

強は異なり：電磁場と物質の超強結合による超放射相転移に向けて

科学技術振興機構 さきがけ 馬場 基彰 bamba.motoaki.8a@kyoto-u.ac.jp

第 64 回物性若手夏の学校 集中ゼミ 加筆修正版テキスト (2019 年 9 月 28 日)

「多は異なり (More is Different)」という言葉があるように、個々の粒子の性質だけでなく、粒子や自由度が多数 (More) あることによって初めて現れる多彩な (Different) 現象が物性物理学、特に凝縮系物質の研究で探求される。一方、光科学の研究では、物質の自由度の多さよりも、物質に照射する電磁波の強度、波長、スペクトル幅、量子ゆらぎなどの制御により、多彩なダイナミクスの観測・発現・制御が探求される。近年、この光科学から発展し、電磁場と物質の相互作用を「超強結合」と呼ばれる領域まで強くすることによって、多彩な現象を発現しようとする研究が進んでいる。ここでは特に、熱平衡下において電磁場と電磁気分極が自発的に静的で有限の期待値を獲得する「超放射相転移」と呼ばれる現象を中心に解説する。

本テキストで示すのは「古典論を再現できない量子論で遊ぶのはやめましょう」という、超放射相転移の研究で見られる歴史的な教訓である。具体的には、電磁波と物質のダイナミクスが古典論的また量子論的に、これまでどのように記述されてきたのかを、Lorentz 力を感じる荷電粒子の Newton 運動方程式と Maxwell 方程式から出発して説明する。その後、量子光学における標準的なモデルでは超放射相転移が起こるといふ結果が導かれるものの、古典論の結果をきちんと再現する Hamiltonian を真面目に導けば、超放射相転移が起こらないという結果が得られたという歴史を紹介する。超伝導回路や磁性体などによって超放射相転移を実現しようとする最近の試みについては、第 5 節で紹介する文献を参照のこと。

1 電磁場と物質の非平衡ダイナミクスを記述する古典論と量子論

光は電磁波の一種である。電磁波とは、時間的・空間的に振動する電磁場の波であり、その振動数に応じて、電波、マイクロ波、赤外線、可視光、紫外線、X 線、ガンマ線などに区別される。可視光領域の電磁波が特に光と呼ばれるが、いわゆる光科学では、あらゆる振動数の電磁波に注目する。

そもそも真空中では、いかなる振動数の電磁波も光速 $c \approx 3 \times 10^8$ m/s で伝搬し、古典的には Maxwell 方程式によって統一的に記述される。では、振動数 ω ごとに、なぜ電磁波の名称があるのかという、注目する粒子や物質に応じて特徴的な振動数が異なるためである。

電波は電気回路で発信や受信が可能な波長域であり、地球スケールの距離での通信や観測に使われる。マイクロ波は、水などの極性分子が追従して配向できる振動数の電磁波であり、電子レンジでの水分の加熱などに利用される。赤外線は例えば、結晶中のイオンが追従できる振動数 (光学フォノンの振動数) の電磁波である。可視光や紫外線は、原子中の外殻電子の遷移振動数、X 線は内殻から外殻電子準位への遷移振動数に相当し、ガンマ線となると原子核などの物理現象が関わってくる。

光科学の関心の一部に、電磁波の発生や検出、強度やスペクトル幅などの古典論的な波の性質の制御、量子ゆ

らぎや量子相関などの量子論的な性質の制御がある。その際には、注目する電磁波の振動数に応じて、粒子や物質が選ばれ、それらが示すダイナミクスによって、電磁波の制御などが行われる。また、パルス幅や量子ゆらぎなどの性質を精度良く制御した電磁波を用いて、関心のある物質のダイナミクスを制御・観測することも光科学の関心の一部である。

このように光科学では、電磁波と物質の両方、そして、それらの相互作用が肝心である。また、光科学は主に、非平衡下における電磁場と物質のダイナミクスを議論す

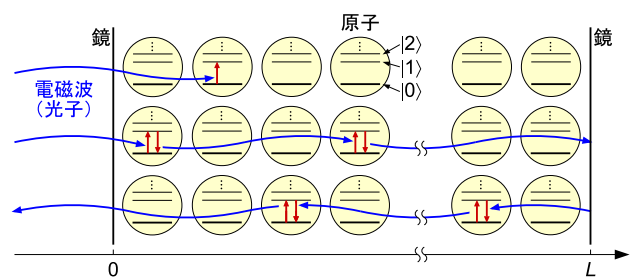


図 1: 光科学では、非平衡下 (外部からのエネルギー流のある状況) での電磁波と物質のダイナミクスが議論される。例えば、同一原子の集団を考えると、光子の吸収によって 1 つの原子が励起され、励起された原子が再び光子を放出するという過程が繰り返される。本テキストでは単純に、電磁波が 2 枚の鏡によって閉じ込められた共振器構造を考える。このような電磁場と原子集団の系で、非平衡下ではなく熱平衡下において、電磁場や電磁気分極が自発的に静的で (時間的に振動しない) 有限の期待値を獲得するかどうか議論する。

るものと言える。非平衡とは、図1のようなエネルギーの流れのある状況であり、光源から電磁波が放出されている時点で非平衡である。時間的に振動する外場(電磁場など)があっても非平衡であり、何らかの方法で励起された物質から電磁波が放出される状況も非平衡である。

本節ではまず、このような電磁場と物質の非平衡なダイナミクスを、どのような方程式もしくはモデル(Hamiltonian)で記述するのかを紹介する。そして次節にて、同じHamiltonianにて、熱平衡下の相転移が理論的には導かれることを見ていく。

1.1 電磁場ダイナミクスを古典論的に記述

まず、電磁波(電磁場のダイナミクス)は古典的には、以下のMaxwell方程式によって統一的に記述できる。

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = \rho / \epsilon_0 \quad (1a)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (1b)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\dot{\mathbf{B}} \quad (1c)$$

$$\nabla \times \mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{J} + \dot{\mathbf{E}} / c^2 \quad (1d)$$

変数の上の $\dot{}$ は時間に関する偏微分を表す。 ϵ_0 , μ_0 , c はそれぞれ真空中の誘電率、透磁率、光速である。電場 \mathbf{E} と磁束密度 \mathbf{B} で記述したが、電気分極(分極密度) \mathbf{P} と磁気分極(磁化) \mathbf{M} を用いて表される電束密度 $\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}$ や磁場 $\mathbf{H} = \mathbf{B} / \mu_0 - \mathbf{M}$ で記述してもよい。もしくは、

$$\mathbf{E} = -\dot{\mathbf{A}} - \nabla \phi, \quad \mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A} \quad (2)$$

のように、ベクトルポテンシャル \mathbf{A} とCoulombポテンシャル ϕ を用いてもよい。注目する物質の他に電荷や電流がないとすれば、 \mathbf{P} や \mathbf{M} は、電荷密度 ρ と電流密度 \mathbf{J} との間に以下の関係がある。

$$\rho = -\nabla \cdot \mathbf{P}, \quad \mathbf{J} = \dot{\mathbf{P}} + \nabla \times \mathbf{M} \quad (3)$$

では、物質のダイナミクスを記述する方程式は何か? Maxwell方程式と連立して解くことになるので、 ρ や \mathbf{J} (もしくは \mathbf{P} や \mathbf{M})のダイナミクスを記述する方程式が必要となる。統一的に記述したいなら、Dirac方程式などを使って素粒子レベルから始めればよい。ただし、先に示したような実際の粒子や物質、特に凝縮系物質について具体的なダイナミクスを知りたいのであれば、「多は異なり」の精神に則り、各物質に適した方程式を使用することになる。ただし、基底状態すら解くのが困難な物質のダイナミクスをMaxwell方程式と連立して解く

のは現実的でない。そこで、光科学では、以下のような形で統一的な記述が試みられてきた。

1.2 物質を比誘電率などで特徴づける

知りたいのは、電磁波の電場 \mathbf{E} と磁束密度 \mathbf{B} に対して、電気分極 \mathbf{P} や磁気分極 \mathbf{M} がどのように応答するかである。それが分かれば、あとはMaxwell方程式と連立して解ける。ここでは、物理量の時間変化の代わりに、その ω -Fourier成分についての方程式を考える。例えば、分極 $\mathbf{P}(t)$ の ω -Fourier成分 $\underline{\mathbf{P}}(\omega)$ は以下のように定義されるものとする。

$$\underline{\mathbf{P}}(\omega) \equiv \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i\omega t} \mathbf{P}(t) \quad (4)$$

いま単純に \mathbf{P} や \mathbf{M} の ω -Fourier成分がそれぞれ

$$\underline{\mathbf{P}}(\omega) = \epsilon_0 \chi_e(\omega) \underline{\mathbf{E}}(\omega) \quad (5a)$$

$$\underline{\mathbf{M}}(\omega) = \chi_m(\omega) \underline{\mathbf{H}}(\omega) = \frac{\chi_m(\omega)}{1 + \chi_m(\omega)} \frac{\underline{\mathbf{B}}(\omega)}{\mu_0} \quad (5b)$$

のように $\underline{\mathbf{E}}$ や $\underline{\mathbf{B}}$ に対して線形に変化するものとする。 χ_e と χ_m はそれぞれ、電気感受率と磁気感受率(磁化率)である。このような関係が近似的に成り立つ状況での電磁波と物質のダイナミクスは、線形光学応答と呼ばれる。これらをMaxwell方程式(1)に代入すれば、以下の波動方程式が得られる。

$$\nabla \times \left[\frac{1}{\mu_r(\omega)} \nabla \times \underline{\mathbf{E}}(\omega) \right] - \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon_r(\omega) \underline{\mathbf{E}}(\omega) = \mathbf{0} \quad (6)$$

