

通过实时 XMCD 光谱在组合 Fe-Co-Ni 薄膜中高通量映射磁性属性

Y. Yamasaki,^{1,2,3} N. Sasabe,¹ Y. Ishii,¹ Y. Sekiguchi,¹ A. Sumiyoshiya,⁴

Y. Tanimoto,⁴ Y. Kotani,⁴ T. Nakamura,² and H. Nomura^{1,2}

¹*Center for Basic Research on Materials (CBRM),*

National Institute for Materials Science (NIMS), Tsukuba, Ibaraki, 305-0047, Japan

²*International Center for Synchrotron Radiation Innovation Smart,*

Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan

³*Center for Emergent Matter Science (CEMS), RIKEN, Wako 351-0198, Japan*

⁴*General Incorporated Foundation Photon Science Innovation Center (PhoSIC),*

468-1 Aramaki-aza Aobayama Universe 306,

Aoba-ku, Sendai-shi, Miyagi 980-0845, Japan

摘要

高通量 X 射线磁圆二色性 (XMCD) 光谱学对 Fe-Co-Ni 成分梯度膜进行了系统分析, 以研究磁性能随组分变化的规律。实时 XMCD 测量实现了快速光谱采集。与传统的逐步方法相比, 测量时间减少了大约十倍, 同时保持了高精度。获得的 XMCD 光谱使用 Savitzky-Golay 去噪技术进行处理, 并通过 XMCD 求和规则提取元素特异性磁性能。通过绘制轨道和自旋磁矩沿组分梯度的变化图, 我们确定了表现出增强软磁性能的关键区域。本研究证明了基于同步辐射的高通量光谱学在加速材料发现和优化功能性磁性材料方面的有效性。

I. 介绍

磁性材料根据其成分、电子状态和晶格结构表现出不同的性质。了解这些性质对于优化磁存储、自旋电子学和下一代磁性设备中的材料性能至关重要。在各种磁性材料中，Fe-Co-Ni 合金因其可调的磁各向异性、高的饱和磁化强度和优异的机械性能^{1,2}而受到了广泛关注。这些特性使它们成为自旋电子器件和磁记录介质的理想候选材料。Fe-Co-Ni 合金的一个关键特征是其成分依赖性磁性质。根据斯莱特-泡令规则，Fe-Co 合金表现出最高的饱和磁化强度，在大约 Fe₆₅Co₃₅ 处达到峰值，数值接近于 2.4 μ_B /原子——高于纯 Fe (2.2 μ_B /原子) 或 Co (1.7 μ_B /原子)³。此外，通过仔细调整成分，已经实现了接近零的磁致伸缩软磁材料，这对减少磁性应用中的能量损失是有利的^{1,2}。

Fe-Co-Ni 合金的晶格结构在决定其电子和磁性性质方面起着关键作用。每种元素表现出独特的晶格结构：Ni 采用面心立方 (FCC, 空间群 $Fm\bar{3}m$) 结构，Fe 具有体心立方 (BCC, $Im\bar{3}m$) 结构，而 Co 则以六方密排 (HCP, $P6_3/mmc$) 结构结晶。晶体结构随 Fe-Co-Ni 组分比例的变化而变化，导致相变，这对材料的物理性质有显著影响。Fe-Co-Ni 合金晶格结构的三元相图如图 1(a)⁴ 所示已确定。这些结构差异影响电子相互作用和磁性行为，包括交换耦合、磁晶各向异性和自旋轨道相互作用。

最近在组合材料科学方面取得的进展使得能够在单个样品^{5,6}内系统地研究成分依赖性性质。在组合样品中，已使用诸如磁光克效应 (MOKE) 测量和微 X 射线衍射 (XRD) 等高通量方法来快速确定各种组成⁷的磁特性和晶体结构。然而，为了深入了解这些磁特性的起源⁸，除了实验室基础实验外，还需要使用同步辐射的光谱测量。此类技术能够精确评估特定元素的电子和化学状态，这对于理解控制材料行为的基本机制至关重要。

此外，X 射线磁圆二色性 (XMCD) 测量为局部磁性性质提供了有价值的见解⁹。XMCD 总规则，即 XMCD 光谱的积分，使得能够分别测量自旋和轨道磁矩。轨道角动量通过自旋-轨道耦合决定磁各向异性，并提供有关软磁性起源的重要见解。此外，最近的研究表明，XMCD 还可以检测负责在反铁磁体中观察到的异常霍尔效应的磁偶极项¹⁰⁻¹²。这些技术使材料相图的探索成为可能，并优化其磁性能以用于实际应用。在这项研究中，我们重点使用实时 XMCD 光谱测量快速测定 Fe-Co-Ni 成分梯度膜。通过采用高通量测量方法，我们旨在阐明组成与电子/磁性性质之间的关联，为下一代自旋电子学和磁存储材料的发展做出贡献。

