

专题: 应用磁学

# 基于同步辐射相位时间分辨 X 射线 铁磁共振技术的发展\*

袁亚楠<sup>1)</sup> 王思宇<sup>1)</sup> 秦春宇<sup>1)</sup> 闫鹏辉<sup>1)</sup> 傅思远<sup>1)</sup>  
王亚梅<sup>2)</sup> 曹杰峰<sup>2)</sup> 李倩<sup>1)†</sup>

1) (中国科学技术大学核科学技术学院, 国家同步辐射实验室, 合肥 230029)

2) (中国科学院上海高等研究院, 上海同步辐射光源, 上海 201204)

(2025 年 11 月 19 日收到; 2025 年 12 月 15 日收到修改稿)

超快磁动力学是当代自旋电子学与磁性材料研究的前沿领域, 涉及磁性体系中磁矩在飞秒至纳秒时间尺度内的响应与演化过程. 为解析这些超快磁动力学行为, 发展了多种时间分辨探测手段. 基于同步辐射的 X 射线铁磁共振 (XFMR) 技术将微波激发的铁磁共振 (FMR) 与 X 射线磁圆二色 (XMCD) 技术相结合, 能够在皮秒时间尺度上实现磁化进动的元素、价态及晶格占位分辨测量, 获取进动磁矩的幅度与相位信息. 本工作依托上海同步辐射光源 (SSRF)BL07U 矢量磁铁实验站, 自主设计并搭建了一套具备皮秒级时间分辨精度的 XFMR 实验平台. 系统采用锁相放大调制与储存环主时钟精密同步的泵浦探测技术, 可在高达 6 GHz 的频率范围内稳定激发并探测磁性元素的自旋进动, 系统本底噪声被有效抑制至 30 fA 量级, 整体相位时间分辨精度优于 10 ps. 标志着国内在同步辐射 XFMR 技术上已具备国际先进的时间分辨能力与灵敏度水平, 为后续开展自旋流和轨道流探测及亚铁磁和反铁磁动力学等领域的研究奠定了重要实验基础.

**关键词:** 超快磁动力学, 同步辐射, X 射线铁磁共振, 相位时间分辨**DOI:** 10.7498/aps.75.20251577**CSTR:** 32037.14.aps.75.20251577

## 1 引言

理解磁性材料中磁矩的超快演化规律, 是当代凝聚态物理与自旋电子学研究的核心之一. 磁矩在飞秒至纳秒时间尺度内的响应过程决定了角动量转移、能量弛豫及阻尼机制, 对新一代高速度、低功耗自旋电子器件与磁存储技术的设计具有基础性意义<sup>[1-3]</sup>. 近二十年来, 随着飞秒激光光学、微波电子学及相干 X 射线科学的迅速发展, 磁动力学研究已从准静态测量迈入具备元素选择性与相位分辨能力的多维时间分辨探测阶段, 极大推动了人们对磁性体系中超快动力学机制的理解.

传统的全光学探测方法中, 时间分辨磁光克尔效应 (TR-MOKE) 具备亚皮秒时间分辨率和灵活的实验几何结构, 广泛用于纳米磁结构的动态观测<sup>[4,5]</sup>. 然而, 由于可见光光子能量较低 (约 1—2 eV), 无法探测磁性材料内部的核心能级跃迁或特定元素磁矩, 所测信号多为整体磁化响应, 难以区分多组分体系中各元素的独立贡献. 另一类典型手段为基于微波激发的铁磁共振 (FMR)<sup>[6]</sup> 及自旋泵浦 (spin pumping)<sup>[7,8]</sup> 和自旋力矩铁磁共振 (ST-FMR)<sup>[9]</sup> 等. 这些方法通过微波磁场或射频电流驱动磁矩在外磁场下发生拉莫尔进动, 已成为定量表征各向异性场、阻尼系数、自旋混合电导与自旋轨道力矩的重要手段<sup>[10]</sup>, 具有测试效率高、信噪比强且适用于常

\* 国家重点研发计划 (批准号: 2023YFA1406400) 和国家自然科学基金 (批准号: 12174364, 12574134) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: liqian89@ustc.edu.cn

规实验室与器件原位表征的优势. 但与 TR-MOKE 类似, 其探测测量仍然为样品的宏观平均磁响应. 近年来, 基于高次谐波 (HHG) 极紫外 (EUV) 源的台式超快磁探测技术取得快速发展. 飞秒激光产生的高次谐波可覆盖 3d 过渡金属吸收边, 实现实验室条件下的元素选择探测<sup>[11,12]</sup>. 然而受限于光通量较低、能量稳定性有限及信噪比不足, 该类系统在高精度定量测量方面仍存在挑战.

为突破这些限制并获取更深入的元素与层分辨磁动力学信息, 研究者们将目光转向 X 射线磁光谱学技术. 同步辐射 X 射线铁磁共振 (XFMR) 技术将微波激发的铁磁共振 (FMR) 与元素选择的 X 射线磁圆二色 (XMCD) 探测相结合, 能够在皮秒时间尺度上直接测量特定元素的磁化进动振幅与相位, 兼具元素选择性与高灵敏度<sup>[2,13,14]</sup>, 该技术尤其适用于多层膜或合金体系中分离各层或各元素磁矩的动态贡献.

XFMR 对同步辐射装置的时间结构与稳定性提出较高要求, 得益于国际主要同步辐射装置的发展, 近些年来在该项技术上实现了持续推动. 2004 年, Bailey 等<sup>[15]</sup> 在美国阿贡国家实验室先进光源 (APS) 的 4-ID-C 线站首次实现了  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$  合金中 Ni 与 Fe 元素的独立进动测量; 随后, Boero 与 Goulon 等于 2005 年在欧洲同步辐射光源 (ESRF) ID08 线站实现了类似的 XFMR 测量<sup>[16,17]</sup>. 但是这些先驱的工作都是采用的时间平均测量的方式, 从而缺失了磁矩进动相位的信息. 实现时间分辨与层分辨 XFMR 的工作是 Arena 等<sup>[18]</sup> 于 2006 年在美国布鲁克海文国家实验室的同步辐射光源 (NSLS) 中研究了铁磁/非磁/铁磁三层膜体系的铁磁共振, 首次证明 XFMR 可同时获得磁化强度与相位信息. 随后, 英国 Diamond 光源 I10 线站报道了自旋

泵浦<sup>[13]</sup>、自旋流在拓扑绝缘体<sup>[19]</sup>、反铁磁金属<sup>[20]</sup> 与反铁磁绝缘体<sup>[21]</sup> 中的传输, 发展出基于 X 射线弹性共振散射铁磁共振的厚度分辨的磁性动力学测量技术<sup>[22]</sup>. 美国先进光源 (ALS)4.0.2 线站实现了层间动态耦合<sup>[23]</sup> 以及顺磁与反铁磁绝缘体中的自旋流传输<sup>[24,25]</sup>. 韩国 Pohang 光源 (PLS-II)2A-MS 线站集成了 XMCD/XFMR 功能<sup>[26]</sup>. 近年来, 中国在该领域也取得显著进展. 依托上海同步辐射光源 (SSRF)BL08U 与 BL07U 线站, 研究团队开发了铁磁共振频率为 2.5 GHz 的 XFMR 装置, 实现了  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$  中 Ni 元素分辨的磁化进动测量<sup>[27]</sup>, 填补了国内空白, 为元素分辨超快磁动力学研究提供了关键支撑.

