

退火诱导 CoFeB/Gd/CoFeB 界面互扩散 及磁动态演化机制*

李昌锋^{1),2)✉}, 罗凯尤^{1),2)✉}, 张雪枫^{1),2)}, 张宏艳^{1),2)}, 韩梦瑶^{1),2)}, 高俊妍^{1),2)}, 张英德^{2),3)†}, Alexander Petrov⁴⁾, 朴红光^{1),2)†}, Kalanda Nikolay⁴⁾.

1) (延边大学理学院物理系, 吉林 延吉 133002, 中国)

2) (延边大学量子科学与技术研究院, 吉林 延吉 133002, 中国)

3) (包头稀土研究院, 白云鄂博稀土资源研究与综合利用全国重点实验室, 内蒙古 包头 014030, 中国)

4) (白俄罗斯国家科学院科学实用材料研究中心, 明斯克 220072, 白俄罗斯)

摘 要

基于稀土/过渡金属 (rare-earth/transition-metal, RE/TM) 体系的复合磁性结构在高密度、低功耗自旋电子器件中具有重要应用潜力。其中, 界面元素扩散及其引起的局域磁结构演化会显著影响磁耦合和自旋动力学行为。本文以 CoFeB/Gd/CoFeB 三层膜为研究对象, 系统研究了 100~500℃退火处理对其界面结构、静态磁性和高频动态磁响应的影响。实验结果表明, 低温退火样品仍主要表现为 CoFeB 主导的铁磁响应; 当退火温度升高至 400℃和 500℃时, 样品的磁滞回线明显展宽, 说明高温退火诱导的界面扩散和磁性非均匀性显著改变了磁化翻转过程。铁磁共振 (ferromagnetic resonance, FMR) 测试显示, 低温退火样品主要表现为单一共振响应, 而 300℃退火后 FMR 谱线由单峰演化为可分辨的双峰结构。进一步的变温和多频 FMR 结果表明, 两个共振分支在较宽温度范围内均稳定存在, 且峰位和峰间距随温度变化不明显, 说明传统层间反铁磁耦合并不是导致峰劈裂的主导因素。结合透射电子显微镜、能谱分析和微磁学模拟, 本文认为退火促进了 Gd 向相邻 CoFeB 层扩散, 并在 Gd/CoFeB 界面附近形成局域 Gd-CoFeB 互混区域。该区域与残余 CoFeB 铁磁区域具有不同的有效磁参数, 从而在高频激发下形成两个动态响应通道, 并导致 FMR 双峰结构的出现。该研究揭示了 CoFeB/Gd/CoFeB 多层膜中退火诱导界面互扩散、静态磁性演化和高频动态响应之间的内在关联, 为含稀土元素的 CoFeB 复合自由层的热处理调控和器件设计提供了实验依据。

1

2 **关键词：** CoFeB/Gd/CoFeB 三层膜；界面互扩散；铁磁共振；磁动态响应；稀土
3 -过渡金属互混

4 PACS: 75.70.Cn, 75.30.Gw, 75.40.Gb, 76.50.+g

5 * 国家自然科学基金(批准号: 12364020) 和吉林省科学技术厅科技发展规划(批
6 准号: 20240101295JC) 资助的课题.

7 # 同等贡献作者.

8 † 通信作者. E-mail: changkuohan@163.com

9 ‡ 通信作者. E-mail: hgpiao@ybu.edu.cn

10

11

录用稿件，非最终出版稿

1 引言

磁隧道结 (magnetic tunnel junction, MTJ) 与自旋轨道力矩 (spin-orbit torque, SOT) 器件是当前自旋电子学领域的重要研究平台, 在非易失性存储、自旋逻辑和新型计算硬件等方面具有广阔的应用前景^[1-4]。CoFeB 凭借其良好的非晶成膜特性, 以及退火后可在 MgO 界面发生取向晶化的能力, 已成为 MTJ 和 SOT 器件中常用的自由层材料^[2, 5, 6]。然而, 作为一种铁磁材料, CoFeB 垂直磁化自由层通常具有较大的净磁矩和杂散场, 这给器件尺寸的持续缩减和抗干扰设计带来了挑战^[7, 8]。为克服这一限制, 研究者开始将目光投向稀土-过渡金属 (rare-earth transition-metal, RE-TM) 亚铁磁材料。稀土 4f 磁矩与过渡金属 3d 磁矩通常呈反平行交换耦合。由于两个子晶格磁矩具有不同的温度依赖性, 其净磁矩可在特定成分或温度下发生补偿, 从而表现出低净磁矩和磁化补偿点等特征。这类材料的磁化强度、补偿温度以及磁动态响应可通过成分、温度和界面结构进行调控^[9-13]。在器件方面, 已有研究表明, GdCo 等亚铁磁合金能够实现无外场自旋轨道力矩翻转、多态翻转、忆阻行为和棘轮效应^[13]; 在 $\text{Gd}_y\text{Co}_{100-y}$ 合金中, 轨道力矩的符号和大小也可通过 Gd 含量进行调节^[14]。此外, 靠近补偿点时 CoGd 合金中的横向自旋流退相干长度被发现较普通铁磁金属增加约 4~5 倍, 表明亚铁磁有序会显著影响自旋流传输和自旋力矩作用过程^[15]。综上, 将 Gd 与 CoFeB 结合, 有望在保留 CoFeB 优势的同时, 利用亚铁磁交换耦合降低净磁矩, 并借助界面效应进一步拓展磁性调控途径。已有研究显示, CoFeB/Gd/CoFeB 复合垂直磁化层可用于三端 MTJ 并实现无外场自旋轨道力矩翻转^[16]; 在 Pt/Co/Gd 异质结构中, 增加 Gd 厚度会增强类 Slonczewski 力矩和类场力矩的有效场, 并改变有效自旋霍尔角和阻尼^[17]。 β -W/CoFeB 界面处的二维类 Gd 插层可通过 Gd-5d-Co-3d 轨道杂化增强垂直磁各向异性, 并借助增强的界面自旋轨道耦合和电子泄漏效应提升自旋轨道力矩效率^[18]。

然而, 这类复合结构中元素扩散问题不可忽视。在 Gd/Co 多层膜中, Co 与 Gd 之间存在显著的非对称互扩散, Co 更容易进入 Gd 层并在其内部形成接近共晶成分的非晶 Gd-Co 合金区域^[19]。即便采用名义上均匀的共溅射沉积, GdCoFe 合金薄膜中 Gd、Co 和 Fe 元素沿厚度方向仍可能出现非均匀分布, 并引起净磁化强度和 Gd 磁化剖面的空间变化^[20]。Vorobiov 等对 Co/Gd 多层膜的研究进一步

表明,退火可导致 Co/Gd 界面互混与合金化,并显著改变矫顽力、畴壁传播和磁翻转过程^[21]。尤其对于通常需要借助退火来优化性能的 CoFeB 基器件,退火诱导的界面扩散将显著影响磁性参数及磁动态响应^[5, 22-25]。