ここで、 $\epsilon_r(\omega) \equiv 1 + \chi_e(\omega)$, $\mu_r(\omega) \equiv 1 + \chi_m(\omega)$ は、それぞれ比誘電率と比透磁率であり、電束密度と電場を $\underline{\mathbf{D}}(\omega) = \epsilon_0 \epsilon_r(\omega) \underline{\mathbf{E}}(\omega)$, 磁束密度と磁場を $\underline{\mathbf{B}}(\omega) = \mu_0 \mu_r(\omega) \underline{\mathbf{H}}(\omega)$ で繋ぐ。バルク結晶を仮定し、波動方程式(6)をさらに空間的にもFourier変換すれば、物質中での電磁波の波数 k と振動数 ω は

$$\frac{c^2 k^2}{\omega^2} = \epsilon_r(\omega) \mu_r(\omega) \quad (7)$$

という分散関係(屈折率 $n(\omega) = \sqrt{\epsilon_r(\omega) \mu_r(\omega)}$ の ω 依存性を通じて、プリズムなどによって単色でない光線がどのように分散するか)を示すことが分かる。つまり、物質中で電磁波の位相速度は $v_{\text{ph}}(\omega) = c / \sqrt{\epsilon_r(\omega) \mu_r(\omega)}$, 波長は $2\pi v_{\text{ph}}(\omega) / \omega$ となる。

このような線形光学応答の場合、入射した電磁波の電場 $\mathbf{E}(t)$ (もしくは磁束密度 $\mathbf{B}(t)$)がどのような波形であっても、それを ω -Fourier成分 $\underline{\mathbf{E}}(\omega)$ に分解し、各 ω に対する分極 $\underline{\mathbf{P}}(\omega)$ などを計算すれば、逆Fourier変換によって $\mathbf{P}(t)$ などを求めることができる。つまり、物

質の電磁場応答は $\epsilon_r(\omega)$ と $\mu_r(\omega)$ によって特徴付けられる。これらの値は、反射率や透過率の測定によって実験的に決定することができる。

例えば、中心振動数 ω_0 で時間幅 Δt の Gaussian パルス $\mathbf{E}(t) \propto \exp[-i\omega_0 t - t^2/(2\Delta t^2)]$ は、スペクトル幅 Δt^{-1} の Gaussian ピーク $\underline{\mathbf{E}}(\omega) \propto \exp[-(\omega - \omega_0)^2 \Delta t^2/2]$ に Fourier 変換される。これを入射電磁波とした際の、反射波や透過波は $\epsilon_r(\omega)$ と $\mu_r(\omega)$ と Maxwell 方程式によって計算することができる。ただし、このような線形光学応答の範囲内では、電磁波の強度 ($|\underline{\mathbf{E}}(\omega)|^2$ など) で定義される) やスペクトル幅 Δt^{-1} を自在に制御することは難しい。また、電磁波の発生自体を議論することも難しい。

電磁波の強度やスペクトル幅などを自在に制御するためには、非線形な光学応答が必要となる。例えば、電気分極が電場に対して、 $\underline{\mathbf{P}}(\omega) = \epsilon_0 \chi_e^{(1)}(\omega) \underline{\mathbf{E}}(\omega) + \epsilon_0 \int_0^\infty d\omega' \chi_e^{(2)}(\omega, \omega') \underline{\mathbf{E}}(\omega - \omega') \underline{\mathbf{E}}(\omega')$ などと誘起される場合は、2 次の非線形光学応答と呼ばれる。一般に 3 次以降の応答も存在する。また、電場に対する摂動として近似できない非摂動な応答もあり、レーザー発振などはその典型である。非線形応答、非摂動応答、どちらも現在の光科学での重要な現象だが、紙面の都合上、ここでは割愛する。以下では、線形光学応答の延長線にある「電磁場と物質の相互作用」の物理に焦点を当てていく。

1.3 物質の比誘電率を量子論的に導く

反射率や透過率などの線形光学応答の範囲内の測定によって、注目する物質の比誘電率 $\epsilon_r(\omega)$ と比透磁率 $\mu_r(\omega)$ を実験的に決定することができる。では、それらは典型的にどのような ω 依存性を示すのか? ここでは、電磁波と相互作用する粒子や物質の詳細にできるだけ依存しないモデルで、 $\epsilon_r(\omega) = 1 + \chi_e(\omega)$ を導いてみる。簡単のために、以降では $\chi_m(\omega) = 0$, $\mu_r(\omega) = 1$ とする。

電気分極 \mathbf{P} の電磁波応答のみに着目した場合、電磁波と物質の相互作用の Hamiltonian は近似的に、以下のような電気分極と電場の積で表される (第 3 節参照)。

$$\hat{H}_{\text{int}} = - \int d\mathbf{r} \hat{\mathbf{P}}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}) \quad (8)$$

これを、外場 $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ に対する物質の応答と考えれば、線形応答理論 [1] によって、電気分極を

$$\underline{\mathbf{P}}(\mathbf{r}, \omega) = \epsilon_0 \int d\mathbf{r}' \chi_e'(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \underline{\mathbf{E}}(\mathbf{r}', \omega) \quad (9)$$

で与える非局所的な電気感受率 (応答関数, 遅延 Green

関数) は一般に以下のように表される。

$$\chi_e'(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = - \int_0^\infty dt \frac{e^{i\omega t}}{i\hbar\epsilon_0} \langle [\hat{\mathbf{P}}(\mathbf{r}, t), \hat{\mathbf{P}}(\mathbf{r}', 0)] \rangle_{\text{mat}} \quad (10)$$

ここで、 $\hat{\mathbf{P}}(\mathbf{r}, t) \equiv e^{i\hat{H}_{\text{mat}}t/\hbar} \hat{\mathbf{P}}(\mathbf{r}) e^{-i\hat{H}_{\text{mat}}t/\hbar}$ であり、 $\langle \dots \rangle_{\text{mat}}$ は物質の初期状態についての期待値を表す。

いま、物質系の基底状態を $|0\rangle$, 励起状態を $|i\rangle$ ($i \geq 1$), それらの間のエネルギー差を $\hbar\omega_{i0}$ とする。つまり、物質系の Hamiltonian は以下のように書ける。

$$\hat{H}_{\text{mat}} = \sum_i \hbar\omega_{i0} |i\rangle \langle i| + \text{const.} \quad (11)$$

また、物質系の初期状態は基底状態とする。さらに、原子間には相互作用がないものとし、図 1 のように、物質系全体の励起状態 $|i\rangle$ を単純に、 N 個ある同一原子のうちの j 番目の原子が、 n 番目の準位に励起された状態 $|j, n\rangle$ と考える ($|i\rangle = |j, n\rangle$, $\omega_{i0} = \omega_{n0}$)。このとき、電気分極演算子の行列要素は近似的に (第 3 節参照)。

$$\langle j, n | \hat{\mathbf{P}}(\mathbf{r}) | 0 \rangle \approx \mathbf{d}_{n0} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j) \quad (12)$$

と書ける。 \mathbf{R}_j は j 番目の原子の位置を表す。電磁波によって遷移する粒子の電荷を e とし、 $\mathbf{d}_{n0} \equiv \langle n | e\hat{\mathbf{r}} | 0 \rangle$ は双極子演算子 $e\hat{\mathbf{r}}$ の原子の基底状態 $|0\rangle$ から n 番目の励起状態への行列要素であり、遷移双極子能率と呼ばれる。いま、原子の集合を均質な媒質と見なすことにし、物質の体積を V とし、 $\sum_{j=1}^N \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j) \approx N/V$ と近似する。また、物質が等方的であるとする。このとき、非局所な電気感受率は $\chi_e(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \chi_e(\omega)$ と局所的になり、結局、電気感受率として

$$\chi_e(\omega) = \sum_n \frac{f_n \omega_p^2}{\omega_{n0}^2 - (\omega + i0^+)^2} \quad (13)$$

が得られる。 $\omega = \pm\omega_{n0} - i0^+$ は遷移する粒子の Green 関数の極にあたる (ただし、物質のみの系での)。遷移する粒子の質量を m とし、 $\omega_p \equiv \sqrt{e^2 N / (m\epsilon_0 V)}$ はプラズマ振動数であり、

$$f_n \equiv \frac{2m\omega_{n0}}{e^2 \hbar} |\mathbf{d}_{n0}|^2 \quad (14)$$

は振動子強度と呼ばれる無次元量である。

一般に、Coulomb 相互作用を $V(\{\hat{\mathbf{r}}_j\})$ とし、物質系の Hamiltonian が単純に

$$\hat{H}_{\text{mat}} = \sum_{j=1}^N \frac{\hat{\mathbf{p}}_j^2}{2m} + V(\{\hat{\mathbf{r}}_j\}) \quad (15)$$

と表されるとすれば、 $(m/\hbar^2)[\hat{\mathbf{r}}_j, [\hat{H}_{\text{mat}}, \hat{\mathbf{r}}_j]] = \mathbf{1}$ の等式から、Thomas-Reiche-Kuhn 総和則 [2] と呼ばれる

以下の関係が成り立つことが知られている。

$$\sum_n f_n = 1 \quad (16)$$

実際の物質では、励起状態にエネルギーや位相の散逸がある。\$n\$ 番目の励起準位の散逸レートを \$\gamma_n\$ とすれば、電気感受率 (13) は

$$\chi_e(\omega) = \sum_n \frac{f_n \omega_p^2}{\omega_{n0}^2 - \omega^2 - i\gamma_n \omega} \quad (17)$$

に変更される。つまり、実験で測定された比誘電率 \$\epsilon_r(\omega) = 1 + \chi_e(\omega)\$ をこの Lorentz 関数の和でフィッティングすることにより、原理的には遷移振動数 \$\omega_{n0}\$ や散逸レート \$\gamma_n\$、振動子強度 \$f_n\$ などの物質の電磁場応答に関する情報を抽出することができる。また、詳細は述べないが、非線形光学応答では、エネルギーと位相それぞれの散逸レートなど、より詳細な情報を抽出できる。

