникающие на границах раздела, намагничивают парамагнитные слои, выступающие в качестве магнитокалорических материалов. Приложение небольшого (10 – 100 Oe) внешнего поля вызывает переориентацию обменных полей (намагниченностей ферромагнитных слоев), что приводит к изменению магнитной энтропии (температуры) такой системы. В ряде последующих теоретических [8–10] и экспериментальных [8,11–16] работ было продемонстрировано значительное обменное усиление МКЭ. Недавно [17] идея использования обменных полей для усиления МКЭ была перенесена на структуру ферромагнетик|антиферромагнетик, в которой в качестве магнитокалорических материалов выступают антиферромагнитные слои. Поскольку критическое поле между антиферромагнитной и парамагнитной фазами объемного антиферромагнетика сильно зависит от ориентации внешнего магнитного поля относительно легкой оси анизотропии [18], то простое вращение этого поля приводит к изменению магнитного состояния и, как следствие, к МКЭ в антиферромагнетике. В работе [17] рассматривался случай антиферромагнетика со скомпенсированной границей, т.е. когда эта граница содержит атомы обеих подрешеток в равном количестве, а роль магнитного поля выполняли обменные поля, возникающие на границах раздела ферро- и антиферромагнетиков.

В настоящей работе исследован МКЭ в обменно-связанной структуре ферромагнетик/антиферромагнетик в случае нескомпенсированной границы, т.е. когда граница содержит атомы только одной из двух подрешеток антиферромагнетика. Такая ситуация реализуется при напылении структуры во внешнем магнитном поле и определяется по наличию эффекта обменного смещения [19,20]. Обменное поле, возникающее на границе раздела, модифицирует параметр порядка антиферромагнетика, а приложение небольшого (~ 100 Oe) внешнего поля приводит к изменению направления этого обменного поля и, как следствие, к МКЭ. Как мы увидим, магнитокалорические свойства системы ферромагнетик|антиферромагнетик сильно зависят от типа границы. Полученные результаты могут оказаться полезны для разработки микро- и наноразмерных холодильных устройств, работающих при малых магнитных полях.

2. Случай скомпенсированной границы

Рассмотрим двухслойную структуру ферромагнетик/антиферромагнетик, в которой ферромагнитный и антиферромагнитный слои имеют толщины h и d соответственно, а граница раздела совпадает с плоскостью $z = 0$ (см. рис. 1, *a*). Пусть антиферромагнетик имеет две подрешетки с намагниченностями $\mathbf{m}_1$ и $\mathbf{m}_2$ ($m_1 = m_2$), а его легкая ось магнитной анизотропии направлена вдоль оси x. Будем считать, что температура системы T близка к температуре Нееля T_N антиферромагнетика, так что $T \leq T_\mathrm{N}$, а температура Кюри ферромагнетика гораздо больше T_N. Последнее обстоятельство позволяет пренебречь изменением микромагнитного состояния ферромагнетика из-за обменной связи с антиферромагнетиком и считать, что намагниченность ферромагнетика $\mathbf{M}$ однородна.

Рассмотрим сначала случай скомпенсированной границы (рис. 1, *b*). В рамках теории Ландау фазовых переходов второго рода [18] свободная энергия на единицу площади рассматриваемой системы F представима в виде разложения по степеням вектора Нееля (параметра порядка) $\mathbf{L} = \mathbf{m}_1 - \mathbf{m}_2$ и намагниченности $\mathbf{m} = \mathbf{m}_1 + \mathbf{m}_2$ антиферромагнетика, а также их комбинаций и производных:

$$F = F_v + F_s, \tag{1}$$

$$F_v = \int_0^\infty \left(\frac{\gamma}{2}\left(\frac{d\mathbf{L}}{dz}\right)^2 - \frac{\alpha\tau}{2}\mathbf{L}^2 + \frac{\beta}{4}\mathbf{L}^4 + \frac{K_a}{2}\left(L_y^2 + L_z^2\right)\right) dz, \tag{2}$$

$$F_s = \int_0^\infty \left(\frac{\gamma_0}{2}\left(\frac{d\mathbf{m}}{dz}\right)^2 + \frac{1}{2\chi}\mathbf{m}^2 + \frac{\Delta}{2}(\mathbf{mL})^2 + \frac{\delta}{2}\mathbf{m}^2\mathbf{L}^2\right) dz - J(\mathbf{mM})|_{z=0}, \tag{3}$$

где $\alpha, \beta, \gamma, \gamma_0, \Delta$ и δ — положительные феноменологические параметры, $K_a > 0$ — постоянная магнитной анизотропии, $\tau = (T_\mathrm{N} - T)/T_\mathrm{N}$, χ — парамагнитная восприимчивость, J — постоянная межслойного обменного взаимодействия. Пусть антиферромагнитный слой достаточно толстый, так что можно считать магнитное состояние на его противоположной границе (при $z = d$) невозмущенным. Поэтому интегрирование в формулах (2) и (3) распространено на полупространство $z > 0$. Отметим, что скомпенсированность границы отражена в слагаемом — $J(\mathbf{mM})|_{z=0} = -J(\mathbf{m}_1\mathbf{M})|_{z=0} - J(\mathbf{m}_2\mathbf{M})|_{z=0}$, т. е. обменное взаимодействие связывает намагниченность ферромагнетика с намагниченностями обеих подрешеток антиферромагнетика. Будем считать, что пространственный масштаб у $\mathbf{L}$ значительно больше, чем у $\mathbf{m}$, что всегда может быть выполнено в окрестности T_N. Тогда после вычисления $\mathbf{m}$ и подстановки в формулу (3), получаем (см. Приложение)

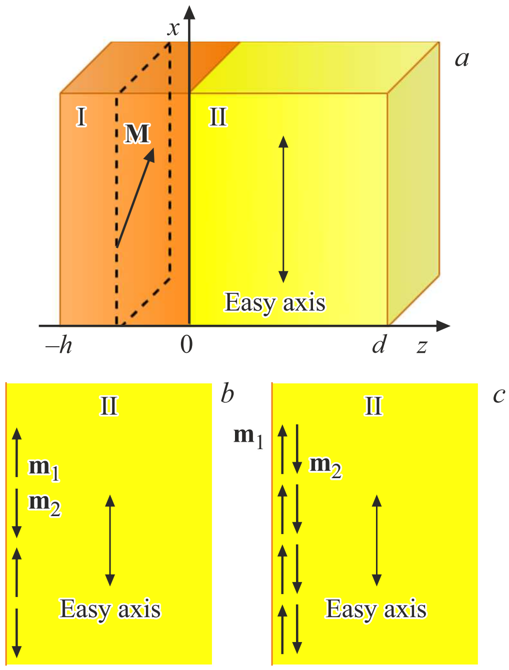

Рис. 1. Схематические изображения *a*) планарной структуры ферромагнетик|антиферромагнетик (I|II), и границ антиферромагнетика: *b*) скомпенсированной и *c*) нескомпенсированной. Двойные стрелки обозначают направление легкой оси анизотропии антиферромагнетика.

