

光物性物理学における電磁波と物質の超強結合

馬場 基彰

科学技術振興機構 さきがけ, 京都大学 大学院理学研究科

Ultrastrong light-matter interaction in condensed matter photophysics

Motoaki BAMBA

PRESTO, Japan Science and Technology Agency; Graduate School of Science, Kyoto University

The electromagnetic wave and polarization in matters exchange their amplitude with each other during the propagation with temporal and spatial oscillation. In the development of the condensed matter photophysics, in most cases, we have usually assumed that the rate of the amplitude exchange is low enough compared with the oscillation frequencies of the electromagnetic wave and polarization, i.e., the rotating-wave approximation has been usually justified. However, from around 2009, a variety of materials showing the so-called ultrastrong light-matter interaction, where the rate of the amplitude exchange is comparable to or higher than the frequencies of the electromagnetic wave and polarization even in the weak intensity limit, have been reported. We review two unique physics in the ultrastrong regime, the so-called virtual photons and superradiant phase transitions, from the viewpoint of solid state photophysics.

1 超強結合とは

電磁波の反射や屈折といった日常目にする物理現象は、電磁波と物質との相互作用の結果である。電磁波と物質の相互作用を根本として発展してきた光学は、Snell や Maxwell の時代よりも以前から研究されてきた分野である。近代では、黒体輻射や光電効果が量子論の確立に貢献してきた。また、現在に至るまで、照明やディスプレイ、光通信、太陽光発電など、我々の日常に密着した技術を提供し続けている。近年報告された重力波検出においても、量子論的に揺らぎが抑えられた光 (スクイズド光) の活用が進められている。

誘電体中での電磁波と物質の相互作用は、線形光学応答の範囲では、物質の比誘電率 $\epsilon_r(\omega)$ によって特徴付けられる。励起子や光学フォノンなど、遷移双極子を伴うある 1 つの共鳴準位に着目し、その固有振動数を ω_{ex} 、散逸のレートをゼロとすれば、 $\epsilon_r(\omega)$ は典型的には以下のように表される。

$$\frac{c^2 k^2}{\omega^2} = \epsilon_r(\omega) = 1 + \frac{4g^2}{\omega_{\text{ex}}^2 - (\omega + i0^+)^2} \quad (1)$$

最右辺の最終項は電気感受率であり、その分子は Lorentz 振動子モデルでは振動子強度 f とプラズマ振動数 ω_p を用いて表されるが、ここでは $4g^2 = f\omega_p^2$ と書いている。 g は電磁波と電気分極との間の振幅のやり取りのレートに相当しており、ここでは、この g で電磁波と物質との相互作用の強さを特徴付けることにする。図 1(a) は式 (1) から得られる分散関係であり、破線で示す電磁波 $\omega = ck$ と分極 $\omega = \omega_{\text{ex}}$ との間で振動数の反発が起こり、実線で示す 2 つのポラリトン (電磁波と分極の重ね合わせ状態) のモードが得られる。2 つのポラリトンモード間の振動数の間隔が、 $ck = \omega_{\text{ex}}$ において、おおよそ $2g$ となる。つまり、長さが $2\pi c/\omega_{\text{ex}}$ の電磁波の共振器を作成すれば、その閉じ込め波数は $k = \omega_{\text{ex}}/c$ となり、共振器内部をこの $\epsilon_r(\omega)$ を示す物質で満たせば、おおよそ、これら 2 つの振動数がピークやディップとして共振器の透過率や反射率のスペクトルに現れる。

さて、電磁波と物質の超強結合について、その定義はいくつかあり [1–3]、明確には定まっていないが、ここでは、 $g \gtrsim \omega_{\text{ex}}$ を超強結合の定義とする。つまり、電磁波と分極との振幅のやり取りのレートであ

る g が、分極の共鳴振動数 ω_{ex} と同程度かより高いという意味である。共振器量子電離磁気学では、分極や共振器の散逸レートに比べて g が十分に高い状況を強結合、逆に十分に低い状況を弱結合と呼ぶが、超強結合は ω_{ex} もしくは共振器の共鳴振動数との比較で定義される。