本文聚焦于 SSRF BL07U 矢量磁体实验站<sup>[28,29]</sup>, 在前期 XFMR 装置成功搭建的基础上进行了系统化优化与功能再设计. 通过引入锁相放大调制检测, 显著提升了信噪比 (SNR); 同时优化共面波导结构, 实现了宽频带范围内高稳定度的微波磁场分布, 增强了激励磁场强度并提高了 X 射线探测的灵敏度与分辨率. 系统的工作频率范围拓展至 6 GHz, 可稳定激发并精确探测磁性元素的自旋进动, 背景噪声被有效抑制至 30 fA 量级, 整体相位时间分辨精度优于 10 ps. 该平台的综合性能已达到并部分超越国际先进水平, 为后续开展小信号分辨的磁动力学研究奠定了坚实的实验基础.

## 2 XFMR 技术原理与实验方法

### 2.1 XFMR 基本原理

X 射线铁磁共振是一种将铁磁共振与 X 射线磁圆二色性相结合的元素分辨的动态磁探测技术<sup>[14,30]</sup>. 如图 1 所示, 该方法通过微波场驱动磁矩

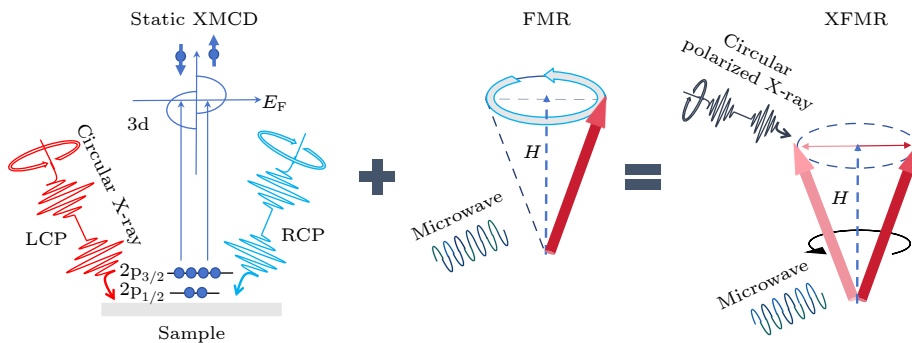


图 1 XFMR 测量原理示意图

Fig. 1. Schematic diagram of the XFMR measurement principle.

发生铁磁共振进动, 并利用同步辐射 X 射线的高亮度与圆偏振特性, 在特定元素吸收边实现对磁化进动的时间与相位分辨测量. 铁磁共振的物理本质是磁矩在外磁场  $H_0$  与微波场  $H_{\text{rf}}$  的共同作用下的进动行为, 当微波频率与样品自旋体系的本征进动频率相一致时, 体系将发生能量吸收并进入共振状态. 其动力学可由 Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程描述<sup>[31]</sup>:

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} + \frac{\alpha}{M_s}\mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{M}}{dt}, \quad (1)$$

其中  $\gamma$  为旋磁比,  $\alpha$  为阻尼系数,  $\mathbf{H}_{\text{eff}}$  为作用在磁化强度  $M$  上的总等效磁场,  $M_s$  为饱和磁化强度. 磁化矢量  $\mathbf{M}(t) = M_s\hat{z} + \mathbf{m}(t)$  的微扰分量  $\mathbf{m}(t)$  在共振条件下随时间做周期性进动, 其幅度与相位反映了材料内部的磁各向异性、阻尼机制及耦合特征, 此时  $\omega = \gamma\sqrt{(H_0 + H_k)(H_0 + H_k + 4\pi M_{\text{eff}})}$ ,  $H_0$  为外加磁场,  $H_k$  为有效各向异性场,  $4\pi M_{\text{eff}}$  为有效退磁项.

XMCD 效应源于自旋-轨道耦合下圆偏振光吸收的差异, 通过改变光的旋性 ( $\sigma^+ / \sigma^-$ ) 或样品磁化方向 ( $M / -M$ ), 可获得元素特定的磁吸收差异, 从而反映样品的磁矩大小、方向及自旋-轨道贡献. 圆偏振 X 射线在入射到磁性材料时, 其吸收系数随磁矩方向变化:

$$\Delta\mu(E) = \mu^+(E) - \mu^-(E) \propto \mathbf{M} \cdot \hat{\mathbf{k}}, \quad (2)$$

其中  $\mu^+(E)$  与  $\mu^-(E)$  分别为左、右旋圆偏振吸收系数;  $\hat{\mathbf{k}}$  为光传播方向. 当探测能量调谐至特定元素的吸收边 (例如 Fe, Co 或 Ni 的  $L_3$  边), 即可实现对不同元素磁矩投影的独立探测. 在小角度进动近似下, XMCD 信号强度随时间呈正弦周期性调制:

$$I(t) = A \sin(\omega t + \varphi), \quad (3)$$

其中  $A$  表示进动幅度,  $\varphi$  为相位延迟. 通过分析幅度-相位关系, 可直接提取不同元素或层间的耦合效应. 因而 XFMR 技术通过 FMR 与 XMCD 的结合, 不仅能检测总磁化强度的共振, 还能通过 XMCD 的元素选择性区分不同原子种类、价态或晶格位置的磁矩响应, 实现元素分辨、层分辨、子晶格分辨的动态谱学表征, 成为研究铁磁、亚铁磁和部分反铁磁体系内部自旋动力学的重要实验手段.

## 2.2 泵浦-探测技术原理

XFMR 的时间分辨能力依赖于精确控制微波

激励 (pump) 与同步辐射 X 射线探测 (probe) 之间的相位关系. 通过调节两者的相位延迟, 实现对磁矩进动全过程的测量. 具体作法是, 在图 2 中利用储存环的严格时间结构 (RF 主时钟) 与相位调制系统的相位同步能力, 通过移相器引入一个可控的相移 (或等效时间延迟) 使得最终输入样品的微波相对于 X 射线脉冲有一个相移, 每个相移对应于采样进动周期上的一个特定相位点, 经过多个相移设置, 获取一系列不同相位下的 XMCD 信号, 因此 X 射线脉冲就可以探测样品在进动周期中的逐步偏移. 将这些不同相位的测量点按照相对时间顺序串联起来, 即可重构出磁矩进动随时间变化的完整曲线. 2006 年 Arena 等<sup>[18]</sup> 通过改变微波与 X 射线的相对延迟, 记录到 Ni, Fe, Co 各元素 XMCD 信号的正弦振荡, 成功覆盖了整个进动周期, 标志着 XFMR 时间分辨技术的实验可行性. 该方法对同步辐射光源的时间结构与运行模式提出了较高要求, 来确保光脉冲时间稳定.

## 2.3 锁相放大调制检测

XFMR 信号通常仅为静态 XMCD 信号的约 1%, 其检测面临极高的信噪比挑战. 为此, 本研究采用锁相放大器对微波进行调制检测以显著提高信号提取能力. 具体实现方案为: 对输入的相位延迟微波信号利用波形发生器施加 10—1000 Hz 的低频相位调制, 使小信号调制系统里的相位调制器输出的微波以  $180^\circ$  相位反转的方式交替输出. 锁相放大器 (LIA) 以该调制频率作为参考, 对光电二极管 (PD) 输出信号进行相干提取, 可有效地抑制背景噪声. 由于 XMCD 信号与磁矩在光照方向上的投影成正比, 当磁矩发生进动时, LIA 的输出信号  $I_{\text{XFMR}} = I^+ - I^-$  可探测进动锥两侧 X 射线吸收的差异. 通过逐步延迟射频场相对于 X 射线脉冲的相位, 可记录完整进动周期.