電気感受率 (13) を導くにあたり、原子間に相互作用がないなど様々な近似を用いた。そういった近似は実際の物質では一般に成り立たない。近似をできる限り使わずに比誘電率などを計算し、実験で得られたそれと比較することで、モデルや計算法の妥当性を判断できる。物質の電磁波応答の第一原理的な計算法も、現在の光科学の重要なテーマの1つである。

一方、電磁波の量子論的なダイナミクスに注目する量子光学においては、上で用いた近似が十分に成り立つ物質 (例えば、孤立原子の集団など) が好まれる。これは、電磁波の量子論的な性質を制御するにあたり、素性のよく分かった (原子間の相互作用などが無い) 物質の方が望ましいからである。次項では、量子光学における電磁波 (光子) と物質のダイナミクスの典型的な記述法を紹介する。

1.4 電磁場ダイナミクスを量子論的に記述

前項までは、電磁場を Maxwell 方程式に従うものとして古典量として扱ったが、ここでは電磁場も量子化する。いま単純に、図 1 のように、\$x\$ 方向の電場 \$E(z)\$ と \$y\$ 方向の磁束密度 \$B(z)\$ が \$z\$ にのみ依存する電磁波を考える (つまり、\$x-y\$ 面内の波数をゼロとする)。また、\$z=0\$ と \$z=L\$ に位置する \$x-y\$ 面に平行な 2 枚の鏡によって、電磁波の共振器が構成されるとする。このとき、共振器内部の電磁場の Hamiltonian は以下のように表される (第 3 節参照)。

$$\mathcal{H}_{\text{EM}} = S \int_0^L dz \left[\frac{\epsilon_0 E(z)^2}{2} + \frac{B(z)^2}{2\mu_0} \right] \quad (18)$$

\$S\$ は \$x-y\$ 面の面積である。第 1 項は電場の、第 2 項は磁束密度のエネルギーである。式 (2) から、\$x\$ 方向のベクトルポテンシャル \$A(z)\$ を用いて、電場は \$E(z) = -\dot{A}(z)\$、磁束密度は \$B(z) = \partial A(z)/\partial z\$ と表される。

いま、\$A(z)\$ に共役な運動量として \$\Pi(z) = -\epsilon_0 E(z)\$ を導入し、それらの演算子についての交換関係を

$$[\hat{A}(z), \hat{\Pi}(z')] = i\hbar \delta(z-z') \quad (19)$$

を導入する。Heisenberg の運動方程式を導くと

$$\frac{\partial}{\partial t} \hat{A}(z) = \frac{\hat{\Pi}(z)}{\epsilon_0} = -\hat{E}(z) \quad (20a)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \hat{\Pi}(z) = \frac{1}{\mu_0} \frac{\partial^2}{\partial z^2} \hat{A}(z) = \frac{1}{\mu_0} \frac{\partial}{\partial z} \hat{B}(z) \quad (20b)$$

が得られ、1 つ目の式から \$E(z) = -\dot{A}(z)\$ が、2 つ目の式から式 (1d) が再現される。他の Maxwell 方程式は自動的に満たされる。このように、確かに \$\Pi(z) = -\epsilon_0 E(z)\$ が \$A(z)\$ に共役な運動量であることが分かる。

光子という概念は、以下の手順で出てくる。より詳細な説明が必要な場合は、文献 [3, 4] などの教科書を参照のこと。\$z=0\$ と \$z=L\$ の鏡において電場やベクトルポテンシャルがゼロとなる境界条件を考える (\$A(0) = A(L) = 0\$)。この境界条件と、式 (20b) から得られる波動方程式

$$\frac{\partial^2 A(z,t)}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \ddot{A}(z,t) = 0 \quad (21)$$

を満たす電磁波の固有モード (共振モード) は、\$z\$ 方向の閉じ込め波数を \$k_m = m\pi/L\$ (\$m = 1, 2, 3, \dots\$) として、固有振動数 \$ck_m\$、固有関数 \$f_m(z) = \sqrt{2/L} \sin(k_m z)\$ で表される。つまり、共振器内に閉じ込められた電磁波は、\$m\$ 番目のモードの複素振幅を \$\mathcal{A}_m\$ とすれば、\$A(z,t) = \sum_{m=1}^{\infty} \text{Re} [e^{-ick_m t} \mathcal{A}_m] f_m(z)\$ と表される。調和振動子の量子化と同様、このような複素振幅の代わりとなるのが、光子の消滅演算子 \$\hat{a}_m\$ と生成演算子 \$\hat{a}_m^\dagger\$ であり、無次元化された電磁場の振幅の演算子に相当する。いま、これらの演算子は Boson の交換関係 \$[\hat{a}_m, \hat{a}_{m'}^\dagger] = \delta_{m,m'}\$ を満たすものとする。\$\hat{A}(z)\$ と \$\hat{\Pi}(z)\$ を、それらの交換関係 (19) を満たすように

$$\hat{A}(z) = \sum_{m=1}^{\infty} \sqrt{\frac{\hbar}{\epsilon_0 ck_m S}} \frac{\hat{a}_m + \hat{a}_m^\dagger}{\sqrt{2}} f_m(z) \quad (22a)$$

$$\hat{\Pi}(z) = \sum_{m=1}^{\infty} \sqrt{\frac{\hbar \epsilon_0 ck_m}{S}} \frac{\hat{a}_m - \hat{a}_m^\dagger}{i\sqrt{2}} f_m(z) \quad (22b)$$

と表すことにすれば、共振器内の Hamiltonian は確かに

$$\hat{\mathcal{H}}_{\text{EM}} = \sum_{m=1}^{\infty} \hbar ck_m \left(\hat{a}_m^\dagger \hat{a}_m + \frac{1}{2} \right) \quad (23)$$

と書き直すことができる。

式 (23) に見られるように、 \hat{a}_m で光子の消滅が表現される m 番目の電磁波モードには、 $\hbar ck_m/2$ のゼロ点エネルギーがあり、光子 1 個あたり量子化エネルギー $\hbar ck_m$ を持つ。また、式 (22) に見られるように、熱平衡か非平衡かに関わらず、光子の消滅演算子 \hat{a}_m の期待値の実部がベクトルポテンシャル $A(z, t)$ に、虚部がそれに共役な運動量 $\Pi(z, t)$ (つまり電場 $E(z, t)$) に対応する。共振器内が、 $\hat{a}_m |0\rangle_{\text{ph}} = 0$ を満たす真空状態 $|0\rangle_{\text{ph}}$ (光子数がゼロ) の場合、ベクトルポテンシャルや電場の期待値は $\langle 0|\hat{A}(z)|0\rangle_{\text{ph}} = \langle 0|\hat{E}(z)|0\rangle_{\text{ph}} = 0$ となる。しかしながら、相関 $\langle 0|\hat{A}(z, t)\hat{A}(z', t')|0\rangle_{\text{ph}}$ や $\langle 0|\hat{E}(z, t)\hat{E}(z', t')|0\rangle_{\text{ph}}$ はゼロでない。つまり、量子ゆらぎがある。

ここからは簡単のために、ある特定のモードにのみ着目し、 m の添字を省略する。真空状態 $|0\rangle_{\text{ph}}$ に生成演算子 \hat{a}^\dagger を作用させていった状態 $|n\rangle \equiv (\hat{a}^\dagger)^n |0\rangle / \sqrt{n!}$ は Fock 状態や数状態と呼ばれ、光子が n 個存在する状態を表す。Fock 状態は $\hat{a}|n\rangle = \sqrt{n}|n-1\rangle$, $\hat{a}^\dagger|n\rangle = \sqrt{n+1}|n+1\rangle$, $\langle n|\hat{a}^\dagger\hat{a}|n\rangle = n$ を与え、 \hat{H}_{EM} の固有状態だが、 $\langle n|\hat{a}|n\rangle = 0$ となり、電磁場の期待値はゼロとなる。Maxwell 方程式 (1) は光子数や相関ではなく、電磁場に対する方程式であり、Fock 状態を記述することができない。つまり、Fock 状態は量子論的な電磁場の状態である。

古典的な電磁場の状態は、Fock 状態の重ね合わせ

$$|\alpha\rangle \equiv e^{-|\alpha|^2/2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} |n\rangle \quad (24)$$

で表されることが知られている [5]。この状態はコヒーレント状態と呼ばれ、 $\hat{a}|\alpha\rangle = \alpha|\alpha\rangle$, $\langle \alpha|\hat{a}|\alpha\rangle = \alpha$ のように、 \hat{a} の期待値として複素数 α を与える。つまり、 α は無次元化された電磁場の期待値 (複素振幅) にあたる。例えば、レーザー光はコヒーレント状態に近い状態であることが知られており、Maxwell 方程式で良く表現できる状態となっている。電磁場が有限の期待値を得るためには、式 (24) のように、必ず隣り合う Fock 状態 ($|n\rangle$ と $|n \pm 1\rangle$) の重ね合わせ状態でなければならない。また、それらが一定の位相差をとらなければならない。一般に、式 (24) のような位相差の固定された重ね合わせ状態 (純粋状態) は、コヒーレントである (可干渉性がある) と形容される。対して、熱平衡下での電磁場の状態は、光子の Fock 状態の混合状態となり、位相差はランダムになってしまう (密度行列の非対角要素がゼロになってしまう)。このとき、電磁場の期待値はゼロとなる。

