

05 工学研究院・理工学府・理工学部 5-1 学術雑誌論文

熱平衡な光，非平衡な磁性体

<http://hdl.handle.net/10131/0002000255>

名前 / ファイル	ライセンス	アクション
 JPS_Bamba_postprint.pdf (561 KB)		ダウンロード Information

Item type	学術雑誌論文 / Journal Article(1)
公開日	2024-02-26
タイトル	
言語	ja
タイトル	熱平衡な光, 非平衡な磁性体
言語	
言語	jpn
資源タイプ	
資源タイプ識別子	http://purl.org/coar/resource_type/c_6501
資源タイプ	journal article
著者	馬場, 基彰
内容記述	
内容記述タイプ	Abstract
内容記述	<p>光（電磁波）は非平衡，磁性体は熱平衡が主な研究の舞台である．ここでは逆に，横場の電磁場を熱平衡下で相転移させるために，磁性体中のマグノンの非平衡下での振る舞いを測定したという話をする．</p> <p>1973年，光場（横場の電磁場）を介した原子間の相互作用によって，原子集団が横場の電磁場と一緒に相転移すると理論的に提唱された．これは超放射相転移やディッケ（Dicke）相転移とよばれる．その実現によって，非常に強い2モード量子スクイーミングが熱平衡下で得られる．デコヒーレンスに対して堅牢な量子科学技術の基盤に繋がりうる現象である．しかし，熱平衡下の超放射相転移は，提唱より50年，いまだ観測された例がない．</p> <p>超放射相転移は，荷電粒子が電気双極子遷移を通じて電磁場と相互作用する単純な系ではまず起こらないと認識されており，スピンなどの別の自由度の存在が肝心となる．この戦略に基づき，最初の一步として，我々はスピン波（マグノン）版の超放射相転移を確認した．具体的には，磁性体ErFeO₃中のFe³⁺ + スピン格子のマグノンを介して，Er³⁺ + スピン同士が相互作用することで，Fe³⁺ + マグノンとEr³⁺ + スピン集団が約4 Kで相転移することを確認した．</p> <p>マグノン版の超放射相転移かどうかを検証するためには，熱平衡下の相図だけでは不十分である．我々は，Fe³⁺ + マグノンを介してEr³⁺ + スピン同士が確かに相互作用することを確認するために，ErFeO₃の静磁場下でのテラヘルツ分光実験を実施した．吸収スペクトルにFe³⁺ + マグノンとEr³⁺ + 遷移のピークが得られ，静磁場の大きさの変化により，それらの準位反発（反交差； anticrossing）が観測された．さらに我々はEr³⁺ + をY³⁺ + に置換してEr³⁺ + 密度N/V（原子数N，体積V）を変化させることで，その準位反発の大きさがEr³⁺ + 密度の平方根$\sqrt{N/V}$に比例することを確認した．Fe³⁺ + とEr³⁺ + が近接的に相互作用するだけなら，準位反発はN/Vに比例するはずである．観測された\sqrt{N}依存性が，Fe³⁺ + マグノンを介してEr³⁺ + スピン同士が相互作用することの証拠である．</p> <p>\sqrt{N}に比例する準位反発は，真空ラビ（Rabi）分裂とよばれる（Vは一定とするアトが多い）初期状態としてEr³⁺ + スピン</p>

<p>言語</p>	<p>のどれか1個だけが励起した状態を考える。それが基底状態に緩和した際、Fe³⁺ マグノン（超放射相転移が提唱された本来のモデルでは共振器中の光子）が1個生成される。そのマグノン（光子）はまたEr³⁺ スピン（原子）集団のどれか1個を励起する。これが繰り返されることで、マグノン数（光子数）の期待値は時間的に振動し、マグノン（光場）の振動にはうなりが生じる。これが真空ラビ（Rabi）振動とよばれる。また、うなりをフーリエ変換するとスペクトル上に準位反発が得られ、これが真空ラビ分裂とよばれる。初期状態でマグノン（光子）がゼロ個でも起こる振動であることから「真空」と冠せられる。マグノン（光子）1個によってEr³⁺ スピン（原子）のどれか1個が励起されればよいことから、真空ラビ振動の周期は\sqrt{N}に反比例し、真空ラビ分裂の大きさは\sqrt{N}に比例する。</p> <p>このように、ErFeO₃中のFe³⁺ マグノンとEr³⁺ 遷移の非平衡ダイナミクス（吸収スペクトル）の測定から、Fe³⁺ マグノンを介したEr³⁺の協同的な相互作用を確認した。また、準位反発の大きさから相互作用の強さを見積もることで、ErFeO₃が約4 Kで示す相転移が、確かにマグノン版の超放射相転移であると結論づけた。</p> <p>現在、より確かな証拠を得るために、Fe³⁺ マグノンとEr³⁺ スピン集団の熱平衡下での量子スクイーミング観測を目指して研究を進めている。デコヒーレンスに対して堅牢な量子科学技術を構築するためにも、まずは観測が必要である。</p>
<p>書誌情報</p>	<p>ja</p>
<p>ISSN</p> <p>収録物識別子タイプ</p> <p>収録物識別子</p>	<p>ja : 日本物理学会誌</p> <p>巻 79, 号 2, p. 63-67, 発行日 2024-02-05</p>
<p>DOI</p> <p>関連タイプ</p> <p>識別子タイプ</p> <p>関連識別子</p>	<p>isVersionOf</p> <p>DOI</p> <p>https://doi.org/10.11316/butsuri.79.2_63</p>
<p>権利</p> <p>言語</p> <p>権利情報</p>	<p>ja</p> <p>(c) 2024 一般社団法人 日本物理学会</p>
<p>著者版フラグ</p> <p>出版タイプ</p> <p>出版タイプ Resource</p>	<p>AM</p> <p>http://purl.org/coar/version/c_ab4af688f83e57aa</p>
<p>出版者</p> <p>出版者</p>	<p>日本物理学会</p>