$$F_s \approx \frac{\chi^{3/2} J^2}{4\gamma_0^{1/2}}\left(\delta\mathbf{M}^2\mathbf{L}^2 + \Delta(\mathbf{ML})^2\right)|_{z=0}, \tag{4}$$

где было отброшено несущественное постоянное слагаемое. Как можно видеть, в случае скомпенсированной границы обменное взаимодействие ферро- и антиферромагнетика приводит, во-первых, к подавлению антиферромагнитного порядка (слагаемое $\delta\mathbf{M}^2\mathbf{L}^2$), во-вторых, к поверхностному спин-флоп эффекту, т. е. отклонению вектора $\mathbf{L}$ от легкой оси (слагаемое $\Delta(\mathbf{ML})^2$). Пусть

$$\mathbf{M} = M(\hat{\mathbf{x}}\cos\phi + \hat{\mathbf{y}}\sin\phi)$$

и

$$\mathbf{L}(z) = L(z)\big(\hat{\mathbf{x}}\cos\theta(z) + \hat{\mathbf{y}}\sin\theta(z)\big).$$

Тогда, минимизируя свободную энергию F относительно модуля параметра порядка L и угла θ, получаем следующие уравнения и граничные условия:

$$\frac{d^2L}{dz^2} + \left(\frac{1}{l_c^2} - \left(\frac{d\theta}{dz}\right)^2 - \frac{1}{l_d^2}\sin^2\theta\right)L - \frac{\beta}{\gamma}L^3 = 0, \tag{5}$$

$$L^2 \frac{d^2\theta}{dz^2} + 2L \frac{dL}{dz} \frac{d\theta}{dz} - \frac{1}{l_d^2} L^2 \sin\theta \cos\theta = 0, \qquad (6)$$

$$\left.\frac{dL}{dz}\right|_{z=0} = \frac{\chi^{3/2} J^2 M^2}{2\gamma\gamma_0^{1/2}} L\big(\delta + \Delta \cos^2(\theta - \phi)\big)\big|_{z=0}, \qquad (7)$$

$$\left.\frac{d\theta}{dz}\right|_{z=0} = -\frac{\chi^{3/2} J^2 M^2 \Delta}{2\gamma\gamma_0^{1/2}} \cos(\theta - \phi) \sin(\theta - \phi)\big|_{z=0}, \qquad (8)$$

где $l_c = \sqrt{\gamma/(\alpha\tau)}$ и $l_d = \sqrt{\gamma/K_a}$ — корреляционная длина и толщина доменной стенки антиферромагнетика. При $z \to \infty$ угол θ и модуль L должны достигнуть невозмущенных значений, т. е. $\theta(z \to \infty) = 0$ и $L(z \to \infty) = L_0 = \sqrt{\alpha\tau/\beta}$. Дифференцируя свободную энергию по температуре с учетом (5)–(8), найдем объемную плотность магнитной энтропии $s = -(\partial F/\partial T)/d$:

$$s = -\frac{\alpha}{2T_{\mathrm{N}}} \overline{L^2} = -\frac{\alpha}{2dT_{\mathrm{N}}} \int_0^\infty L^2(z) dz. \qquad (9)$$

Мы видим, что магнитная энтропия определяется средним по толщине антиферромагнетика квадратом параметра порядка $\overline{L^2}$, величина которого, согласно граничным условиям (7) и (8), зависит от направления вектора $\mathbf{M}$. Из симметрии энергии (4) видно, что наибольшее изотермическое изменение магнитной энтропии Δs обеспечивается изменением направления $\mathbf{M}$ с перпендикулярного ($\perp$) до параллельного ($\|$) по отношению к легкой оси антиферромагнетика.

Интересуясь только изменением модуля параметра порядка, найдем условия, при выполнении которых $\theta = 0$. Будем тогда считать, что угол θ мал. Тогда в первом приближении в уравнении (5) можно положить $\theta = 0$. В этом случае пространственный масштаб модуля параметра порядка L будет определяться величиной l_c. Пусть $l_d/l_c \ll 1$, что всегда может быть выполнено в окрестности T_{N}. Тогда в уравнении (6) можно пренебречь слагаемым, пропорциональным dL/dz, после чего это уравнение примет следующий вид:

$$\frac{d^2\theta}{dz^2} - \frac{1}{l_d^2} \sin\theta \cos\theta = 0, \qquad (10)$$

а его решение при $\phi = 0, \pi(\|)$ можно представить как

$$\cos\theta_{\|}(z) = \operatorname{th} \frac{z + z_\theta^{\|}}{l_d}, \qquad (11)$$

где постоянная $z_\theta^{\|}$ может быть определена из уравнения

$$\cos\theta_{\|}(0) = \left(\frac{J_\theta}{J}\right)^2. \qquad (12)$$

Здесь

$$J_\theta^2 = 2\gamma\gamma_0^{1/2}/(\chi^{3/2} M^2 l_d \Delta).$$

Полученное решение справедливо при $J \geq J_\theta$. При $J \leq J_\theta$ решением уравнения (10) является $\theta_{\|}(z) = 0$. Отметим, что в случае $\phi = \pm\pi/2(\perp)$ согласно (4) имеем $\theta_\perp(z) = 0$ при любых J. При $\theta(z) = 0$ из (5) и (7) для случаев $\phi = \pm\pi/2$ и $\phi = 0, \pi$ получаем следующие зависимости модуля параметра порядка от координаты z:

$$L_{\perp(\|)}(z) = L_0 \operatorname{th} \frac{z + z_{\perp(\|)}}{\sqrt{2} l_c}. \qquad (13)$$

Постоянная $z_{\perp(\|)}$ определяется уравнением

$$\frac{L_{\perp(\|)}(0)}{L_0} = \sqrt{1 + \left(\frac{J}{J_{\perp(\|)}}\right)^4} - \left(\frac{J}{J_{\perp(\|)}}\right)^2, \qquad (14)$$

где

$$J_\perp^2 = 2^{3/2}\gamma\gamma_0^{1/2}/(\chi^{3/2} M^2 l_c \delta)$$

и

$$J_\|^2 = 2^{3/2}\gamma\gamma_0^{1/2}/\big(\chi^{3/2} M^2 l_c (\Delta + \delta)\big).$$

Как можно видеть, по мере увеличения постоянной J происходит подавление антиферромагнитного порядка. В случае слабого межслойного обмена ($J \ll J_{\perp(\|)}$) параметр порядка мало отличается от объемной величины, т. е. $L_{\perp(\|)}(0)/L_0 \approx 1 - (J/J_{\perp(\|)})^2$. В обратном случае ($J \gg J_{\perp(\|)}$) имеем $L_{\perp(\|)}(0)/L_0 \approx (J_{\perp(\|)}/J)^2/2 \ll 1$.