II. 实验

Fe_xCo_yNi_z ($x + y + z = 1$) 组分梯度薄膜，一种组合薄膜，是使用日本筑波的 COMET 公司生产的组合磁控溅射系统 (CMS-6410) 制造而成。样品设计为三角形，边长 7.28 毫米，允许三种元素 Fe、Ni 和 Co[i.e.] 形成连续的组分梯度 [图 1(b)]。对于这些金属靶材，使用了 3N 纯度材料以确保高质量薄膜沉积。各元素的沉积速率被调整为在样品中心处浓度相等。该膜沉积于热氧化 Si 基底上，以保证稳定且均匀的生长表面。沉积过程在 400°C 和 2.7×10^{-5} Pa 的真空压力下进行。Fe、Co 和 Ni 角处薄膜的最终厚度分别为 29.4 nm、20.1 nm 和 18 nm。图 1(c) 显示了从样品角落厚度线性插值得到的每种成分的厚度。

X 射线吸收光谱 (XAS) 测量在日本仙台的 NanoTerasu 的 BL14U 光束线上进行。XAS 测量的能量范围设定为 650 eV 到 950 eV，以覆盖 Fe、Co 和 Ni 的 L_3 和 L_2 吸收边。XAS 测量采用总电子产额 (TEY) 方法进行，通过收集发射电子来提供 XMCD 信号的表面敏感检测。使用安装在¹³ 光束线上的扫描 X 射线显微镜 (SXM) 系统测量了 XAS 的空间依赖性。样品位置以 0.5 毫米的步长由直线电机控

制进行测量，为了覆盖整个三角形区域，在 66 个不同位置进行了 XAS 测量。在样品位置处的光束大小约为 0.5 毫米 $\times$ 0.5 毫米。

常规的 XAS 测量通常是在每个能量点停止单色器并测量信号后再移动到下一个能量点。虽然这种分步方法提供高精度，但它显著增加了测量时间，因此对于系统研究成分依赖性属性而言，高通量测量更为可取。本研究通过在收集信号的同时连续改变单色器，使用现场可编程门阵列 (FPGA) 每秒获取大约 10 万个采样点来测量能量光谱，如图 1(d) 所示的实验装置示意图。控制 PC 发送能量扫描命令后，TEY 信号 (I_1) 和用于归一化的入射 X 射线束监视器信号 (I_0) 各自通过高速电流放大器，并与单色器角度编码器信号一起以高速采样，该角度对应于入射 X 射线的能量。在该光束线上，软 X 射线光子由双螺旋摆动器产生。在飞行测量期间，还动态控制了摆动器磁阵列的间隙，对应于所选光子旋性，并与光栅节距扫描同步以匹配光子能量。

该方法提高了测量速度，但也由于光学元件的连续运动和较短的信号采集时间窗口而引入了比传统逐级测量更多的噪声 [图 1(e)]。这个问题将通过执行稍后讨论的去噪滤波器处理分析来解决。这种方法允许高效的数据采集，并且在保持高光谱分辨率的同时显著减少了总测量时间。对左旋和右旋圆偏振光进行了实时 XAS 测量，这对应于光的自旋角动量 $p = \pm \hbar$ 。为了测量饱和磁化状态，在与入射 X 射线方向相同的超导磁铁上施加了 1 T 的磁场¹³。为了消除伪影，一个 XMCD 谱是通过在不同极化 ($p = \pm \hbar$) 和磁场 ($h = \pm 1\text{T}$) 组合下获得的四个 XAS 谱进行分析而得出的。因此，对于每个 66 个样品位置，在不同的磁场和偏振条件下进行了测量，并在 16 小时内总共获得了涵盖 Fe、Co 和 Ni 吸收边的 264 个 XAS 谱。

III. 分析

获得的 XAS 光谱使用 Savitzky-Golay 滤波器进行处理，以去除噪声同时保留光谱特征。该滤波器对滚动数据点窗口应用最小二乘多项式拟合，有效地平滑数据，同时保持光谱细节。与简单的移动平均不同，Savitzky-Golay 滤波器保留峰结构和高频特征，使其非常适合 XAS 测量的光谱分析。它充当低通滤波器，降低噪声，同时保持光谱中清晰的过渡。