超強結合は、量子光学の中でも特に共振器量子電磁力学の分野で提唱され始め、多くの実験また理論でも共振器が用いられるが [2, 3], 観測のために共振器が有用であるという側面はあるにしても、超強結合の物理において共振器の有無はそれほど本質的ではない。その本質はむしろ物質側にあり、式 (1) の電気感受率の分子 ($4g^2 = f\omega_p^2$) が共鳴振動数 ω_{ex} の 2 乗と同程度かより大きな物質を準備することが肝心である。入射する電磁波を強くしても g は単純には大きくならない。単なる Fabry-Pérot 共振器を作成しても、 g は大きくならない。共振器効果によって g を大きくしたいなら、split-ring 構造 [4, 5] など、電磁波を波長以下の空間に閉じ込めるような共振器を用いる必要がある。それでも現状、何桁も増強できているわけではなく、そもそも g が高い物質を準備することが肝心である。

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 [1]。実験については、2009 年に半導体量子井

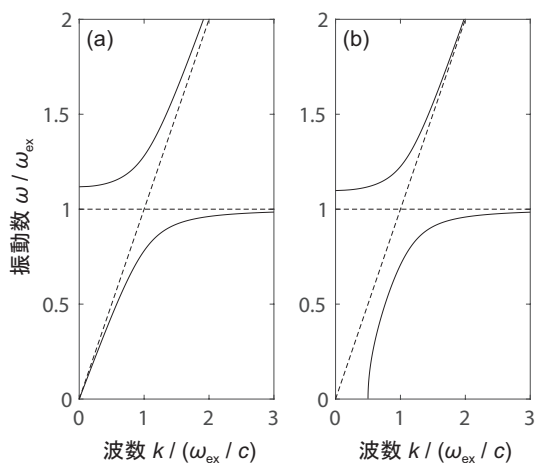


図 1: (a) は式 (1) の分散関係、(b) は A^2 項を無視して導いた式 (9) の分散関係。 $g/\omega_{\text{ex}} = 0.25$ とした。(b) では、ある値より小さな波数 k で振動数 ω が純虚数となり、系が不安定になってしまうこと、つまり超放射相転移が起きることを意味している。もし共振器によって電磁波が取りうる波数を離散的にできれば、ある値よりも長い共振器長でのみ超放射相転移が起きると考えられる。

戸中の電子のサブバンド間遷移とテラヘルツ (THz) 波 [6], 2010 年に超伝導回路中の人工原子とマイクロ波 [7], 2011 年に色素分子と可視光 [8], 2012 年にサイクロトロン遷移と THz 波 [4], 2014 年にマグノンとマイクロ波 [9, 10], 2016 年に分子振動と赤外光 [11] などが超強結合すると報告された。また、古くは、光学フォノンとテラヘルツ波も超強結合することが知られている [12]。最近では、超伝導回路において $g/\omega_{\text{ex}} \approx 1.34$ が報告され [13], 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にて $g/(ck) \approx 1.43$ が報告されている [5]。より詳しくは、解説記事 [2, 3] を参照のこと。

以下では、超強結合特有の物理として注目される仮想光子と超放射相転移について説明する。

2 仮想光子とは

式 (1) の分散関係と比誘電率 $\epsilon_r(\omega)$ は以下のような計算により導かれる。まず、Lorentz 力を感じる荷電粒子の Newton 運動方程式および Maxwell 方程式を与える Lagrangian を考え、Coulomb ゲージを取り、Legendre 変換すれば、最小結合 Hamiltonian と呼ばれる

$$\mathcal{H}_{\text{min}} = \int d\mathbf{r} \left[\frac{\epsilon_0 \mathbf{E}_\perp(\mathbf{r})^2}{2} + \frac{\mathbf{B}(\mathbf{r})^2}{2\mu_0} \right] + \sum_{j=1}^N \frac{[\mathbf{p}_j - e_j \mathbf{A}(\mathbf{r}_j)]^2}{2m_j} + V(\{\mathbf{r}_j\}) \quad (2)$$

が得られる [14]。

第 1 項と第 2 項はそれぞれ電場と磁場のエネルギーを表しており、 $\mathbf{E}_\perp(\mathbf{r})$ は電場の横波成分、 $\mathbf{B}(\mathbf{r})$ は磁束密度、 ϵ_0 と μ_0 はそれぞれ真空の誘電率と透磁率である。ベクトルポテンシャル $\mathbf{A}(\mathbf{r})$ とそれに共役な運動量 $\mathbf{\Pi}(\mathbf{r})$ を用いて、 $\mathbf{E}_\perp(\mathbf{r}) = -\mathbf{\Pi}(\mathbf{r})/\epsilon_0$, $\mathbf{B}(\mathbf{r}) = \nabla \times \mathbf{A}(\mathbf{r})$ と表される。ベクトルポテンシャルの運動方程式から、 $(\partial/\partial t)\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{\Pi}(\mathbf{r}, t)/\epsilon_0$ が得られ、 $\mathbf{E}_\perp(\mathbf{r}) = -(\partial/\partial t)\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ を確かめることができる。