Вычисление изотермического изменения энтропии $\Delta s = s_\| - s_\perp$ согласно (9) приводит нас к следующему результату:

$$\Delta s = \Delta s_{\max}\left(\frac{L_\perp(0)}{L_0} - \frac{L_\|(0)}{L_0}\right), \qquad (15)$$

$$\Delta s_{\max} = \frac{\alpha}{2T_{\mathrm{N}}} \frac{\sqrt{2} l_c L_0^2}{d} = \frac{(2\gamma\tau)^{1/2}\alpha^{3/2}}{2T_{\mathrm{N}}\beta d}. \qquad (16)$$

Таким образом, Δs определяется значениями параметра порядка на границе раздела. Тогда для достижения максимального изменения энтропии $\Delta s_{\max}$ необходимо, чтобы $L_\perp(0) \approx L_0$ и $L_\|(0) \approx 0$. Такая ситуация возникает при выполнении условия $J_\| \ll J \ll J_\perp$. Поскольку $(J_\|/J_\perp)^2 = \delta/(\Delta + \delta)$, то во всяком случае должно быть $\Delta \gg \delta$. Последнее выполняется по крайней мере для большинства антиферромагнетиков [21]. Отметим, что поскольку $(J_\|/J_\theta)^2 \propto l_d/l_c \ll 1$, то по мере увеличения J значительное уменьшение модуля параметра порядка на границе раздела происходит раньше, чем его отклонение от направления легкой оси. Тогда при выполнении условия $l_d/l_c \ll 1$ можно считать, что $\theta(z) = 0$ при любых J.

Оценим параметры теории Ландау для хорошо исследованного антиферромагнетика MnF_2. Сравнение с экспериментом [22–25] дает

$$T_{\mathrm{N}} \approx 67.33\,\mathrm{K}, \ \ \alpha/T_{\mathrm{N}} = 1\,\mathrm{K}^{-1},$$

$$\beta \approx 9.50 \cdot 10^{-7}\,\mathrm{erg}^{-2} \cdot \mathrm{G}^2 \cdot \mathrm{cm}^6,$$

$$\Delta \approx 1.55 \cdot 10^{-4}\,\mathrm{erg}^{-2} \cdot \mathrm{G}^2 \cdot \mathrm{cm}^6,$$

$$\delta \approx 5.40 \cdot 10^{-6}\,\mathrm{erg}^{-2} \cdot \mathrm{G}^2 \cdot \mathrm{cm}^6,$$

$$\chi \approx 1 \cdot 10^{-3}, \ \ K_a \approx 2.33.$$

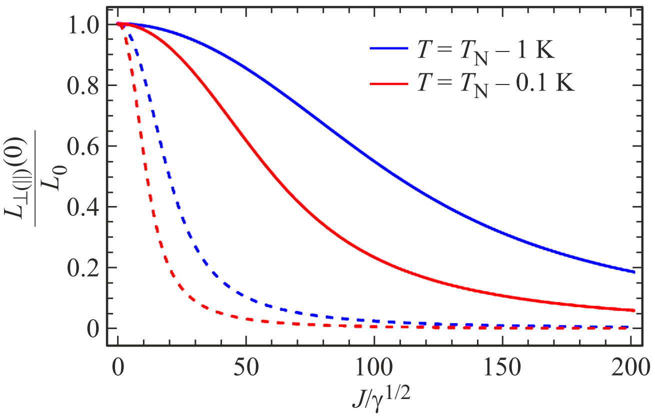

Рис. 2. Зависимости модуля параметра порядка на скомпенсированной границе раздела $L_{\perp(\parallel)}(0)$ от константы межслойного обмена J при различных температурах T, рассчитанные для структуры ферромагнетик|MnF$_2$. Сплошные линии соответствуют случаю перпендикулярного направления $(\perp)$ намагниченности ферромагнетика **M** по отношению к легкой оси анизотропии антиферромагнетика, пунктирные — случаю параллельного направления $(\parallel)$.

Постоянную γ можно оценить из равенства энергии $k_B T$ и обменной энергии в точке фазового перехода, т.е. $\gamma \approx k_B T_N/(a m_s^2)$ [18], где a — параметр решетки, m_s — намагниченность насыщения антиферромагнетика. Для MnF$_2$ находим $\gamma^{1/2} \approx 4$ nm. Постоянную γ_0 мы будем считать равной γ. На рис. 2 и 3, *a* изображены зависимости $L_{\perp(\parallel)}(0)$ и Δs от константы межслойного обмена J при различных температурах T, рассчитанные для структуры ферромагнетик|MnF$_2$ при $h = 20$ nm. Чтобы удовлетворить граничному условию при $z = d$, толщина антиферромагнетика d была выбрана равной $5l_c$. Тогда параметр порядка при $z = d$ практически достигает невозмущенного значения L_0 при любой температуре. Из рис. 3, *a* видно, что Δs растет по мере удаления от T_N. Однако в рамках построенной модели не представляется возможным определить температуру, при которой Δs примет максимальное значение, поскольку мы считали, что выполнено условие $l_d/l_c \ll 1$.