Savitzky-Golay 滤波器的核心思想是在一个孔径大小为 w 的滑动窗口内，用某个次数 p 的多项式来近似数据点。然后取窗口中心点处多项式的值作为平滑值。这一过程对数据集中的每个点重复进行，从而得到一个平滑后的信号。假设我们有一组数据点 (x_i, y_i) ，其中 i 从 1 到 w 变化，并且中心位于 x_k 。这些观测数据点旨在通过一个次数为 p 的多项式拟合，可以表示为：

$$y = f_{\alpha}(x) = \alpha_0 + \alpha_1 x + \alpha_2 x^2 + \cdots + \alpha_p x^p. \quad (1)$$

对于给定的数据点窗口，我们确定系数 $\alpha = (\alpha_0, \alpha_1, \dots, \alpha_p)$ 使得该多项式最佳地拟合数据点。这是通过对实际数据点 y_i 和多项式值之间的差的平方和进行最小化来实现的：

$$\hat{\alpha} = \underset{\alpha}{\operatorname{argmin}} \sum_{i=1}^w \left(y_i - \sum_{j=0}^p \alpha_j x_i^j \right)^2. \quad (2)$$

然后，滤波后的值作为 $\hat{y}_k = f_{\hat{\alpha}}(x_k)$ 获得。这种最小二乘法确保了多项式平滑地跟随数据趋势同时保留急剧变化。

图 1(e) 显示了归一化 XAS 光谱 I_1/I_0 的原始数据，包括入射 X 射线强度 I_0 和样品的 TEY 信号 I_1 (蓝色散点)，在大约 FeL 边缘能量区域。由于测量时间较短，数据包含显著噪声。此外，由于单

色仪持续移动，其反馈控制器导致出现了长时间周期的振荡伪影。通过对数据集应用 Savitzky-Golay 滤波器进行曲线拟合，我们得到了图 1(e) 中红线所示的去噪数据。在这项研究中，使用 SciPy 库的 `savitzky_golay` 滤波器函数处理原始 XAS 数据。Savitzky-Golay 滤波器分析应用了拟合参数 $p = 2$ 和 $w = 1025$ ，对应于大约 0.15 eV 的能量范围内的曲线拟合。在进行噪声减少分析后，使用四个 XAS 光谱数据集 ($p = \pm h$ 和 $h = \pm 1T$) 进行了 XMCD 计算。

IV. 结果

图 2(a) 和 2(b) 分别显示了覆盖 Fe、Co 和 Ni 的 L_3 和 L_2 吸收边的 XAS 和 XMCD 光谱，这些光谱是在组合样品位置变化的情况下测量得到的。图 2(c) 提供了 Fe XMCD 区域的放大视图，而图 2(d) 展示了相应的积分值。线条颜色是基于三元坐标并通过 RGB 颜色函数确定的，对应于插图 2(c) 中所示的颜色图上的位置。组合样品的位置不同导致成分变化，从而引起 XAS 和 XMCD 光谱的变化。这使得能够对每种成分进行特定元素的磁性性质评估。为了将每个光谱与物理性质关联起来，基于 X 射线吸收总规则进行了分析。X 射线吸收可以由电偶极跃迁的费米黄金法则得出，反映了根据价态的磁量子数变化的概率。因此，通过计算多个偏振光谱，可以从^{14,15}中提取磁性性质。值得注意的是，可以通过总规则访问的磁性和电多极依赖于选择的偏振。具体来说，XAS 总规则探测电单极子，XMCD 探测磁偶极子，XMLD 探测电四极子，在每种情况下都可以分别测量无自旋和有自旋的多极。^{10,11,16,17}

XAS 的线性 ($\parallel z$) 和圆偏振 ($\mu_{\pm}$) 总和提供了关于电子单极子、即。空穴浓度 n_h 以及轨道角动量和自旋角动量内积 $\mathbf{l} \cdot \mathbf{s}$ 的信息。假设样品是各向同性的，*i.e.* 晶体各向异性和基底应力最小，则可以使用以下方程作为近似： $S_{00} \equiv \mu_+ + \mu_- + \mu_z \sim \frac{3}{2}(\mu_+ + \mu_-)$ 。孔的数量 n_h^A ($A = \text{Fe, Co, Ni}$) 可以通过在 L_3 和 L_2 边缘的总 X 射线吸收积分确定：

$$\langle n_h^A \rangle = C \int_{A, L_3+L_2} S_{00} dE, \quad (3)$$

其中 C 是一个取决于实验条件的比例因子。分析 XAS 积分，我们可以获得 Fe 价态的归一化空穴数 $\langle \hat{n}_h^{\text{Fe}} \rangle \equiv \langle n_h^{\text{Fe}} \rangle / \langle n_h^{\text{total}} \rangle$ 与 $n_h^{\text{total}} \equiv n_h^{\text{Fe}} + n_h^{\text{Co}} + n_h^{\text{Ni}}$ ，如图 3(a) 所示的三元图中所示。可以看出，Fe 的空穴占有率随名义上的 Fe 组分变化而变化。