さて、量子化した電磁場と物質の相互作用を考える。前項と同様に、同一原子が N 個あるとし、原子間に相互作用はないものとする。また、各原子の状態として基底状態と 1 つの励起状態のみに着目することにし、 j 番目の原子の基底状態を $|0\rangle_j$, 励起状態を $|1\rangle_j$ と表すこととする。各原子について Pauli 演算子

$$\hat{\sigma}_j \equiv |0\rangle_{jj} \langle 1| \quad (25a)$$

$$\hat{\sigma}_j^x \equiv \hat{\sigma}_j^\dagger + \hat{\sigma}_j \quad (25b)$$

$$\hat{\sigma}_j^y \equiv i(\hat{\sigma}_j^\dagger - \hat{\sigma}_j) \quad (25c)$$

$$\hat{\sigma}_j^z \equiv |1\rangle_{jj} \langle 1| - |0\rangle_{jj} \langle 0| \quad (25d)$$

を導入すれば、物質の Hamiltonian (11) は以下のように近似される。

$$\hat{H}_{\text{mat}} \approx \sum_{j=1}^N \frac{\hbar\omega_{10}}{2} \hat{\sigma}_j^z + \text{const.} \quad (26)$$

前項と同様に、電磁場と物質の相互作用として電気分極 $P(z)$ と電場 $E(z)$ の積 (8) を考える。電場は $E(z) = -\Pi(z)/\epsilon_0$ と式 (22b) で記述される。一方、電気分極はその行列要素 (12) から

$$\hat{P}(\mathbf{r}) \approx \sum_{j=1}^N d_{10} \hat{\sigma}_j^x \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j) \quad (27)$$

と表される。ただし、 d_{10} が実数となるように $|1\rangle_j$ と $|0\rangle_j$ の位相差をとった。よって、電磁場と物質の相互作用 Hamiltonian (8) は近似的に以下のように書ける。

$$\hat{H}_{\text{int}} \approx \sum_{j=1}^N i\hbar g_j^{(1)} \hat{\sigma}_j^x (\hat{a}^\dagger - \hat{a}) \quad (28)$$

ここで、 $g_j^{(1)}$ は光子 1 個と j 番目の原子との相互作用の強さを特徴付ける値であり、以下のように定義した。

$$g_j^{(1)} \equiv d_{10} \sqrt{\frac{ck}{2\hbar\epsilon_0 S}} f(Z_j) \quad (29)$$

Z_j は原子位置 \mathbf{R}_j の z 成分である。結局、電磁場と物質、またそれらの相互作用の Hamiltonian を合わせると

$$\hat{H} \approx \hbar ck \hat{a}^\dagger \hat{a} + \sum_{j=1}^N \left[\frac{\hbar\omega_{10}}{2} \hat{\sigma}_j^z + i\hbar g_j^{(1)} \hat{\sigma}_j^x (\hat{a}^\dagger - \hat{a}) \right] \quad (30)$$

となる。このような Hamiltonian は、1954 年に R. H. Dicke によって導かれ [6]、Dicke モデルと呼ばれている。このモデルによって、原子が集団として電磁波を放射する際に、放出レートが原子数 (密度) の増加と共に高まることを Dicke は示した。そのような集団的な放出現象は Dicke の超放射もしくは超蛍光として、現在

でも盛んに研究されている [7, 8]. 式 (30) のような単純化された Hamiltonian やその拡張版によって, 超放射やレーザー, 単一光子やスクイズド光の生成など, 光科学の研究で頻りに議論される物理現象, つまり非平衡下の電磁波と物質のダイナミクスが量子論のレベルでも良く再現されてきた [3, 4].

式 (30) から, Heisenberg の運動方程式

$$\frac{\partial}{\partial t} \hat{a} = -ick\hat{a} + \sum_{j=1}^N g_j^{(1)} (\hat{\sigma}_j^\dagger + \hat{\sigma}_j) \quad (31a)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \hat{\sigma}_j = -i\omega_{10}\hat{\sigma}_j - g_j^{(1)} \hat{\sigma}_j^z (\hat{a}^\dagger - \hat{a}) \quad (31b)$$

が得られる. \hat{a} が電磁場の振幅に対応するのと同様, 式 (27) に見られるように, $\hat{\sigma}_j$ の期待値の実部は j 番目の原子の電気双極子 er_j に対応する. 式 (31) は以下のように理解できる. 電磁場 \hat{a} と分極 $\hat{\sigma}_j$ はそれぞれ, 固有振動数 ck と ω_{10} で振動すると同時に, 各式の第 2 項に見られるように, お互いに振幅をやり取りする. 連成振動子と同様, 相互作用の強さ $g_j^{(1)}$ は光子 1 個と j 番目の原子との振幅のやり取りのレートにあたる. つまり, $|g_j^{(1)}|$ が大きいほど高速に振幅をやり取りする.

ただし, 光子は実際には N 個の原子と相互作用している. 原子が波長よりも小さな領域に密集し, すべての原子が同じ強さで電磁場と相互作用するものと近似できる場合 ($g_j^{(1)} \approx g^{(1)}$), 光子 1 個と原子集団全体との振幅のやり取りのレートは, 以下で見ると $\sqrt{N}g^{(1)}$ となり, 原子数 N の平方根に比例して, 高速に振幅をやり取りする.

いま, 電磁場と電気分極が外部からのコヒーレントな電磁波などでごく弱く励起された状況, 例えば各原子の状態が, 絶対値が $|\beta| \ll 1$ の無次元の複素数 β を用いて

$$|0\rangle_j + \beta(t)|1\rangle_j \quad (32)$$

と近似的に表される状況を考える. この β は原子 1 個あたりの電気分極や電流の振幅 $\beta = \sum_{j=1}^N \langle \hat{\sigma}_j \rangle / N$ に相当する (実部が電気分極 \mathbf{P} , 虚部が電流 $\mathbf{J} = \dot{\mathbf{P}}$ に相当する). 原子が基底状態 $|0\rangle_j$ や励起状態 $|1\rangle_j$ にあるのではなく, 式 (32) のようなそれらの重ね合わせ状態にある時に, 電気分極や電流は有限の期待値を示す. このような原子の状態もコヒーレントであると形容される.

一方, 原子 1 個あたりの電磁場の期待値を $\alpha \equiv \langle \hat{a} \rangle / \sqrt{N}$ (1 原子あたりの光子数が $\hat{a}^\dagger \hat{a} / N$) と表すことにすると, 式 (31) から

$$\dot{\alpha} = (-ick - \kappa)\alpha + \sqrt{N}g^{(1)}(\beta^* + \beta) \quad (33a)$$

$$\dot{\beta} = (-i\omega_{10} - \gamma)\beta + \sqrt{N}g^{(1)}(\alpha^* - \alpha) \quad (33b)$$

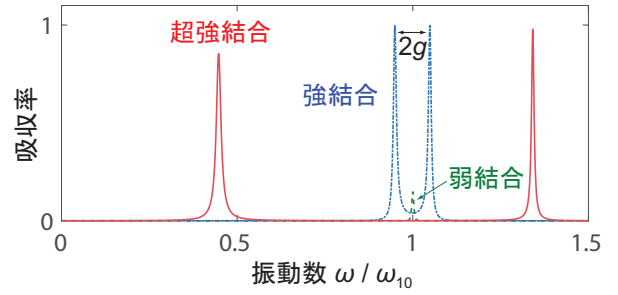


図 2: 原子集団を含む電磁波共振器の吸収スペクトル. $\omega_{10} = ck$, $\kappa = \gamma = 0.005\omega_{10}$ とし, 文献 [9] を参考に計算した. 電磁場と物質の相互作用によって, 2 ピークが間隔 $2g$ で現れる. 実線 $g = 0.4\omega_{10}$ ($\gtrsim \omega_{10}$) は超強結合, 破点線 $g = 10\kappa$ ($\gg \kappa, \gamma$) は強結合と呼ばれる. 一方, 破線 $g = 0.2\kappa$ ($\ll \kappa, \gamma$) は弱結合と呼ばれ, g がスペクトル幅より小さく, 1 ピークとなる. 式 (33) の α^* や β^* の存在により, 超強結合では 2 ピークの中心が ω_{10} からずれ, スペクトル幅やピーク値も非対称となる.

を導くことができる. ただし, 原子の励起や光子の散逸レートとして κ と γ を導入した. このように, 1 光子と原子集団としての振幅のやり取りのレートは $\sqrt{N}g^{(1)}$ となる. とはいえ, 波長よりも小さな領域に原子を限りなく押し込められるわけではない. 例えば, 凝縮系物質における原子密度でおおよそ上限が決まると考えればよい. 以降では, 原子集団としてのやり取りのレートがその密度 $N/(SL)$ で決まると考え, $g^{(1)}$ の代わりに

$$g \equiv \sqrt{N}g^{(1)} = d_{10} \sqrt{\frac{ckN}{2\hbar\epsilon_0 S}} f(Z_j) \quad (34)$$

が固定されると考え, 議論していく.

共振器の振動数を $ck = \omega_{10}$ に合わせた際の吸収スペクトルを図 2 に示す. 紙面の都合上, 詳細な計算方法は [9] に任せるが, 以下の手順でも, 吸収ピークの振動数とスペクトル幅を見積もることができる. まず, 式 (33) を ω -Fourier 成分 $\underline{\alpha}(\omega)$ と $\underline{\beta}(\omega)$ に対する式に書き換える. 式には外場が入っていないので, 通常は $\underline{\alpha}(\omega) = \underline{\beta}(\omega) = 0$ が定常解となるが, 振動数 ω として複素数を認めれば, 非自明な定常解が得られる. その際の ω の実部が吸収ピークの振動数に, 虚部がスペクトル幅 ($-\text{Im}[\omega]$ が緩和レート) に対応する. この複素数の ω は, 光子と原子が相互作用する場合における, それらの Green 関数の極に相当する.