熱平衡な光、非平衡な磁性体

馬場基彰

(横浜国立大学大学院工学研究院/京都大学大学院理学研究科/京都大学白眉センター bamba.motoaki.y13@kyoto-u.jp)

光（電磁波）は非平衡、磁性体は熱平衡が主な研究の舞台である。ここでは逆に、横場の電磁場を熱平衡下で相転移させるために、磁性体中のマグノンの非平衡下での振る舞いを測定したという話をする。

1973年、光場（横場の電磁場）を介した原子間の相互作用によって、原子集団が横場の電磁場と一緒に相転移すると理論的に提唱された。これは超放射相転移やディッケ (Dicke) 相転移とよばれる。その実現によって、非常に強い2モード量子スクイーミングが熱平衡下で得られる。デコヒーレンスに対して堅牢な量子科学技術の基盤に繋がらう現象である。しかし、熱平衡下の超放射相転移は、提唱より50年、いまだ観測された例がない。

超放射相転移は、荷電粒子が電気双極子遷移を通じて電磁場と相互作用する単純な系ではまず起こらないと認識されており、スピンなどの別の自由度の存在が肝心となる。この戦略に基づき、最初の一步として、我々は**スピン波（マグノン）**版の超放射相転移を確認した。具体的には、磁性体 ErFeO_3 中の Fe^{3+} スピン格子のマグノン を介して、 Er^{3+} スピン同士が相互作用することで、 Fe^{3+} マグノンと Er^{3+} スピン集団が約4 Kで相転移することを確認した。

マグノン版の超放射相転移かどうかを検証するためには、熱平衡下の相図だけでは不十分である。我々は、 Fe^{3+} マグノンを介して Er^{3+} スピン同士が確かに相互作用することを確認するために、 ErFeO_3 の静磁場下でのテラヘルツ分光実験を実施した。吸収スペクトルに Fe^{3+} マグノンと Er^{3+} 遷移のピークが得られ、静磁場の大きさの変化により、それらの準位反発（反交差; anti-crossing）が観測された。さらに我々は Er^{3+} を Y^{3+} に置換して Er^{3+} 密度 N/V (原子数 N , 体積 V) を変化させることで、その準位反発の大きさが Er^{3+} 密度の平方根 $\sqrt{N/V}$ に比例することを確認した。 Fe^{3+} と Er^{3+}

が近接的に相互作用するだけなら、準位反発は N/V に比例するはずである。観測された $\sqrt{N/V}$ 依存性が、 Fe^{3+} マグノンを介して Er^{3+} スピン同士が相互作用することの証拠である。

\sqrt{N} に比例する準位反発は、真空ラビ (Rabi) 分裂とよばれる (V は一定とすることが多い)。初期状態として Er^{3+} スピンのどれか1個だけが励起した状態を考える。それが基底状態に緩和した際、 Fe^{3+} マグノン（超放射相転移が提唱された本来のモデルでは共振器中の光子）が1個生成される。そのマグノン（光子）はまた Er^{3+} スピン（原子）集団のどれか1個を励起する。これが繰り返されることで、マグノン数（光子数）の期待値は時間的に振動し、マグノン（光場）の振動にはうなりが生じる。これが真空ラビ (Rabi) 振動とよばれる。また、うなりをフーリエ変換するとスペクトル上に準位反発が得られ、これが真空ラビ分裂とよばれる。初期状態でマグノン（光子）がゼロ個でも起こる振動であることから「真空」と冠せられる。マグノン（光子）1個によって Er^{3+} スピン（原子）のどれか1個が励起されればよいことから、真空ラビ振動の周期は \sqrt{N} に反比例し、真空ラビ分裂の大きさは \sqrt{N} に比例する。