## 2.4 动态信号探测方式

XFMR 的动态信号可通过两种几何结构进行探测, 如图 3 所示: 一种是通过吸收材料直接激发光子产生的荧光产额 (FY), 另一种是在透射几何结构中, 通过薄膜下方基底的发光产额 (LY). 在 LY 模式中, 样品安装在共面波导 (CPW) 上, 中心导体上的锥形孔使 X 射线能够穿透波导并照射样品, 而安装在孔后方的光电二极管则负责收集

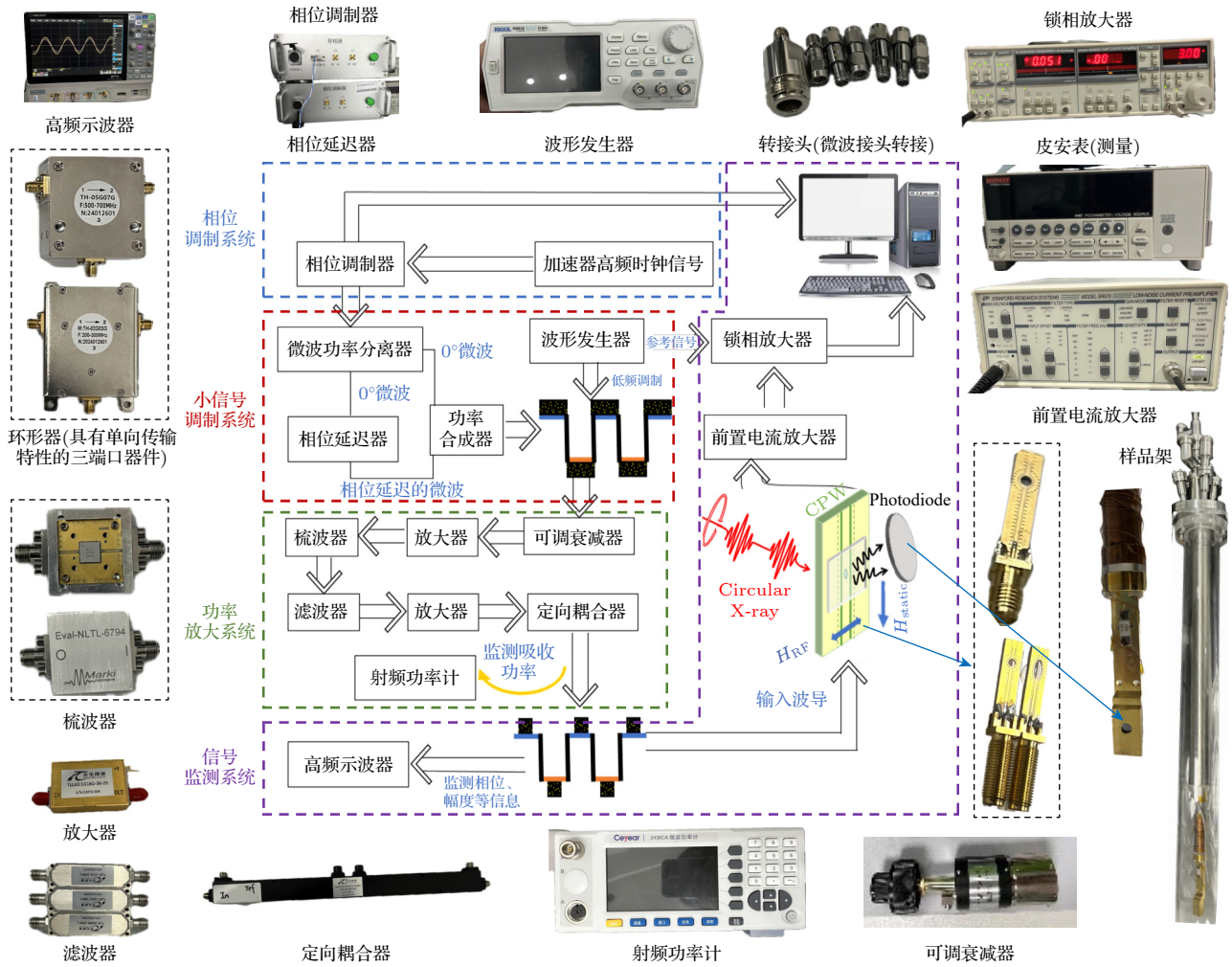


图 2 搭建系统分解及相应设备陈列

Fig. 2. System setup splitting and corresponding equipment display.

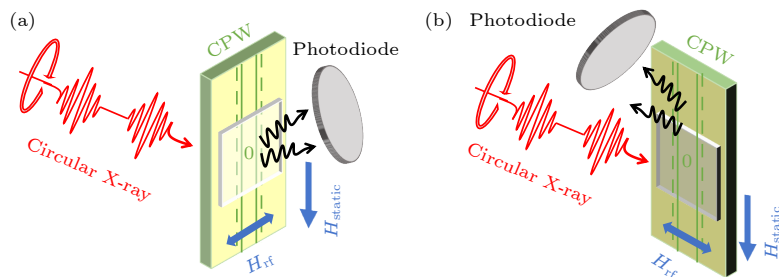


图 3 XFMR 测量模式示意图 (a) luminescence 光致发光法测量 (LY); (b) fluorescence 荧光法测量 (FY)

Fig. 3. Schematic diagram of the XFMR measurement mode: (a) The luminescence fluorescence method (LY); (b) the fluorescence method (FY).

信号. FY 模式与 LY 模式一样, 但光电二极管安装在样品前方倾角位置检测来自薄膜的 FY 信号. 在两种几何结构中, XFMR 均在固定旋性光的条件下测量, 此时薄膜磁化方向沿 CPW 轴 ( $z$  轴) 排列. 当向 CPW 轴施加射频电流时, 会在样品层内产生射频磁场 (RF 磁场, 记为  $H_{rf}$ , 从而引发磁化

方向的共振激发. 当入射光束垂直于 CPW 轴时, 射频诱导产生的进动中与静态磁场正交沿着 X 光方向的磁化分量即可被检测到. 这种可切换模式的设计使 XFMR 测试可兼容不同样品厚度与吸收系数, 既保证高信号强度, 又增加了测试结构几何可调性.

## 2.5 波导设计及优化

为实现集成 GHz 微波激励与 X 射线探测的波导结构, 我们设计并研制了一种适用于 XFMR 测量的打孔接地共面波导结构. 该波导采用可传输高频信号的平面共振结构, 波导中心线特定位置凿有通孔, 使得 X 光能够穿过波导中心线凿孔处入射到磁性样品表面上, 通过光电二极管采集信号. 图 4 为打孔接地共面波导结构基板中截面在不同频率下的仿真微波磁场分布图. 仿真结果表明, 在共面波导信号导体接地端存在微波磁场驻点, 在不同微波频率下始终有着一定的微波磁场强度, 而远离连接处的微波磁场分布受到微波频率很大影响. 非金属通孔靠近微波磁场驻点处, 有效地保证了非金属通孔中心微波磁场的宽频稳定性. 不断调整非金属通孔的形状, 最终发现使用锥形孔可减小共面波导信号导体处孔径, 能够有效地降低微波损耗并显著提高微波磁场强度, 解决了目前打孔波导无法