一方、式 (2) の第 3 項は質量 m_j 、電荷 e_j 、位置 $\mathbf{r}_j$ 、運動量 $\mathbf{p}_j$ の荷電粒子の運動エネルギーである。荷電粒子の速度は $(\partial/\partial t)\mathbf{r}_j = [\mathbf{p}_j - e_j \mathbf{A}(\mathbf{r}_j)]/m_j$ と表される。 N は荷電粒子の数である。式 (2) の最終項は荷電粒子間の Coulomb 相互作用を表している。

式 (2) の第 3 項を展開することで、荷電粒子と電磁場との相互作用を表す $-(e_j/m_j)\mathbf{p}_j \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}_j)$ が得ら

れる．相互作用 Hamiltonian は，電気双極子と電場の積として $-e_j \mathbf{r}_j \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}_j)$ のように表すこともできるが，その変換の詳細については文献 [14] に任せることにし，ここでは式 (2) に基づいて議論を進める．

まず，物質系の Hamiltonian を単純化する．固体中の各単位胞（気体の場合は分子や原子を想定すればよい）にて電子や励起子，格子振動が励起されうるとする．共鳴振動数 ω_{ex} の 1 つの励起準位のみを単純に考えることにし，その励起自体の伝搬は電磁波の速さに比べて十分遅いとして，近似的に無視する．つまり，励起は単位胞間をホッピングしないとし，単位胞はそれぞれ独立していると近似的に見なす．このような近似の下では，物質系の Hamiltonian を

$$\hat{H}_{\text{mat}} = \sum_{j=1}^N \frac{\hat{\mathbf{p}}_j^2}{2m} + V(\{\hat{\mathbf{r}}_j\}) \approx \sum_{j=1}^N \frac{\hbar\omega_{\text{ex}}}{2} \hat{\sigma}_j^z + \text{const.} \quad (3)$$

と表すことができる． N は単位胞の数である． $\hat{\sigma}_j^z$ は Pauli 演算子と呼ばれるものであり， j 番目の単位胞の基底状態を $|0\rangle_j$ ，励起状態を $|1\rangle_j$ と表すことにすれば，各原子について $\hat{\sigma}_j^z \equiv |1\rangle_{jj} \langle 1| - |0\rangle_{jj} \langle 0|$ と定義される．また，下降演算子を $\hat{\sigma}_j \equiv |0\rangle_{jj} \langle 1|$ と書くことにする．

このような近似の下で物質の電気感受率を線形応答理論 [15] などに基づいて計算すれば，

$$\chi_e(\omega) = \frac{4g^2}{\omega_{\text{ex}}^2 - (\omega + i0^+)^2} \quad (4a)$$

$$= \frac{2g^2}{\omega_{\text{ex}}} \left(\frac{1}{\omega_{\text{ex}} - \omega - i0^+} + \frac{1}{\omega_{\text{ex}} + \omega + i0^+} \right) \quad (4b)$$

のように得られる．分子に現れる相互作用の強さ g は，電気双極子能率 $d \equiv |{}_j \langle 1 | e \mathbf{r}_j | 0 \rangle_j|$ と物質の体積 V を用いて

$$g \equiv \sqrt{\frac{\omega_{\text{ex}} d^2 N}{2\hbar \epsilon_0 V}} \quad (5)$$

と表される．上記のような近似の下で，式 (1) の第 2 項が得られる．一方，電気感受率は式 (4b) のように書き直すこともでき，ここでの第 1 項と第 2 項は，それぞれ $e^{i(\omega - \omega_{\text{ex}})t}$ と $e^{i(\omega + \omega_{\text{ex}})t}$ を時間について積分することで導かれ，回転項 (rotating term) と反回転項 (counter-rotating term) と呼ばれる．

共鳴付近 $\omega \sim \omega_{\text{ex}}$ において，反回転項の寄与は回転項のそれより明らかに小さい．そのため，反回転項を無視する回転波近似 (rotating-wave approximation) が，光科学ではしばしば用いられる．しかしながら，

超強結合下においては回転波近似を適用することができない．なぜなら，ダイナミクスに関わる振動数領域は $\omega_{\text{ex}} - g \lesssim \omega \lesssim \omega_{\text{ex}} + g$ 程度となるので， $g \gtrsim \omega_{\text{ex}}$ においては，感受率の反回転項の寄与が回転項のそれに比べて無視できなくなるためである．以下で述べるように，この反回転項の存在が仮想光子の存在に繋がる．