さて, 図 2 のように, 電磁場と原子集団の相互作用の結果, 吸収のピーク振動数は $ck = \omega_{10}$ からずれる. 具体的には, 2 つの吸収ピークが $2g$ の間隔になるまでシフトする. これらが明瞭に見える $g \gg \kappa, \gamma$ を強結合, 逆に重なって 1 ピークに見える $g \ll \kappa, \gamma$ を弱結合と呼ぶ.

一方, $g \gtrsim \omega_{10}, ck$ を超強結合や深強結合と呼ぶ.

この超強結合の領域においては, 電磁波や物質の振動数と同程度かより速い時間で振幅がやり取りされる特異な非平衡ダイナミクスが得られる (解説記事 [10, 11] を参照のこと). また, 次節で示すように, 熱平衡下で電磁場と物質が相転移を示す可能性が知られている.

2 量子光学の標準的なモデルでは熱平衡下での相転移が導かれる

電磁場と物質の超強結合領域の理論解析や物質系の提案は 2005 年に C. Ciuti らによって研究され始めた [12]. 実験については, 2009 年に半導体量子井戸中の電子のサブバンド間遷移とテラヘルツ (THz) 波 [13], 2010 年に超伝導回路中の人工原子とマイクロ波 [14], 2011 年に色素分子と可視光 [15], 2012 年にサイクロトロン遷移と THz 波 [16], 2014 年にマグノンとマイクロ波 [17, 18], 2016 年に分子振動と赤外光 [19] などが超強結合すると報告された. 詳しくは, 解説記事 [10, 11] を参照のこと.

光科学の主な関心は非平衡ダイナミクスであり, 物質や (共振器内の) 電磁場の初期状態として, 基底状態か熱平衡状態を考える. 有限温度 $T > 0$ での熱平衡状態では, 一部の原子が励起状態 $|1\rangle_j$ にあり, 共振器内の電磁場も光子数がゼロでない状態 $|n > 0\rangle_{\text{ph}}$ を取りうる. しかし, 熱平衡状態では, 式 (24) や式 (32) のような量子論的な重ね合わせ状態は得られず (コヒーレントではなく, 混合状態となる), 電磁場や電気分極 (もしくは電流) の期待値 α や β は通常ゼロとなる.

しかしながら, $g^2 > ck\omega_{10}/4$ という超強結合の領域では, 電磁場と電磁気分極が, $N \rightarrow \infty$ の極限において, 熱平衡下で自発的に有限の期待値を獲得する可能性, つまり相転移する可能性がある. これは超放射を示す Dicke モデル (30) にて導かれる相転移であることから, 超放射相転移と呼ばれ, 1973 年に K. Hepp と E. H. Lieb によって示された [20]. また, 同年, Y. K. Wang と F. T. Hioe によって, 明快な計算法が示された [21].

図 3 に相図を示す. これは式 (30) の Dicke Hamiltonian で表される分配関数 $\text{Tr}[e^{-\hat{H}_{\text{Dicke}}/(k_B T)}]$ を, Wang-Hioe の計算法 [21, 22] によって評価することで, 簡単に計算できる. 縦軸は温度 T を $k_B T/\hbar\omega_{10}$ として無次元化し, 横軸は g/ω_{10} として, 熱平衡下での 1 原子あたりの電磁場の期待値 $\alpha_{\text{eq}} = \langle \hat{a} \rangle / \sqrt{N}$ を濃淡でプロットした. ここでは単純に $ck = \omega_{10}$ としており, $g > \sqrt{\omega_{10}ck}/2 = \omega_{10}/2$ において, 太線で示した臨界温

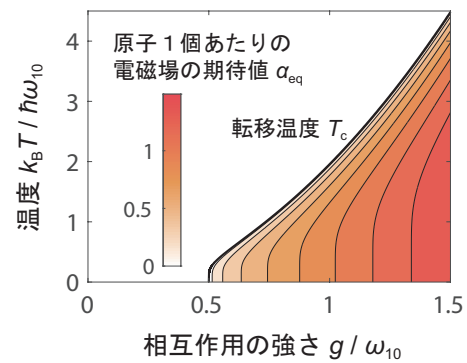


図 3: Dicke モデル (30) で記述される系の原子数無限 ($N \rightarrow \infty$) の極限での相図. 電磁場と物質の相互作用の強さ g と温度 T を, 原子の遷移振動数 ω_{10} で, それぞれ g/ω_{10} と $k_B T/\hbar\omega_{10}$ に無次元化して横軸と縦軸とし, 原子 1 個あたりの電磁場の期待値 $\alpha_{\text{eq}} = \langle \hat{a} \rangle / \sqrt{N}$ を濃淡でプロットした. 太線で示す臨界温度 T_c において超放射相転移が起こり, 電磁場が熱平衡下で自発的に静的で有限の期待値を獲得する. ここでは, 共振器の共鳴振動数を単純に $ck = \omega_{10}$ としており, $g > \sqrt{\omega_{10}ck}/2 = \omega_{10}/2$ において超放射相が現れる.

度 T_c を境に電磁場が有限の期待値を獲得した相 (超放射相) が現れる [20]. g の増大と共に, 臨界温度 T_c は高まっていく. 図示してはいないが, 各原子の分極や電流も期待値 $\beta_{\text{eq}} = ick\alpha_{\text{eq}}/(2g)$ を獲得する. α_{eq} と β_{eq} が有限な値になることで, 式 (30) の第 3 項を通じて, 系のエネルギーが下がる. これにより, 超放射相が安定化されるというメカニズムである.

式 (30) では, 準粒子の総数 (光子と励起の総数) についてのパリティ $\exp\{-i\pi[\hat{a}^\dagger \hat{a} + \sum_{j=1}^N (\hat{\sigma}_j^z + 1)/2]\}$ が保存量となっている. 超放射相転移が起こり, 電磁場などが熱平衡下で有限の期待値を獲得するということは, パリティの保存則が自発的に破れることを意味している [23, 24].

これまで光科学では, 水晶振動子やレーザー装置などによって, コヒーレントな電磁波を発振させてきた. また, そのような電磁波によって, 物質のコヒーレントな状態を制御してきた. どちらも, 非平衡な電磁場と物質のダイナミクスである. 一方, レーザー装置とほぼ同じモデルである Dicke モデルが示す超放射相転移では, 熱平衡下にて電磁場や原子がコヒーレントな状態となり, 時間的に振動しない静的な電磁場や電磁気分極 (もしくは電流) が自発的に生じる. このように, Dicke モデルでは, 非平衡と熱平衡のどちらでも, 自発的にコヒーレントな状態が生じうる.

3 古典論を再現する Hamiltonian では相転移は得られない

前節では、式 (30) の Dicke モデルから出発すれば、原子数無限 $N \rightarrow \infty$ の極限で超放射相転移が得られることを示した。この結論自体は正しいと考えられている。相転移に必要な $g^2 > \omega_{10}ck/4$ という非常に強い相互作用も近年実現されており、特に超伝導回路では $g/\omega_{10} \approx 1.34$ が報告され [25]、2次元電子系のサイクロトロン共鳴とテラヘルツ波共振器からなる系では $g/(ck) \approx 1.43$ が報告されている [26]。

ただし、超放射相転移の有無に関する根本的な問題が、1975年から1981年にかけて K. Rzażewski らによって指摘された [27–29]。問題とは、電磁場と荷電粒子が従う物理法則 (Maxwell 方程式と Newton 運動方程式) を正しく再現する Hamiltonian から出発すれば、 $g \gtrsim \omega_{10}, ck$ の領域では、Dicke モデル (30) は得られず、超放射相転移が起きないことである。本節では、Maxwell 方程式と Newton 運動方程式から出発して Hamiltonian を導くことで、どのような近似が Dicke モデルを与え、超放射相転移の有無に深刻な影響を与えるのかを見ていく。

3.1 電磁場と荷電粒子の Hamiltonian

\mathcal{N} 個の荷電粒子の集団を考え、 j 番目の粒子の質量を m_j 、電荷を e_j とする。電場 $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ および磁束密度 $\mathbf{B}(\mathbf{r})$ の下で各粒子は Lorentz 力を感じ、 j 番目の粒子の位置 \mathbf{r}_j は Newton 運動方程式

$$m_j \ddot{\mathbf{r}}_j = e_j \mathbf{E}(\mathbf{r}_j) + e_j \dot{\mathbf{r}}_j \times \mathbf{B}(\mathbf{r}_j) \quad (35)$$

に従う。一方、電磁場は Maxwell 方程式 (1) に従って、荷電粒子集団が形成する電荷密度と電流密度

$$\rho(\mathbf{r}) = \sum_{j=1}^{\mathcal{N}} e_j \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j), \quad \mathbf{J}(\mathbf{r}) = \sum_{j=1}^{\mathcal{N}} e_j \dot{\mathbf{r}}_j \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j) \quad (36)$$

を感じる。

式 (35) の Newton 運動方程式と式 (1) の Maxwell 方程式が本節の出発点である。これらの運動方程式が得られる Lagrangian として、

$$\mathcal{L}_{\min} = \int d\mathbf{r} \mathcal{L}_{\min}^{\text{dens}} + \sum_{j=1}^{\mathcal{N}} \frac{\dot{\mathbf{r}}_j^2}{2m_j} \quad (37)$$

$$\mathcal{L}_{\min}^{\text{dens}} = \frac{\varepsilon_0 \mathbf{E}(\mathbf{r})^2}{2} - \frac{\mathbf{B}(\mathbf{r})^2}{2\mu_0} + \mathbf{J}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}_j) - \rho(\mathbf{r})\phi(\mathbf{r}_j) \quad (38)$$

