

## 時分割 XMCD による磁性薄膜中の磁化歳差運動の観測

石井祐太， 山崎裕一

物質・材料研究機構 マテリアル基盤センター

## Time-resolved XMCD measurement for magnetization precession in magnetic thin films

Yuta ISHII, Yuichi YAMASAKI  
NIMS-CBRM

### Abstract

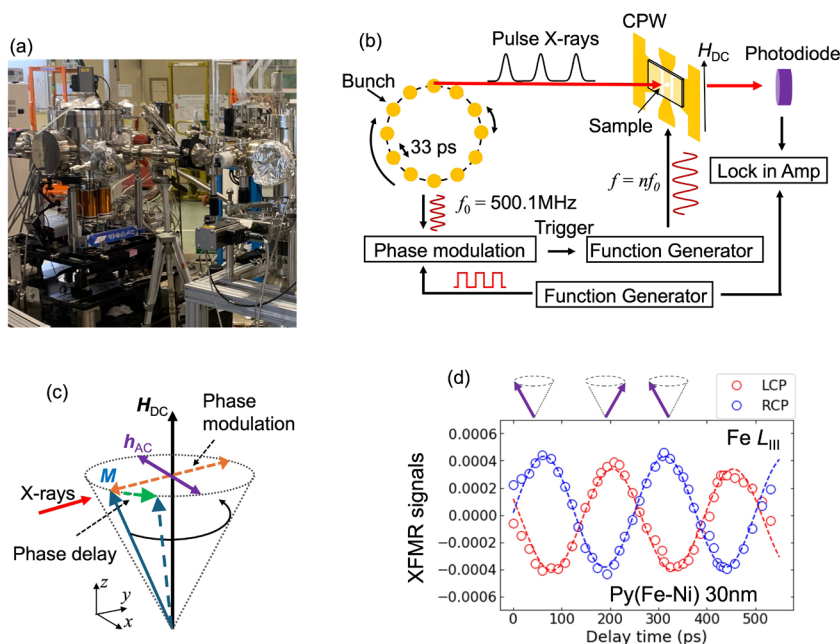
スピントロニクス研究の発展に伴い，磁性薄膜中の磁化ダイナミクスを高時間分解能で観測する手法の重要性が高まっている。本研究では，Photon Factory BL-16A に時分割 XMCD (XFMR) 計測系を構築し，NiFe 薄膜においてマイクロ波励起による磁化歳差運動を直接検出した。さらに，得られた XFMR 信号のエネルギースペクトルに対してベイズ推定解析を適用し，磁化ダイナミクスに寄与するスピンおよび軌道磁気モーメントの動的成分を定量的に評価した。本手法は，磁化歳差運動を構成する要素を元素選択的に抽出する新たなプローブを提供するとともに，軌道磁気モーメントに起因する新しいダイナミクス現象の理解に対しても有効なアプローチとなる。

### 1. はじめに

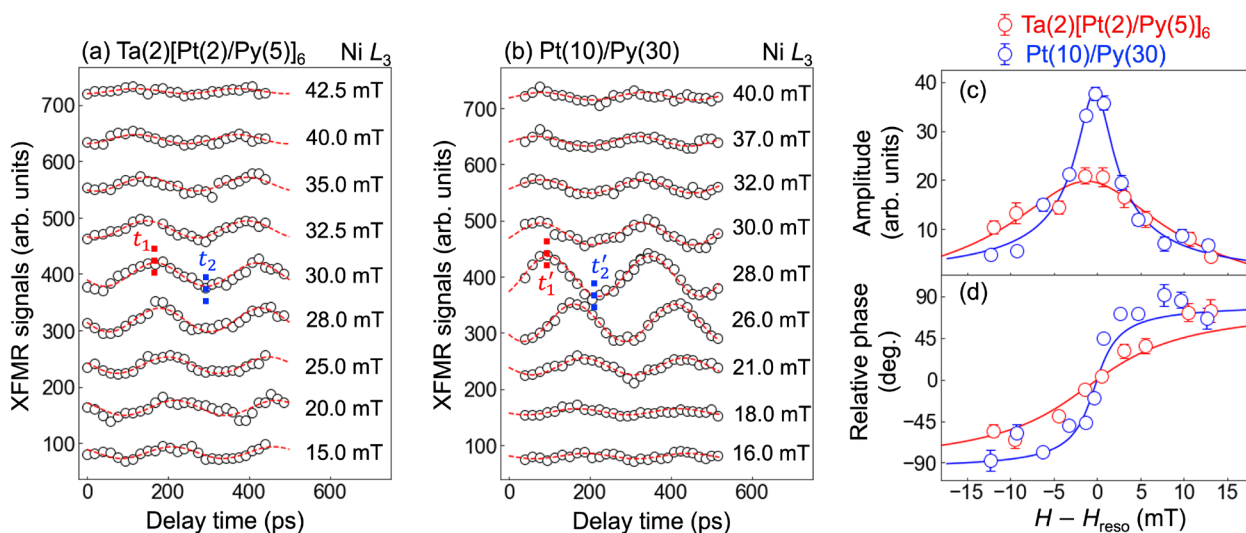
近年，スピントロニクスデバイスは高速化および低消費電力化に向けて急速な発展を遂げており，その基盤となる磁性薄膜における磁化ダイナミクスを実空間・実時間で理解する重要性が増している。特に，磁気応答を支配する主要因として長く注目されてきたスピン角運動量に加え，軌道角運動量 (OAM) が創出する新たな磁気現象やデバイス機能が近年注目されており，スピン・軌道双方の自由度を動的に捉える手法の開発が求められている。