超強結合の研究は，量子光学や共振器量子電磁力学から派生した歴史を持つことから，多くの場合，電磁波を量子化して議論する．式 (2) の最小結合 Hamiltonian から出発し，振動数 ck のある特定の電磁波モード（例えば，共振器モード）のみに着目した場合，Hamiltonian は以下のように単純化される．

$$\begin{aligned} \hat{H}_{\text{min}}/\hbar \approx & ck \hat{a}^\dagger \hat{a} + \sum_{j=1}^N \frac{\omega_{\text{ex}}}{2} \hat{\sigma}_j^z \\ & + \sum_{j=1}^N \frac{ig_v}{\sqrt{N}} (\hat{\sigma}_j^\dagger - \hat{\sigma}_j) (\hat{a}^\dagger + \hat{a}) \\ & + \frac{g_v^2}{\omega_{\text{ex}}} (\hat{a}^\dagger + \hat{a})^2 + \text{const.} \end{aligned} \quad (6)$$

ここで， $g_v \equiv \sqrt{\omega_{\text{ex}}/(ck)}g$ と定義した．このような Hamiltonian は 1954 年に R. H. Dicke によって導かれたため，Dicke モデルと呼ばれる [16]．より詳細な名称の分類については，文献 [2, 3] を参照のこと．式 (6) の運動方程式から，式 (1) の分散関係を確かに導くことができる [17]．

さて， $\hat{a}$ は光子の消滅演算子であり [14]， $\hat{a}^\dagger \hat{a}$ は光子の数を表す．つまり，式 (6) の第 1 項は光子のエネルギー，つまり電磁波のエネルギーを表しており，式 (2) の第 1 項と第 2 項から導かれる．式 (6) の第 2 項は先に議論した物質系のエネルギーを表す．

一方，第 3 項は式 (2) の第 3 項である荷電粒子の運動エネルギーを展開して得られる $-(e_j/m_j) \mathbf{p}_j \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}_j)$ から導かれる． $i(\hat{\sigma}_j^\dagger - \hat{\sigma}_j)$ が荷電粒子の運動量 $\mathbf{p}_j$ に， $(\hat{a}^\dagger + \hat{a})$ がベクトルポテンシャル $\mathbf{A}$ に対応する．一方，式 (6) の第 4 項は Dicke の論文 [16] では無視されたが，式 (2) の運動エネルギーを展開して得られる $e_j^2 \mathbf{A}(\mathbf{r}_j)^2/(2m_j)$ から導かれるものであり， A^2 項と呼ばれる． A^2 項の重要性については，超放射相転移について説明する次節にて改めて述べる．

式 (6) において，電磁波と物質の相互作用を表す第 3 項は，量子光学の文脈では，以下のように考える．相互作用がない場合，Heisenberg 描像において，光子の消滅演算子は $\hat{a}(t) = e^{-ickt} \hat{a}$ で，物質の下降演算子

は $\hat{\sigma}_j(t) = e^{-i\omega_{\text{ex}}t} \hat{\sigma}_j$ で振動する．ここで $ck \sim \omega_{\text{ex}}$ を想定し，なおかつ相互作用項を摂動として扱うことにすれば， $\hat{\sigma}_j^\dagger \hat{a}$ と $\hat{a}^\dagger \hat{\sigma}_j$ は $e^{\pm i(\omega_{\text{ex}} - ck)t}$ でゆっくりと振動するのに対し， $\hat{\sigma}_j^\dagger \hat{a}^\dagger$ と $\hat{\sigma}_j \hat{a}$ は $e^{\pm i(\omega_{\text{ex}} + ck)t}$ のように急速に振動する．電磁波と物質のダイナミクスを議論する際，後者の寄与は，先述の感受率と同様， $g \ll \omega_{\text{ex}}$ とすれば，近似的に無視することができる． $\hat{\sigma}_j^\dagger \hat{a}^\dagger$ と $\hat{\sigma}_j \hat{a}$ も反回転項と呼ばれ，これらは無視する近似もやはり回転波近似と呼ばれる． $ck \sim \omega_{\text{ex}}$ かつ $g \ll \omega_{\text{ex}}$ では A^2 項の係数は $g_v^2/\omega_{\text{ex}} \ll \omega_{\text{ex}}$ となるので， A^2 項もしばしば無視される．