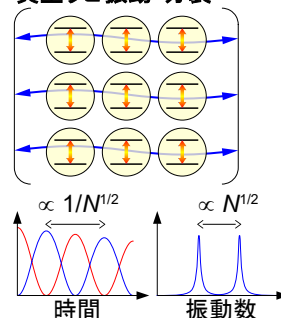
このように、 ErFeO_3 中の Fe^{3+} マグノンと Er^{3+} 遷移の非平衡ダイナミクス（吸収スペクトル）の測定から、 Fe^{3+} マグノンを介した Er^{3+} の協同的な相互作用を確認した。また、準位反発の大きさから相互作用の強さを見積もることで、 ErFeO_3 が約4 Kで示す相転移が、確かにマグノン版の超放射相転移であると結論づけた。

現在、より確かな証拠を得るために、 Fe^{3+} マグノンと Er^{3+} スピン集団の熱平衡下での量子スクイーミング観測を目指して研究を進めている。デコヒーレンスに対して堅牢な量子科学技術を構築するためにも、まずは観測が必要である。

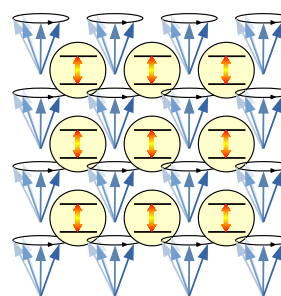
—用語解説—

スピン波（マグノン）:
スピン歳差運動が波として物質中を伝搬するものがスピン波、スピン波を量子化したものがマグノンとよばれる（電磁波を量子化したものが光子）。

真空ラビ振動・分裂



N 個の原子が光場（横場の電磁場）を介して協同的に相互作用する時、真空ラビ振動の周期は \sqrt{N} に反比例し、真空ラビ分裂の大きさは \sqrt{N} に比例する。



原子集団がスピン波と協同的に相互作用すれば、それらの間で振幅がキャッチボールされ（ラビ振動し）、スペクトル上には真空ラビ分裂が現われる。

1. 光は主に非平衡下で研究されてきた

光（電磁波）を研究対象とする場合には、非平衡な状況が基本的には扱われる。非平衡とはつまり、注目する系と外界との間にエネルギーや粒子の流れがある状況である。発光やレーザー発振では、注目する系（物質）から光が出ていく。非線形光学現象、光電効果、光誘起相転移、光誘起超伝導などでは、注目する系に光を入れる。光を使った量子技術も大半が非平衡なものである。（真空）ラビ振動・分裂も非平衡な現象である。

熱平衡下の光を扱う研究の例としては、19世紀の空洞放射（黒体放射）が挙げられ、その研究が量子論の構築に繋がった。その他には、光子のボーズ-アインシュタイン凝縮（BEC）の試みや、半導体中の励起子ポラリトン（物質の励起状態と光子との重ね合わせ状態）の BEC が挙げられる。これらは、光子やポラリトンという準粒子を、熱平衡に至るほど長い時間にわたって光の共振器に閉じ込めることで、BEC が準安定状態として実現するというものである。

とはいえ、これらのような熱平衡下での光の現象は、非常に多彩な非平衡下での現象に比べると、多様性は乏しいと言える。その中で、50年近くにわたり、手を変え物質を変え、研究が続いている現象がある。それは、超放射相転移（superradiant phase transition）やディッケ相転移とよばれる熱平衡下の相転移現象である。

本稿では、超放射相転移について説明した後、その実現には未だ課題が山積していることを説明する。その後、光の代わりに磁性体 ErFeO_3 中のスピン波（マグノン）を用いればスピン波の超放射相転移が起きるのではというアイデアについて、その実験的・理論的な検証の研究を解説する。

2. 光が熱平衡下で相転移する？

いま単純に、単一の光（電磁波）モードと N 個の二準位系が相互作用する系を考える。具体的には、ディッケ模型とよばれる以下のハミルトニアンを考える。¹⁾

$$\hat{H}_{\text{Dicke}} = \hbar\omega_{\text{photon}} \left(\hat{a}^\dagger \hat{a} + \frac{1}{2} \right) + \hbar\omega_{\text{atom}} \left(\hat{S}_z + \frac{N}{2} \right) + 2\hbar g_0 (\hat{a}^\dagger + \hat{a}) \hat{S}_x. \quad (1)$$

ここでは、光子の共鳴振動数を ω_{photon} とし、 \hat{a} (\hat{a}^\dagger) は光子の消滅（生成）演算子である。第1項は光子のエネルギーを表している。二準位原子の遷移振動数は ω_{atom} とし、大きさ $N/2$ のスピン演算子 $\hat{S}_{x,y,z}$ で N 個の原子集団を表現している。第2項は原子励起のエネルギーを表している。すなわち、 \hat{S}_z の固有状態 $|N/2, m\rangle$ ($m = \pm N/2, \pm(N-1)/2, \dots$) に第2項を作用すると、 $(m + N/2)\hbar\omega_{\text{atom}}$ が固有エネルギーとして得られ、 $(m + N/2)$ 個の原子が励起した状態を表す。

式(1)の最終項は光子と原子集団との相互作用を表している。スピン昇降演算子を $\hat{S}_\pm \equiv \hat{S}_x \pm i\hat{S}_y$ と定義すると、