为此,本文以 CoFeB/Gd/CoFeB 三层膜为研究对象,系统研究退火温度对其界面结构、静态磁性及铁磁共振响应的影响。利用透射电子显微镜/能谱分析、磁化测量和多频铁磁共振实验,并结合微磁学模拟,重点探讨退火诱导的 Gd-CoFeB 界面演化及其对磁动态模式的作用。实验结果表明,退火促进了 Gd 与 CoFeB 层之间的界面互扩散,并引入空间非均匀的磁性响应;在适当的退火条件下,铁磁共振谱由单峰演化为双共振分支。综合峰形拟合、频率依赖关系和模拟分析,本文将这一现象归因于退火后界面扩散引起的磁参数非均匀性及多动态响应通道。该工作为理解 CoFeB/Gd/CoFeB 复合磁性层中界面扩散、静态磁性与高频动态响应之间的关系提供了实验依据,也为含稀土元素的 CoFeB 复合自由层的材料设计与退火工艺优化提供了参考。与已有主要关注静态磁性或器件翻转行为的研究不同,本文进一步从高频磁动态响应角度揭示了 Gd-CoFeB 界面互扩散对共振模式分化的影响。

2 实验方法

采用磁控溅射法在 Si/SiO₂衬底(合肥科晶材料技术有限公司)上沉积了 Ta(10 nm)/MgO(2 nm)/CoFeB(5 nm)/Gd(5 nm)/CoFeB(5 nm)/Ta(10 nm)多层膜。所用靶材包括 CoFeB 靶(合肥科晶,纯度 99.99%,原子比 Co:Fe:B = 4:4:2)、Ta 靶(合肥科晶,纯度 99.99%)、MgO 靶(合肥科晶,纯度 99.99%)和 Gd 靶(包头稀土研究院,纯度 99.99%)。溅射腔体本底真空度优于 1×10^{-4} Pa,沉积过程中以高纯 Ar(纯度 $\geq 99.999\%$)作为工作气体。所有膜层均在室温下依次沉积,靶材与基底之间的距离约为 8~10 cm。为避免界面氧化与污染,整个多层膜沉积过程连续完成,中途未破真空。各靶材的溅射参数如下:CoFeB 溅射功率 40 W、溅射气压 0.7 Pa;Ta 溅射功率 60 W、溅射气压 0.8 Pa;Gd 溅射功率 40 W、溅射气压 0.3 Pa;MgO 溅射功率 80 W、溅射气压 0.4 Pa。各膜层的沉积速率均通过预先标定获得,以保证薄膜厚度误差控制在 ± 0.1 nm 以内。为研究热处理对界面结构和磁学性质的影响,将沉积后的样品在真空环境中进行退火处理。退火

温度分别设定为 100℃、200℃、300℃、400℃和 500℃，升温速率为 5℃/min，达到目标温度后保温 30 min，随后随炉冷却至室温。退火过程中腔体真空度优于 1×10^{-5} Pa，以尽量降低氧化对界面结构的影响。

利用透射电子显微镜 (TEM, JEOL-2010F) 结合能量色散 X 射线谱 (EDS) 表征退火后样品的截面微观结构和元素分布。静态磁性测量包括面内包括磁滞回线 ($M-H$) 和磁化强度-温度曲线 ($M-T$)，其中 $M-H$ 采用振动样品磁强计 (VSM, Quantum Design VersaLab) 测量，磁场扫描范围为 $-8000 \sim 8000$ Oe，步长 10 Oe。 $M-T$ 曲线测量采用超导量子干涉仪 (Quantum Design SQUID-VSM)，温度范围为 2~300 K，温度步长 1 K。高频磁动态响应通过铁磁共振 (FMR) 测试获得，测试在 Quantum Design VersaLab 系统上进行，频率范围为 9~14 GHz，外磁场沿薄膜面内方向扫描，磁场范围 0~2000 Oe，步长 10 Oe。

3 分析与讨论

3.1 退火诱导的界面扩散与静态磁性演化

透射电子显微镜 (TEM) 与能量色散 X 射线谱 (EDS) 线扫描结果如图 1 所示。图 1(a) 为 Ta/MgO/CoFeB/Gd/CoFeB/Ta 多层膜的结构示意图。由图 1(b) 可见，未退火样品中各功能层呈现清晰的层状衬度，界面连续且整体平整，表明沉积态下样品保持了良好的层状结构。图 1(c) 和 (d) 分别给出了未退火和 300℃退火样品的截面 EDS 线扫描结果。未退火样品中，Gd 信号主要集中在中间 Gd 层，Co 和 Fe 信号则分布于上、下 CoFeB 层，各元素在界面附近变化陡峭，反映出沉积态 Gd/CoFeB 界面较为清晰。经 300℃退火后，Gd、Co 和 Fe 信号在 Gd/CoFeB 界面附近明显展宽，元素重叠区域增大，其中 Gd 信号向相邻 CoFeB 层延伸，Co 和 Fe 信号在 Gd 层附近也更为明显，表明退火促进了 Gd 与 CoFeB 层之间的界面互扩散。这种界面互扩散将改变 Gd/CoFeB 界面附近的局域磁环境。已有研究表明，在 Gd/Co 或 Gd/Fe 等稀土-过渡金属体系中，界面混合常伴随非晶或纳米晶合金化区域的形成^[19, 21, 26-28]。由于 Gd 的 4f 磁矩通常与 Co/Fe 的 3d 磁矩呈反平行交换耦合，退火后形成的 Gd-CoFeB 互混区域可能具有不同于原始 CoFeB 铁磁层的有效磁化强度和动态响应特征。

图 2 为不同退火温度下样品的室温静态磁性测量结果。图 2(a) 给出了样品的面内 $M-H$ 回线，其中主图为低场范围内的磁化翻转区域，插图为大场范

1 围内的完整 $M-H$ 回线。未退火以及 100°C、200°C 和 300°C 退火样品在低场附
2 近均表现出较陡直的磁化翻转行为,说明在该退火温度范围内,样品的磁响应仍
3 主要由 CoFeB 铁磁层贡献。与未退火样品相比,300°C 退火样品的矫顽力并未明
4 显增大,表明该样品中尚未形成强的长程层间反铁磁耦合。该结果也说明,300°C
5 样品中后续观察到的 FMR 双峰结构不能简单归因于传统层间反铁磁耦合增强,
6 而更可能与局域磁参数差异有关。

7 随着退火温度进一步升高,400°C 和 500°C 样品的 $M-H$ 回线明显展宽,并
8 呈现更强的倾斜特征,表明磁化反转过程变得更加分散。该现象可归因于高温退
9 火促进 Gd 与 CoFeB 层之间的界面互扩散,使界面附近形成更明显的成分梯度
10 和局域磁参数差异。成分和结构环境的不均匀会导致有效磁化强度、各向异性场
11 和交换作用在空间上发生变化,并增强畴壁运动过程中的钉扎效应。因此,400°C
12 和 500°C 样品回线的展宽和倾斜反映了高温退火后磁反转非均匀性的增强。