回転波近似の下，また A^2 項を無視した下では，式 (6) は以下のように近似される．

$$\hat{\mathcal{H}}_{\text{min}}/\hbar \approx ck\hat{a}^\dagger \hat{a} + \sum_{j=1}^N \frac{\omega_{\text{ex}}}{2} \hat{\sigma}_j^z + \sum_{j=1}^N \frac{ig_v}{\sqrt{N}} (\hat{\sigma}_j^\dagger \hat{a} - \hat{a}^\dagger \hat{\sigma}_j) \quad (7)$$

このような Hamiltonian が量子光学の分野では典型的に用いられる． $\hat{\sigma}_j^\dagger \hat{a}$ は j 番目の単位胞が光子を吸収して励起する過程を表し， $\hat{a}^\dagger \hat{\sigma}_j$ は励起していた j 番目の単位胞が緩和して光子を 1 個放出する過程を表している．また，この近似された Hamiltonian を見ると，光子と励起がどちらもゼロ個の状態 $|0\rangle$ が全系の基底状態となることが分かる．このように，量子光学においては，光子と励起の総数が保存されるという近似の下で，光子と物質のダイナミクスが長年議論されてきた．

しかしながら，超強結合領域 $g \gtrsim \omega_{\text{ex}}$ では，回転波近似を用いることができず，式 (6) のように反回転項 $\hat{\sigma}_j^\dagger \hat{a}^\dagger$ と $\hat{\sigma}_j \hat{a}$ を考慮して解析しなければならない．これらの項が存在することで，全系の基底状態には光子が存在するという結論が得られる [1]．これは以下のように理解できる．光子と励起がゼロ個の状態 $|0\rangle$ に反回転項 $\hat{\sigma}_j^\dagger \hat{a}^\dagger$ を含むを式 (6) の Hamiltonian を作用させると，光子と励起の総数が 2 個の状態が得られる．つまり，反回転項が存在すると， $|0\rangle$ はもはや系の真の基底状態ではなくなってしまう．真の基底状態は， $|0\rangle$ および光子と励起の総数が偶数個の状態の重ね合わせ状態として表される．このように，基底状態においても現れる光子が仮想光子 (virtual photon) と呼ばれ，C. Ciuti らによって 2005 年に指摘された [1]．

仮想光子の存在は未だ実証されていない．理論的

には，例えば，相互作用の強さ g などを高速に変調することで，仮想光子が実光子となって放出されるという提案がある [18]．また，3 準位系の物質を準備すれば，上位 2 準位で光子と超強結合をする電子が最低準位に緩和すると共に，仮想光子が放出されるという提案 [19] もある．より詳しくは，文献 [2, 3] などを参照のこと．

仮想光子の直接的な検出は未だ果たされていないが，その起源である回転波近似の破綻については，実験的に示されている．現状，もっとも明白な証明は真空 Bloch–Siegert シフトと呼ばれる電磁波の共鳴振動数のシフトである [20, 21]．また，本来禁制であった励起が反回転項によって許容になったという報告もある [22]．

これらはどれも，物質や共振器を工夫してはいるものの，観測しているのはすべて線形光学応答であり，電磁波の量子である光子に基づいて議論しているわけではない．ただ量子論的な解析に基づいて，回転波近似の破綻を示しているのが現状である．

光物性物理学においては，例えば，式 (1) のような Lorentz 関数の和で比誘電率が表現されるとして議論する場合，回転波近似は使用していない．回転波近似を使わなければ，量子光学の文脈では， g がたとえ小さくとも，仮想光子は存在する．では，光物性物理学において (電磁波を古典的に扱った際に)，仮想光子に相当する特異な何かが (特に g が大きい場合に) 観測されてきたかということ，何も観測されていない．仮想光子は本当に物理なのか？ 単なる解釈の問題なのではないか？ という議論は，残念ながら量子光学のコミュニティではあまり活発には行われていない．光物性物理学やより広い光科学の視点から，回転波近似と仮想光子に関して，今後，真摯な議論が必要とされていくように思う．

3 超放射相転移とは

超強結合に特有なもう 1 つの物理が超放射相転移 (superradiant phase transition) である [23, 24]．式 (6) の代わりに，Dicke が実際に導いた A^2 項のない