が考えられる。Lagrangian と Lagrangian 密度に対する Euler-Lagrange 方程式 [30]

$$\frac{d}{dt} \frac{\partial \mathcal{L}_{\min}}{\partial \dot{\mathbf{r}}_j} = \frac{\partial \mathcal{L}_{\min}}{\partial \mathbf{r}_j} \quad (39)$$

$$\frac{d}{dt} \frac{\partial \mathcal{L}_{\min}^{\text{dens}}}{\partial \dot{A}_\xi} = \frac{\partial \mathcal{L}_{\min}^{\text{dens}}}{\partial A_\xi} - \sum_{\xi'=\{x,y,z\}} \partial_{\xi'} \frac{\partial \mathcal{L}_{\min}^{\text{dens}}}{\partial (\partial_{\xi'} A_\xi)} \quad (40)$$

によって、式 (35) と式 (1) を再現できる [30]。ここでは、Coulomb ゲージを採用することにする。つまり、ベクトルポテンシャルは $\nabla \cdot \mathbf{A} = \mathbf{0}$ を満たす横場となり、電場は横成分 $\mathbf{E}_\perp \equiv -\dot{\mathbf{A}}$ と縦成分 $\mathbf{E}_\parallel \equiv -\nabla\phi$ に綺麗に分けられる。この時点で Poisson 方程式が式 (1a) から得られ、スカラーポテンシャルは電荷密度によって以下のように決まる。

$$\phi(\mathbf{r}) = \int d\mathbf{r}' \frac{\rho(\mathbf{r}')}{4\pi\varepsilon_0 |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \quad (41)$$

また、Coulomb ポテンシャルは

$$V(\{\mathbf{r}_j\}) \equiv \int d\mathbf{r} \frac{\rho(\mathbf{r})\phi(\mathbf{r})}{2} = \int d\mathbf{r} \frac{\varepsilon_0 \mathbf{E}_\parallel(\mathbf{r})^2}{2} \quad (42)$$

と表されるので、Lagrangian 密度 (38) は

$$\begin{aligned} \mathcal{L}_{\min}^{\text{dens}} &= \frac{\varepsilon_0 \mathbf{E}_\perp(\mathbf{r})^2}{2} - \frac{\mathbf{B}(\mathbf{r})^2}{2\mu_0} + \mathbf{J}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}_j) \\ &\quad - \frac{\rho(\mathbf{r})\phi(\mathbf{r})}{2} \end{aligned} \quad (43)$$

と書ける。 \mathbf{r}_j と \mathbf{A} に共役な運動量はそれぞれ

$$\mathbf{p}_j \equiv \frac{\partial \mathcal{L}_{\min}}{\partial \dot{\mathbf{r}}_j} = m_j \dot{\mathbf{r}}_j + e_j \mathbf{A}(\mathbf{r}_j) \quad (44)$$

$$\boldsymbol{\Pi} \equiv \frac{\partial \mathcal{L}_{\min}^{\text{dens}}}{\partial \dot{\mathbf{A}}} = \varepsilon_0 \dot{\mathbf{A}} = -\varepsilon_0 \mathbf{E}_\perp \quad (45)$$

となる。Legendre 変換すれば、Hamiltonian の1つの形として、最小結合 (minimal-coupling) Hamiltonian と呼ばれる

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{\min} &= \int d\mathbf{r} \left[\frac{\varepsilon_0 \mathbf{E}_\perp(\mathbf{r})^2}{2} + \frac{\mathbf{B}(\mathbf{r})^2}{2\mu_0} \right] \\ &\quad + \sum_{j=1}^{\mathcal{N}} \frac{[\mathbf{p}_j - e_j \mathbf{A}(\mathbf{r}_j)]^2}{2m_j} + V(\{\mathbf{r}_j\}) \end{aligned} \quad (46)$$

が得られる [30]。量子論的に議論する際は、 $[\hat{\mathbf{r}}_j, \hat{\mathbf{p}}_{j'}] = i\hbar\delta_{j,j'}$ 、 $[\hat{\mathbf{A}}(\mathbf{r}), \hat{\boldsymbol{\Pi}}(\mathbf{r}')] = \boldsymbol{\delta}_\perp(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$ を導入する。ただし、

$$\boldsymbol{\delta}_\perp(\mathbf{r}) = \delta(\mathbf{r})\mathbf{1} - \int \frac{d\mathbf{k}}{(2\pi)^3} \frac{\mathbf{k}\mathbf{k}}{k^2} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \quad (47)$$

は横場成分についてのデルタ関数である [30]。これを用いると、例えば電場の横成分は

$$\mathbf{E}_\perp(\mathbf{r}) = \int d\mathbf{r}' \boldsymbol{\delta}_\perp(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}') \quad (48)$$

と表される.

式 (46) の第 1 項と第 2 項は, 式 (18) で想定したように, 電場の横成分と磁束密度のエネルギーである. 第 3 項は各粒子の運動エネルギーであり, これを展開した一部と, 最終項の粒子間の Coulomb エネルギーから, 物質の Hamiltonian (15) が得られる. しかしながら, 展開した際の他の項 $-e_j \mathbf{p}_j \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}_j)/m_j$ と $e_j^2 \mathbf{A}(\mathbf{r}_j)^2/(2m_j)$ は, 式 (8) で想定した相互作用 Hamiltonian とは異なる形をしている. 式 (8) は以下のような手順で導かれる.

まず, j 番目の荷電粒子の位置を原子位置 \mathbf{R}_j で近似した電気分極の演算子として

$$\hat{\mathbf{P}}(\mathbf{r}) \equiv \sum_{j=1}^N e_j \hat{\mathbf{r}}_j \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j) \quad (49)$$

を定義する. これは, 同様の近似 ($\mathbf{r}_j \approx \mathbf{R}_j$) の下での式 (36) の電荷密度と電流密度について, 確かに式 (3) の関係を満たす. この $\hat{\mathbf{P}}(\mathbf{r})$ を用いてユニタリ演算子

$$\hat{U} \equiv \exp \left[\frac{1}{i\hbar} \int d\mathbf{r} \hat{\mathbf{A}}(\mathbf{r}) \cdot \hat{\mathbf{P}}(\mathbf{r}) \right] \quad (50)$$

を定義すれば, 以下の関係が得られる.

$$\hat{U} \hat{\mathbf{H}}(\mathbf{r}) \hat{U}^\dagger = \hat{\mathbf{H}}(\mathbf{r}) + \hat{\mathbf{P}}_\perp(\mathbf{r}) \quad (51a)$$

$$\hat{U} \hat{\mathbf{p}}_j \hat{U}^\dagger = \hat{\mathbf{p}}_j + e_j \hat{\mathbf{A}}(\mathbf{R}_j) \quad (51b)$$

これを用いて, 最小結合 Hamiltonian (46) をユニタリ変換すると, $\hat{\mathbf{r}}_j \approx \mathbf{R}_j$ の近似の元では

$$\hat{\mathcal{H}}_{\text{dip}} \equiv \hat{U} \hat{\mathcal{H}}_{\text{min}} \hat{U}^\dagger \quad (52a)$$

$$= \int d\mathbf{r} \left\{ \frac{[\hat{\mathbf{D}}(\mathbf{r}) - \hat{\mathbf{P}}_\perp(\mathbf{r})]^2}{2\varepsilon_0} + \frac{\hat{\mathbf{B}}(\mathbf{r})^2}{2\mu_0} \right\} + \sum_{j=1}^N \frac{\hat{\mathbf{p}}_j^2}{2m_j} + V(\{\hat{\mathbf{r}}_j\}) \quad (52b)$$

が得られる. ただし, この Hamiltonian においては, ベクトルポテンシャル $\hat{\mathbf{A}}(\mathbf{r})$ に共役な運動量は $\hat{\mathbf{H}}(\mathbf{r}) = -\hat{\mathbf{D}}(\mathbf{r})$ のように電束密度に対応する [30]. 第 1 項は依然として電場 $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ の横成分のエネルギーだが, これを展開することで, 相互作用 Hamiltonian (8) に似た $\int d\mathbf{r} [-\hat{\mathbf{D}}(\mathbf{r}) \cdot \hat{\mathbf{P}}_\perp(\mathbf{r})/\varepsilon_0 + \hat{\mathbf{P}}_\perp(\mathbf{r})^2/(2\varepsilon_0)]$ が得られる. これや式 (8) を $\mathbf{P}_\perp(\mathbf{r})$ で偏微分すれば, どちらでも $-\mathbf{E}_\perp(\mathbf{r})$ が得られ, 電磁場を古典的に扱う場合には, 式 (8) が正当化される [30].

ちなみに, 上で用いた $\mathbf{r}_j \approx \mathbf{R}_j$ という近似 (長波長近似と呼ばれる) を用いない場合についても同様の議論があり, Power-Zienau-Woolley 変換と呼ばれる [30]. ただし, 複雑な Hamiltonian となってしまうため, 本テキストでは割愛する.

では次に, 式 (46) と式 (52) の Hamiltonian から, 式 (30) の Dicke Hamiltonian が出てくるかどうか確かめてみる.