磁性体中のスピン磁気モーメントおよび軌道磁気モーメントを定量的かつ元素選択的に評価する顕著な手法として，放射光を利用した X 線磁気円二色性 (XMCD: X-ray Magnetic Circular Dichroism) が広く用いられている。XMCD は左右円偏光 X 線に対する吸収率の差分を取得することで，スピン・軌道モーメントや異方的磁気モーメント成分を分離評価できる点に特徴がある [1,2,3]。

さらに軟 X 線領域では，放射光パルスの時間幅が数十 ps と短く，この特徴を利用して XMCD を時間分解測定す



**Figure 1** (a) Soft X-ray microscope installed at PF BL-16A. (b) Experimental setup of XFMR measurement. (c) Schematic representation of magnetization precession under FMR effect with the modulated microwave. (d) Phase delay scans of XFMR signals for Py 30nm thin film at the Fe  $L_3$  edge obtained using left and right circular polarized (LCP and RCP) X-rays.



**Figure 2** (a)(b) Phase delay scans for (a) Ta(2 nm)[Pt(2 nm)/Py(5 nm)]<sub>6</sub> and (b) Pt(10 nm)/Py(30 nm) samples at various bias magnetic fields across the ferromagnetic resonance field. Microwave with a frequency  $f = 4.0008$  GHz was applied for the samples. Dashed lines indicate  $t_1 = 160$  ps,  $t_2 = 290$  ps,  $t'_1 = 90$  ps,  $t'_2 = 210$  ps. (c)(d) Bias magnetic field dependence of (c) the amplitude and (d) the relative phase of the magnetization precession. Red and blue lines represent the fitting results.

ることで、磁化歳差運動などの高速磁化ダイナミクスをストロボスコピックに観測できる。こうした背景のもと、近年、試料に周期的な外場（主に GHz 帯マイクロ波）を印加し、その応答を放射光のパルス列と同期させて取得する手法である XFMR（X-ray Ferromagnetic Resonance）が確立されつつある [4]。

本研究では、PhotonFactory ビームライン BL-16A において放射光マルチバンチモードを利用した XFMR 計測系を構築し、磁性薄膜 NiFe（Py：Permalloy）におけるマイクロ波励起の磁化歳差運動を実時間で元素選択的に観測することに成功した [5,6]。本稿では、その測定手法および Pt/Py 薄膜試料に対する実験結果を紹介し、さらに XFMR エネルギースペクトルに対してベイズ推定解析を適用し、磁化ダイナミクス中のスピン・軌道磁気モーメントの動的寄与を定量的に評価した結果について述べる。

## 2. X-ray Ferromagnetic Resonance 計測

強磁性体にマイクロ波を照射すると、AC 磁場により磁化ベクトルが歳差運動し、スピン波として知られる集団的磁化ダイナミクスが励起される。この現象は強磁性共鳴（FMR：Ferromagnetic Resonance）と呼ばれ、スピントロニクスデバイスの高周波動作に不可欠な物理過程である。一方、磁性体に対して X 線磁気円二色性（XMCD）測定を行うと、左右円偏光 X 線に対する吸収差からスピン磁気モーメントおよび軌道磁気モーメントに選択的にアクセスできる。これらを組み合わせた XFMR（X-ray Ferromagnetic Resonance）は、FMR により歳差運動する磁化のうち、X 線入射方向に射影された成分を XMCD 信号として検出することを可能にする。