Переключение между состояниями с $\phi = \pm\pi/2$ и $\phi = 0, \pi$ может быть осуществлено посредством приложения внешнего магнитного поля **H**. Определим величину такого поля переключения H_{sw}. Для этого сначала заметим, что с учетом (5)–(8) свободную энергию F можно переписать в виде

$$F = -\frac{\beta}{4}\int_0^\infty L^4(z)dz. \tag{17}$$

В силу $J_\parallel \ll J_\perp$ имеем $L_\parallel(z) \le L_\perp(z)$, и состояние с $\phi = \pm\pi/2$ обладает наименьшей свободной энергией. Тогда объемную плотность эффективной свободной энергии рассматриваемой системы в присутствие магнитного поля можно представить в виде

$$f_{\text{eff}} = \frac{1}{2}K_{\text{eff}}(\mathbf{M}\cdot\hat{\mathbf{x}})^2 - (\mathbf{MH}), \tag{18}$$

где $K_{\text{eff}} = 2\Delta F/(M^2 h) > 0$ — постоянная эффективной анизотропии (легкая плоскость), $\Delta F = F_\parallel - F_\perp$ — разность свободных энергий (17). Для переключения между состояниями поле **H** необходимо прикладывать вдоль легкой оси антиферромагнетика. Минимизируя f_{eff} относительно угла ϕ, найдем $H_{sw} = K_{\text{eff}} M$. На рис. 3, *b* изображены зависимости поля переключения H_{sw} от константы межслойного обмена J при различных температурах T, рассчитанные для структуры ферромагнетик|MnF$_2$ при $h = 20$ nm и $d = 5l_c$. Как можно видеть, переключение между состояниями осуществляется в достаточно малом поле, наибольшая величина которого составляет около 150 Oe. При этом величина Δs, соответствующая этому полю, сравнима с Δs в объемном Gd в поле 10 kOe [26].

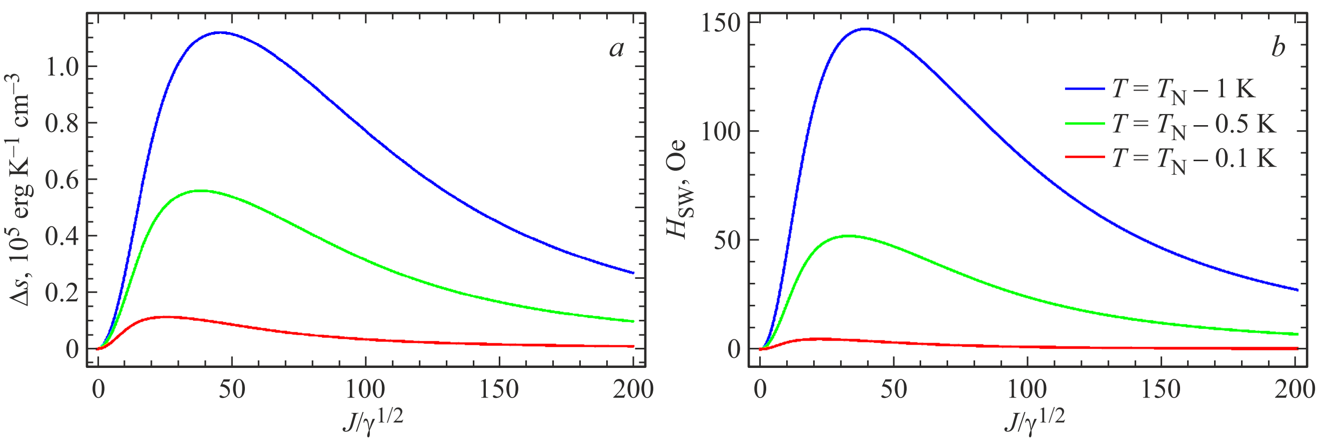

Рис. 3. Зависимости *a*) изотермического изменения энтропии Δs и *b*) поля переключения H_{sw} от константы межслойного обмена J при различных температурах T, рассчитанные для структуры ферромагнетик/MnF$_2$ в случае скомпенсированной границы.

3. Случай нескомпенсированной границы

Будем теперь считать границу антиферромагнетика нескомпенсированной (рис. 1, c). Тогда во вкладе F_s (формула (3)) вместо слагаемого $-J(\mathbf{mM})\big|_{z=0}$ следует взять взаимодействие намагниченности $\mathbf{M}$ с намагниченностью только одной из двух подрешеток (для определенности, $\mathbf{m}_1$), т. е.

$$F_s = \int_0^\infty \left(\frac{\gamma_0}{2}\left(\frac{d\mathbf{m}}{dz}\right)^2 + \frac{1}{2\chi}\,\mathbf{m}^2 + \frac{\Delta}{2}\,(\mathbf{mL})^2 + \frac{\delta}{2}\,\mathbf{m}^2\mathbf{L}^2\right)dz - \frac{J}{2}\,(\mathbf{mM})\big|_{z=0} - \frac{J}{2}\,(\mathbf{ML})\big|_{z=0}, \tag{19}$$

где была использована связь $\mathbf{m}_1 = (\mathbf{m}+\mathbf{L})/2$. Тогда после вычисления намагниченности $\mathbf{m}$ и подстановки в F_s (см. Приложение), получаем

$$F_s \approx \frac{\chi^{3/2}J^2}{16\gamma_0^{1/2}}\left(\delta\mathbf{M}^2\mathbf{L}^2 + \Delta(\mathbf{ML})^2\right)\big|_{z=0} - \frac{J}{2}\,(\mathbf{ML})\big|_{z=0}, \tag{20}$$

Формула (20) отличается от формулы (4), справедливой для случая скомпенсированной границы, во-первых, коэффициентом при первом слагаемом, во-вторых, дополнительным слагаемым, линейным по J и $\mathbf{L}$. Как мы увидим ниже, появление этого слагаемого существенно отразится на магнитокалорических свойствах рассматриваемой системы. Минимизируя свободную энергию F по модулю L и углу θ, мы снова придем к уравнениям (5) и (6), однако теперь граничные условия при $z=0$ будут иметь следующий вид:

$$\frac{dL}{dz}\bigg|_{z=0} = \frac{\chi^{3/2}J^2M^2}{8\gamma\gamma_0^{1/2}}\,L\big(\delta + \Delta\cos^2(\theta-\phi)\big)\big|_{z=0} - \frac{JM}{2\gamma}\,\cos(\theta-\phi)\big|_{z=0}, \tag{21}$$

$$L^2\,\frac{d\theta}{dz}\bigg|_{z=0} = -\frac{\chi^{3/2}J^2M^2\Delta}{8\gamma\gamma_0^{1/2}}\,L^2\cos(\theta-\phi)\sin(\theta-\phi)|_{z=0} + \frac{JM}{2\gamma}\,L\sin(\theta-\phi)\big|_{z=0}. \tag{22}$$

При $z\to\infty$ угол θ и модуль L достигают невозмущенных значений, т. е. $\theta(z\to\infty)=0$ и $L(z\to\infty)=L_0$. Дифференцируя свободную энергию по температуре с учетом (5), (6), (21) и (22), мы снова придем к формуле (9) для объемной плотности магнитной энтропии системы. Как и в случае скомпенсированной границы, магнитная энтропия определяется средним по толщине антиферромагнетика квадратом параметра порядка $\overline{L^2}$, величина которого зависит от направления вектора $\mathbf{M}$.