13 需要指出的是,多层膜在中高温退火下普遍发生显著的层间互扩散,甚至完
14 全破坏原有层状结构、形成界面固溶体或合金相,这一规律已在 Co/Pt、Al/Zr
15 及 Mo/Si 等多种多层膜体系中被直接的结构表征所证实^[45-47]。因此,对于 500°C
16 退火样品,其界面层状结构预期已被高温扩散显著破坏,截面 TEM/EDS 表征仅
17 能定性印证扩散加剧,而难以为本文核心关注的 300°C 双峰劈裂机制提供额外判
18 据。

19 另一方面需说明的是,退火后样品在高场下表现出较大的磁化强度,并不意
20 味着其低场净磁矩也同步增大。高温退火一方面促进 Gd 与 CoFeB 层之间的界
21 面互扩散,可能在界面附近形成局域 Gd-CoFeB 互混区域;另一方面也可能改善
22 CoFeB 层的磁有序程度,使 Co/Fe 磁矩排列更加充分。由于本文样品并不是成
23 分均一且接近磁补偿状态的稀土-过渡金属亚铁磁合金,而是由 CoFeB 主导铁
24 磁区域、Gd-CoFeB 局域互混区域和成分梯度区域共同构成的复合磁性体系,因
25 此其高场磁化行为仍可能由 CoFeB 主导区域和场诱导磁化贡献占主导。特别是
26 500°C 退火样品的 $M-H$ 回线在高场区仍呈现一定斜率,说明在大场范围内磁化
27 过程尚未完全饱和,测得的磁化强度包含磁矩逐步取向和非均匀磁性区域的高场
28 响应。因此,500°C 样品在高场下具有较大的磁化强度,与其在低场 $M-T$ 测量

中表现出降温减磁行为并不矛盾,而共同反映出高温退火后样品磁响应的场依赖性和磁参数非均匀性。

未退火样品和 300℃退火样品的 M 随温度变化较小,说明二者的低场净磁响应较为相似。这与图 2(a) 中 300℃样品仍主要表现为 CoFeB 主导铁磁响应的结果一致。相比之下,500℃退火样品在降温过程中表现出明显的磁化强度降低,说明高温退火后样品的低场净磁响应发生显著变化。该行为与稀土-过渡金属亚铁磁体系中的低场净磁响应具有相似性,但不能简单等同于成分均一 CoGd 或 Gd-CoFeB 亚铁磁合金的饱和磁化强度行为。

对于 CoFeB/Gd/CoFeB 三层膜而言,高温退火后形成的更可能是由残余 CoFeB 铁磁区域、Gd-CoFeB 局域互混区域以及成分梯度区域共同构成的复合磁性体系。Gd-CoFeB 互混区域可能引入局域亚铁磁响应,使低场净磁化强度呈现异常温度依赖;而残余 CoFeB 主导区域及场诱导磁化过程仍可使样品在较高外场下表现出较大的磁化强度。因此,500℃样品在低场 $M-T$ 测量中出现降温减磁行为,与其在高场 $M-H$ 测量中具有较大磁化强度并不矛盾,而共同反映了高温退火后样品磁响应的场依赖性和非均匀性。

此外,在 2~300 K 范围内,500℃样品并未出现清晰的磁矩补偿点。这可能与样品中 Gd/(Co+Fe) 比例的空间非均匀分布有关。不同局域区域可能具有不同的补偿温度,使可能存在的补偿特征在宏观 $M-T$ 曲线中被展宽或掩盖。因此,未观察到清晰补偿点并不排除局域亚铁磁响应的存在,而更可能说明高温退火后样品中存在明显的成分梯度和磁参数非均匀性。

综上,图 2 的静态磁性结果表明,低温退火样品仍主要表现为 CoFeB 主导的铁磁响应;300℃退火样品虽然在 $M-H$ 回线中未表现出明显矫顽力增强,但其界面互扩散已可能引入局域磁参数差异;进一步升高退火温度后,界面互扩散和磁性非均匀性显著增强,使磁化反转过程更加分散,并导致低场净磁响应出现异常温度依赖。这为后续讨论 FMR 双峰结构及多动态响应分支提供了静态磁性依据。

3.2 退火对高频动态磁响应的调控及机制甄别

高频磁动态响应进一步揭示了退火引起的磁环境演变。图 3(a) 为不同退火温度样品的铁磁共振导数谱。未退火及 100℃、200℃退火样品均呈现单一主共

振峰，表明较低退火温度下样品的动态响应仍由相对均一的 CoFeB 铁磁层主导。300℃退火后，原有单一 FMR 峰演化为两个可分辨的共振特征峰。结合双峰拟合和频率依赖的 Kittel^[32]分析，这两个分支对应不同的有效磁参数，表明退火后样品内部形成了磁动态响应不同的局域区域^[29-31]。退火温度继续升至 400℃和 500℃，信号整体减弱并展宽，双峰分辨率下降。这与前述静态磁性结果一致：高温退火加剧了界面互扩散和磁性非均匀性，使共振响应从清晰的双分支逐渐向强展宽的非均匀响应过渡。

为进一步分析 300℃退火样品的峰劈裂，图 3(b)给出了代表性 FMR 导数谱的双峰拟合。实验谱线可由两个导数洛伦兹分量叠加^[33-35]较好地描述，分别对应低场和高场两个共振分支。总拟合曲线与实验数据吻合良好，表明 300℃退火样品的 FMR 谱线不能简单归结为单一共振峰的展宽，更可能源于两个磁动态响应通道的叠加。

为判断双峰结构是否具有稳定的物理来源，对 300℃退火样品进行了多频变温 FMR 测量，结果如图 3(c)。在不同频率下，两条共振分支均可连续追踪，并且随着微波频率升高整体向高场方向移动。这一频率依赖关系符合薄膜铁磁共振的 Kittel 色散关系，说明这两个峰并非孤立的谱线畸变，而是具有明确频率响应的共振分支。

图 3(d)给出了 320 K 下两个共振分支的频率-共振场关系。两个分支均可分别用 Kittel 关系拟合^[31, 32, 36]：

$$f = \frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{(H_{\text{res}} + H_k)(H_{\text{res}} + H_k + 4\pi M_{\text{eff}})} \quad (1)$$

其中， f 为微波频率， γ 为旋磁比， H_{res} 为共振场， H_k 为有效各向异性场， $4\pi M_{\text{eff}}$ 为有效退磁场项。两个分支对应不同的拟合曲线，拟合结果如表一所示：

表 1 300℃退火样品两个 FMR 共振分支的 Kittel 拟合参数。

Table 1. Kittel fitting parameters of the two FMR resonance branches for the 300℃-annealed sample.