Figure 1(b) に Photon Factory BL-16A における XFMR 測

定配置を示す。PF のマルチバンチ運転モードでは 500.1 MHz の繰り返し周波数でパルス X 線を利用できる。この X 線入射に同期した放射光基準信号（ $f_0 = 500.1$  MHz）をファンクションジェネレータ（FG）にトリガーとして入力し、 $nf_0$ （ $n$ ：整数）に対応する GHz 帯マイクロ波を生成して、コプレーナ導波路（CPW）を介して試料に印加する。続いて、FG から出力するマイクロ波の位相を徐々に変化させながら、試料を透過する X 線強度を計測することで、マイクロ波位相に同期した磁化歳差運動の時間応答を取得する。さらに本研究では、位相反転による高 S/N 化を導入した。FG に入力する放射光基準信号の位相を数 kHz の矩形波で反転させることにより、マイクロ波励起される磁化歳差運動の位相も同周波数で反転させる。この結果、透過 X 線強度にも同じ変調が生じるため、その変調成分を Lock-in amplifier（LIA）で抽出することで、XFMR 信号を高感度かつ高精度に取得できる。Figure 1(c) に、X 線入射方向、磁化  $M$  とマイクロ波の AC 磁場  $h_{AC}$ 、外部磁場  $H_{DC}$  の関係を示す。X 線は試料面直方向より入射し、 $h_{AC}$ 、 $H_{DC}$  と直交する関係にある。Figure 1(d) に Py 薄膜に対する XFMR 測定の典型例を示す。測定は Fe  $L_3$  端で行い、外部磁場 28 mT、マイクロ波周波数 4 GHz の条件下で、周期 250 ps の変調信号が得られた。これは印加したマイクロ波周波数と一致しており、観測された信号が FMR に起因する磁化歳差運動を正しく反映していることがわかる。また、X 線の円偏光を反転すると信号の符号も反転することから、観測された変調が XMCD 由来であることが確認できる。

Figure 2(a),(b) には、2 種類の磁性薄膜試料 [Ta(2 nm)[Pt(2 nm)/Py(5 nm)]<sub>6</sub> と Pt(10 nm)/Py(30 nm)] に対する Ni  $L_3$  端での XFMR 信号の磁場依存性を示す。両試料とも外部

磁場を掃引すると、各々の共鳴磁場付近（それぞれ約 30 mT および 28 mT）で XFMR 振幅が顕著に増大し、同時に位相の急激な変化が現れる。Figure 2(c) は、フィッティングにより得られた振幅と位相の磁場依存性を示している。積層構造試料である [Ta(2 nm)[Pt(2 nm)/Py(5 nm)]<sub>6</sub> の方が、振幅の磁場依存性のピークがブロードであり、位相もなだらかに変化していることが読み取れる。

ここで、XFMR 計測において観測されている磁化成分の表式を導く。磁化  $\mathbf{M}=(M_x, M_y, M_z)$  の時間変化は、以下の LLG (Landau-Lifshitz-Gilbert) 方程式に従う。

$$\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} = -\mu_0 \gamma \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} + \frac{\alpha}{M} \left( \mathbf{M} \times \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} \right) \quad (1)$$

ここで、 $\mu_0$  は真空の透磁率、 $\gamma$  は電子の磁気回転比、 $M$  は磁化ベクトルの大きさである。 $\alpha$  は磁化歳差運動の緩和率であり、減少論的に取り入れられた物理パラメータである。 $\mathbf{H}_{\text{eff}}$  は実効的な外場であり、Fig.1(c) の座標を用いれば、 $\mathbf{H}_{\text{eff}} = (h^x \exp(i\omega t), -M_y, H_{\text{DC}})$  とかける。ここで、 $h^x \exp(i\omega t)$  は周波数  $\omega$  で振動する AC 磁場  $\mathbf{h}_{\text{AC}}$  の  $x$  成分であり、 $-M_y$  は試料面直方向に生じる反磁場の効果を表している。ここでは、磁気異方性の効果は無視している。X 線は試料面直方向 ( $y$  方向) から入射するため、XFMR 信号で計測できるのは  $M_y$  である。 $\mathbf{h}_{\text{AC}}$  は  $x$  軸方向に印加されているため、 $M_y$  は以下のように書き表される。