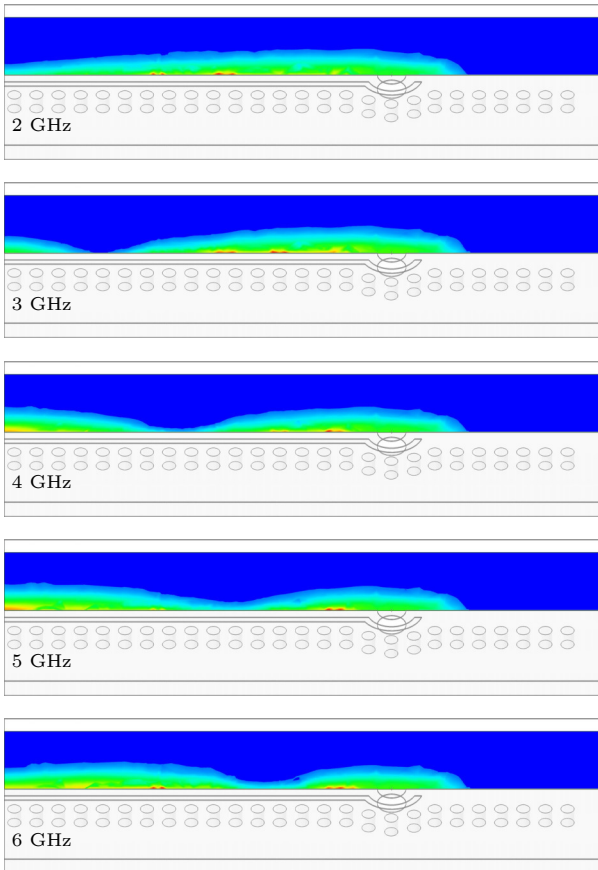


图 4 打孔接地共面波导的基板截面在不同频率下的仿真微波磁场分布图

Fig. 4. Simulated microwave magnetic field distribution of the substrate cross-section of the perforated grounded coplanar waveguide at different frequencies.

实现较高频率下 GHz 自旋进动测量的问题. 这种适用于同步辐射 X 光测量的打孔接地共面波导结构, 不但在宽频带范围内具有优异的微波磁场稳定性, 而且显著地增强了微波磁场强度, 提高了同步辐射 X 光测量的灵敏度和分辨率, 为该项技术的应用提供了新的硬件平台.

## 2.6 实验系统组成及同步方案

结合以上的泵浦探测技术、锁相放大调制检测技术及新型波导设计的技术方案, 我们在上海同步辐射光源 BL07U 线站自主搭建了一套具有时间和相位分辨的 XFMR 技术 (图 5). 系统整体架构如图 6 所示, 主要由相位调制系统、小信号调制系统、功率放大系统和信号监测系统构成. 系统从同步辐射加速器接出与同步辐射脉冲 X 光同频的微波时钟信号, 对该微波时钟信号进行相位延迟、功率增益和微波频率倍频处理, 得到频率和相位可调的微波信号. 其中功率增益和微波频率倍频是经过一个集成微波功率放大器、梳波器和滤波器功能为一体的高频微波放大器来增大功率 (最大至 3000 mW) 和调节频率 (可以调节至 1, 2, 3, 4, 5, 6 GHz), 使得产生的微波达到样品铁磁共振的频率并且使样品磁矩进动获得足够大的进动角度. 将此微波输入打孔平面共振波导, 用于激发待测磁性样品产生 GHz 自旋进动, 同时利用圆偏振的 X 光脉冲入射至平面共振波导打孔处去探测铁磁层自旋进动的瞬时信号. 该系统实现了时间同步、相位控制与高信噪检测的设计, 具备高重复性与高灵敏度, 为磁性动态研究提供了重要实验探测手段.

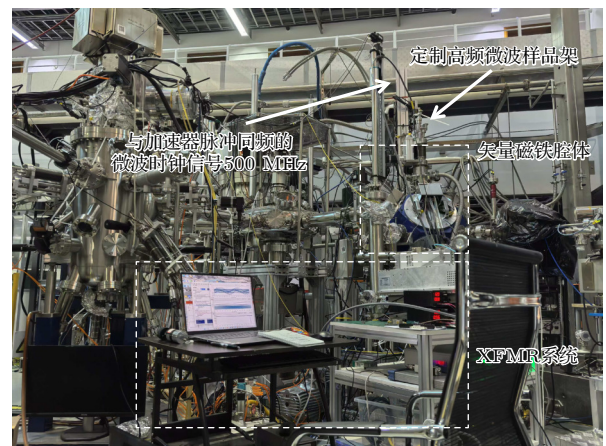


图 5 上海同步辐射光源 BL07U 光束线的实验装置

Fig. 5. Experimental setup at BL07U of the SSRF.

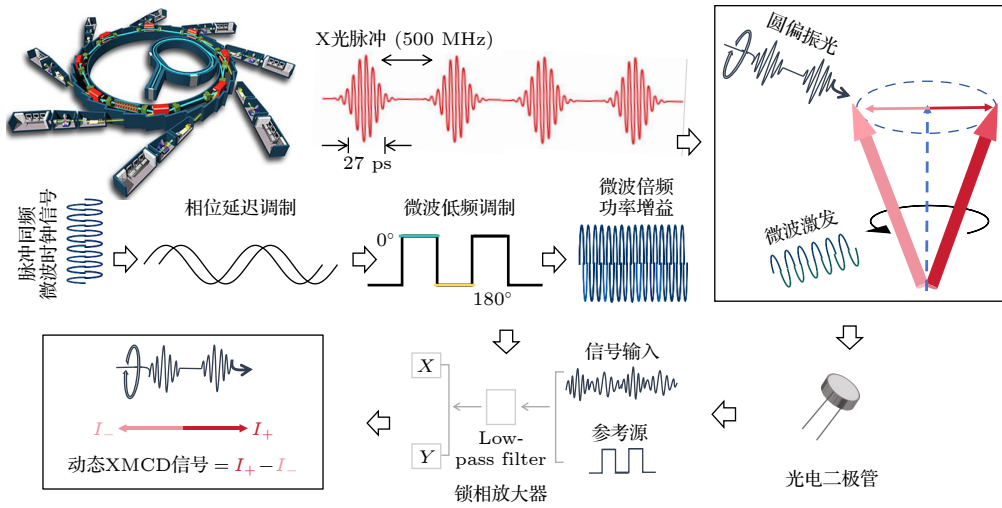


图 6 XFMR 测量系统整体架构图

Fig. 6. Overall architecture diagram of the XFMR measurement system.

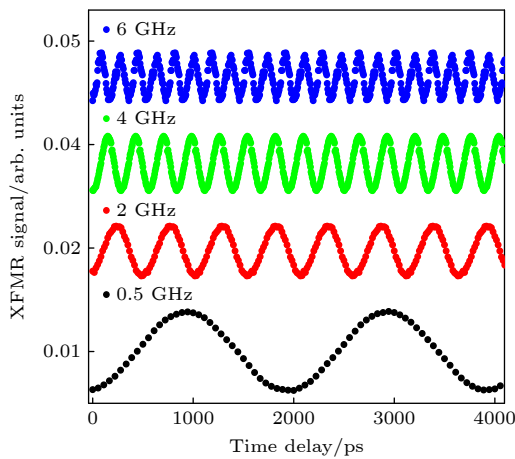

 图 7 系统在 Fe 的  $L_3$  边测量的 0.5, 2, 4 和 6 GHz 频率下对应共振场处的相位延迟扫描

 Fig. 7. Phase delay scan of the system at the corresponding resonance field at 0.5, 2, 4 and 6 GHz at Fe  $L_3$  edge.

### 3 实验系统及测量结果

为验证该系统的性能,我们以典型的亚铁磁绝缘体  $Y_3Fe_5O_{12}$  (YIG) 薄膜为研究对象开展 XFMR 测试. 图 7 给出了样品在 0.5, 2, 4 和 6 GHz 下发生铁磁共振, 于 Fe 的  $L_3$  边 (光子能量  $\approx 707.8$  eV), 在对应频率的共振场下进行了测量的相位延迟扫描. 正如磁化动力学理论所描述的那样, 在微波磁场和恒磁场的共同作用下, 电子自旋磁矩围绕有效磁场不断进动, 磁矩沿 X 射线方向的分量周期振荡. 为了便于观察, 用正弦曲线对实验数据做了拟合. 相位延迟扫描呈现出周期性为 2000 ps 及其  $1/N$  ( $N =$  频率  $f/0.5$  GHz) 的对应激发频率的显著周期性行

为, 这种正弦波形反映了进动运动的振荡特性.