分支	H_{res}/Oe	线宽 $\Delta H/\text{Oe}$	$4\pi M_{\text{eff}}/\text{Oe}$	H_k/Oe	Kittel 拟合 R^2
1	641.168	55.245	16499.066	-37.061	0.999997
2	689.874	51.486	15798.416	-61.217	0.999994

注： ΔH 取自 9 GHz、320 K 下的双峰导数洛伦兹拟合结果，其中 ΔH 采用 FWHM； $4\pi M_{\text{eff}}$ 、 H_k 和 R^2 由 9~14 GHz 的 $f - H_{\text{res}}$ 关系进行 Kittel 拟合获得。

Note: ΔH was obtained from the double-peak derivative Lorentzian fitting at 9 GHz and 320 K, where ΔH is defined as the FWHM. The values of $4\pi M_{\text{eff}}$, H_k , and R^2 were obtained by fitting the $f - H_{\text{res}}$ relation over 9~14 GHz using the Kittel fitting.

这一结果进一步支持了“双动态响应分支”的解释，说明该双峰结构不宜简单归因于普通不均匀展宽或仪器相位畸变。若谱线变化仅来源于普通不均匀展宽或双磁子散射，通常应主要表现为单一共振峰的线宽增加、峰形不对称或共振场偏移^[37-39]。相比之下，本文中两个峰在 9~14 GHz 范围内均可连续追踪，并且分别满足 Kittel 色散关系，说明它们更可能对应两个具有不同有效磁参数的动态响应分支，而不是单一共振峰的简单展宽^[29, 32]。

结合前述 TEM/EDS 和静态磁性结果，300℃退火样品中的 FMR 峰劈裂可归因于退火诱导的 Gd-CoFeB 界面互扩散造成的磁响应分化。退火后，部分区域仍保持 CoFeB 主导的铁磁响应，而界面附近的 Gd-CoFeB 互混区则具有不同的有效磁化强度、各向异性场和阻尼特性。两类区域磁动态参数不同，在相同微波频率下对应不同的共振场，从而表现为两个可分辨的 FMR 分支。此外，图 2(a)中高温退火样品并未出现典型合成反铁磁结构中的阶梯式翻转或反铁磁耦合平台^[40, 41]，因此该峰劈裂更可能来自退火后局域磁环境差异导致的多动态响应，而非完整 Gd 层与 CoFeB 层之间的长程层间反铁磁耦合。总体而言，FMR 结果表明，适当退火使 CoFeB/Gd/CoFeB 多层膜从相对单一的铁磁动态响应演化为双分支响应；退火温度进一步升高后，加剧的界面互扩散和磁性无序则使共振谱线展宽，双峰分辨率随之降低。

3.3 微磁学模拟与有效物理模型

为检验退火诱导的界面互混能否解释 FMR 峰劈裂现象，我们利用 MuMax3 开展了微磁学模拟^[42]。模拟参数主要参照文献^[43]设定：CoFeB 层的饱和磁化强度取 $M_s = 1.2 \times 10^6$ A/m，交换常数取 $A_{\text{ex}} = 2.8 \times 10^{-12}$ J/m，阻尼系数 $\alpha = 0.02$ 。对

1 于 Gd 扩散形成的有效互混层,其磁性参数参考类似成分 Gd-Co 合金的文献值^[44],
2 并结合实验 FMR 数据进行了适当优化。

3 为提高计算效率,模拟中选取 $1000 \times 1000 \times 24 \text{ nm}^3$ 的有效区域进行计算。
4 根据交换长度 $\lambda_{\text{ex}} = \sqrt{2A_{\text{ex}}/(\mu_0 M_s^2)}$, 其中 $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7} \text{ N/A}^2$ 为真空磁导率,模
5 拟单元尺寸设为 $2.5 \times 2.5 \times 2 \text{ nm}^3$ 。模拟中外磁场沿 y 方向施加,微波激励场沿 x
6 方向施加,以驱动磁矩绕外场方向发生小角度进动;激励频率范围设置为 9~14
7 GHz,与实验 FMR 测量频率范围一致。

8 模拟的关键在于将退火引起的界面结构演化转化为有效的磁性模型。如图
9 4(a)-(c)所示,本文构建了三种模型以对应不同的退火阶段。未退火样品采用理
10 想 CoFeB/Gd/CoFeB 三层结构,不引入明显扩散层。300℃退火样品在 Gd/CoFeB
11 界面处引入一层有效互混层,用以等效退火诱导的 Gd-CoFeB 局域合金化区域;
12 该互混层具有独立的 M_s 、 A_{ex} 和 α ,以反映其不同于原 CoFeB 层的磁响应。500℃
13 退火样品则采用更强的界面互混模型,将原 CoFeB/Gd/CoFeB 区域视为磁参数更
14 为均一的复合磁性层,用以描述高温退火后界面扩散进一步增强的情况。

15 图 4(d) - (f) 给出了不同模型下的模拟结果及其与实验数据的对比。对于未
16 退火样品,实验共振场与单一 CoFeB 主导的模拟色散曲线吻合较好,表明所选
17 CoFeB 基本参数能够合理描述低温退火前的主要动态响应。在 300℃退火模型中,
18 由于 CoFeB 区域与 Gd-CoFeB 有效互混层具有不同的磁性参数,相同频率下出现
19 两个可分辨的共振响应,这与实验中观察到的 FMR 双峰结构一致,说明界面互混
20 引起的磁参数分化可以解释 300℃退火样品的峰劈裂现象。此模型中,互混层的
21 交换刚度取 $A_{\text{ex}} = 1 \text{ pJ/m}$ ^[44],饱和磁化强度优化为 $M_s = 1.15 \times 10^6 \text{ A/m}$,阻尼系数
22 取 $\alpha = 0.01$,模拟所得两个共振分支与实验峰位具有较好的一致性,支持 300℃
23 退火样品中存在两个不同的动态响应通道的解释。

24 对于 500℃退火模型,模拟谱线逐渐表现为单一主共振响应,双峰分辨率明
25 显降低,这与实验中高温退火样品 FMR 峰逐渐展宽并趋于合并的现象相符。该结
26 果表明,随着退火温度进一步升高,界面互扩散与磁性无序持续增强,不同区域
27 间的磁参数差异被展宽和平均化,从而使原本可分辨的双共振分支逐渐合并。

28 综合实验与模拟结果,可建立如下物理图像:退火驱动 Gd 向相邻 CoFeB 层
29 扩散,并在 Gd/CoFeB 界面附近形成局域互混区。当退火温度达到约 300℃时,

界面互混程度显著增强,样品中同时存在以 CoFeB 为主的铁磁响应区和 Gd-CoFeB 互混区。这两类区域的有效磁化强度、交换作用和阻尼特性各不相同,在 FMR 测量中对应不同的共振场,因而呈现为两个可分辨的共振峰。继续升温至 500°C 后,元素扩散和界面反应进一步增强,磁参数分布在空间上趋于连续,双动态响应分支的分辨率降低,FMR 谱线逐渐展宽并趋近于单一主峰响应。上述结果说明,退火诱导的 Gd-CoFeB 界面互混是调控 CoFeB/Gd/CoFeB 多层膜高频磁动态响应的重要因素。