$$M_y = \chi^{yx} h^x \exp(i\omega t) \quad (2)$$

$\chi^{yx}$  は面内帯磁率の非対角項であり、式 (1) に式 (2) を代入すれば以下のように導かれる。

$$\chi_1^{yx} = \frac{-\alpha \omega_M (2\omega_H + \omega_M) \omega^2}{[(1+\alpha^2)\omega^2 - \omega_0^2]^2 + \alpha^2 \omega^2 (2\omega_H + \omega_M)^2} \quad (4)$$

$$\chi_2^{yx} = \frac{\omega \omega_M [(1+\alpha^2)\omega^2 - \omega_0^2]}{[(1+\alpha^2)\omega^2 - \omega_0^2]^2 + \alpha^2 \omega^2 (2\omega_H + \omega_M)^2} \quad (5)$$

ここで、 $\omega_0 = \mu_0 \gamma \sqrt{H_{\text{DC}}(H_{\text{DC}} + M)}$  は共鳴磁場であり、 $\omega_H = \mu_0 \gamma H_{\text{DC}}$ 、 $\omega_M = \mu_0 \gamma M$  である。これらを用いて、 $M_y$  の時間変化は、振幅  $A$  と位相  $\theta$  を用いて以下のように表される。

$$M_y = A \sin(\omega t + \theta) \quad (6)$$

$$A = h^x \sqrt{(\chi_1^{yx})^2 + (\chi_2^{yx})^2} \quad (7)$$

$$\theta = \arctan(-\chi_2^{yx}/\chi_1^{yx}) \quad (8)$$

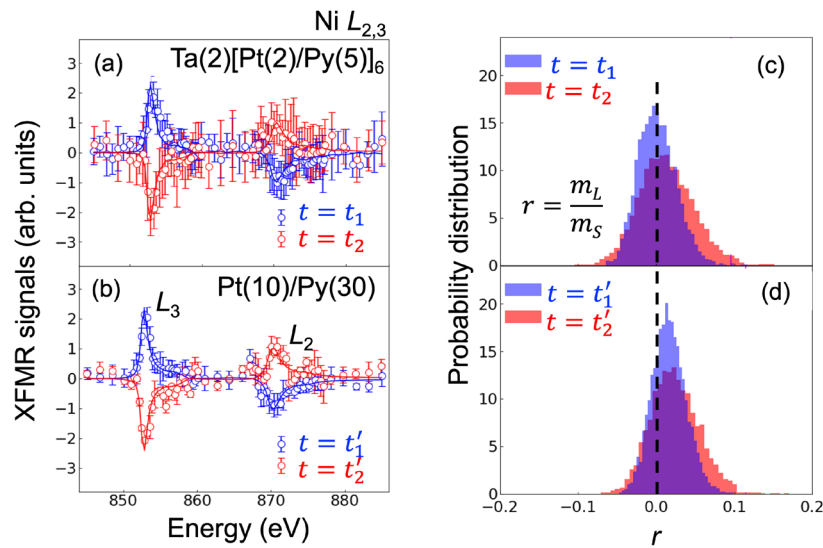
これらの式を使えば、振幅や位相の磁場変化から、緩和率  $\alpha$  等の面内帯磁率に含まれる物理パラメータを求めることが可能となる。Figure 2(c) に示す曲線は式 (6) を用いたフィッティング結果であり、実験結果をよく再現している。また、求められた緩和率は [Ta(2 nm)[Pt(2 nm)/Py(5 nm)]<sub>6</sub> が  $\alpha=0.06(2)$ 、Pt(10 nm)/Py(30 nm) が  $\alpha=0.016(1)$  であった。この緩和率の違いは、多層膜においては Pt/Py 界面がスピン散逸やスピンポンピングを促進し、これが磁化ダイナミクスの緩和率が大きくなる理由であると考えられる [7]。このように、XFMR 計測は磁性薄膜の物理パラメータの推定に用いることができ、例えば微細加工試料やデバイス試料のような通常の FMR 計測では観測が困難な試料に対しても、磁化ダイナミクスを評価する有効な手法になると考えられる。