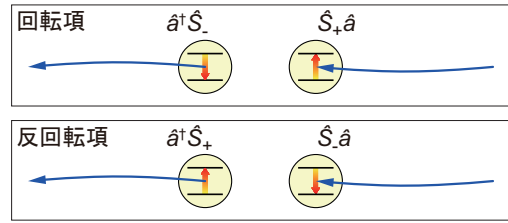


図1 光（電磁波）と原子の相互作用の描像。式(2)の4項のうち、回転項とよばれる2項は、原子緩和による光子の放出 ($\hat{a}^\dagger \hat{S}_-$) と光子吸収による原子励起 ($\hat{S}_+ \hat{a}$) に対応する。残り2項の反回転項は、原子励起と光子放出 ($\hat{a}^\dagger \hat{S}_+$)、光子吸収と原子緩和 ($\hat{S}_- \hat{a}$) に対応し、一見するとエネルギーが保存していないように見えるが、過程としては存在する。

相互作用項は

$$2\hbar g_0 (\hat{a}^\dagger + \hat{a}) \hat{S}_x = \hbar g_0 (\hat{a}^\dagger + \hat{a}) (\hat{S}_+ + \hat{S}_-) \quad (2)$$

と書き換えることができる。これらのうち、 $\hat{a}^\dagger \hat{S}_-$ と $\hat{S}_+ \hat{a}$ は回転項とよばれる。図1に示すように、 $\hat{a}^\dagger \hat{S}_-$ は原子1個が励起状態から基底状態に緩和して光子が1個放出される過程、 $\hat{S}_+ \hat{a}$ は逆に光子1個が吸収されて原子が1個励起される過程を表す。相互作用の強さ g_0 は、光子1個が原子1個に吸収・放出されるレートに相当する。ここで、 N 個ある原子のどれか1個が光子と相互作用すればよいので、例えば、原子集団の基底状態からの励起には $\hat{S}_+ |N/2, -N/2\rangle = \sqrt{N} |N/2, -N/2+1\rangle$ のように \sqrt{N} が現われる。このように、

$$g \equiv \sqrt{N} g_0 \quad (3)$$

が原子集団としての相互作用の強さ（光子1個が原子集団に吸収・放出されるレート）に相当する。この \sqrt{N} 依存性はディッケ協同性とよばれる。 g_0 は光モード（共振器）の体積の平方根に反比例する。物質の体積を固定した場合、 g は原子密度の平方根に比例することになる。

光子数ゼロで原子が1個だけ励起した状態を初期状態として、式(1)のハミルトニアンに基づいた系の時間発展（ダイナミクス）を計算すれば、前頁の中図のような真空ラビ振動が得られる。光の振幅をフーリエ変換すると分裂した2つのピークが得られ、その分裂幅がおおよそ $2g/(2\pi)$ になる。この分裂は吸収スペクトルなどの線形光学応答で比較的簡単に観測することができ、真空ラビ分裂とよばれる。

一方、式(2)の残りの項、 $\hat{a}^\dagger \hat{S}_+$ と $\hat{S}_- \hat{a}$ は反回転項とよばれる。図1に示すように、 $\hat{a}^\dagger \hat{S}_+$ は原子が励起されると共に光子が1個生成される過程、 $\hat{S}_- \hat{a}$ は原子が緩和すると共に光子が1個消滅する過程を表している。これらは一見するとエネルギーが保存しないかのように見えるが、光子と原子の相互作用が電流とベクトルポテンシャルの積（もしくは電気分極と電束密度の積）として導かれることを踏まえると、自然とハミルトニアンに現れてくる。これら反回転項によって、系の基底状態において一般に量子スクイーミングが得られることが知られている。²⁾

1973年にヘップ (K. Hepp) とリーブ (E. Lieb) によって、式(1)のディッケ模型では熱力学極限 ($N \rightarrow \infty$) で2次の

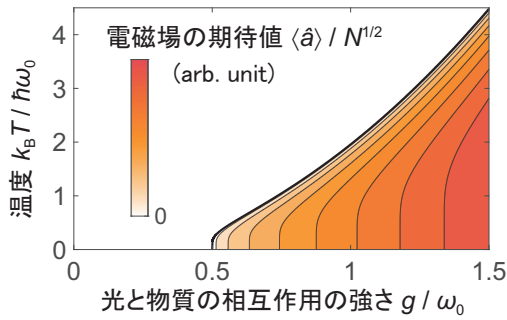


図2 ディック模型 [式 (1)] の相図. $\omega_0 = \omega_{\text{photon}} = \omega_{\text{atom}}$ とした. 光と物質の相互作用の強さが閾値 $g = \sqrt{\omega_{\text{photon}}\omega_{\text{atom}}}/2$ を越えると超放射相転移が起こる. 超放射相では, 無次元化された横場の電磁場の期待値 $\langle \hat{a} \rangle / \sqrt{N}$ (秩序変数) が自発的に有限値となる.