4 结 论

本研究以 CoFeB/Gd/CoFeB 多层膜为对象,系统研究了退火温度对其界面结构、静态磁性及高频磁动态响应的影响。研究发现,退火可促进 Gd 与相邻 CoFeB 层之间的界面互扩散。当退火温度达到约 300°C 时,Gd、Co 和 Fe 元素在界面区域的空间分布重叠明显增强,表明界面附近可能形成了 Gd-CoFeB 互混区域。该互混区域具有不同于原始 CoFeB 铁磁层的局域磁环境,使样品的磁性响应从低温退火下相对单一的 CoFeB 铁磁行为,逐渐转变为具有显著磁性非均匀性的复合磁性体系。

静态磁性测量结果显示,低温退火样品仍主要表现为 CoFeB 主导的铁磁响应;随着退火温度升高,磁滞回线逐渐展宽,磁化反转过程变得更加弥散。500°C 退火样品在低场 $M-T$ 测量中呈现出有别于常规 CoFeB 铁磁层的温度依赖行为,进一步表明高温退火后样品内部的局域磁环境发生了明显改变。上述结果表明,退火诱导的界面互扩散和局域成分变化是调控 CoFeB/Gd/CoFeB 多层膜静态磁性的主要因素。

FMR 测量进一步显示,300°C 退火样品中出现可分辨的双共振分支。通过双峰拟合、多频变温 FMR 测量及 Kittel 色散分析,表明这两个分支对应不同的有效磁参数。这表明 FMR 峰劈裂并非简单的不均匀展宽或仪器相位效应,而更可能源于退火后不同磁响应区域的共存。结合静态磁性结果和微磁学模拟,300°C 样品中的双峰结构可归因于以 CoFeB 为主的铁磁区域与 Gd-CoFeB 界面互混区域之间的磁参数差异。两类区域在高频激发下发生不同频率的进动,从而形成两个可分辨的共振模式。

微磁学模拟结果进一步支撑了上述物理图像。基于不同退火阶段构建的有效模型较好地再现了实验中的频率 - 共振场关系。未退火模型中, 模拟结果表现为单一的 CoFeB 主导共振响应; 300°C 退火模型中, 由于引入了具有独立磁参数的 Gd-CoFeB 互混层, 模拟结果出现双共振分支; 而在高温退火模型中, 界面互扩散和磁性无序的加剧导致双峰分辨率降低, 谱线趋于展宽并合并。实验与模拟结果一致表明, 退火诱导的 Gd-CoFeB 界面互混是导致 FMR 动态响应分化的重要原因。

综合以上分析, 本工作阐明了 CoFeB/Gd/CoFeB 多层膜中退火诱导界面互扩散、静态磁性变化与高频磁动态响应之间的内在关联。适当退火可引入局域磁参数差异, 进而诱导双分支 FMR 响应; 进一步提高退火温度, 界面扩散和磁性无序的增强使共振响应趋于展宽和平均化。该研究为理解含 Gd 的 CoFeB 复合磁性层中的界面稳定性、磁参数非均匀性及高频动态响应提供了实验依据, 并为稀土 - 过渡金属/CoFeB 复合自由层的热处理调控和器件设计提供了参考。

参考文献

- [1] Cai K, Jin T, Lew W S 2024 *Natl. Sci. Rev.* **11** nwad272
- [2] Nguyen V D, Rao S, Wostyn K, Couet S 2024 *npj Spintronics* **2** 48
- [3] Marrows C H, Barker J, Moore T A, Moorsom T 2024 *npj Spintronics* **2** 12
- [4] Shao Q, Wang Z, Zhou Y, Fukami S, Querlioz D, Chua L O 2025 *npj Spintronics* **3** 16
- [5] Kim J S, Kim G, Jung J, Jung K, Cho J, Kim W Y, You C Y 2022 *Sci. Rep.* **12** 4549
- [6] Igarashi J, Jinnai B, Watanabe K, Shinoda T, Funatsu T, Sato H, Fukami S, Ohno H 2024 *npj Spintronics* **2** 1
- [7] Liu Q, Liu P, Li X, Chen S, Hu S, Wang Y, Xu Z, Hu S, Ye M, Wang K, Chen L 2026 *Microstructures* **6** 2026094
- [8] Jenkins S, Meo A, Elliott L E, Piotrowski S K, Bapna M, Chantrell R W, Majetich S A, Evans R F L 2020 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **53** 044001
- [9] Rianto D, Nicholson B, Hodgkiss A W, Caruana A J, Kinane C J, Bouchenoire L, Michałowski P P, Hase T P A, Atkinson D 2025 *Commun. Mater.* **6** 264
- [10] Bai H, Si W, Zhou H A, Wang L, Xu T, Dong Y, Zhu J, Jiang W 2023 *Phys. Rev. Mater.* **7** 094401

- 1 [11] Finley J, Liu L 2020 *Appl. Phys. Lett.* **116** 110501
- 2 [12] Kim S K, Beach G S D, Lee K J, Ono T, Rasing T, Yang H 2022 *Nat. Mater.* 21 24
- 3 [13] Hsu C H, Gross M J, Kleidermacher H C, Sayed S, Salahuddin S 2024 *Nat.*
- 4 *Commun.* **15** 8713
- 5 [14] Ding S, Kang M G, Legrand W, Gambardella P 2024 *Phys. Rev. Lett.* **132** 236702
- 6 [15] Lim Y, Khodadadi B, Li J F, Viehland D, Manchon A, Emori S 2021 *Phys. Rev. B*
- 7 **103** 024443
- 8 [16] Chen J Y, DC M, Zhang D, Zhao Z, Li M, Wang J P 2017 *Appl. Phys. Lett.* **111**
- 9 012402
- 10 [17] Ueda K, Pai C F, Tan A J, Mann M, Beach G S D 2016 *Appl. Phys. Lett.* **108** 232405
- 11 [18] Wei M, Shao Z, Shu X, Fan H, Feng Z, Han X, Wu B, Jin M, Yu C, Wen J, Liu B,
- 12 Zhou T 2025 *Commun. Mater.* **6** 290
- 13 [19] Andrés J P, Sacedón J L, Colino J, Riveiro J M 2000 *J. Appl. Phys.* **87** 2483
- 14 [20] Inyang O, Swindells C, Rianto D, Bouchenoire L, Morris R J H, Merkulov A,
- 15 Caruana A, Kinane C, Hase T P A, Atkinson D 2023 *Appl. Phys. Lett.* **123** 122403
- 16 [21] Vorobiov S, Lytvynenko Ia, Hauet T, Hehn M, Derecha D, Chornous A 2015
- 17 *Vacuum* **120** 9
- 18 [22] Saravanan L, Kumar P K, Ravikumar A, Murugadoss G, R-S R, Vojkovic S, Prabhu
- 19 D, Peera S G, Garcia C 2026 *Nanomaterials* **16** 558
- 20 [23] Kanak J, Cecot M, Skowroński W, Żywczak A, Gajewska M, Wrona J, Powroźnik
- 21 W, Czapkiewicz M 2025 *Materials* **18** 5558
- 22 [24] Riddiford L J, Gartside J C, Cuda A L, Jungfleisch M B, Gibbons J D, Howells C
- 23 T, Burn D M, Branford W R, Marrows C H 2025 *Nat. Commun.* **16** 10979
- 24 [25] Syamlal S K, Gupta N, Perumal H P, Kumar D, Gupta M, Gupta P, Sinha J 2023
- 25 *Surf. Interfaces* **43** 103556
- 26 [26] Hintermayr J, Ullrich A, Albrecht M 2021 *AIP Adv.* **11** 095214
- 27 [27] Landes J, Sauer C, Kabius B, Zinn W 1991 *Phys. Rev. B* **44** 8342
- 28 [28] Ghosh S, Raj R, Kuila M, Hussain Z, Kumar D, Gupta M, Reddy V R 2024 *J.*
- 29 *Supercond. Nov. Magn.* **37** 1755
- 30 [29] Drovosekov A B, Savitsky A O, Kholin D I, Kreines N M, Proglyado V V,