### 3. ベイズ推定による磁化ダイナミクス中のスピン、軌道モーメントの定量的評価

XMCD 測定では、以下に示す総和測 (Sum rule) によって、スピンと軌道モーメントの期待値を定量的に見積もることが可能である。

$$m_s \left( 1 + \frac{7}{2} T_z \right) = -n_h \frac{6p - 4q}{s} \quad (9)$$

$$m_L = -n_h \frac{4q}{3s} \quad (10)$$



**Figure 3** (a)(b) Energy spectra of XFMR signals around the Ni  $L_{2,3}$  edges for (a) Ta(2 nm)[Pt(2 nm)/Py(5 nm)]<sub>6</sub> and (b) Pt(10 nm)/Py(30 nm). The data were obtained at phase delay times of  $t_1 = 160$  ps  $t_2 = 290$  ps for Ta(2 nm)[Pt(2 nm)/Py(5 nm)]<sub>6</sub>, and  $t'_1 = 90$  ps,  $t'_2 = 210$  ps for Pt(10 nm)/Py(30 nm). Red and blue lines represent the estimated XFMR spectra obtained by Bayesian inference analysis. All spectra were normalized to the intensity at the  $L_2$  edge for comparison. (c)(d) Posterior probability distribution of the ratio of  $m_L$  to  $m_s$  ( $r = m_L / m_s$ ) obtained by Bayesian inference analysis.



ここで  $T_z$  は磁気双極子項を表し、 $s$  は  $L_{2,3}$  吸収端にわたる XAS スペクトルの積分、 $n_h$  は  $3d$  バンドの正孔数を表す。 $p$  と  $q$  はそれぞれ、 $L_3$  端および  $L_{2,3}$  端にわたるスペクトル積分を表す。XFMR 測定においても、Ni  $L_{2,3}$  端付近で得られるエネルギー Spektral にこの Sum rule を適用することで、磁化歳差運動中の動的なスピンおよび軌道モーメントを評価することが可能となる。本研究では、まず 2 種類の薄膜試料 [Ta(2 nm)/Pt(2 nm)/Py(5 nm)]<sub>6</sub> および Pt(10 nm)/Py(30 nm)] に対して、XFMR 信号の振幅が最大となる遅延時刻 (Fig.2(a)(b) における  $t_1, t_2, t'_1, t'_2$ ) に固定し、Ni  $L_{2,3}$  端周辺のエネルギー スキャンを行った。その結果を Fig. 3(a)(b) に示す。両試料ともに、通常の XMCD と同様に  $L_3$  端と  $L_2$  端で符号反転するスペクトル形状が確認され、磁化歳差運動中の XMCD 成分を捉えていることがわかる。また、マイクロ波位相を 180 度シフトさせた場合にはスペクトルの符号も反転することも確認された。

次に、スピンおよび軌道モーメントを誤差も含めて定量的に評価するため、ベイズ推定を適用した。解析には、まず Ni  $L_3$  端および  $L_2$  端付近の TEY-XMCD スペクトルを取得し、これを基底関数として用い、XFMR スペクトルを両端のスペクトル強度係数の線形結合で表現した。これらの係数をパラメータ集合  $\theta = \{C_1, C_2\}$  とし、Replica Exchange Monte Carlo 法によって事後確率分布  $P_\theta$  をサンプリングした。その後、式 (9)(10) を用いて  $r = m_L/m_S$  の事後確率分布  $P_r$  を導出した。今回は、試料が多結晶であるため、 $T_z$  項は無視している。Figure 3(c)(d) に各試料に対して得られた  $P_r$  を示す。Ta(2)[Pt(2)/Py(5)]<sub>6</sub> では、遅延時刻  $t_1$  と  $t_2$  に対して得られた最確値がそれぞれ  $r = 0.00(2)$  および  $0.01(3)$  であった。一方、Pt(10)/Py(30) では  $r = 0.01(2)$  および  $0.02(3)$  と、ごく小さいながら非ゼロの値を示した。この違いは、界面状態および軌道磁気モーメントの異方性の強さに起因すると考えられる。 $3d$  強磁性金属と  $5d$  非磁性金属の界面では、強いスピン軌道相互作用に起因する軌道混成が生じ、 $m_L$  が面直方向に向きやすい垂直軌道異方性が形成されることが知られている。多層膜構造の Ta(2)[Pt(2)/Py(5)]<sub>6</sub> では、この界面が層状に多数存在するため垂直方向の拘束が強く、歳差運動における  $m_L$  の動的成分が抑制される。その結果、XFMR 測定で得られる  $m_L$  は誤差範囲内ではほぼゼロとなる。一方、単一界面構造の Pt(10)/Py(30) では異方性が比較的弱く、歳差運動中に微小ながら軌道モーメントの動的成分が残存したと解釈できる。