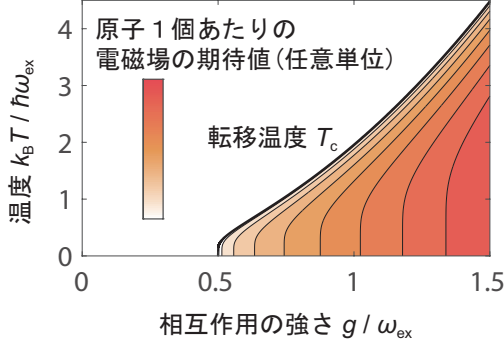


図 2: 式 (8) の Hamiltonian で記述される系の相図 (原子数無限の極限 $N \rightarrow \infty$). 横軸と縦軸はそれぞれ、電磁場と物質の相互作用の強さ g と温度 T を、物質の遷移振動数 ω_{ex} で無次元化したもの. 熱平衡下での電磁場の期待値を濃淡でプロットした. 太線で示す臨界温度 T_c において超放射相転移が起こり, $T < T_c$ にて, 電磁場と分極 (もしくは電流) が熱平衡下で自発的に静的で有限の期待値を獲得する. ここでは単純に共振器の振動数を $ck = \omega_{\text{ex}}$ としており, $g > \sqrt{\omega_{\text{ex}} ck}/2 = \omega_{\text{ex}}/2$ にて超放射相が現れる.

Hamiltonian [16]

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_{\text{min}}/\hbar \approx & ck\hat{a}^\dagger\hat{a} + \sum_{j=1}^N \frac{\omega_{\text{ex}}}{2} \hat{\sigma}_j^z \\ & + \sum_{j=1}^N \frac{ig_v}{\sqrt{N}} (\hat{\sigma}_j^\dagger - \hat{\sigma}_j) (\hat{a}^\dagger + \hat{a}) \end{aligned} \quad (8)$$

を熱平衡下で解析してみると, $N \rightarrow \infty$ の熱力学的極限, $g_v^2 > ck\omega_{\text{ex}}/4$ という超強結合領域において, ある転移温度 T_c 以下の温度で, $\langle \hat{a} \rangle$ や $\langle \hat{\sigma} \rangle$ が有限の期待値を示すことが導かれ, 図 2 のような相図が得られる. これは 1973 年に K. Hepp と E. H. Lieb によって指摘され [23], 同年, Y. K. Wang と F. T. Hioe によって, 明快な計算法が示された [24].

この相転移は, 超放射を示す Dicke モデル (8) にて得られることから, 超放射相転移と呼ばれるが, 系からの放射が肝心なのではない (絶対零度では放射は起きないと考えられる). 肝心なのは, $\langle \hat{a} \rangle$ や $\langle \hat{\sigma} \rangle$ が熱平衡下で有限の期待値を持つことであり, それはつまり, ベクトルポテンシャル $\mathbf{A} \propto (\hat{a}^\dagger + \hat{a})$ や (永久) 電流 $\mathbf{J} \propto \mathbf{p} \propto i(\hat{\sigma}_j^\dagger - \hat{\sigma}_j)$ が自発的に現れることを意味している.

光物性物理学で典型的に扱う物質や周辺の電磁場系では基本的に, 基底状態や熱平衡状態において, 分極や電磁場の期待値はゼロである. つまり, $\langle \hat{a} \rangle = \langle \hat{\sigma} \rangle = 0$ がもっとも安定な状態となる. 前節で述べた仮想光子が存在し, 光子数が $\langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle \neq 0$

であったとしても, 電磁場自体の期待値は $\langle \hat{a} \rangle = 0$ である. しかしながら, 相互作用が超強結合領域 $g_v^2 > ck\omega_{\text{ex}}/4$ になると, $\langle \hat{a} \rangle$ や $\langle \hat{\sigma} \rangle$ が低温で自発的に有限の期待値を獲得することで, 式 (8) の最終項を通じて安定化エネルギーが生じる. $g_v^2 > ck\omega_{\text{ex}}/4$ においては, この安定化エネルギーが第 1 項と第 2 項のエネルギーコストを上回り, 相転移が起こるという仕組みである.

もちろん, 磁性体や強誘電体では, 自発的に磁化や電気分極が現れるが, それらは基本的に物質中の相互作用が起源である. また, 周辺に現れる電磁場は, 磁化や電気分極によって誘起された結果である. 一方, 超放射相転移では, 電磁場と分極とがお互いを支え合うことで系を安定化させる.

先に示したように, $g_v^2 > ck\omega_{\text{ex}}/4$ を示す物質系は既の実験的に報告されている [5, 13]. しかし, 超放射相転移は 1973 年に提唱されて以降, 観測された例がない. その理由は, 式 (8) が実際の物理系をよく表していないことにある. つまり, 式 (6) のように, 実際の系には A^2 項が存在する. このことで, 電磁場と物質の相互作用による安定化エネルギーが A^2 項を含むエネルギーコストを上回することは起こりえず, 超放射相転移は起きないという結論が導かれる.