Рассмотрим сначала случай параллельной ориентации вектора $\mathbf{M}$ по отношению к легкой оси анизотропии антиферромагнетика. В отличие от случая скомпенсированной границы, состояния с $\phi=0$ и $\phi=\pi$ отличаются друг от друга из-за появления линейного слагаемого в формуле (20). Мы ограничимся рассмотрением только случая с $\phi=0$. Как и ранее, будем сначала считать, что угол θ мал. Тогда в первом приближении в уравнении (5) можно положить $\theta=0$. С учетом нового граничного условия (21) имеем

$$L_\parallel(z) = \begin{cases} L_0\,\mathrm{cth}\,\frac{z+z_\parallel}{\sqrt{2}l_c}, & J\le J_0,\\ L_0\,\mathrm{th}\,\frac{z+z_\parallel}{\sqrt{2}l_c}, & J\ge J_0,\end{cases} \tag{23}$$

где $J_0 = 2J_\parallel^2/J_c$, $J_c = \sqrt{2}\gamma L_0/(Ml_c)$. Постоянная $z_\parallel$ может быть определена из уравнения

$$\frac{L_\parallel(0)}{L_0} = \sqrt{1 + \left(\frac{J}{2J_\parallel}\right)^4 + \frac{J}{J_c}} - \left(\frac{J}{2J_\parallel}\right)^2. \tag{24}$$

Достаточно близко к температуре Нееля справедливо $J_c \ll J_\parallel \ll J_0$. При малом межслойном обмене ($J\ll J_c$) имеем $L_\parallel(0)/L_0 \approx 1 + J/(2J_c)$, т. е. величина параметра порядка на границе раздела превосходит объемное значение L_0, чего не наблюдалось в случае скомпенсированной границы. Максимум $L_\parallel(0)/L_0$ составляет около $0.8(J_\parallel/J_c)^{2/3}$ и достигается при $J\approx 2^{-1/3}J_0^{2/3}J_c^{1/3}$. При $J=J_0$ имеем $L_\parallel(0)/L_0 = 1$, а при $J>J_0$ происходит подавление антиферромагнитного порядка. Наконец, при большом межслойном обмене ($J\gg J_0$) имеем $L_\parallel(0)/L_0 \approx J_0/J$. Покажем, что в случае $\phi=0$ вектор $\mathbf{L}$ параллелен вектору $\mathbf{M}$, т. е. $\theta_\parallel(z)=0$, при любых J. Пусть снова $l_d/l_c \ll 1$, что всегда может быть выполнено в окрестности T_N. Тогда в уравнении (6) можно пренебречь слагаемым, пропорциональным dL/dz, после чего мы приходим к уравнению (10), решение которого имеет вид (11), где вместо (12) имеем

$$\cos\theta_\parallel(0) = \left(\frac{2J_\theta}{J}\right)^2\left(1 + \frac{JMl_d}{2\gamma}\,\frac{1}{L_\parallel(0)}\right). \tag{25}$$

С ростом постоянной J величина $\cos\theta_\parallel(0)$ монотонно убывает. В пределе $J\to\infty$ имеем $\cos\theta_\parallel(0)=1$. Таким образом, решением уравнения (10) является $\theta_\parallel(z)=0$.

Рассмотрим случай перпендикулярной ориентации вектора $\mathbf{M}$ по отношению к легкой оси анизотропии антиферромагнетика ($\phi=\pm\pi/2$). В отличие от случая скомпенсированной границы, вектор $\mathbf{L}$ будет отклоняться от направления легкой оси, и это отклонение может быть значительным. Однако поскольку $l_d/l_c \ll 1$, то в первом приближении, которым мы и ограничимся, в уравнении (5) можно пренебречь слагаемыми, содержащими θ, а в уравнении (6) пренебречь слагаемым, содержащим dL/dz. Тогда уравнения на L и θ снова разделятся, а связь L и θ будет учтена в граничных условиях (21) и (22). Решения полученных уравнений имеют вид

$$L_\perp(z) = \begin{cases} L_0\,\mathrm{cth}\,\frac{z+z_\perp}{\sqrt{2}l_c}, & J\le J_0,\\ L_0\,\mathrm{th}\,\frac{z+z_\perp}{\sqrt{2}l_c}, & J\ge J_0,\end{cases} \tag{26}$$

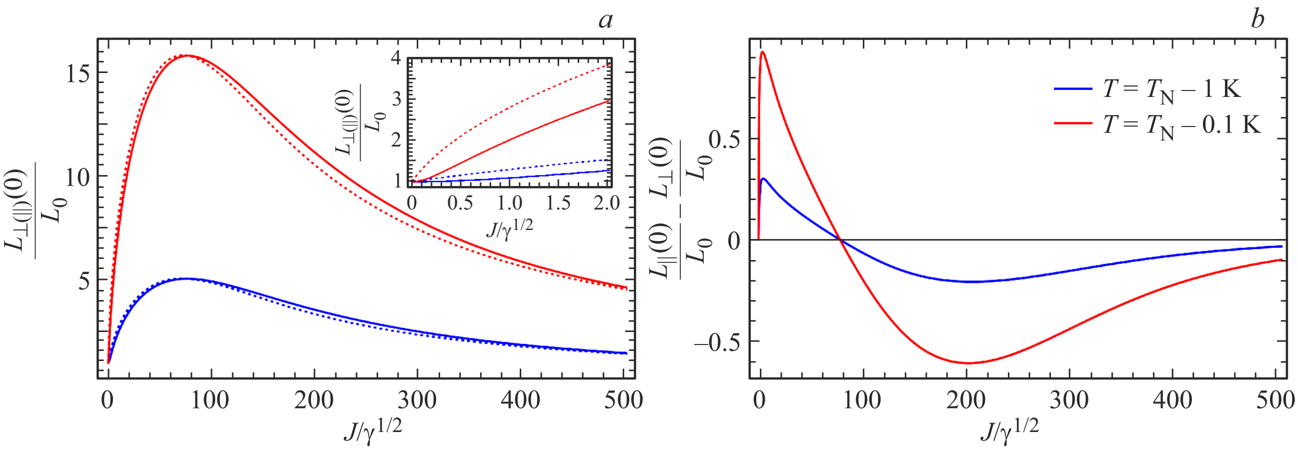

Рис. 4. Зависимости *a*) модуля параметра порядка на нескомпенсированной границе раздела $L_{\perp(\parallel)}(0)$ и *b*) разности $L_{\parallel}(0) - L_{\perp}(0)$ от константы межслойного обмена J при различных температурах T, рассчитанные для структуры ферромагнетик|MnF_2. Сплошные линии на рис. 4, *a* соответствуют случаю перпендикулярного направления ($\perp$) намагниченности ферромагнетика $\mathbf{M}$ по отношению к легкой оси анизотропии антиферромагнетика, пунктирные — случаю параллельного направления ($\parallel$, $\phi = 0$). На вставке показаны те же зависимости для малых значений константы J.