另一方面，带有自旋的电单极子，轨道 $\mathbf{l}$ 和自旋角动量 $\mathbf{s}$ 的内积，可以从 L_3 和 L_2 边之间的 X 射线吸收积分之差确定：

$$\langle \mathbf{l}^A \cdot \mathbf{s}^A \rangle = C \left(\int_{A, L_3} S_{00} dE - 2 \int_{A, L_2} S_{00} dE \right), \quad (4)$$

其中 $\mathbf{l}^A$ 和 $\mathbf{s}^A$ 代表元素 A 价态上的轨道和自旋角动量。图 3(b) 显示了由空穴数定义的带自旋电子单极子，定义为 $\langle \mathbf{l} \cdot \mathbf{s} \rangle_h^{\text{Fe}} \equiv \langle \mathbf{l}^{\text{Fe}} \cdot \mathbf{s}^{\text{Fe}} \rangle / \langle n_h^{\text{Fe}} \rangle$ 。

XMCD 和项规则允许对轨道和自旋磁矩进行定量确定。这些由 Thole 等。¹⁴ 和 Carra 等。¹⁵ 制定的和项规则提供了一种从 XMCD 光谱中提取磁矩的方法，特别是在 $L_{2,3}$ 边缘。无自旋求和规则提供了关于轨道角动量的信息，该信息由

$$\langle l_z^A \rangle = -2C \int_{A, L_3+L_2} S_{10} dE, \quad (5)$$

给出，其中 $S_{10} \equiv \mu_+ - \mu_-$ 和 C 是与方程 3 相同的系数。相比之下，带自旋求和规则提供了自旋 s_z^A 的信息以及各向异性磁偶极子项 t_z^A ，表示为

$$\langle m_z^A \rangle = -3C \left(\int_{A, L_3} S_{10} dE - 2 \int_{A, L_2} S_{10} dE \right), \quad (6)$$

与 $\langle m_z^A \rangle = 2\langle s_z^A \rangle + 7\langle t_z^A \rangle$ 。定义为电四极矩算符与自旋算符¹⁸的乘积的 t_z 项，在表现出磁偶极子对称性^{10,12,19-21} 的反铁磁体中成为 XMCD 的主要贡献。在强各向异性区域，如样品表面，其强度显著增加，因此在表面敏感的 TEY 测量中， t_z 贡献不能被忽略，从而提取一个纯粹由自旋衍生的量是困难的。

在图 2(d) 中, p 和 q 分别代表在 718 eV (这是 L_3 边和 L_2 边的边界) 以及位于足够高于 L_3 边的 750 eV 处的积分值。使用这些值, 轨道磁矩和带自旋的磁偶极矩分别由 $\langle l_z^{\text{Fe}} \rangle = -2Cq$ 和 $\langle m_z^{\text{Fe}} \rangle = -3(3p-2q)C$ 给出^{22,23}。图 3(c) 显示了归一化后的带自旋的磁偶极矩, 定义为 $\langle \hat{m}_s \rangle_h^{\text{Fe}} \equiv \langle m_s^{\text{Fe}} \rangle / \langle n_h^{\text{total}} \rangle$ 。对于轨道角动量, 我们在图 3(d)、(e) 和 (f) 中分别展示了 $A = \text{Fe}, \text{Co}$ 和 Ni 的轨道 (l_z) 与磁偶极子 (s_z 和 t_z) 项之间的比值, 该比值由 $\langle \tilde{m}_l \rangle_h^A \equiv \frac{\langle l_z^A \rangle}{\langle m_s^A \rangle} \frac{\langle n_h^A \rangle}{\langle n_h^{\text{total}} \rangle}$ 定义。这里, 由于在元素浓度较低的区域 $\langle m_s^A \rangle$ 变得较弱, 导致数据中的噪声增加, 我们乘以归一化的空穴计数来绘制轨道角动量的基本信息。

讨论

通过 XAS 和 XMCD 的元素特定映射, 可以可视化三元库中每个元素的实际组成。如图 3(a) 所示, Fe 分布大致遵循预期的组成比例, 但在 Ni 富集角出现轻微偏差。由于总电子产额 (TEY) XAS 仅探测表面几纳米范围内的区域, 我们暂且将这种不匹配归因于在薄膜表面分离的 Fe 离子; 然而, 异常的确切原因仍不清楚。自旋和轨道矩的内积反映了 Fe 自旋-轨道相互作用的强度, 在图 3(b) 所示的 Fe-(20 – 40 at %)Co/Ni 区域显著减小, 与 Permalloy 型合金报告的软磁行为一致。相反, 在富 Co 区附近信号增加, 反映了 hcp Co 预期的增强效应, 较低对称性增强了自旋-轨道耦合。Ni 表现出更大的相互作用减弱区域, 再次与 Fe-Ni 软磁体的低磁各向异性相容。