- 1 Ryabukhina M V, Kravtsov E A, Ustinov V V 2019 *J. Magn. Magn. Mater.* **475** 668
- 2 [30] Li S, Livshitz B, Pelekhov D V, Ketterson J B, Khodaparast G A, Rzechowski M S
- 3 2016 *Sci. Rep.* **6** 33349
- 4 [31] Tang C, Alahmed L, Mahdi M, Zhang Y, Lin J, Shi J 2023 *Phys. Rep.* **1032** 1
- 5 [32] Kittel C 1948 *Phys. Rev.* **73** 155
- 6 [33] Huang D, Wang X, Gopman D B 2024 *Rev. Sci. Instrum.* **95** 103906
- 7 [34] Gopman D B, Lau J W, Mohanchandra K P, Carman G P 2016 *Phys. Rev. B* **93**
- 8 064425
- 9 [35] Huang D, Shoup J E, Johnston-Peck A C, Lyu D, Wang J, Wang X, Gopman D B
- 10 2025 *Phys. Rev. Appl.* **24** 064006
- 11 [36] Singh B B, Ghosh S, Jena S K, Bhowmik R N, Sinha A K 2017 *J. Appl. Phys.* **121**
- 12 243902
- 13 [37] Farle M 1998 *Rep. Prog. Phys.* **61** 755
- 14 [38] McMichael R D, Krivosik P 2004 *IEEE Trans. Magn.* **40** 2
- 15 [39] Beaujour J M L, Ravelosona D, Tudosa I, Fullerton E E, Kent A D 2009 *Phys. Rev.*
- 16 *B* **80** 180415
- 17 [40] Chen B, Gauquelin N, Green R J, Müller-Caspary K, Lobato I, Li J, Verbeeck J,
- 18 Huijben M, Van Aert S, Rijnders G, Koster G 2017 *Science* **357** 191
- 19 [41] Albisetti E, Petti D, Pancaldi M, Madami M, Tacchi S, Vavassori P, Rinaldi C,
- 20 Bertacco R 2020 *Materials* **13** 387
- 21 [42] Vansteenkiste A, Leliaert J, Dvornik M, Helsen M, Garcia-Sanchez F, Van
- 22 Waeyenberge B 2014 *AIP Adv.* **4** 107133
- 23 [43] Chen A, Piao H G, Ji M, Fang B, Wen Y, Ma Y, Li P, Zhang X X 2021 *Adv. Mater.*
- 24 **33** 2105902
- 25 [44] Iacocca E, Liu T M, Reid A H, Fu Z, Ruta S, Granitzka P W, Jal E, Bonetti S, Gray
- 26 A X, Graves C E, Kukreja R, Chen Z, Higley D J, Chase T, Le Guyader L, Hirsch
- 27 K, Ohldag H, Schlotter W F, Dakovski G L, Coslovich G, Carron S, Tsukamoto A,
- 28 Kirilyuk A, Kimel A V, Rasing T, Stöhr J, Evans R F L, Ostler T A, Chantrell R W,
- 29 Hoefer M A, Silva T J, Dürr H A 2019 *Nat. Commun.* **10** 1756
- 30 [45] Figueiredo-Prestes N, Zarpellon J, da Silva Costa D, Mazzaro I, de Camargo P C,

- 1 de Oliveira A J A, Deranlot C, George J M, Mosca D H 2021 *J. Phys. Chem. C* **125**
2 4885
- 3 [46] Bandiera S, Sousa R C, Rodmacq B, Dieny B 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 142410
- 4 [47] Zhong Q, Zhang Z, Ma S, Qi R, Li J, Wang Z, Jonnard P, Le Guen K, André J M
5 2013 *Appl. Surf. Sci.* **279** 334
- 6
- 7

录用稿件，非最终出版稿

Annealing-induced interdiffusion and magnetic dynamic evolution mechanism in CoFeB/Gd/CoFeB multilayers

LI Changfeng^{1),2)} #, LUO Kai-You^{1),2)} #, ZHANG Xue-Feng^{1),2)}, ZHANG Hongyan^{1),2)},
HAN Mengyao^{1),2)}, GAO Junyan^{1),2)}, ZHANG Yingde^{2),3)} †, PETROV Alexander⁴⁾,
PIAO Hong-Guang^{1),2)} ‡, NIKOLAY Kalanda⁴⁾.

1) (Department of physics, College of science, Yanbian University, Yanji 133002, China)

2) (Institute of Quantum Science and Technology, Yanbian University, Yanji 133002, China)

3) (National Key Laboratory of Baiyunobo Rare Earth Resource Research and Comprehensive Utilization, Baotou Research Institute of Rare Earths, Baotou 014030, China)

4) (Scientific-Practical Materials Research Centre of the National Academy of Sciences of Belarus, Minsk 220072, Belarus)

Abstract

Composite magnetic structures based on rare-earth/transition-metal (RE/TM) systems are promising candidates for high-density and low-power spintronic devices because their net magnetization, magnetic anisotropy, and spin dynamics can be tailored through composition and interfacial engineering. However, thermal processing may induce elemental interdiffusion and local magnetic inhomogeneity, which can substantially modify both magnetization reversal and high-frequency magnetic response. In this work, Ta (10 nm)/MgO (2 nm)/CoFeB (5 nm)/Gd (5 nm)/CoFeB (5 nm)/Ta (10 nm) multilayers were deposited by magnetron sputtering and subsequently annealed at temperatures ranging from 100 to 500 °C. Their interfacial structures, static magnetic properties, and ferromagnetic-resonance characteristics were systematically investigated by cross-sectional transmission electron microscopy and energy-dispersive