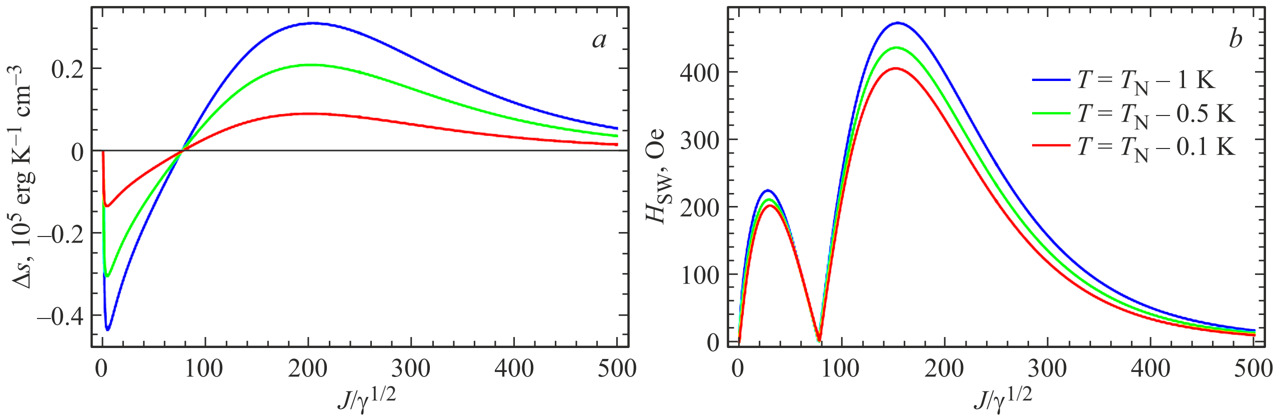

Рис. 5. Зависимости *a*) изотермического изменения энтропии Δs и *b*) поля переключения H_{sw} от константы межслойного обмена J при различных температурах T, рассчитанные для структуры ферромагнетик|MnF_2 в случае нескомпенсированной границы.

$$\cos\theta_{\perp}(z) = \operatorname{th}\frac{z + z_{\theta}^{\perp}}{l_d}, \qquad (27)$$

Постоянные $z_{\perp}$ и $z_{\theta}^{\perp}$ могут быть определены из следующих уравнений:

$$\frac{L_{\perp}(0)}{L_0} = \sqrt{1 + \left(\frac{J}{2J_{\perp}}\right)^4 \left(1 + \frac{\Delta}{\delta}\sin^2\theta_{\perp}(0)\right)^2 + \frac{J}{J_c}\sin\theta_{\perp}(0)} - \left(\frac{J}{2J_{\perp}}\right)^2 \left(1 + \frac{\Delta}{\delta}\sin^2\theta_{\perp}(0)\right), \qquad (28)$$

$$1 + \frac{J}{J_c}\,\frac{\left(\frac{2J_\theta}{J}\right)^2 \sin\theta_{\perp}(0)\operatorname{tg}\theta_{\perp}(0) - \frac{\delta}{\Delta}}{\sin\theta_{\perp}(0) + \left(\frac{2J_\theta}{J}\right)^2 \operatorname{tg}\theta_{\perp}(0)} - \frac{\left(\frac{2J_\theta}{J}\right)^2 \left(\frac{2J_\theta}{J_d}\right)^2}{\left(\sin\theta_{\perp}(0) + \left(\frac{2J_\theta}{J}\right)^2 \operatorname{tg}\theta_{\perp}(0)\right)^2}, \qquad (29)$$

где $J_d = 2\gamma L_0/(Ml_d)$. Достаточно близко к температуре Нееля выполняется $J_c \ll J_d \ll J_{\perp}(J_\theta) \ll J_0$. При слабом обменном взаимодействии слоев ($J \ll \sqrt{J_c J_d}$) из формул (28), (29) получаем, что $\theta_{\perp}(0) \approx J/J_d$ и $L_{\perp}(0)/L_0 \approx 1 + J^2/(2J_c J_d)$. В отличие от случая $\phi = 0$, при увеличении J рост параметра порядка происходит медленнее. При $J \gg 2(\Delta/\delta)^{1/2} J_\theta$ угол $\theta_{\perp}(0)$ приближается к $\pi/2$ так, что $\operatorname{tg}\theta_{\perp}(0) \approx (\delta/\Delta)\big(J/(2J_\theta)\big)^2$. При этом, поскольку $\Delta \gg \delta$, то $L_{\perp} \to L_{\parallel}$. При $J > J_0$ происходит подавление антиферромагнитного порядка. Наконец, при большом межслойном обмене ($J \gg J_0$) имеем $L_{\perp}(0)/L_0 \approx J_0/J$. На рис. 4, *a* и *b* изображены зависимости $L_{\perp(\parallel)}(0)$ и $L_{\parallel}(0) - L_{\perp}(0)$ от константы межслойного обмена J при различных температурах T, рассчитанные для структуры ферромагнетик|MnF_2. Расчет угла $\theta_{\perp}(0)$ производился численно из уравнения (29). Как можно видеть, при некотором значении J происходит изменение знака разности $L_{\parallel}(0) - L_{\perp}(0)$. Действительно, при $J \ll J_c$ имеем $L_\parallel(0)/L_0 - L_\perp(0)/L_0 \approx J/(2J_c)$, а при $J \gg J_0$ — $L_\parallel(0)/L_0 - L_\perp(0)/L_0 \propto -1/J^5$.