对于 Fe 而言, 带有自旋的磁偶极项 $\langle m_s \rangle$ 整体上追踪名义组成, 但其数值在 Fe – Ni 合金中明显大于 Fe – Co 合金。相比之下, 在纯 Fe 中虽然轨道磁矩很小, 但在引入 Co 和/或 Ni 时会增大。在这个组分范围内, 早期的报告将高总磁矩归因于自旋和轨道贡献增加, 但我们的数据表明这种增长似乎仅来自轨道成分。由于 XMCD 求和规则中的带有自旋的磁偶极项不是纯自旋可观测量²⁴, 其贡献可能无法捕捉到真正的磁矩增强。因此, 需要通过角度依赖的 XMCD 或与从头算计算比较来严格分离自旋 (s_z) 和各向异性磁偶极 (t_z) 部分 *e.g.*, 以进行明确的解释。对于 Co 和 Ni 而言, 轨道矩几乎单调地随各自浓度变化, 如图所示。3(e) 和 3(f)。Fe 和 Co 共享一个被抑制的轨道角动量扩展区域, 忠实反映了这个三元合金家族的软磁特性。

由于 XMCD 信号是在全电子产额 (TEY) 模式下获取的, 该模式仅探测顶部几纳米区域, 因此应注意到测量本质上对表面化学敏感。事实上, Fe L_3 边线形与铁²² 的透射模式光谱不同, 显示了特征性的铁氧化物特性。这些观察结果表明, 一层薄的、非故意氧化的表面层以及可能的成分偏差污染了 TEY 信号, 因此必须谨慎解释定量矩确定的结果。由于表面氧化引起的异常 L_3 边轮廓也导致了违背直觉的求和规则结果, 即轨道矩与自旋矩反平行, 尽管 $3d$ 带填充超过一半, 按照这一填充程度, 预期轨道矩应与自旋平行。这种异常可能表明, 三价耦合 Fe 原子表现出增强的相对轨道贡献, 类似于之前报道的磁铁矿²⁵ 的行为。

结论

我们已在电机化平台上实现了即时 XMCD 协议, 以绘制 Fe – Ni – Co 成分梯度组合膜中元素分辨的自旋和轨道矩。尽管扫描速度很快, 但使用 Savitzky – Golay 滤波器处理的光谱仍保留了足够的质量, 可进行定量磁分析, 从而能够全面绘制三元磁趋势图。由于这项工作的主要目标是方法论, 即开

发一个高通量测量平台，因此仍需要进行更详尽的材料表征以充分评估磁性能。体敏感荧光产额 XAS、用于矩成像的磁光克尔显微镜和用于晶体结构鉴定的 X 射线衍射是显而易见的下一步。通过将这些互补技术整合到统一的数据分析流程中，我们设想一个快速筛选材料的生态系统，它将加速磁性材料的发现，远远超出传统、单点和/或逐步光谱测量能力。

ACKNOWLEDGMENTS

我们感谢 M. Takata 和 T. Arima 对本工作的宝贵讨论。该项目部分得到了文部科学省计划：数据创造与利用型材料研究开发项目（磁性材料数字转型倡议中心；JPMXP1122715503）以及日本学术振兴会 (JSPS) 科学研究费 (KAKENHI)(JP19H04399, JP23K17145, JP24K03205, JP24H01685, JP24K17603 和 JP25K0338) 的支持。本工作得到了文部科学省量子飞跃旗舰项目 (MEXT Q-LEAP) 拨款号 JPMXS0118068681 的部分支持。本工作还部分得到了日本科学技术机构 (JST) 的 PRESTO(JP-MJPR2102) 和 CREST(JPMJCR1861 和 JPMJCR2435) 的支持。