X-ray spectroscopy, vibrating-sample and superconducting quantum interference device magnetometry, multi-frequency and temperature-dependent ferromagnetic resonance measurements, and micromagnetic simulations. The low-temperature-annealed samples mainly exhibit CoFeB-dominated ferromagnetic behavior and a single FMR resonance. Cross-sectional EDS analysis shows that annealing at 300 °C broadens the spatial distributions of Gd, Co, and Fe near the Gd/CoFeB interfaces, providing direct evidence of enhanced interfacial interdiffusion. At the same annealing temperature, the initially single FMR resonance evolves into two clearly resolvable branches. Double-peak derivative Lorentzian fitting adequately reproduces the experimental spectra. The two resonance branches can be continuously tracked at different microwave frequencies and shift toward higher magnetic fields with increasing frequency. Separate Kittel fits yield distinct effective magnetic parameters for the two branches, indicating that they originate from two different dynamic response channels rather than from simple linewidth broadening or instrumental phase distortion. Their resonance fields and peak separation vary only weakly with temperature, suggesting that conventional long-range interlayer antiferromagnetic coupling is unlikely to be the dominant origin of the splitting. When the annealing temperature is further increased to 400 and 500 °C, the magnetic hysteresis loops become broadened and more inclined, while the FMR signals weaken and the two branches become less distinguishable. These observations indicate enhanced magnetic inhomogeneity and a more broadly distributed magnetization-reversal process at high annealing temperatures. Micromagnetic simulations based on an effective Gd–CoFeB intermixed interfacial layer reproduce the experimentally observed two-branch dispersion for the 300 °C-annealed sample, whereas a more strongly intermixed model yields broadened and partially merged resonances at higher annealing temperatures. These results establish a direct correlation between annealing-induced Gd–CoFeB interfacial interdiffusion, static magnetic evolution, and the formation of multiple high-frequency dynamic response channels. The central finding is that local magnetic-parameter differentiation induced by interfacial intermixing can generate resolvable FMR mode splitting without requiring dominant long-range interlayer antiferromagnetic coupling. This work

provides a physical basis for optimizing the thermal stability and high-frequency dynamic performance of Gd-containing CoFeB composite free layers in magnetic tunnel junction and spin-orbit-torque devices.

Keywords: CoFeB/Gd/CoFeB trilayer; interfacial interdiffusion; ferromagnetic resonance; magnetic dynamic response; rare-earth–transition-metal intermixing

PACS: 75.70.Cn, 75.30.Gw, 75.40.Gb, 76.50.+g

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12364020) and the Science and Technology Development Plan Project of Jilin Province (Grant No. 20240101295JC)

These authors contributed equally.

[†] E-mail: changkuohan@163.com

[‡] E-mail: hgpiao@ybu.edu.cn

图 (Figures)

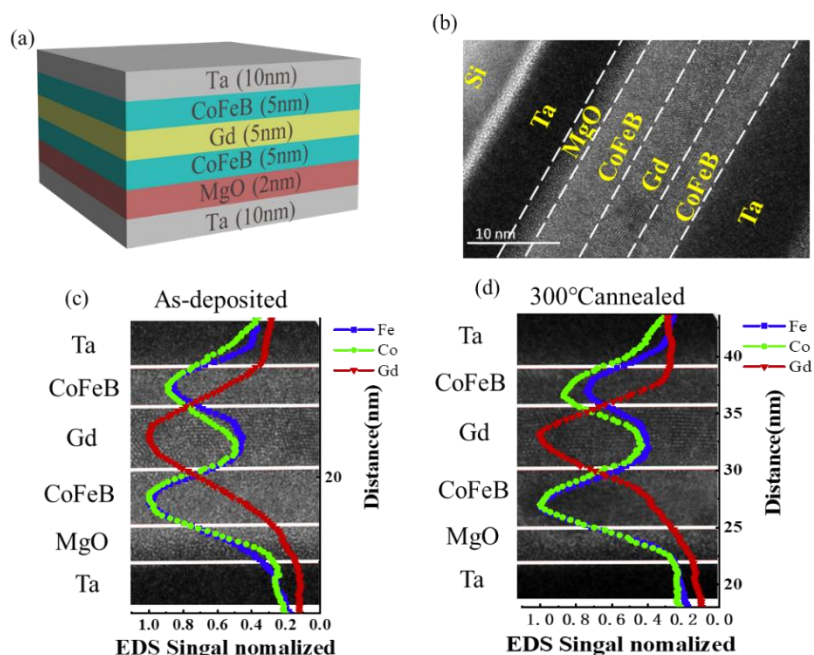


图 1 TEM 截面表征结果. (a) Ta(10 nm)/MgO(2 nm)/CoFeB(5 nm)/Gd(5 nm)/CoFeB(5 nm)/Ta(10 nm) 样品结构示意图; (b) 截面 TEM 图像; (c) 未退火样品 EDS 线扫描; (d) 300°C 退火样品 EDS 线扫描.

Fig. 1. Cross-sectional TEM characterization results. (a) Schematic of the sample structure Ta(10 nm)/MgO(2 nm)/CoFeB(5 nm)/Gd(5 nm)/CoFeB(5 nm)/Ta(10 nm); (b) Cross-sectional TEM image; (c) EDS line scan of the as-deposited sample; (d) EDS line scan after annealing at 300°C.

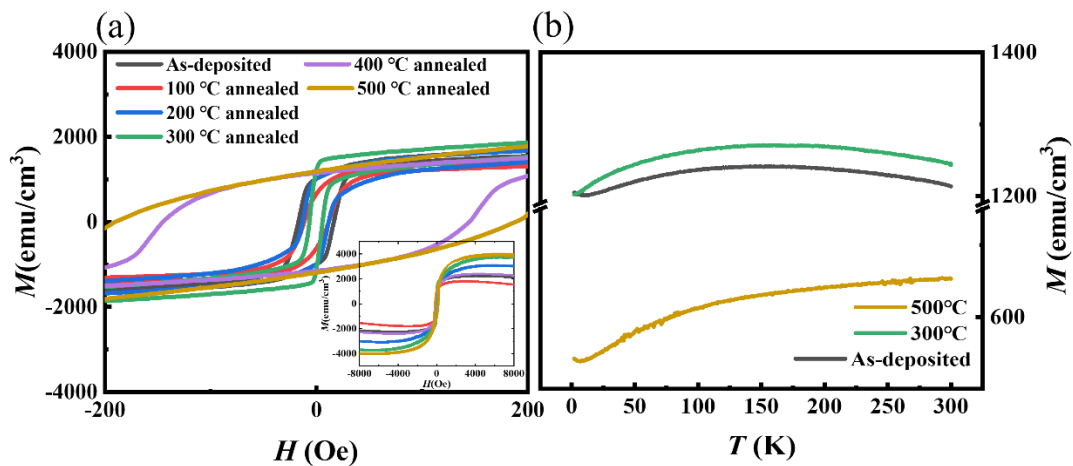


图 2 不同退火温度样品的静态磁性表征。(a) 低场范围内的面内 $M-H$ 回线，插图为 $-8000-8000$ Oe 范围内的完整 $M-H$ 回线；(b) 为未退火、 $300\text{ }^{\circ}\text{C}$ 和 $500\text{ }^{\circ}\text{C}$ 样品在 100 Oe 外场下测得的低场 $M-T$ 曲线。

Fig. 2. Static magnetic characterization of the samples annealed at different temperatures. (a) Enlarged in-plane $M-H$ loops in the low-field region. The inset shows the full field $M-H$ loops measured from -8000 to 8000 Oe. (b) Low-field $M-T$ curves of the as-deposited, 300°C -annealed, and 500°C -annealed samples measured under an applied field of 100 Oe.