これは, 1975 年に K. Rzażewski らによって指摘された [25]. また, その後, 一般に最小結合 Hamiltonian から出発すれば, 超放射相転移は起きないことが, 半古典論の範囲で示された [26, 27]. 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 [28–35], ここでは深くは立ち入らないことにする. また, 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 [36], 未だ議論の余地があると受け止められている.

式 (8) の Hamiltonian にて超放射相転移が起こることは, 以下のように考えることもできる. 式 (8) から得られる運動方程式を用いて分散関係を導いてみると, 式 (1) ではなく, 以下のようなものが得られる.

$$\frac{c^2 k^2}{\omega^2} = 1 + \frac{\omega_{\text{ex}}^2}{\omega^2} \frac{4g^2}{\omega_{\text{ex}}^2 - (\omega + i0^+)^2} \quad (9)$$

図 1(b) はこれをプロットしたものである. 特徴的なのは, 図 1(a) のように波数 $k \rightarrow 0$ で $\omega \rightarrow 0$ とはならず, ある波数で $\omega = 0$ となり, それよりも小さな

波数では ω が純虚数になってしまうことである。 ω が純虚数になることは、系が不安定であることを意味している。分散関係を導く際には仮定として、基底状態において $\langle \hat{a} \rangle = \langle \hat{\sigma}_j \rangle = 0$ であることを用いるが、この仮定が破綻してしまうこと、つまり、超放射相転移が起こることを意味している。

しかしながら、最小結合 Hamiltonian から出発すると A^2 項が現れ、分散関係として、馴染みのある式 (1) や図 1(a) が得られ、超放射相転移は起きない。最小結合 Hamiltonian では超放射相転移が起きないとすれば、出発点であった荷電粒子と電磁場との相互作用では、超放射相転移は起きないということである。

とはいえ、もし超放射相転移が起きる物質があるのであれば、そこでは図 1(b) のような分散関係になるはずである。例えば、何らかの相転移を起こす物質を準備し、共振器構造を作って波数 k を固定することを考えてみる。十分に長い共振器長 (十分に小さな波数) では、図 1(b) にて ω は純虚数になり、バルクと同様に相転移を示すと考えられる。しかしながら、共振器長がある値より小さく、図 1(b) にて ω が実数となるような波数に固定すれば、 $\langle \hat{a} \rangle = \langle \hat{\sigma}_j \rangle = 0$ の通常相が安定となり、相転移は起こらないと考えられる。そのような実験によって、超放射相転移を起こす物質を探索できる可能性がある。

例えば、スピン自由度を導入すれば、超放射相転移が起こせるのではと 1978 年に J. M. Knight らに指摘された [37]。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 [35]。

その他、2016 年には、ある種の超伝導回路における超伝導電流の相転移が、超放射相転移に類似のものであることが、著者らによって理論的に指摘された [38]。また、2018 年には実験的に、 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ことを暗示する実験結果が著者らによって報告された [39]。より詳しくは原著論文か、少し古いですが、超放射相転移についての解説 [40] を参照のこと。

4 まとめ

光物性物理学や量子光学、またそれらを含む光科学技術では、基本的に電磁波と物質のダイナミクスが注目されてきた。つまり、熱平衡下ではなく、エネルギーの流れのある非平衡下のダイナミクスが議論されてきた。

超強結合に特有の物理である仮想光子や超放射相転移は、むしろ基底状態や熱平衡状態における特異性である。これまで光科学では、半導体や絶縁体などの物質の非平衡ダイナミクスを観測してきたが、電磁場と物質との相互作用が非常に強い超強結合を示す物質を用意すれば、仮想光子は既に基底状態においてすら存在しており、場合によっては超放射相転移が熱平衡下で起こる。

超強結合の今後の研究において肝心なのは、非平衡ダイナミクスである線形・非線形光学応答を通じて、仮想光子の存在を証明することや、前節で触れた方法などによって、既存の (磁気) 相転移が実は超放射相転移であったということを示すこと、また超放射相転移を起こす人工構造物質を作製することにある。

例えば、文献 [21] においては、易動度の高い 2 次元電子系と高品質なテラヘルツ共振器を用いることで、静磁場下の線形光学応答によって、真空 Bloch–Siegert シフトという明白な回転波近似の破綻を示した。超強結合を示す物質での非線形光学応答の理論解析も進んでいる [3, 41, 42]。超放射相転移については、Rashba のスピン軌道相互作用の強い物質が有望ではと最近指摘されている [35]。