-
- ¹ R. Chesnutt, J. Appl. Phys. **73**, 6223 (1993).
 - ² T. Osaka, M. Takai, K. Hayashi, K. Ohashi, M. Saito, and K. Yamada, Nature **392**, 796 (1998).
 - ³ Y. Iwasaki, R. Sawada, E. Saitoh, and M. Ishida, Commun. Mater. **2**, 1 (2021).
 - ⁴ Y. K. Yoo, Q. Xue, Y. S. Chu, S. Xu, U. Hangen, H.-C. Lee, W. Stein, and X.-D. Xiang, Intermetallics (Barking) **14**, 241 (2006).
 - ⁵ M. L. Green, I. Takeuchi, and J. R. Hattrick-Simpers, J. Appl. Phys. **113**, 231101 (2013).
 - ⁶ C. Tan, H. Wu, L. Yang, and Z. Wang, Adv. Mater. Technol. **9**, 2302038 (2024).
 - ⁷ Y. Iwasaki, A. G. Kusne, and I. Takeuchi, Npj Comput. Mater. **3**, 1 (2017).
 - ⁸ P. Söderlind, O. Eriksson, B. Johansson, R. C. Albers, and A. M. Boring, Phys. Rev. B Condens. Matter **45**, 12911 (1992).
 - ⁹ T. Nishio, M. Yamamoto, T. Ohkochi, D. Nanasawa, A. L. Foggiatto, and M. Kotsugi, Science and Technology of Advanced Materials: Methods **2**, 345 (2022).
 - ¹⁰ Y. Yamasaki, H. Nakao, and T.-H. Arima, J. Phys. Soc. Jpn. **89**, 083703 (2020).
 - ¹¹ S. Hayami and H. Kusunose, Phys. Rev. B. **103**, L180407 (2021).
 - ¹² M. Kimata, N. Sasabe, K. Kurita, Y. Yamasaki, C. Tabata, Y. Yokoyama, Y. Kotani, M. Ikhlas, T. Tomita, K. Amemiya, H. Nojiri, S. Nakatsuji, T. Koretsune, H. Nakao, T.-H. Arima, and T. Nakamura, Nat. Commun. **12**, 5582 (2021).
 - ¹³ Y. Kotani, Y. Senba, K. Toyoki, D. Billington, H. Okazaki, A. Yasui, W. Ueno, H. Ohashi, S. Hirose, Y. Shiratsuchi, and T. Nakamura, J. Synchrotron Radiat. **25**, 1444 (2018).
 - ¹⁴ B. T. Thole, P. Carra, F. Sette, and G. van der Laan, Phys. Rev. Lett. **68**, 1943 (1992).
 - ¹⁵ P. Carra, B. T. Thole, M. Altarelli, and X. Wang, Phys. Rev. Lett. **70**, 694 (1993).
 - ¹⁶ G. Laan, Physical Review B **57**, 112 (1998).
 - ¹⁷ H. Kusunose, R. Oiwa, and S. Hayami, J. Phys. Soc. Jpn. **89**, 104704 (2020).
 - ¹⁸ T. Oguchi and T. Shishidou, Phys. Rev. B Condens. Matter Mater. Phys. **70**, 024412 (2004).
 - ¹⁹ N. Sasabe, M. Kimata, and T. Nakamura, Phys. Rev. Lett. **126**, 157402 (2021).
 - ²⁰ N. Sasabe, M. Mizumaki, T. Uozumi, and Y. Yamasaki, Phys. Rev. Lett. **131**, 216501 (2023).
 - ²¹ Y. Yamasaki, Y. Ishii, and N. Sasabe, arXiv [cond-mat.mtrl-sci] 2504.16461 (2025).
 - ²² C. T. Chen, Y. U. Idzerda, H. Lin, N. V. Smith, G. Meigs, E. Chaban, G. H. Ho, E. Pellegrin, and F. Sette, Phys. Rev. Lett. **75**, 152 (1995).