随后, 在不同共振磁场条件下, 于 Fe 的  $L_3$  边开展了相位延迟扫描 (图 8(a)). 每组扫描均在固定偏置磁场 11.2—19.6 Oe ( $1 \text{ Oe} = 10^3/(4\pi) \text{ A/m}$ ) 范围内完成. 相位延迟曲线呈现周期约 2000 ps 的明显振荡, 对应外加微波 0.5 GHz 的激发频率. 通过对各条曲线进行正弦函数拟合, 分别提取了对应磁场下的进动振幅 (图 8(b)) 与相位 (图 8(c)). 结果显示: 吸收振幅随磁场变化呈典型的洛伦兹型线形, 而相位则呈现出 S 形的磁场依赖关系, 在共振点附近发生约  $180^\circ$  的相位跃迁, 可通过反正切函数准确描述. 这种特性是阻尼谐振运动的典型表现.

为进一步量化系统的相位时间分辨能力, 在 6 GHz 激励频率下进行了高精度拟合及残差分析 (图 9), 对原始数据进行信噪比 (SNR) 评估. 拟合模型选取如下形式的正弦函数:

$$S(\varphi) = A \sin(\varphi + \varphi_0) + B, \quad (4)$$

其中  $A$  是信号幅度 (峰值强度),  $\varphi$  是 pump-probe 相位差,  $\varphi_0$  和  $B$  是初始相位偏移和基线偏移. 计算残差:  $r(\varphi) = y(\varphi) - y_{\text{fit}}(\varphi)$ , 假设为高斯分布并基于残差的标准差  $\sigma_{\text{noise}}$  估计噪声水平,  $y(\varphi)$  记为在相位  $\varphi$  处实验测得的信号值,  $y_{\text{fit}}(\varphi)$  为由上述正弦模型拟合得到的对应函数值. 信噪比 (SNR) 定义为振幅与噪声标准差的比值:  $\text{SNR} = A/\sigma_{\text{noise}}$ , 用于表征周期信号在噪声背景中的可分辨性, 能够直观地反映周期信号相对于噪声强度的相对大小. 根据拟合我们得到了振幅  $A$  为 196 fA, 噪声标准基线  $\sigma_{\text{noise}}$  为 30.1 fA (图 9 中的红色划线辅助线),

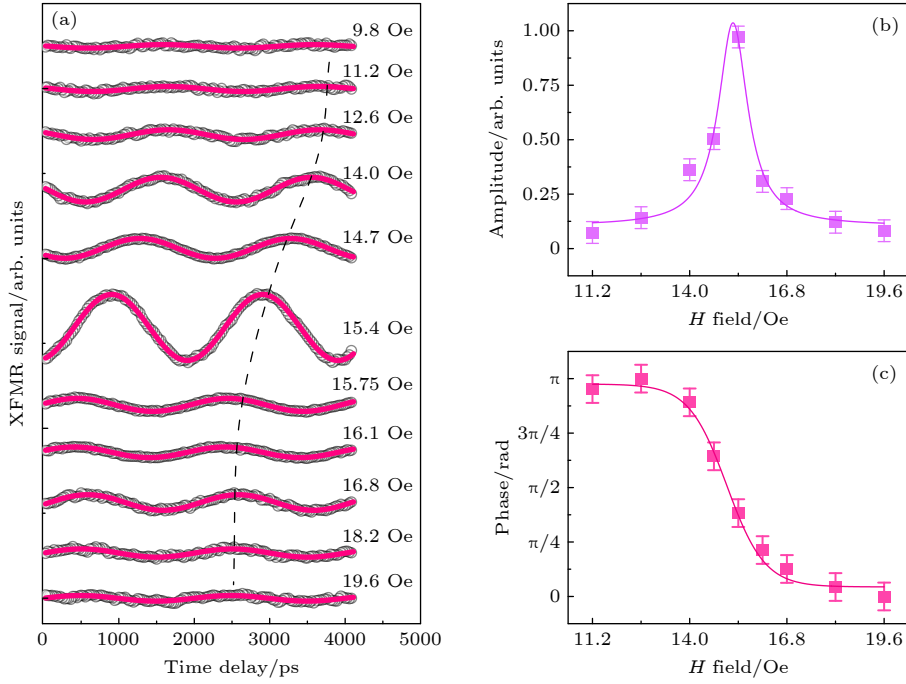


图 8 固定偏置磁场下 0.5 GHz 的相位延迟扫描图 (a)、提取的振幅 (b) 与相位 (c)

Fig. 8. Phase delay scan (a) of 0.5 GHz under a fixed bias magnetic field, extracted amplitude (b) and phase (c).

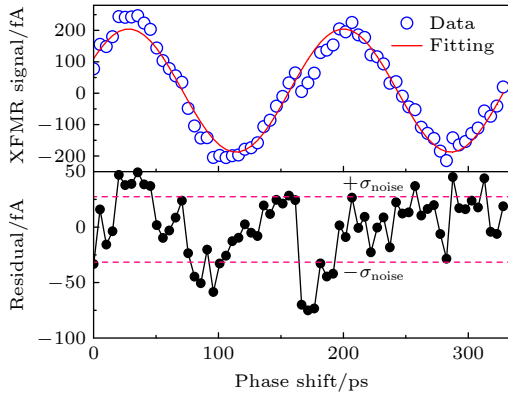


图 9 激励频率 6 GHz 下高精度拟合及残差分析

Fig. 9. High-precision fitting and residual analysis at excitation frequency of 6 GHz.

由此得到 SNR 为 6.51. 进而定义相位时间分辨率为系统能够可靠区分或测量到的最小相位差, 在噪声存在下, 相位差的变化导致信号强度  $S$  发生刚好可检测的改变. 假设最小步进小于相位时间分辨率, 对于小相位变化  $\delta\varphi$ ,  $\Delta S \approx (ds/d\varphi)\delta\varphi = A \cos(\varphi + \varphi_0)\delta\varphi$ . 要能够准确分辨相位值  $\Delta S \geq 2.355\sigma$  (可分辨阈值), 则  $\delta\varphi \geq 2.355\sigma / |A \cos(\varphi + \varphi_0)|$ . 考虑在幅度变化最快处, 即  $\cos(\varphi + \varphi_0) = 1$ , 可得  $\delta\varphi \geq 2.355\sigma / A = 2.355 / \text{SNR}$ , 等效的相位时间分辨率  $\delta t = \left(\frac{\delta\varphi}{2\pi}\right) T$ , 其中  $T$  是进动周期,  $\delta\varphi$  是通过正弦拟合得到的相位分辨率, 最小可分辨度受 SNR

限制. 基于实验信噪比 6.51, 在相位变化最快处  $\delta t = \left(\frac{\delta\varphi}{2\pi}\right) T = \frac{2.355}{\text{SNR} \cdot 2\pi} T = 9.37 \text{ ps} (< 10 \text{ ps})$ . 该相位时间分辨率表明系统能够在 GHz 磁化进动过程可靠区分 10 ps 量级以上的细微变化.