3.2 Dicke モデル + α

第 1.4 項と同様のモデルを考えると, 同じ手順によって, 電磁場の Hamiltonian は

$$\int d\mathbf{r} \left[\frac{\hat{\mathbf{H}}(\mathbf{r})^2}{2\varepsilon_0} + \frac{\hat{\mathbf{B}}(\mathbf{r})^2}{2\mu_0} \right] \approx \hbar c k \hat{a}^\dagger \hat{a} + \text{const.} \quad (53)$$

と近似できる. また, 物質系の Hamiltonian も

$$\sum_{j=1}^N \frac{\mathbf{p}_j^2}{2m_j} + V(\{\mathbf{r}_j\}) \approx \sum_{j=1}^N \frac{\hbar \omega_{10}}{2} \hat{\sigma}_j^z + \text{const.} \quad (54)$$

となる. ただし, 式 (46) と式 (52) のそれぞれの相互作用項を考えると, 2 つの Hamiltonian は結局,

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_{\text{min}}/\hbar &\approx c k \hat{a}^\dagger \hat{a} + \sum_{j=1}^N \frac{\omega_{10}}{2} \hat{\sigma}_j^z + \sum_{j=1}^N \frac{g_v}{\sqrt{N}} \hat{\sigma}_j^y (\hat{a}^\dagger + \hat{a}) \\ &+ \frac{g_v^2}{\omega_{10}} (\hat{a}^\dagger + \hat{a})^2 \end{aligned} \quad (55a)$$

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_{\text{dip}}/\hbar &\approx c k \hat{a}^\dagger \hat{a} + \sum_{j=1}^N \frac{\omega_{10}}{2} \hat{\sigma}_j^z + \sum_{j=1}^N \frac{i g}{\sqrt{N}} \hat{\sigma}_j^x (\hat{a}^\dagger - \hat{a}) \\ &+ \sum_{j=1}^N \sum_{j'=1}^N \frac{g^2}{N c k} \hat{\sigma}_j^x \hat{\sigma}_{j'}^x \end{aligned} \quad (55b)$$

と近似される [9]. 式 (55a) を導くに当たっては総和則 (16) を用い, $g_v \equiv (\omega_{10}/c k) g$ を新たに導入した. 第 1.4 項と同様に, Heisenberg 方程式から電磁場や電気分極などに対する運動方程式を書き出し, それらの ω -Fourier 成分についての方程式を解けば,

$$\frac{c^2 k^2}{\omega^2} = 1 + \frac{4g^2(\omega_{10}/c k)}{\omega_{10}^2 - (\omega + i0^+)^2} \quad (56)$$

の関係が得られる. これはまさに $\mu_r(\omega) = 1$ での分散関係 (7) であり, 右辺は確かに電気感受率が式 (13) の場合の比誘電率 $\varepsilon_r(\omega) = 1 + \chi_e(\omega)$ となる (共振器のせいで振動子強度に 2 倍の違いがでるが, バルクを想定するとまったく同じになる). 一方で, 同様の計算をしてみると, Dicke モデル (30) では $\varepsilon_r(\omega)$ をきちんと再現できないことが分かる.

このように, 式 (55) の Hamiltonian は古典論の結果をきちんと再現するという意味で, Dicke モデルより信用できる. そして, 前節と同じ計算法により熱平衡下での電磁場の期待値を計算してみれば, 超放射相転移が得られないことが分かる. これは, 電磁場や電気分極 (も

しくは電流)が自発的に期待値を獲得した際、式(55)のそれぞれの最終項が付加的なエネルギーコストになってしまい、超放射相を不安定にするからである。このことは、Rzążewskiらによって1975年に指摘された[27]。係数が g^2 に比例することから、Dickeやその後の量子光学での多くの議論で想定された $g \ll \omega_{10}, ck$ では、これらの項は無視できたが、超強結合領域 $g \gtrsim \omega_{10}, ck$ で起こる超放射相転移を議論する際には、それらは無視することが結果に深刻な影響を与えてしまう。

その後、Rzążewskiらは、2準位原子などの具体的な物質系を想定せずとも、最小結合Hamiltonianから出発すれば、超放射相転移は原理的に起きないと主張した[28, 29]。no-go定理と呼ばれるこの主張が正しいのかどうか現在でも議論が続いているが[31–35]、ここでは深くは立ち入らない。その代わりに、J. M. Knightらが1978年に示したように[36]、最小結合Hamiltonianの最小エネルギー状態を古典的に解析することで、電磁場が絶対零度において自発的に期待値を獲得しないことを確かめてみる。

まず、式(46)の第3項である荷電粒子の運動エネルギーの最小化を考えると、荷電粒子の運動量(つまり電流)とベクトルポテンシャル(つまり電束密度)の期待値は $\mathbf{p}_j = e_j \mathbf{A}(\mathbf{r}_j)$ のように釣り合う。一方、第2項の磁束密度のエネルギーを最小化するためには、 $\mathbf{A}(\mathbf{r}) = 0$ であるべきである。第1項の電場の横成分のエネルギーや最終項のCoulombポテンシャルは \mathbf{p}_j や $\mathbf{A}(\mathbf{r})$ を含まないので、結局、 $\mathbf{p}_j = \mathbf{A}(\mathbf{r}) = 0$ が古典的には最小エネルギー状態を与えることが分かる。つまり、絶対零度でも電磁場は有限の期待値を獲得せず、超放射相転移は起きない。これはもちろん古典的な解析であり、実際には量子ゆらぎが存在し、量子論的な解析でのみ得られる何らかの相転移が存在する可能性は否定できない。より量子論的な議論から導かれるno-go定理の証明の試みについては、Rzążewskiらの論文[28, 29]もしくは文献[37]に記載したその概略を参照のこと。

4 本テキストのまとめ

量子光学で標準的に用いられる式(30)のDickeモデルから出発すると、図3の相図に見られるように、電磁場と電磁気分極(や電流)が自発的に有限の期待値を獲得する超放射相転移が導かれる。ただし、Dickeモデルを導くに当たっては多くの近似が使われており、Maxwell方程式(1)と荷電粒子のNewton運動方程式(35)から真面目に導けば、より正確には式(55)のよう

なHamiltonianとなる。これらは、電気感受率(13)や分散関係(7)など、古典電磁気学の結果をきちんと再現するようになっており、それらを再現できないDickeモデルよりも信用できるHamiltonianである。そして、それを解析してみると、残念ながら、超放射相転移は起こらないという結果が導かれる。結局、Dickeモデルでは無視されてきた式(55)の最終項が、超放射相転移の有無について深刻な影響を与える。

5 最近の試み

本テキストでは紙面の都合上、否定的な結果のみを示したが、熱平衡下ではなく非平衡下における超放射相転移が、2007年に理論的に提唱され[38]、2010年には冷却原子にレーザー光を照射した実験において観測されている[39]。非平衡下においては温度を定義できないが、レーザー光強度を変えることで光子と原子集団との相互作用の強さ g を実効的に変えることができる。パラメータ変化による相転移的な(閾値的な)振る舞いであることから、『量子』相転移として議論されている。最近の進展については文献[40]などを参照のこと。

一方、熱平衡下の超放射相転移は未だ観測された例がない。しかしながら、2009年頃より超強結合を示す物質系の実験[10, 11, 13–19, 25, 26]が盛んに報告されるようになったのに伴い、熱的な超放射相転移の実現に向けた研究が近年盛んになっている。

超伝導回路において超放射相転移に類似の相転移を起こせるかどうか、2010年頃より議論され始め[41–44]、2016年に著者らによって類似の相転移が起こりうる回路が1つ、Kirchhoffの法則を満たすLagrangianをLegendre変換してHamiltonianを導くという解析の下で、理論的に提唱された[45]。本来の電磁場の代わりに、超伝導回路中に永久電流が自発的に現れる相転移である。本テキストの執筆現在、未だ実験検証はなされていないが、理論的にも否定されていない。詳細については原論文、もしくは日本語の解説記事[46, 47]を参照のこと。

一方、本来の超放射相転移(熱平衡下での電磁場と電磁気分極の相転移)の実現に向けても、理論・実験の両面から研究が進んでいる。

まず、Rzążewskiらによるno-go定理[28, 29]への反論、つまり最小結合Hamiltonianでも超放射相転移が起こりうるという主張が、2016年[35]および2019年[48]になされている。ただし、文献[48]に関しては、否定的な見解が示されている[49, 50]。2次元正孔系のサイクロ

トロン共鳴とテラヘルツ波共振器からなる系において、超放射相転移の兆候が見えたとする報告もあるが [51]、未だ議論の余地があると受け止められている。

no-go 定理 [28, 29] を回避する明快な手段は、スピンなど、最小結合 Hamiltonian に含まれない自由度が物性に明確に現れる物質を用いることである。スピンの重要性は、J. M. Knight らによって 1978 年に既に示されていたが [36]、電気的な物質と電磁場との相互作用に比べて、磁気的なそれは基本的に小さいため、注目されるようになったのはごく最近である。2018 年には、 ErFeO_3 という磁性体で起こる磁気相転移が、超放射相転移に類似の相転移である可能性を暗示する実験結果が著者らによって報告された [52]。また、2019 年には、Rashba のスピン軌道相互作用によって引き起こされる磁気的な不安定性 (Condon ドメインの形成) が超放射相転移に相当するのではないかと理論的に示唆されている [50]。

以上が超放射相転移に関する研究の現状である。類似の相転移も含め、熱平衡下での超放射相転移は未だ観測された例がないものの、理論・実験の両面から研究が進められている。