Вычисление изотермического изменения энтропии $\Delta s = s_\parallel - s_\perp$ согласно (9), снова приводит нас к формулам (15) и (16). На рис. 5,a изображены зависимости Δs от константы межслойного обмена J при различных температурах T, рассчитанные для структуры ферромагнетик|MnF_2 при $h = 20\,\mathrm{nm}$ и $d = 5l_c$. Пары максимумов этих зависимостей связаны вышеописанными особенностями разности $L_\perp(0) - L_\parallel(0)$ в зависимости от константы J. Как и в случае скомпенсированной границы, Δs растет по мере удаления от T_N. Однако в рамках построенной модели не представляется возможным определить температуру, при которой Δs примет максимальное значение, поскольку должно быть $l_d/l_c \ll 1$.

Определим теперь величину поля переключения H_sw. Для этого с учетом (5), (6), (21) и (22) перепишем свободную энергию F в виде

$$F = -\frac{\beta}{4}\int_0^\infty L^4(z)dz - \frac{J}{4}ML\cos(\theta-\phi)\big|_{z=0}. \qquad (30)$$

При $J \ll J_c$ имеем $\Delta F = F_\parallel - F_\perp \propto -J$, а при $J \gg J_0$ — $\Delta F \propto 1/J^4$. Таким образом, при большом межслойном обмене наименьшей свободной энергией обладает состояние с $\phi = \pm\pi/2$, а объемную плотность эффективной свободной энергии рассматриваемой системы в присутствии магнитного поля можно представить в виде (18). В этом случае $H_\mathrm{sw} = K_\mathrm{eff}M = 2\Delta F/(Mh)$. В обратном случае наименьшей свободной энергией обладает состояние с $\phi = 0$, а эффективная свободная энергия f_eff может быть представлена в виде

$$f_\mathrm{eff} = -\mathbf{M}(\mathbf{H} + \mathbf{H}_\mathrm{eb}), \qquad (31)$$

где $\mathbf{H}_\mathrm{eb}$ — поле обменного смещения, направленное вдоль оси x. Минимизируя f_eff относительно угла ϕ, найдем $H_\mathrm{sw} \approx H_\mathrm{eb} = -\Delta F/(Mh)$. На рис. 5,$b$ изображены зависимости поля переключения H_sw от константы межслойного обмена J при различных температурах T, рассчитанные для структуры ферромагнетик|MnF_2 при $h = 20\,\mathrm{nm}$. Таким образом, переключение между состояниями с $\phi = 0$ и $\phi = \pm\pi/2$ осуществляется в достаточно малом поле, величина которого при наибольшем изотермическом изменении магнитной энтропии $\Delta s \approx -0.4\cdot 10^5\,\mathrm{erg\cdot K^{-1}\cdot cm^{-3}}$ составляет порядка 100 Oe.

4. Заключение

В рамках теории Ландау фазовых переходов второго рода рассчитано изотермическое изменение магнитной энтропии Δs для структуры ферромагнетик|MnF_2 в случаях скомпенсированной и нескомпенсированной границ MnF_2. Показано, что характер зависимости Δs от постоянной межслойного обмена J существенно зависит от типа границы: в случае скомпенсированной границы Δs имеет только один пик (рис. 3,a), а в случае нескомпенсированной границы — два пика с разными знаками (рис. 5,a). Изотермическое изменение магнитной энтропии в случае скомпенсированной границы может достигать $1\cdot 10^5\,\mathrm{erg\cdot K^{-1}\cdot cm^{-3}}$ в поле 150 Oe, а в случае нескомпенсированной границы — $\Delta s \approx -0.4\cdot 10^5\,\mathrm{erg\cdot K^{-1}\cdot cm^{-3}}$ в поле 100 Oe. В рассматриваемой структуре межслойное обменное взаимодействие приводит к усилению МКЭ. Действительно, Δs в отдельном слое MnF_2 в поле 150 Oe составляет всего $2\,\mathrm{erg\cdot K^{-1}\cdot cm^{-3}}$ [17], что на 4–5 порядков меньше. Полученные результаты могут оказаться полезны для разработки микро- и наноразмерных холодильных устройств, работающих при малых магнитных полях.

Построенная модель позволяет сформулировать критерии, которым должен удовлетворять антиферромагнитный материал в структуре ферромагнетик|антиферромагнетик, для достижения значительного МКЭ. Во-первых, искомый материал должен иметь сильную магнитную анизотропию (постоянная K_a), а во-вторых, отношение Δ/δ должно быть как можно бóльшим. Удовлетворение этим критериям позволяет добиться максимального изменения модуля параметра порядка антиферромагнетика при вращении обменного поля. Таким образом, необходимо подбирать антиферромагнетики с большим полем спин-флоп-перехода и сильной зависимостью от направления внешнего поля полей перехода между антиферромагнитной и парамагнитной фазами [18,21].

Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке гранта Фонда развития теоретической физики и математики „БАЗИС“, а также с использованием средств государственного бюджета по государственному заданию на 2024–2026 гг. (№ FFUF-2024-0021).

Конфликт интересов

Автор заявляет, что у него нет конфликта интересов.

Приложение

Вычислим намагниченность $\mathbf{m}$, индуцированную в антиферромагнетике со скомпенсированной границей за счет обменной связи с ферромагнетиком. Минимизация по $\mathbf{m}$ вклада F_s (формула (3)) приводит к следующему уравнению и граничному условию:

$$\gamma_0\frac{d^2\mathbf{m}}{dz^2} - \frac{1}{\chi}\mathbf{m} - \Delta(\mathbf{mL})\mathbf{L} - \delta\mathbf{L}^2\mathbf{m} = 0, \qquad (A1)$$

$$\frac{d\mathbf{m}}{dz}\Big|_{z=0} = -\frac{J}{\gamma_0}\mathbf{M}. \qquad (A2)$$

По мере удаления от границы раздела намагниченность должна уменьшаться, так что необходимо ввести дополнительное граничное условие $\mathbf{m}(z \to \infty) = 0$. Будем считать, что пространственный масштаб у $\mathbf{L}$ значительно больше, чем у $\mathbf{m}$. В этом случае в уравнении (A1) $\mathbf{L}(z) \approx \mathbf{L}(0)$, и его решение можно записать в виде

$$\mathbf{m}(z) = \frac{J}{\gamma_0 q}\Bigg(\mathbf{M}\exp(-qz) + \left(\frac{q}{p}\exp(-pz) - \exp(-qz)\right)(\mathbf{M}\hat{\mathbf{L}})\hat{\mathbf{L}}\Bigg), \quad \text{(A3)}$$

где

$$\hat{\mathbf{L}} = \mathbf{L}/L, \quad q^2 = (1 + \chi\delta\mathbf{L}^2)/(\chi\gamma_0)$$

и

$$p^2 = \big(1 + \chi(\Delta + \delta)\mathbf{L}^2\big)/(\chi\gamma_0).$$

Используя уравнение (A1), а также граничное условие (A2), приведем F_s к виду

$$F_s = -\frac{J}{2}\,(\mathbf{mM})\big|_{z=0}. \quad \text{(A4)}$$

Наконец, после подстановки $\mathbf{m}(0)$ и разложения F_s до $\mathbf{L}^2$, приходим к формуле (4).