## 4 讨论

### 4.1 世界光源 XFMR 总结比较

目前, 全球范围内具备成熟 XFMR 实验体系的同步辐射光源仍然十分有限. 这些系统围绕时间分辨能力、测量模式多样性以及信噪比优化等方向形成了各自的技术优势, 为深入理解磁化动力学过程提供了重要实验支持. 根据已发表的文献统计, 除我们所建设的上海光源 BL07U 线站外, 全球共有五个同步辐射装置曾经或目前具备 XFMR 测量能力, 分别为: Advanced Light Source (ALS), 劳伦斯伯克利国家实验室 (美国), 4.0.2 线站; Diamond Light Source (DLS) (英国), I10 线站; Pohang Light Source (PLS) (韩国), 2A-MS 线站; European Synchrotron Radiation Facility (ESRF) (法国), ID08 线站; Advanced Photon Source (APS), 阿贡国家实验室 (美国), 4-ID-C 线站. 其中, 美国 APS 与法国 ESRF 是最早开展 XFMR 实验研究的同步辐射光源 (可追溯至 2004 年), 但近年鲜有新的 XFMR

表 1 曾经或目前具备 XFMR 测量能力的世界同步辐射光源总结

Table 1. Summary of the world's synchrotron radiation sources that have had or currently have XFMR measurement capabilities.

光束线	APS BL 4-ID-C	ESRF 原BL ID08 现BL ID32	ALS 4.0.2	DLS I10	PLS 2A-MS	SSRF BL07U
脉冲宽度/ps	70 <sup>[32]</sup>	100 <sup>[33]</sup>	70 <sup>[14]</sup>	41 <sup>[23]</sup>	100 <sup>[34]</sup>	28.3 <sup>[27]</sup>
理论最高频率/GHz	7 <sup>[32]</sup>	5 <sup>[33]</sup>	7 <sup>[14]</sup>	11 <sup>[23]</sup>	5 <sup>[34]</sup>	17 <sup>[27]</sup>
文献中报道的 最高频率/GHz	4.5 <sup>[32]</sup>	2.47 <sup>[16]</sup>	5 <sup>[14]</sup>	6 <sup>[23]</sup>	2.3 <sup>[35]</sup>	6
光斑尺寸/ $\mu\text{m}^2$	100 $\times$ 300 <sup>[36]</sup>	100 $\times$ 10 <sup>[37]</sup>	100 $\times$ 100 <sup>[38]</sup>	200 $\times$ 20 <sup>[39]</sup>	200 $\times$ 1000 <sup>[40]</sup>	120 $\times$ 50 <sup>[41]</sup>
光子通量/ (photons $\cdot$ s <sup>-1</sup> )	10 <sup>12</sup> @1000 eV <sup>[36]</sup>	2 $\times$ 10 <sup>13</sup> @700 eV <sup>[16]</sup>	1 $\times$ 10 <sup>12</sup> @800 eV <sup>[38]</sup>	1 $\times$ 10 <sup>12</sup> <sup>[39]</sup>	10 <sup>10</sup> —10 <sup>12</sup> @867 eV <sup>[40]</sup>	1 $\times$ 10 <sup>12</sup> @867 eV <sup>[41]</sup>
能量范围/eV	400—2800 <sup>[42]</sup>	300—1600 <sup>[37]</sup>	400—1500 <sup>[38]</sup>	400—2000 <sup>[39]</sup>	100—1500 <sup>[40]</sup>	50—2000 <sup>[41]</sup>

工作报告. 这可能与 X 光脉冲宽度较大、可测频率范围受限、能量覆盖区间过宽、线站功能重组或者该技术操作难度高等因素有关. 目前较为活跃的系统主要集中在美国 ALS 和英国 DLS 光源: ALS XFMR 系统的时间分辨受限于储存环脉宽 (约 70 ps), 但凭借稳定的信号调制方案与高度可重复性, 成为 XFMR 技术发展的重要基础平台. DLS I10 线站将 XFMR 技术与弹性散射及偏振分析相结合, 拓展至磁有序结构的动态演化研究. 韩国 PLS 线站的 XFMR 装置虽尚未完全对用户开放, 但其低光子能量选择范围更广, 可低至 120 eV, 相较前述两者在低能区元素研究方面具有潜在优势. 表 1 汇总了全球范围内曾经或目前具备 XFMR 测量能力的同步辐射光源及其主要参数.

值得一提的是, 杨霞等<sup>[27]</sup>在 2021 年于上海光源 BL08U 线站已成功搭建过国内首个皮秒级时间分辨技术的 X 射线铁磁共振实验平台. 但受限于当时的实验条件, 从实验数据得到的进动曲线的信噪比较低, 时间分辨能力仅为 20 ps. 同时该系统也存在样品制备复杂、激发频率低、磁场有限、温度局限于室温等问题. 尽管如此, 该平台的建设为我们当前 XFMR 系统的搭建提供了重要的技术借鉴与前期经验.

## 4.2 X 射线铁磁共振应用与技术升级

本研究发展了基于同步辐射的高灵敏度 XFMR 技术, 实现了小于 10 ps 量级的相位时间分辨能力及高达 6 GHz 频率的磁化动力学测量. 依托上海光源优异的窄时间脉冲宽度及宽能量覆盖范围, 可进一步开展元素、价态及晶格占位分辨的磁性超快

进动研究, 从而揭示亚铁磁材料中不同子晶格间的耦合动力学特征<sup>[43,44]</sup>, 这对于理解强关联体系中的多子晶格协同行为具有重要意义<sup>[45]</sup>. 面向反铁磁 GHz 共振的研究方向, 可通过温度调控及相对于奈尔矢量取向的磁场调谐, 进一步发展 AC-XMLD (交流 XMLD) 测量手段, 以解析弱铁磁、补偿亚铁磁与反铁磁体系中的本征自旋动力学<sup>[25,46]</sup>; 同时, 围绕“轨道流”的注入与传输, 基于轨道霍尔效应与轨道转矩, 区分自旋与轨道极化各自的贡献, 并通过厚度调控及界面工程设计, 系统研究轨道角动量的特征运输<sup>[47,48]</sup>. 在样品与探测几何方面, 采用不同的探测方式 (FY/LY), 从而在不依赖透射的条件下将测量对象扩展至自发荧光强的厚膜与块材样品, 从而获得高信噪比的相位时间分辨动态磁信号<sup>[49]</sup>.

未来 XFMR 技术的发展将面向更高相位时间分辨、更小空间尺度和更强多系统协同方向推进. 通过储存环低- $\alpha$  模式, 有望将有效时间分辨推进至  $<5$  ps, 进一步实现亚太赫兹 (sub-THz) 频段的铁磁共振测量<sup>[50]</sup>; 结合软 X 射线透射显微成像 (STXM) 与纳米聚焦技术, 可发展“谱学+成像”的联合测量模式, 有望实现  $<100$  nm 空间分辨率下的局域磁共振测量<sup>[51]</sup>; 进一步引入电场、应变与热流等外场耦合, 将为研究多物理场驱动下的磁动力学过程及其调控机制提供全新的实验途径<sup>[13]</sup>. 与此同时, 随着高次谐波 (HHG-EUV) 的发展, 未来有望形成“台式超快定性表征-同步辐射定量表征”的多尺度研究平台<sup>[11]</sup>. 此外, 我们也正在合肥先进光源高灵敏自旋时空分辨线站建设 XFMR 实验系统. 合肥先进光源属于第四代衍射极限环形光源, 得益于其极高的光源亮度和较高的信噪比将大幅缩短

测量时间, 从而为探测更多复杂的自旋动力学过程提供可能. 同时, 其极小的光斑尺寸 ( $3\ \mu\text{m}\times 3\ \mu\text{m}$ ) 将为 XFMR 实验带来显著优势, 为实现空间分辨的自旋动力学和自旋流运输测量奠定基础.