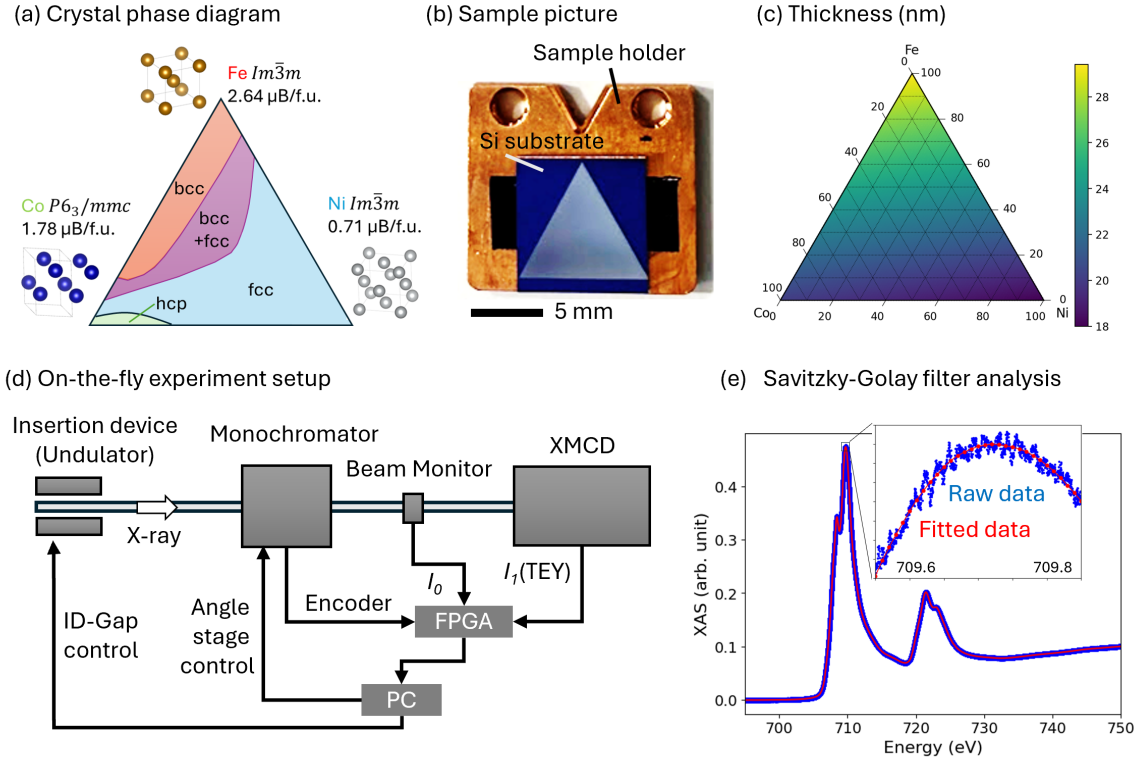


图 1. (a) Fe-Co-Ni 合金的三元晶格相图。'bcc', 'fcc' 和 'hcp' 分别代表体心立方、面心立方和六方密排结构。(b) 通过溅射法制备的组合 Fe-Co-Ni 薄膜的照片。刻度尺相当于 5 毫米。(c) 制备样品的厚度。(d) 在线 XMCD 实验的实验配置图。(e) XAS 在 FeL 边吸收处使用 Savitzky-Golay 滤波器去噪分析的一个示例。

²³ T. Nakamura, A. Yasui, Y. Kotani, T. Fukagawa, T. Nishiuchi, H. Iwai, T. Akiya, T. Ohkubo, Y. Gohda, K. Hono, and S. Hirose, Appl. Phys. Lett. **105**, 202404 (2014).

²⁴ R. Wu and A. J. Freeman, Phys. Rev. Lett. **73**, 1994 (1994).

²⁵ E. Goering, Phys. Status Solidi B Basic Res. **248**, 2345 (2011).