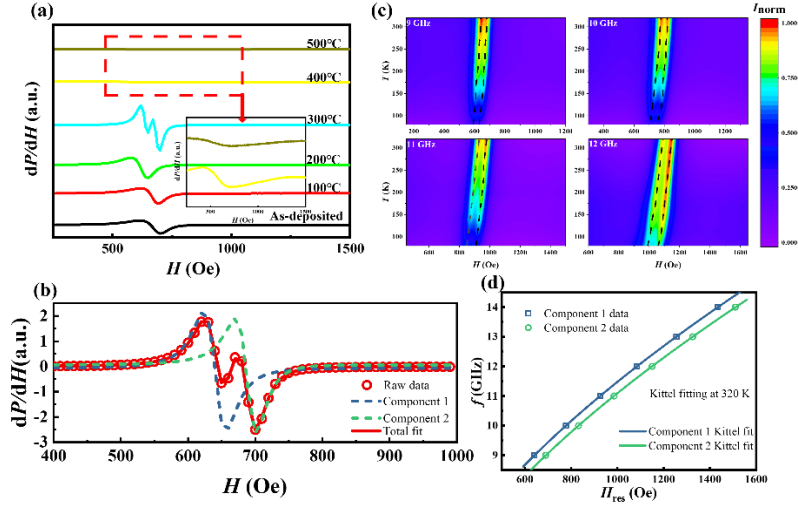


图 3 不同退火温度样品的 FMR 谱演化及 300 °C 退火样品双共振分支分析。
 (a) 不同退火温度样品的室温 FMR 导数谱，插图为 400 °C 和 500 °C 退火样品的局部放大谱。(b) 300 °C 退火样品 FMR 导数谱的双峰拟合结果。(c) 300 °C 退火样品在不同频率下测得的变温归一化 FMR 吸收强度图。归一化强度定义为 $I_{\text{norm}} = (I - I_{\text{min}})/(I_{\text{max}} - I_{\text{min}})$ ，其中 I 为原始吸收强度， I_{max} 和 I_{min} 分别对应各频率下的最大和最小吸收强度；虚线表示两个共振分支。(d) 320 K 下两个共振分支的 $f - H_{\text{res}}$ 色散关系及 Kittel 拟合结果。

Fig. 3. FMR spectral evolution of samples annealed at different temperatures and dual-resonance branch analysis of the 300 °C-annealed samples. (a) Room-temperature FMR derivative spectra of samples annealed at different temperatures, with enlarged spectra of the 400 °C- and 500 °C-annealed samples shown in the inset. (b) Double-peak fitting of the FMR derivative spectrum for the 300 °C-annealed sample. (c) Temperature-dependent normalized FMR absorption intensity maps of the 300 °C-annealed sample measured at different frequencies. The normalized intensity is defined as $I_{\text{norm}} = (I - I_{\text{min}})/(I_{\text{max}} - I_{\text{min}})$, where I represents the raw absorption intensity, and I_{max} and I_{min} denote the maximum and minimum intensities at each frequency, respectively. The dashed lines indicate the two resonance branches. (d) $f - H_{\text{res}}$ dispersion relations of the two resonance branches at 320 K with corresponding Kittel fitting results.

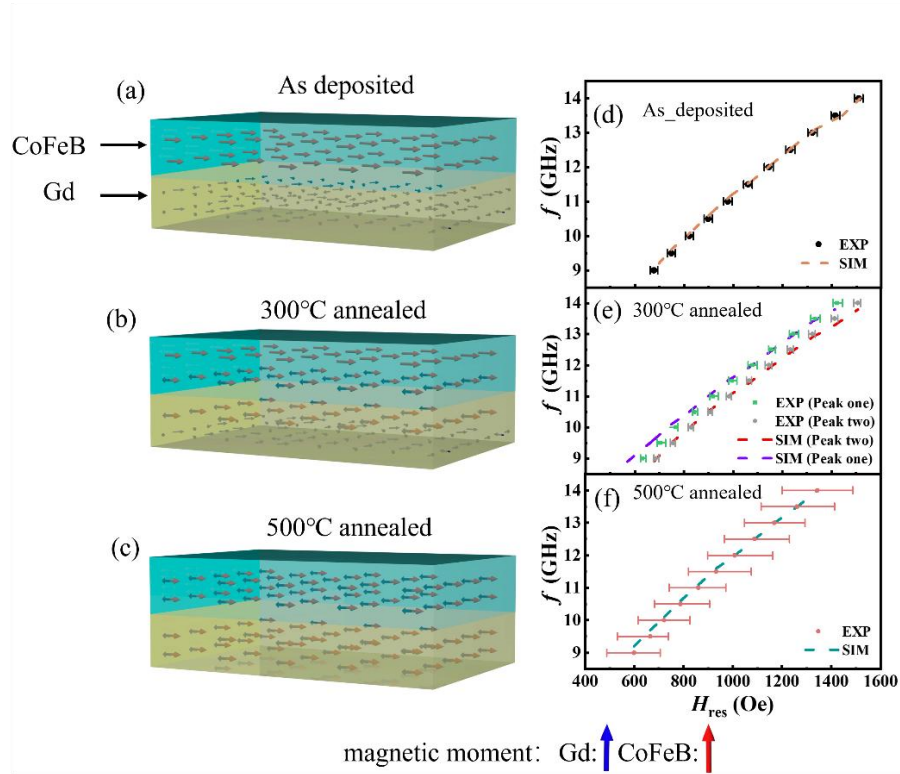


图4 微磁学模拟模型及与实验对比. (a) 未退火; (b) 300°C退火; (c) 500°C退火样品的模拟模型; (d) - (f) 对应模型模拟结果与实验 FMR 色散关系的比较 (散点为实验数据, 虚线为模拟结果).

Fig. 4. Micromagnetic simulation models and comparison with experimental results. Simulation model for (a) as-deposited, (b) 300°C-annealed, and (c) 500°C-annealed samples. (d) - (f) Comparison of simulated FMR dispersion relations with experimental data (symbols: experimental data; dashed lines: simulation results).