## 5 结 论

本研究基于上海同步辐射光源 BL07U 矢量磁体实验站, 研制并优化了一套具备皮秒级时间分辨精度的同步辐射 XFMR 实验平台, 实现了国内首个具有高稳定性、宽频带与高信噪比的相位时间分辨 XFMR 测量系统. 该平台采用储存环主时钟锁定与锁相放大调制检测技术, 将系统噪声抑制至 30 fA 量级, 有效提升了微弱动态磁信号的探测灵敏度; 通过优化共面波导结构, 在 0.5—6 GHz 频率范围内实现稳定激发与响应; 整体相位时间分辨优于 10 ps, 标志着我国同步辐射 XFMR 技术已达到国际先进水平. 该技术不仅为自旋流与轨道流运输、亚铁磁及反铁磁体系的动力学研究提供了重要平台, 也为未来面向纳米空间尺度、飞秒时间尺度的多维磁动力学测量奠定了坚实基础.

## 数据可用性声明

本篇论文的关联数据可在科学数据银行 <https://doi.org/10.57760/sciencedb.j00213.00257> 中访问获取.

本工作部分样品在中国科学技术大学微纳研究与制造中心完成. 研究中部分数据采集得益于国家同步辐射实验室 XMCD-A 与 XMCD-B 线站 (苏州能源材料光束线) 的支持. 感谢上海同步辐射光源 (SSRF)BL07U 束流线的工作人员对 XMCD/XAS 数据收集和系统搭建的协助.

## 参考文献

- [1] Kirilyuk A, Kimel A V, Rasing T 2010 *Rev. Mod. Phys.* **82** 2731
- [2] Walowski J, Münzenberg M 2016 *J. Appl. Phys.* **120** 140901
- [3] Zhang W T, Maldonado P, Jin Z M, Seifert T S, Arabski J, Schmerber G, Beaupaire E, Bonn M, Kampfrath T, Oppeneer P M, Turchinovich D 2020 *Nat. Commun.* **11** 4247
- [4] Koopmans B, Van Kampen M, Kohlhepp J T, De Jonge W J M 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 844
- [5] Acremann Y, Strachan J P, Chembrolu V, Andrews S D, Tyliszczak T, Katine J A, Carey M J, Clemens B M, Siegmann H C, Stöhr J 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 217202
- [6] Kittel C 1948 *Phys. Rev.* **73** 155
- [7] Tserkovnyak Y, Brataas A, Bauer G E 2002 *Phys. Rev. B* **66**

- 224403
- [8] Wang H L, Du C H, Pu Y, Adur R, Hammel P C, Yang F Y 2013 *Phys. Rev. B* **88** 100406[R]
- [9] Liu L Q, Moriyama T, Ralph D C, Buhrman R A 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 036601
- [10] Hoffmann A 2013 *IEEE Trans. Magn.* **49** 5172
- [11] Siegrist F, Gessner J A, Ossiander M, Denker C, Chang Y P, Schröder M C, Guggenmos A, Cui Y, Walowski J, Martens U, Dewhurst J K, Kleineberg U, Münzenberg M, Sharma S, Schultze M 2019 *Nature* **571** 240
- [12] Tanksalvala M, Kos A, Wisser J, Diddams S, Nembach H T, Shaw J M 2024 *Phys. Rev. Appl.* **21** 064047
- [13] Marcham M K, Sheldford L R, Cavill S A, Keatley P S, Yu W, Shafer P, Neudert A, Childress J R, Katine J A, Arenholz E, Telling N D, van der Laan G, Hicken R J 2013 *Phys. Rev. B* **87** 180403[R]
- [14] Klewe C, Li Q, Yang M M, N'Diaye A T, Burn D M, Hesjedal T, Figueroa A I, Hwang C, Li J, Hicken R J, Shafer P, Arenholz E, van der Laan G, Qiu Z Q 2020 *Synchrotron Radiat. News* **33** 12
- [15] Bailey W E, Cheng L, Keavney D J, Kao C C, Vescovo E, Arena D A 2004 *Phys. Rev. B* **70** 172403
- [16] Boero G, Rusponi S, Bencok P, Popovic R S, Brune H, Gambardella P 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 152503
- [17] Goulon J, Rogalev A, Wilhelm F, Jaouen N, Goulon Ginet C, Goujon G, Ben Youssef J, Indenbom M V 2005 *J. Exp. Theor. Phys.* **82** 696
- [18] Arena D A, Vescovo E, Kao C C, Guan Y, Bailey W E 2006 *Phys. Rev. B* **74** 064409
- [19] Baker A A, Figueroa A I, Collins McIntyre L J, van der Laan G, Hesjedal T 2015 *Sci. Rep.* **5** 7907
- [20] Baker A A, Figueroa A I, Love C J, Cavill S A, Hesjedal T, van der Laan G 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 047201
- [21] Dąbrowski M, Nakano T, Burn D M, Frisk A, Newman D G, Klewe C, Li Q, Yang M M, Shafer P, Arenholz E, Hesjedal T, van der Laan G, Qiu Z Q, Hicken R J 2020 *Phys. Rev. Lett.* **124** 217201
- [22] Burn D M, Zhang S L, Yu G Q, Guang Y, Chen H J, Qiu X P, van der Laan G, Hesjedal T 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 137201
- [23] Burn D M, Zhang S L, Zhai K, Chai Y S, Sun Y, van der Laan G, Hesjedal T 2020 *Nano Lett.* **20** 345
- [24] Li J, Sheldford L R, Shafer P, Tan A, Deng J X, Keatley P S, Hwang C, Arenholz E, van der Laan G, Hicken R J, Qiu Z Q 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 076602
- [25] Li Q, Yang M M, Klewe C, Shafer P, N'Diaye A T, Hou D, Wang T Y, Gao N, Saitoh E, Hwang C, Hicken R J, Li J, Arenholz E, Qiu Z Q 2019 *Nat. Commun.* **10** 5265
- [26] Kim C, Choi W C, Moon K W, Kim H J, An K, Park B G, Kim H Y, Hong J i, Kim J, Qiu Z Q, Kim Y, Hwang C 2023 *J. Appl. Phys.* **133** 173906
- [27] Yang X, Cao J F, Li J Q, Zhu F Y, Yu R, He J, Zhao Z L, Wang Y, Tai R Z 2022 *Nucl. Sci. Tech.* **33** 63
- [28] Tai R Z, Zhao Z T 2024 *Nucl. Sci. Tech.* **35** 137
- [29] Zhu F Y, Cao J F, Meng X Y, Li J Q, Yu R, Wang Y M, Qiao S, Zhao B, Zhang M Z, Liu Z K, Wang M X, Wang Y, Tai R Z 2024 *Nucl. Sci. Tech.* **35** 130
- [30] van der Laan G 2017 *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **220** 137
- [31] Gilbert T L 2004 *IEEE Trans. Magn.* **40** 3443
- [32] Arena D A, Ding Y, Vescovo E, Zohar S, Guan Y, Bailey W E 2009 *Rev. Sci. Instrum.* **80** 083903
- [33] Sévelin Radiguet N, Torchio R, Berruyer G, Gonzalez H,