相転移が得られることが示された.³⁾ 秩序変数は光子の消滅演算子の期待値 $\langle \hat{a} \rangle$ (無次元化された電磁場の大きさ) もしくは相互作用に関わるスピン演算子の期待値 $\langle \hat{S}_x \rangle$ (無次元化された原子集団の分極や電流の大きさ) である. 図2は, $\omega_0 = \omega_{\text{photon}} = \omega_{\text{atom}}$ として, 無次元化した相互作用の強さ g/ω_0 と温度 $k_B T / \hbar\omega_0$ に対して $\langle \hat{a} \rangle / \sqrt{N}$ をプロットした相図である. $g^2 = \omega_{\text{photon}}\omega_{\text{atom}}/4$ を閾値として, 2次の相転移が得られる.

例えば, ベクトルポテンシャルや電束密度は $(\hat{a}^\dagger + \hat{a})$ に比例し, 電場もしくは電束密度は $i(\hat{a}^\dagger - \hat{a})$ に比例する. その場合, \hat{a} の期待値の実部がベクトルポテンシャル (電束密度) に比例し, 虚部が電場 (もしくは電束密度) に比例する. 超放射相転移が起きるということは, それら横場の電磁場が有限の値を取ることを意味する. 典型的な非平衡下の光の現象では, $\langle \hat{a} \rangle$ は時間的に振動するが, 超放射相転移では, それらは熱平衡下で静電磁場として現れる.

3. 磁気相転移や強誘電相転移との違い

磁性体や強誘電体との違いは, それらの相転移が物質内の相互作用に起因するのに対して, 超放射相転移は横場の電磁場と物質との相互作用に起因するところにある. この違いは, 古典量 (秩序変数) よりもむしろ, 量子ゆらぎに反映される. つまり, 相互作用によって一般に量子スクイーピング (量子ゆらぎの圧縮) が得られるが, 磁気相転移などではスピン (物質) を基底としたスクイーピングが得られるのに対し,⁴⁾ 超放射相転移では電磁場と物質の重ね合わせ状態を基底とした量子スクイーピングが得られる.²⁾

言い方を変えれば, 最大のスクイーピングは, 超放射相転移の場合, 光子と原子状態の重ね合わせの基底において得られる. 光子や原子状態など, それぞれの基底でのスクイーピングは, 最大値よりも小さなものとなる. どの基底で量子スクイーピングが最大となるのかを測定することが, 相転移を引き起こす相互作用の同定に繋がる.

典型的な量子技術で生成・制御されるスクイーピング状態は非平衡下において系の励起状態として得られる. それゆえ, デコヒーレンス (ノイズ) によって減退してしまう. 一方,

超放射相転移にて得られるスクイーピング状態は, 系の基底状態や熱平衡状態で得られ, 様々なデコヒーレンスに対して堅牢であると期待される. このスクイーピング状態をどのように制御し観測するかについては, さらなる研究が必要ではあるが, 量子技術に常に付きまとうデコヒーレンス問題への根本的な解決策に繋がる可能性がある. 磁気相転移で期待される熱平衡下のスピンのスクイーピング⁴⁾ と比べれば, 基底変換を基本的に必要とする量子技術には, 複数種類の基底 (粒子) で実現される超放射相転移によるスクイーピングのほうが有利に働くと考えられる.

4. 熱平衡な光の超放射相転移は未だ探索中

絶対零度 ($T = 0$) に相当する状況下でのパラメータ変化による超放射相転移については, レーザー光照射下の冷却原子系で2010年に確認された.⁵⁾ ただし, これは非平衡な状況である. 照射するレーザー光の強度が温度に相当するという議論もあるが,⁶⁾ 熱平衡下の超放射相転移ではない.

熱平衡下で超放射相転移が起きるのかどうかは, 長年にわたり現在でも議論が続いている. 1973年の提唱³⁾ の2年後, レゼウスキ (K. Rzażewski) らは以下を指摘し, 熱平衡下の超放射相転移はアーティファクトであると述べた.⁷⁾

式 (1) のディック模型は, クローンゲージにおいてマクスウェルの方程式と荷電粒子のニュートンの運動方程式から典型的に導かれる, いわゆる最小結合 (minimal-coupling) ハミルトニアン

$$\hat{H}_{\text{min}} = \hat{H}_{\text{photon}} + \sum_{i=1}^N \frac{[\hat{p}_i + e\hat{A}(\hat{r}_i)]^2}{2m} + V(\{\hat{r}_i\}) \quad (4)$$

から近似的に導かれる.¹⁾ 第1項は光子 (横場の電磁場) のエネルギー, 第2項は電荷 $-e$ と質量 m の荷電粒子の運動エネルギー, 最終項はクーロン (縦場の電磁場) エネルギーである. \hat{r}_i と \hat{p}_i は, i 番目の荷電粒子の位置と運動量の演算子である. 式 (1) の最終項で表される光と物質の相互作用は, 運動エネルギー項を展開して現れる $\hat{p}_i \cdot \hat{A}$ から導かれる. レゼウスキらの指摘は, 相互作用の強さ g が超放射相転移の閾値である $\sqrt{\omega_{\text{photon}}\omega_{\text{atom}}}/2$ ほどに大きい場合は, 式 (1) では無視されている \hat{A}^2 項が付加的なエネルギーコストとなり, 超放射相転移が起きないというものであった.