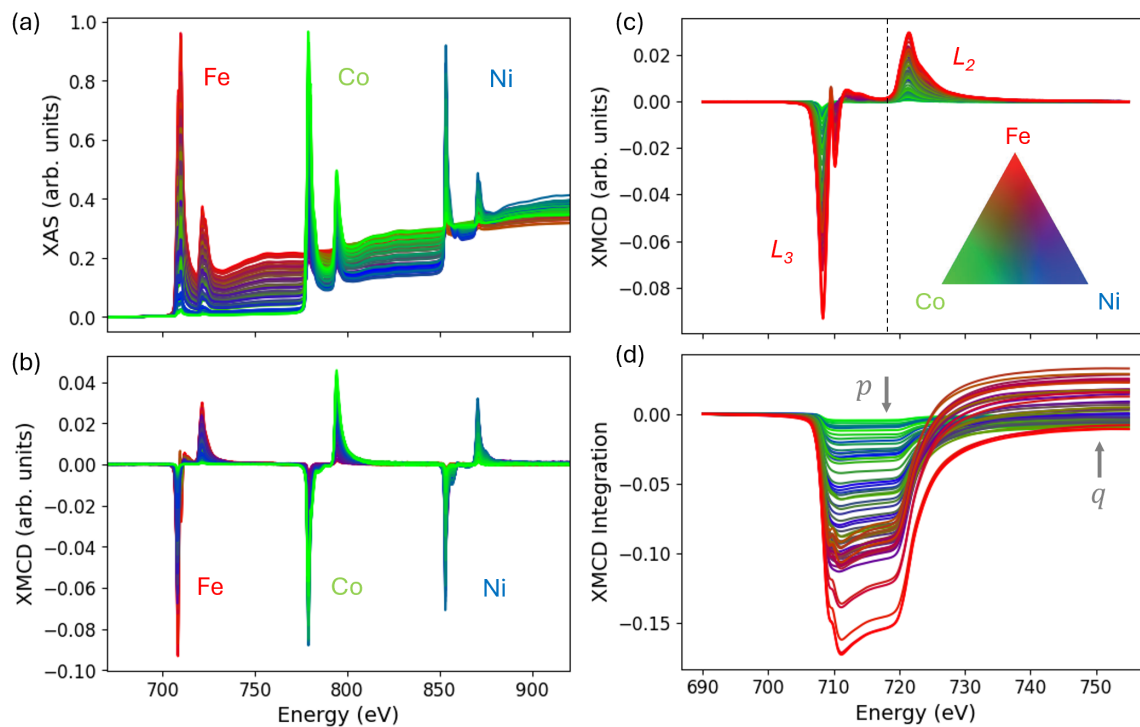


图 2. X 射线吸收光谱 (XAS) 和 X 射线磁圆二色性 (XMCD) 在 Fe - Ni - Co 组合薄膜中 Fe 的光谱。(a) 归一化的 TEY-XAS 和 XMCD 光谱, 涵盖了多个样品位置上的 Fe L_3 和 L_2 吸收边。每条线的颜色根据其三元 (Fe - Ni - Co) 组成通过 (b) 中的 RGB 映射插入图进行着色。(b) Fe L 边的 XMCD 放大视图及其 XMCD 信号积分。 p 和 q 分别表示在 718 eV 和 750 eV 处的积分值。这些积分用于求和规则公式, 以提取轨道和自旋磁偶极矩。

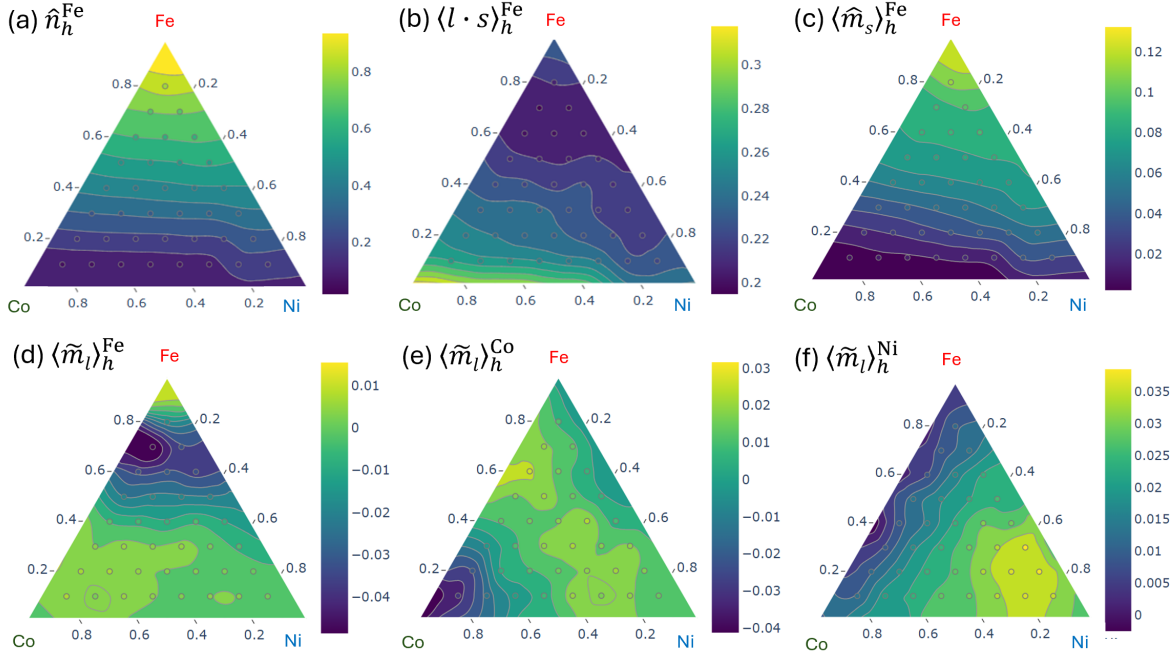


图 3. Fe – Ni – Co 梯度膜的元素特定组成和磁矩图。(a) 通过整合 TEY-XAS 获得的 Fe 的孔数，在三元图上绘制（使用笛卡尔空间插值的 66 个测量点）。(b) 由 XAS 总规则获得的 Fe 的自旋-轨道内积 $\mathbf{l} \cdot \mathbf{s}$ 图，该规则衡量有效自旋-轨道耦合。(c) 通过 XMCD 总规则评估的带自旋的磁偶极项 $\langle m_s^{\text{Fe}} \rangle$ 。(d)，(e)，和 (f) 分别显示 $A = \text{Fe}$ 、Co 和 Ni 的轨道磁矩 $\langle \tilde{m} \rangle_h^A$ 。