В случае нескомпенсированной границы в формулах (A2) и (A3) следует заменить J на $J/2$, а вместо (A4) имеем

$$F_s = -\frac{J}{4}\,(\mathbf{mM})\big|_{z=0} - \frac{J}{2}(\mathbf{ML})\big|_{z=0}. \quad \text{(A5)}$$

Тогда вместо (4) получаем формулу (20).

Список литературы

[1] P. Weiss, A. Piccard. J. Phys. Theor. Appl. **7**, *1*, 103 (1917).
[2] A.M. Tishin, Y.I. Spichkin. The Magnetocaloric Effect and Its Applications. CRC Press, Boca Raton (2016). 475 p.
[3] V. Franco, J.S. Blázquez, J.J. Ipus, J.Y. Law, L.M. Moreno-Ramírez, A. Conde. Prog. Mater. Sci. **93**, 112 (2018).
[4] N.R. Ram, M. Prakash, U. Naresh, N. Suresh Kumar, T.S. Sarmash, T. Subbarao, R. Jeevan Kumar, G. Ranjith Kumar, K.C. Babu Naidu. J. Supercond. Nov. Magn. **31**, *7*, 1971 (2018).
[5] A.P. Kamantsev, Yu.S. Koshkidko, E.O. Bykov, T. Gottschall, A.G. Gamzatov, A.M. Aliev, A.G. Varzaneh, P. Kameli. Appl. Phys. Lett. **123**, *20*, 202405 (2023).
[6] Yu.S. Koshkid'ko, J. Ćwik, T.I. Ivanova, S.A. Nikitin, M. Miller, K. Rogacki. J. Magn. Magn. Mater. **433**, 234 (2017).
[7] А.А. Фраерман, И.А. Шерешевский. Письма в ЖЭТФ **101**, *9*, 693 (2015). [A.A. Fraerman, A. Shereshevskii. JETP Lett. **101**, *9*, 618 (2015).]
[8] M.A. Kuznetsov, I.Y. Pashenkin, N.I. Polushkin, M.V. Sapozhnikov, A.A. Fraerman. J. Appl. Phys. **127**, *18*, 183904 (2020).
[9] М.А. Кузнецов, А.Б. Дровосеков, А.А. Фраерман. ЖЭТФ **159**, *1*, 95 (2021). [M.A. Kuznetsov, A.B. Drovosekov, A.A. Fraerman. JETP **132**, *1*, 79 (2021).]
[10] M. Persson, M.M. Kulyk, A.F. Kravets, V. Korenivski. J. Phys.: Condens. Matter **35**, *7*, 075801 (2023).
[11] S.N. Vdovichev, N.I. Polushkin, I.D. Rodionov, V.N. Prudnikov, J. Chang, A.A. Fraerman. Phys. Rev. B **98**, *1*, 014428 (2018).
[12] D.M. Polishchuk, Y.O. Tykhonenko-Polishchuk, E. Holmgren, A.F. Kravets, A.I. Tovstolytkin, V. Korenivski. Phys. Rev. Mater. **2**, *11*, 114402 (2018).
[13] N.I. Polushkin, I.Y. Pashenkin, E. Fadeev, E. Lähderanta, A. Fraerman. J. Magn. Magn. Mater. **491**, 165601 (2019).
[14] И.Ю. Пашенькин, Н.И. Полушкин, М.В. Сапожников, Е.С. Демидов, Е.А. Кравцов, А.А. Фраерман. ФТТ **64**, *10*, 1359 (2022). [I.Y. Pashenkin, N.I. Polushkin, M.V. Sapozhnikov, E.S. Demidov, E.A. Kravtsov, A.A. Fraerman. Phys. Solid State **64**, *10*, 1343 (2022).]
[15] M. Kulyk, M. Persson, D. Polishchuk, V. Korenivski. J. Phys. D: Appl. Phys. **56**, *2*, 025002 (2023).
[16] I.Y. Pashenkin, R.V. Gorev, M.A. Kuznetsov, D.A. Tatarskiy, S.A. Churin, P.A. Yunin, M.N. Drozdov, D.O. Krivulin, M.V. Sapozhnikov, E.S. Demidov, V.A. Skuratov, E.V. Kudyukov, G.V. Kurlyandskaya, A.A. Fraerman, N.I. Polushkin. J. Phys. Chem. C **128**, *21*, 8853 (2024).
[17] M.A. Kuznetsov, E.A. Karashtin. Phys. Rev. B **109**, *22*, 224432 (2024).
[18] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Теоретическая физика: Учеб. пособ.: Для вузов. В 10 т. Т. VIII. Электродинамика сплошных сред. Физматлит, М. (2005). 652 с.
[19] W.H. Meiklejohn, C.P. Bean. Phys. Rev. **102**, *5*, 1413 (1956).
[20] W.H. Meiklejohn, C.P. Bean. Phys. Rev. **105**, *3*, 904 (1957).
[21] А.С. Боровик-Романов. Лекции по низкотемпературному магнетизму. Магнитная симметрия антиферромагнетиков. Институт физических проблем им. П.Л. Капицы РАН, М. (2010). 56 с.
[22] H. Bizette, B. Tsai. Compt. Rend. Acad. Sci. Ser. **238**, 1575 (1954).
[23] Y. Shapira, S. Foner. Phys. Rev. B **1**, *7*, 3083 (1970).
[24] P. Nordblad, L. Lundgren, E. Figueroa, O. Beckman. J. Magn. Magn. Mater. **23**, *3*, 333 (1981).
[25] J. Barak, V. Jaccarino, S.M. Rezende. J. Magn. Magn. Mater. **9**, *4*, 323 (1978).
[26] R. Bjørk, C.R.H. Bahl, A. Smith, N. Pryds. Int. J. Refrig. **33**, *3*, 437 (2010).

Редактор Е.В. Толстякова