- [1] R. Kubo, *Statistical-Mechanical Theory of Irreversible Processes. I. General Theory and Simple Applications to Magnetic and Conduction Problems*, J. Phys. Soc. Japan **12**, 570 (1957).
- [2] J. M. Luttinger and W. Kohn, *Motion of Electrons and Holes in Perturbed Periodic Fields*, Phys. Rev. **97**, 869 (1955).
- [3] M. O. Scully and M. S. Zubairy, *Quantum optics*, Vol. 67 (Cambridge University Press, Cambridge, 1997).
- [4] D. Walls and G. J. Milburn, *Quantum Optics* (Springer-Verlag, Berlin, 2008), 2nd edition.
- [5] R. J. Glauber, *Coherent and incoherent states of the radiation field*, Phys. Rev. **131**, 2766 (1963).
- [6] R. H. Dicke, *Coherence in spontaneous radiation processes*, Phys. Rev. **93**, 99 (1954).
- [7] M. Gross and S. Haroche, *Superradiance: An essay on the theory of collective spontaneous emission*, Phys. Rep. **93**, 301 (1982).
- [8] K. Cong, Q. Zhang, Y. Wang, G. T. Noe, A. Belyanin, and J. Kono, *Dicke superradiance in solids*, J. Opt. Soc. Am. B **33**, C80 (2016).
- [9] M. Bamba and N. Imoto, *Maxwell boundary conditions imply non-Lindblad master equation*, Phys. Rev. A **94**, 033802 (2016).
- [10] P. Forn-Díaz, L. Lamata, E. Rico, J. Kono, and E. Solano, *Ultrastrong coupling regimes of light-matter interaction*, Rev. Mod. Phys. **91**, 025005 (2019).
- [11] A. Frisk Kockum, A. Miranowicz, S. De Liberato, S. Savasta, and F. Nori, *Ultrastrong coupling between light and matter*, Nat. Rev. Phys. **1**, 19 (2019).
- [12] C. Ciuti, G. Bastard, and I. Carusotto, *Quantum vacuum properties of the intersubband cavity polariton field*, Phys. Rev. B **72**, 115303 (2005).
- [13] G. Günter, A. A. Anappara, J. Hees, A. Sell, G. Biasiol, L. Sorba, S. De Liberato, C. Ciuti, A. Tredicucci, A. Leitenstorfer, and R. Huber, *Sub-cycle switch-on of ultrastrong light-matter interaction*, Nature **458**, 178 (2009).
- [14] T. Niemczyk, F. Deppe, H. Huebl, E. P. Menzel, F. Hocke, M. J. Schwarz, J. J. Garcia-Ripoll, D. Zueco, T. Hümmer, E. Solano, A. Marx, and R. Gross, *Circuit quantum electrodynamics in the ultrastrong-coupling regime*, Nat. Phys. **6**, 772 (2010).
- [15] T. Schwartz, J. A. Hutchison, C. Genet, and T. W. Ebbesen, *Reversible Switching of Ultrastrong Light-Molecule Coupling*, Phys. Rev. Lett. **106**, 196405 (2011).
- [16] G. Scalari, C. Maissen, D. Turcinkova, D. Hagenmuller, S. De Liberato, C. Ciuti, C. Reichl, D. Schuh, W. Wegscheider, M. Beck, and J. Faist, *Ultrastrong Coupling of the Cyclotron Transition of a 2D Electron Gas to a THz Metamaterial*, Science **335**, 1323 (2012).
- [17] X. Zhang, C. L. Zou, L. Jiang, and H. X. Tang, *Strongly coupled magnons and cavity microwave photons*, Phys. Rev. Lett. **113**, 156401 (2014).
- [18] M. Goryachev, W. G. Farr, D. L. Creedon, Y. Fan, M. Kostylev, and M. E. Tobar, *High-cooperativity cavity QED with magnons at microwave frequencies*, Phys. Rev. Appl. **2**, 54002 (2014).
- [19] J. George, T. Chervy, A. Shalabney, E. Devaux, H. Hiura, C. Genet, and T. W. Ebbesen, *Multiple Rabi Splittings under Ultrastrong Vibrational Coupling*, Phys. Rev. Lett. **117**, 153601 (2016).
- [20] K. Hepp and E. H. Lieb, *On the superradiant phase transition for molecules in a quantized radiation field: the dicke maser model*, Ann. Phys. (N. Y.) **76**, 360 (1973).
- [21] Y. K. Wang and F. T. Hioe, *Phase transition in the dicke model of superradiance*, Phys. Rev. A **7**, 831 (1973).
- [22] K. Hepp, E. H. Lieb, R. Field, and K. Etudes, *Equilibrium Statistical Mechanics of Matter Interacting with the Quantized Radiation Field*, Phys. Rev. A **8**, 2517 (1973).
- [23] C. Emary and T. Brandes, *Quantum Chaos Triggered by Precursors of a Quantum Phase Transition: The Dicke Model*, Phys. Rev. Lett. **90**, 044101 (2003).
- [24] C. Emary and T. Brandes, *Chaos and the quantum phase transition in the Dicke model*, Phys. Rev. E **67**,

- 066203 (2003).
- [25] F. Yoshihara, T. Fuse, S. Ashhab, K. Kakuyanagi, S. Saito, and K. Semba, *Superconducting qubit-oscillator circuit beyond the ultrastrong-coupling regime*, Nat. Phys. **13**, 44 (2017).
- [26] A. Bayer, M. Pozimski, S. Schambeck, D. Schuh, R. Huber, D. Bougeard, and C. Lange, *Terahertz Light-Matter Interaction beyond Unity Coupling Strength*, Nano Lett. **17**, 6340 (2017).
- [27] K. Rzążewski, K. Wódkiewicz, and W. Żakowicz, *Phase Transitions, Two-Level Atoms, and the A^2 Term*, Phys. Rev. Lett. **35**, 432 (1975).
- [28] I. Bialynicki-Birula and K. Rzążewski, *No-go theorem concerning the superradiant phase transition in atomic systems*, Phys. Rev. A **19**, 301 (1979).
- [29] K. Gawędzki and K. Rzążewski, *No-go theorem for the superradiant phase transition without dipole approximation*, Phys. Rev. A **23**, 2134 (1981).
- [30] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg, *Photons and Atoms - Introduction to Quantum Electrodynamics* (Wiley, New York, 1997).
- [31] J. Keeling, *Coulomb interactions, gauge invariance, and phase transitions of the Dicke model*, J. Phys. Condens. Matter **19**, 295213 (2007).
- [32] A. Vukics, T. Grieser, and P. Domokos, *Elimination of the A -square problem from cavity QED*, Phys. Rev. Lett. **112**, 73601 (2014).
- [33] M. Bamba and T. Ogawa, *Stability of polarizable materials against superradiant phase transition*, Phys. Rev. A **90**, 063825 (2014).
- [34] A. Vukics, T. Grieser, and P. Domokos, *Fundamental limitation of ultrastrong coupling between light and atoms*, Phys. Rev. A **92**, 43835 (2015).
- [35] T. Grieser, A. Vukics, and P. Domokos, *Depolarization shift of the superradiant phase transition*, Phys. Rev. A **94**, 033815 (2016).
- [36] J. M. Knight, Y. Aharonov, and G. T. C. Hsieh, *Are super-radiant phase transitions possible?*, Phys. Rev. A **17**, 1454 (1978).
- [37] M. Bamba and N. Imoto, *Circuit configurations which may or may not show superradiant phase transitions*, Phys. Rev. A **96**, 053857 (2017).
- [38] F. Dimer, B. Estienne, A. S. Parkins, and H. J. Carmichael, *Proposed realization of the Dicke-model quantum phase transition in an optical cavity QED system*, Phys. Rev. A **75**, 13804 (2007).
- [39] K. Baumann, C. Guerlin, F. Brennecke, and T. Esslinger, *Dicke quantum phase transition with a superfluid gas in an optical cavity*, Nature **464**, 1301 (2010).
- [40] P. Kirton, M. M. Roses, J. Keeling, and E. G. Dalla Torre, *Introduction to the Dicke Model: From Equilibrium to Nonequilibrium, and Vice Versa*, Adv. Quantum Technol. **1800043**, 1800043 (2018).
- [41] P. Nataf and C. Ciuti, *No-go theorem for superradiant quantum phase transitions in cavity QED and counter-example in circuit QED*, Nat. Commun. **1**, 72 (2010).
- [42] O. Viehmann, J. Von Delft, and F. Marquardt, *Superradiant phase transitions and the standard description of circuit QED*, Phys. Rev. Lett. **107**, 113602 (2011).
- [43] C. Ciuti and P. Nataf, *Erratum: Superradiant phase transitions and the standard description of circuit QED*, Phys. Rev. Lett. **109**, 179301 (2012).
- [44] T. Jaako, Z. L. Xiang, J. J. Garcia-Ripoll, and P. Rabl, *Ultrastrong-coupling phenomena beyond the Dicke model*, Phys. Rev. A **94**, 1 (2016).
- [45] M. Bamba, K. Inomata, and Y. Nakamura, *Superradiant Phase Transition in a Superconducting Circuit in Thermal Equilibrium*, Phys. Rev. Lett. **117**, 173601 (2016).
- [46] 馬場基彰, 光と物質の超強結合は電磁場と電荷を相転移させるか?, 固体物理 **52**, 459 (2017).
- [47] 馬場基彰, 強は異なり ~電磁場の相転移と熱平衡下の量子もつれ~, 日本物理学会誌 **73**, 540 (2018).
- [48] G. Mazza and A. Georges, *Superradiant Quantum Materials*, Phys. Rev. Lett. **122**, 017401 (2019).
- [49] G. M. Andolina, F. M. D. Pellegrino, V. Giovannetti, A. H. MacDonald, and M. Polini, *Cavity quantum electrodynamics of strongly correlated electron systems: A no-go theorem for photon condensation*, Phys. Rev. B **100**, 121109 (2019).
- [50] P. Nataf, T. Champel, G. Blatter, and D. M. Basko, *Rashba cavity QED: a route towards the superradiant quantum phase transition*, arXiv:1907.02938 [cond-mat.str-el].
- [51] J. Keller, G. Scalari, F. Appugliese, S. Rajabali, C. Maissen, M. Beck, J. Haase, C. A. Lehner, W. Wegscheider, M. Failla, M. Myronov, D. R. Leadley, J. Lloyd-Hughes, P. Nataf, and J. Faist, *Softening of cavity cyclotron polariton modes in strained germanium 2D hole gas in the ultra-strong coupling regime*, arXiv:1708.07773 [cond-mat.mes-hall].
- [52] X. Li, M. Bamba, N. Yuan, Q. Zhang, Y. Zhao, M. Xiang, K. Xu, Z. Jin, W. Ren, G. Ma, S. Cao, D. Turchinovich, and J. Kono, *Observation of Dicke cooperativity in magnetic interactions*, Science **361**, 794 (2018).