以上のように、XFMR 測定とベイズ推定解析を組み合わせることで、磁化歳差運動におけるスピンおよび軌道磁気モーメントの比率を統計的に精密に評価でき、界面スピン軌道相互作用が磁化ダイナミクスに与える影響を定量的に議論するための有効な手法であることが示された。

#### 4. まとめ

本研究では、Photon Factory BL-16A に XFMR 計測系を構築し、NiFe 薄膜におけるマイクロ波励起磁化歳差運動を元素選択的に観測することに成功した。得られた XFMR

信号の振幅および位相の磁場依存性を LLG 方程式に基づいて解析することで、緩和率などの磁化ダイナミクスに関わる重要な物理量を精度良く抽出できることを示した。さらに、Ni  $L_{2,3}$  端のエネルギー Spektral に対してベイズ推定を適用することで、歳差運動中のスピンおよび軌道磁気モーメントを統計的に評価した。これらの結果は、デバイス中の磁化ダイナミクスを実空間・実時間で観測する新たな手法を与えるとともに、軌道自由度に基づく磁気励起の研究へ発展する可能性を示している。

#### 謝辞

本研究において、XMCD 実験の実施に際しご支援いただいた KEK の雨宮健太氏に感謝いたします。本研究の一部は、JSPS 科研費 (課題番号 JP19H04399, JP19K23590, JP20K20107, JP20H04458, JP23K17145, JP24K03205), JST PRESTO (JPMJPR177A, JPMJPR2102), JST CREST (JPMJCR1861), JST Q-LEAP (JPMXS0118068681), および文部科学省世界トップレベル研究拠点プログラム (WPI) による助成を受けて行われました。軟 X 線散乱実験は、放射光共同利用実験審査委員会 (PF-PAC) の承認の下で実施されました (課題番号 2018S2-006, 2019G590, 2019PF-22, 2021PF-S003, 2021S2-004, 2021G691)。

#### 引用文献

- [1] B. T. Thole, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **68**, 1943 (1992).
- [2] P. Carra, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **70**, 694 (1993).
- [3] Y. Yamasaki, *et al.*, STAM. **26**, 2513217 (2025).
- [4] F. Shulz, *et al.*, Nano Lett. **23**, 10126 (2023).
- [5] Y. Ishii, *et al.*, Sci. Rep. **14**, 15504 (2024).
- [6] Y. Ishii, *et al.*, STAM. Methods, **5**, 2586300 (2025).
- [7] L. Berger, J. Appl. Phys. **90**, 4632 (2001).

(原稿受付日: 2025 年 12 月 9 日)

#### 著者紹介

石井祐太 Yuta ISHII



物質・材料研究機構 主任研究員

〒305-0047

茨城県つくば市千現 1-2-1

e-mail: ISHII.Yuta@nims.go.jp

略歴: 2019 年 東北大学大学院理学研究科物理学専攻博士後期課程修了。2019 年 高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 博士研究員。2020 年 東北大学大学院理学研究科 助教。2024 年 東北大学 高度教養教育・学生支援機構 助教。2024 年 物質・材料研究機構 マテリアル基盤研究センター 主任研究員。博士 (理学)。最近の研究: X 線を用いた磁性体研究

山崎裕一 Yuichi YAMASAKI



物質・材料研究機構  
マテリアル基盤研究センター  
グループリーダー  
東北大学 国際放射光イノベーション・  
スマート研究センター 教授

〒 305-0047

茨城県つくば市千現 1-2-1

e-mail: YAMASAKI.Yuichi@nims.go.jp

略歴：2009 年 東京大学大学院工学研究科博士課程修了。  
2009 年高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 助教，2014 年東京大学大学院工学系研究科特任講師，  
2017 年物質・材料研究機構統合型材料開発情報基盤部門  
主任研究員などを経て，2024 年 4 月より現職。博士(工学)。  
最近の研究：放射光を使った物質・材料研究，計測インフ  
ォマティクス