その後も約50年にわたり, 最小結合ハミルトニアンや, スピン自由度などをさらに考慮した系にて, 熱平衡下の超放射相転移が起きるかどうか, 理論的な議論が交わされている. 最新の議論としては, 空間的な変調のある電磁場モードが必要であることや磁気感受率の発散が注目されている.

⁸⁾ しかし, 熱平衡下で電磁場が超放射相転移したという報告はいまだなされていない.

5. スピン波を介した協同性が確認された

一方, 式 (1) のディック模型にて, $g^2 > \omega_{\text{photon}}\omega_{\text{atom}}/4$ と熱力学極限 ($N \rightarrow \infty$) で超放射相転移が起きること自

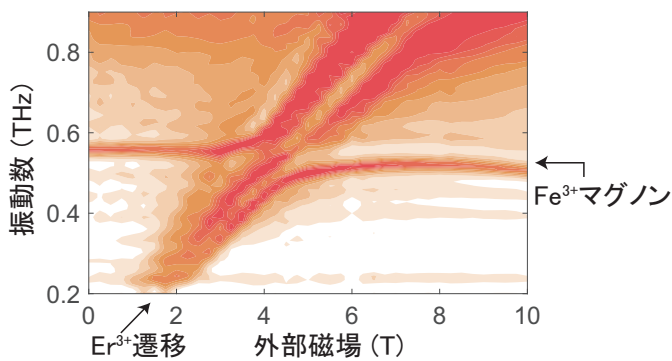


図3 ErFeO₃ の吸収スペクトルの外部磁場依存性。¹⁰⁾ 約 0.5 THz にあるのが Fe³⁺ スピン波の吸収線、外部磁場に対して共鳴振動数がほぼ線形に変化するのが Er³⁺ スピン遷移の吸収線。これらが、約 4 T で準位反発 (真空ラビ分裂) する。

体には、数学的な疑義は出ていない。問題は、それが起こりうる物理系が約 50 年にわたって見つかっていなかったということである。

この問題に対して、私たちはまず、光 (電磁波) とは異なる波 (ボゾン場) でディッケ模型が形成される物理系を探索することとした。これは、ディッケ協同性 (\sqrt{N} 依存性) による相転移が物理として起りうるかどうかをまず確認するためである。私たちは特に、磁性体におけるスピン波 (マグノン) によってディッケ協同性が現れるかどうか検証することとした。これは、電磁場の超放射相転移の実現のためにスピン自由度の重要性が認識されているからである。⁹⁾

物質としては、テラヘルツ領域にてスピン波のダイナミクスが近年盛んに研究されている、希土類オルソフェライト系 (RFeO₃) に着目した。Fe³⁺ イオン格子にてスピン波が形成されることがよく知られており、希土類イオン R³⁺ のスピン集団が Fe³⁺ スピンと相互作用する系である。問題は、その相互作用が近接的なものなのか、ディッケ協同性を示すものなのか、ということである。

その確認のために、RFeO₃ に静磁場を印加することで R³⁺ スピンの共鳴振動数を Fe³⁺ スピン波のそれと同程度にまで変調させ、準位反発の様子をテラヘルツ波による分光測定によって観測した。物質としては、スピン波の超放射相転移との類似性が古くから指摘されていた ErFeO₃ (次節で説明する) とスピンを持たない Y³⁺ からなる YFeO₃ の混晶 Er_xY_{1-x}FeO₃ を用いた。

図3は、外部磁場の大きさとプローブ振動数に対して吸収率をプロットしたものである。¹⁰⁾ $x = 1$ であり (ErFeO₃)、試料温度は 10 K、外部磁場は c 軸方向に印加し、電場が a 軸方向のプローブ光を c 軸に並行に照射した。

外部磁場に対して共鳴振動数が 0.5 THz 程度でほとんど変化しない線が Fe³⁺ の qFM とよばれるスピン波に由来するものである。一方、外部磁場に対してほぼ線形に共鳴振動数が変化する線が Er³⁺ スピンの遷移に由来するものである。これらが約 4 T で準位反発を起こすことが見てとれる (中間に現れているのは縮退していた Er³⁺ の遷移が分裂

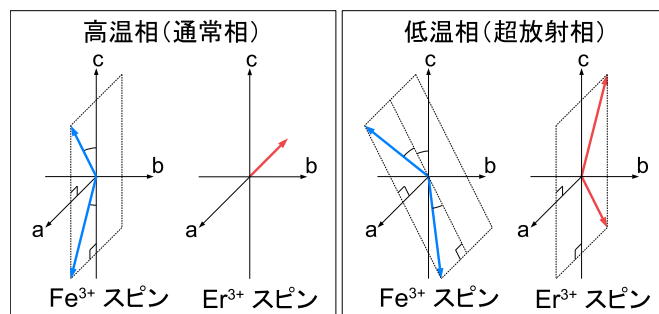


図4 ErFeO₃ が約 4 K にて示す相転移前後での Fe³⁺ スピンと Er³⁺ スピンの配置。高温相では常磁性的であった Er³⁺ スピンが反強磁性的に秩序し、同時に Fe³⁺ スピンの面が回転を始める。この回転が、Fe³⁺ スピン波が自発的に有限値の期待値を獲得することに対応する。