- Pasternak S, Perrin F, Occelli F, Pépin C, Sollier A, Kraus D, Schuster A, Voigt K, Zhang M, Amouretti A, Boury A, Fiquet G, Guyot F O, Harmand M, Borri M, Groves J, Helsby W, Branly S P, Norby J, Pascarelli S, Mathon O 2022 *J. Synchrot. Radiat.* **29** 167
- [34] Jo W, Lee S, Eom I, Landahl E C 2014 *Rev. Sci. Instrum.* **85** 125112
- [35] Kim C, An K, Moon K W, Kim Y, Hwang C 2025 *Curr. Appl. Phys.* **81** 1
- [36] Freeland J W, Lang J C, Srajer G, Winarski R, Shu D, Mills D M 2002 *Rev. Sci. Instrum.* **73** 1408
- [37] European Synchrotron Radiation Facility <https://www.esrf.fr/ID32> [2025-11-01]
- [38] The Advanced Light Source <https://als.lbl.gov/beamlines/4-0-2/> [2025-10-28]
- [39] Diamond Light Source <https://www.diamond.ac.uk/Instruments/Magnetic-Materials/I10> [2025-10-25]
- [40] Pohang Accelerator Laboratory <https://paleng.postech.ac.kr/en/pls/plsbeamLineMap/beam2A/selectView.do> [2025-11-20]
- [41] Shanghai Advanced Research Institute [https://ssrf.sari.ac.cn/dkxzz/tbfs/gsxz\\_gb/xzdl\\_tbfs/bl07u/xzjs/](https://ssrf.sari.ac.cn/dkxzz/tbfs/gsxz_gb/xzdl_tbfs/bl07u/xzjs/) [2025-11-10]
- [42] The Advanced Photon Source <https://www.aps.anl.gov/Sector-4/4-ID-C> [2025-12-13]
- [43] Boero G, Rusponi S, Bencok P, Meckenstock R, Thiele J U, Nolting F, Gambardella P 2009 *Phys. Rev. B* **79** 224425
- [44] Warnicke P, Stavitski E, Lee J S, Yang A, Chen Z, Zuo X, Zohar S, Bailey W E, Harris V G, Arena D A 2015 *Phys. Rev. B* **92** 104402
- [45] Li T Q, Patz A, Mouchliadis L, Yan J Q, Lograsso T A, Perakis I E, Wang J G 2013 *Nature* **496** 69
- [46] Klewe C, Emori S, Li Q, Yang M M, Gray B A, Jeon H M, Howe B M, Suzuki Y, Qiu Z Q, Shafer P, Arenholz E 2022 *New J. Phys.* **24** 013030
- [47] Hayashi H, Jo D, Go D, Gao T H, Haku S, Mokrousov Y, Lee H W, Ando K 2023 *Commun. Phys.* **6** 32
- [48] Ishii Y, Yamasaki Y, Kozuka Y, Lustikova J, Nii Y, Onose Y, Yokoyama Y, Mizumaki M, Adachi J I, Nakao H, Arima T h, Wakabayashi Y 2024 *Sci. Rep.* **14** 15504
- [49] Tröger L, Arvanitis D, Baberschke K, Michaelis H, Grimm U, Zschech E 1992 *Phys. Rev. B* **46** 3283
- [50] Huang X B, Safranek J, Corbett J, Nosochkov Y, Sebek J, Terebilo A 2007 *IEEE Particle Accelerator Conference Albuquerque, NM, USA, June 25–29, 2007* p1308
- [51] Bonetti S, Kukreja R, Chen Z, Spoddig D, Ollefs K, Schöppner C, Meckenstock R, Ney A, Pinto J, Houanche R, Frisch J, Stöhr J, Dürr H A, Ohldag H 2015 *Rev. Sci. Instrum.* **86** 093703

SPECIAL TOPIC — Applied magnetism

# Development of phase-time-resolved X-ray ferromagnetic resonance techniques based on synchrotron radiation\*

YUAN Yanan<sup>1)</sup> WANG Siyu<sup>1)</sup> QIN Chunyu<sup>1)</sup> YAN Penghui<sup>1)</sup>  
FU Siyuan<sup>1)</sup> WANG Yamei<sup>2)</sup> CAO Jiefeng<sup>2)</sup> LI Qian<sup>1)†</sup>

1) (*National Synchrotron Radiation Laboratory, School of Nuclear Science and Technology, University of Science and Technology of China, Hefei, Hefei 230029, China*)

2) (*Shanghai Synchrotron Radiation Facility, Shanghai Advanced Research Institute, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201204, China*)

( Received 19 November 2025; revised manuscript received 15 December 2025 )

## Abstract

Ultrafast magnetization dynamics represent the forefront of modern spintronics and magnetic materials research, addressing the response and evolution of magnetic moments in magnetic systems on a femtosecond-to-nanosecond timescale. To elucidate such ultrafast magnetic processes, a variety of time-resolved experimental techniques have been developed. Among these techniques, synchrotron-based X-ray ferromagnetic resonance (XFMR) combines microwave-driven ferromagnetic resonance (FMR) with X-ray magnetic circular dichroism (XMCD) detection, enabling element-, valence-, and lattice space-resolved measurements of magnetization precession on a picosecond timescale and providing direct access to both the amplitude and the phase of the dynamic magnetic moment. This work develops a picosecond time-resolved XFMR platform at the BL07U vector magnet beamline of the Shanghai Synchrotron Radiation Facility (SSRF). The system employs a lock-in modulation detection scheme precisely synchronized with the storage-ring master clock, realizing stable excitation and detection of spin precession in magnetic materials up to 6 GHz, with the background noise effectively suppressed to 30 fA, and an overall phase time resolution better than 10 ps. The successful implementation of this technique establishes a state-of-the-art XFMR capability in China, achieving internationally competitive performance in both temporal resolution and detection sensitivity. This development provides a strong experimental foundation for future research on spin current and orbital current detection, as well as ferrimagnetic and antiferromagnetic dynamics.

**Keywords:** ultrafast magnetism dynamics, synchrotron radiation, X-ray ferromagnetic resonance, phase-time resolution

DOI: [10.7498/aps.75.20251577](https://doi.org/10.7498/aps.75.20251577)

CSTR: [32037.14.aps.75.20251577](https://cstr.cn/32037.14.aps.75.20251577)

\* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2023YFA1406400) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12174364, 12574134).

† Corresponding author. E-mail: [liqian89@ustc.edu.cn](mailto:liqian89@ustc.edu.cn)



## 基于同步辐射相位时间分辨X射线铁磁共振技术的发展

袁亚楠 王思宇 秦春宇 闫鹏辉 傅思远 王亚梅 曹杰峰 李倩

## Development of phase-time-resolved X-ray ferromagnetic resonance techniques based on synchrotron radiation

YUAN Yanan WANG Siyu QIN Chunyu YAN Penghui FU Siyuan WANG Yamei CAO Jiefeng LI Qian

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 75, 060805 (2026) DOI: 10.7498/aps.75.20251577

CSTR: 32037.14.aps.75.20251577

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.75.20251577>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

### 您可能感兴趣的其他文章

#### Articles you may be interested in

#### 毫秒时间分辨同步辐射X射线衍射和高压快速加载装置及应用

Millisecond time-resolved synchrotron radiation X-ray diffraction and high-pressure rapid compression device and its application

物理学报. 2022, 71(10): 100702 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212360>

#### 利用单光栅干涉仪表征同步辐射的光源特性

Characterization of synchrotron radiation source properties using a single-grating interferometer

物理学报. 2025, 74(20): 200702 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250824>

#### 内壳层体系的X射线腔量子光学

X-ray cavity quantum optics of inner-shell transitions

物理学报. 2024, 73(24): 246101 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20241218>

#### 激光诱导自旋阀结构的超快自旋动力学研究

Research on ultrafast spin dynamics of laser-induced spin valve structures

物理学报. 2025, 74(6): 068501 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20241744>

#### Fe基合金应力感生不可逆磁各向异性机理

Mechanism of stress induced irreversible magnetic anisotropy in Fe-based alloy ribbons

物理学报. 2022, 71(24): 247501 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221509>

#### 晶体X射线劳厄衍射分束特性研究

Beam splitting characteristics of crystal X-ray Laue diffraction

物理学报. 2022, 71(4): 046101 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211674>