したものだが、¹¹⁾ 本稿では詳細は割愛する)。

準位反発は、Fe³⁺ スピン波と Er³⁺ スピンとの相互作用 (振幅のキャッチボール) の存在を意味する。この相互作用が近接的なものなのかディッケ的なものなのかは、Er³⁺ スピン密度 $N/V \propto x$ (V は体積) に対する準位反発の依存性で評価できる。近接的なものであれば準位反発は x に比例し、ディッケ的であれば \sqrt{x} に比例するはずである。

私たちは、Er_xY_{1-x}FeO₃ の組成 (Er³⁺ 密度) を $x = 1, 0.75, 0.5$ と変化させた。また、温度変化によっても Er³⁺ スピンを熱的に励起し実効的な密度 x_{eff} を変化させた。詳細¹⁰⁾ は割愛するが、私たちは準位反発の大きさが $\sqrt{x_{\text{eff}}}$ に比例することを確認し、Fe³⁺ スピン波と Er³⁺ スピン集団との相互作用がディッケ的であること、つまり、Er³⁺ スピン集団が Fe³⁺ スピン波を介してディッケ協同性を示すことを確認した。これは、物質中のボゾン素励起を介したディッケ協同性 (真空ラビ分裂) の初めての観測であった。¹⁰⁾

6. 熱平衡なスピン波の超放射相転移も確認された

私たちは次に、ErFeO₃ にてスピン波の超放射相転移が起るかどうかの検証を行った。

そもそも 1970 年代には、図4のように、ErFeO₃ は約 4 K にて Er³⁺ スピンが反強磁性秩序を示す磁気相転移を起こすこと、また、その反強磁性秩序と一緒に Fe³⁺ スピンが回転することが知られていた。¹²⁾ Er³⁺ スピンの反強磁性秩序と Fe³⁺ スピンとが相関していることから、この相転移と協同的ヤーン・テラー (Jahn-Teller) 転移¹³⁾ とでアナロジーが成り立つことが、1980 年に指摘されていた。¹⁴⁾ 一方で、協同的ヤーン・テラー転移と超放射相転移とのアナロジーが理論的に 1984 年と 2008 に指摘されており、^{15, 16)} 希土類鉄ガーネットがスピン波の超放射相転移を示す候補物質であると提案されていた。¹⁶⁾ しかしながら、2つのアナロジーの議論はほぼ独立になされていたためか、ErFeO₃ の約 4 K での相転移がスピン波の超放射相転移と見なせるかどうか、議論が手つかずのままであった。

スピン波の超放射相転移と見なせるか評価するにあたり、相転移の起源として、Fe³⁺ スピン波と Er³⁺ スピン集団の

相互作用だけでなく、 Er^{3+} スピン間の近接相互作用も存在することが問題であった。両方があることで、前者の寄与を簡単には評価できず、結合の強さが閾値以上なのか(超放射相転移とよべるのか)を判断するのが困難であった。

そこで、私たちはまず、前節の外部磁場下のテラヘルツ分光の結果¹⁰⁾ および磁化測定の結果¹⁷⁾ から ErFeO_3 のスピン模型のパラメータを同定した。その後、スピン模型をディッケ模型に帰着させた。ただし、 Er^{3+} スピン間の近接相互作用があることで、ディッケ模型から拡張されたハミルトニアンとなった。ディッケ模型でのパラメータ $g, \omega_{\text{photon}}, \omega_{\text{atom}}$ (ErFeO_3 ではそれぞれ、 Fe^{3+} スピン波と Er^{3+} スピン集団との結合強度、 Fe^{3+} スピン波の共鳴振動数、 Er^{3+} スピンの遷移振動数にあたる)などのゼロ磁場における値、また Er^{3+} スピン間の交換相互作用の強さを見積もった。

結果として、 $g^2 > \omega_{\text{photon}}\omega_{\text{atom}}/4$ を確かに満たしており、 Er^{3+} 間の近接相互作用がなくても相転移が起ることを確認した。また、 Fe^{3+} スピン波と Er^{3+} スピン集団との結合があることで、 Er^{3+} 間の近接相互作用だけよりも臨界温度や臨界磁場が高まっていることも確認した。これら2つの結果、また ErFeO_3 のスピン模型が(拡張された)ディッケ模型に帰着すること、 Fe^{3+} スピン波と Er^{3+} スピン集団との結合がディッケ的であるという実験結果も踏まえ、 ErFeO_3 が約 4 K で示す相転移が、スピン波の超放射相転移であると結論づけた。これは、単なるアナロジーの提案を越えて、実験結果に基づいて定量的にディッケ協同性による相転移の存在を示した初めての結果である。

7. これから望まれる研究

量子光学の分野においてこれまで光が担ってきた役割(ボゾン場を介した協同効果)を、物質中のスピン波も果たせること¹⁰⁾ さらには、光(横場の電磁場)ではいまだ実現していない熱平衡下の超放射相転移を、スピン波であれば実現できることが確認された。¹¹⁾

レーザー発振や超蛍光など、これまで光(電磁波)を通じて研究されてきた非平衡下での協同効果を、スピン波で実現すること、また、フォノンなどの他のボゾン素励起で実現することが次のステップとして考えられる。これは、多種多様な量子状態の生成・制御や量子技術が、スピン波やフォノン、超伝導電流など光以外の様々なボゾン素励起で研究開発されているのと同じ発想である。

一方で、光では難しいことを追究するのも有意義である。熱平衡下の超放射相転移は、その一例であり、相転移点における熱平衡下の量子スクイーミング²⁾の観測・制御・活用なども今後の展開として考えられる。

より一般化して考えれば、光はレーザー発振やパラメトリック発振など、非平衡下で多彩な発振現象(閾値的な挙動)を示してきた。スピン波は、熱平衡下の多彩な磁気相転移と一緒に研究されてきた。スピン波によるディッケ協同

性や超放射相転移は、これら非平衡と熱平衡を繋ぐ鍵となるものである。その舞台である ErFeO_3 などを理論的・実験的に様々な方面から研究することが、¹⁸⁾ 非平衡と熱平衡の境界に存在する可能性のある、まったく新しい物理現象の発見に繋がると期待される。

本稿の執筆にあたり、共同研究者の河野淳一郎氏および Xinwei Li 氏との議論とデータ提供に感謝する。

参考文献

- 1) R. H. Dicke, *Phys. Rev.* **93**, 99 (1954).
- 2) T. Makihara, *et al.*, *Nat. Commun.* **12**, 3115 (2021); K. Hayashida, *et al.*, *Sci. Rep.* **13**, 2526 (2023).
- 3) K. Hepp and E. H. Lieb, *Ann. Phys.* **76**, 360 (1973).
- 4) J. Ma and X. Wang, *Phys. Rev. A* **80**, 012318 (2009); W. F. Liu, J. Ma, and X. Wang, *J. Phys. A: Math. Theor.* **46** (2013); I. Frérot and T. Roscilde, *Phys. Rev. Lett.* **121**, 020402 (2018).
- 5) K. Baumann, *et al.*, *Nature* **464**, 1301 (2010); Z. Zhiqiang, *et al.*, *Optica* **4**, 424 (2017).
- 6) H. J. Carmichael, *Physical Review X* **5**, 031028 (2015).
- 7) K. Rzażewski, K. Wódkiewicz, and W. Żakowicz, *Phys. Rev. Lett.* **35**, 432 (1975).
- 8) P. Nataf, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **123**, 207402 (2019); G. M. Andolina, *et al.*, *Phys. Rev. B* **102**, 125137 (2020); D. Guerci, P. Simon, and C. Mora, *Phys. Rev. Lett.* **125**, 257604 (2020); D. Guerci, P. Simon, and C. Mora, *Phys. Rev. B* **103**, 224436 (2021); G. Manzanares, *et al.*, *Phys. Rev. B* **105**, 245304 (2022).
- 9) J. M. Knight, Y. Aharonov, and G. T. C. Hsieh, *Phys. Rev. A* **17**, 1454 (1978).
- 10) X. Li, *et al.*, *Science* **361**, 794 (2018).
- 11) M. Bamba, *et al.*, *Commun. Phys.* **5**, 3 (2022).
- 12) G. Gorodetsky, *et al.*, *Phys. Rev. B* **8**, 3398 (1973); V. A. Klochan, N. M. Kovtun, and V. M. Khmara, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **68**, 721 (1975).
- 13) G. A. Gehring and K. A. Gehring, *Rep. Prog. Phys.* **38**, 1 (1975); K. I. Kugel' and D. I. Khomski, *Sov. Phys. Usp.* **25**, 231 (1982).
- 14) A. M. Kadomtseva, I. B. Krynetskil, and V. M. Matveev, *Sov. Phys. JETP* **52**, 732 (1980).
- 15) J. Loos, *Phys. Status Solidi* **123**, 595 (1984).
- 16) J. Larson, *Phys. Rev. A* **78**, 33833 (2008).
- 17) X. X. Zhang *et al.*, *Phys. Rev. B* **100**, 054418 (2019).
- 18) N. M. Peraca, *et al.*, arXiv:2302.06028 [quant-ph].

(2023年4月3日原稿受付)

Thermal Photons and Non-Equilibrium Magnons

Motoaki BAMBA

abstract: Magnon-mediated Dicke cooperativity has been observed in ErFeO_3 . A superradiant phase transition by ultra-strong magnon-spin coupling has also been confirmed. The low-temperature phase transition in ErFeO_3 would be a key phenomenon bridging the thermal-equilibrium and non-equilibrium physics.