しかしながら、理論解析はまだ十分に進んでいない。どうすれば仮想光子の明白な証拠を実験で観測できるのか、どのような物質や人工構造で超放射相転移が起きるのか、超放射相転移と通常の磁気相転移などをどのように実験的に明確に区別できるのか、未だ明確な理論提案は出てきていない。

とはいえ、超強結合を示す物質は色素分子や磁性体など、様々なものが既に報告されているので [2]、そのような物質、もしくは強誘電相転移や磁気相転移を示す物質を準備し、共振器構造を作るなり、外部から静磁場や静電場を掛けた上で、線形光学応答の範囲内のスペクトルを測定するだけで、従来扱ってきた物質とは異なるデータが得られる可能性がある。

理論的な提案も引き続き試みていくが、そのような試行錯誤の実験も平行して進めていただけると幸いである。

- [1] C. Ciuti, G. Bastard, and I. Carusotto, *Quantum vacuum properties of the intersubband cavity polariton field*, Phys. Rev. B **72**, 115303 (2005).
- [2] 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).
- [3] 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).
- [4] G. Scalari, C. Maissen, D. Turcinkova, D. Hagenmüller, 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).
- [5] 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).
- [6] 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).
- [7] T. Niemczyk, F. Deppe, H. Huebl, E. P. Menzel, F. Hocke, M. J. Schwarz, J. J. García-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).
- [8] T. Schwartz, J. A. Hutchison, C. Genet, and T. W. Ebbesen, *Reversible Switching of Ultrastrong Light-Molecule Coupling*, Phys. Rev. Lett. **106**, 196405 (2011).
- [9] X. Zhang, C. L. Zou, L. Jiang, and H. X. Tang, *Strongly coupled magnons and cavity microwave photons*, Phys. Rev. Lett. **113**, 156401 (2014).
- [10] 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**, 044002 (2014).
- [11] 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).
- [12] W. L. Faust and C. H. Henry, *Mixing of visible and near-resonance infrared light in GaP*, Phys. Rev. Lett. **17**, 1265 (1966).
- [13] 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).
- [14] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg, *Photons and Atoms - Introduction to Quantum Electrodynamics (Wiley Professional)* (Wiley, New York, 1997).
- [15] 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).
- [16] R. H. Dicke, *Coherence in spontaneous radiation processes*, Phys. Rev. **93**, 99 (1954).
- [17] M. Bamba and N. Imoto, *Maxwell boundary conditions imply non-Lindblad master equation*, Phys. Rev. A **94**, 033802 (2016).
- [18] S. Ashhab and F. Nori, *Qubit-oscillator systems in the ultrastrong-coupling regime and their potential for preparing nonclassical states*, Phys. Rev. A **81**, 42311 (2010).
- [19] R. Stassi, A. Ridolfo, O. Di Stefano, M. J. Hartmann, and S. Savasta, *Spontaneous conversion from virtual to real photons in the ultrastrong-coupling regime*, Phys. Rev. Lett. **110**, 243601 (2013).
- [20] P. Forn-Díaz, J. Lisenfeld, D. Marcos, J. J. García-Ripoll, E. Solano, C. J. Harmans, and J. E. Mooij, *Observation of the Bloch-Siegert shift in a qubit-oscillator system in the ultrastrong coupling regime*, Phys. Rev. Lett. **105**, 237001 (2010).
- [21] X. Li, M. Bamba, Q. Zhang, S. Fallahi, G. C. Gardner, W. Gao, M. Lou, K. Yoshioka, M. J. Manfra, and J. Kono, *Vacuum Bloch-Siegert shift in Landau polaritons with ultra-high cooperativity*, Nat. Photonics **12**, 324 (2018).
- [22] P. Forn-Díaz, G. Romero, C. J. Harmans, E. Solano, and J. E. Mooij, *Broken selection rule in the quantum Rabi model*, Sci. Rep. **6**, 26720 (2016).
- [23] 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).
- [24] Y. K. Wang and F. T. Hioe, *Phase transition in the Dicke model of superradiance*, Phys. Rev. A **7**, 831 (1973).
- [25] K. Rzażewski, K. Wódkiewicz, and W. Żakowicz, *Phase Transitions, Two-Level Atoms, and the A^2 Term*, Phys. Rev. Lett. **35**, 432 (1975).
- [26] I. Białynicki-Birula and K. Rzażewski, *No-go the-*

- orem concerning the superradiant phase transition in atomic systems, *Phys. Rev. A* **19**, 301 (1979).
- [27] K. Gawedzki and K. Rzażewski, *No-go theorem for the superradiant phase transition without dipole approximation*, *Phys. Rev. A* **23**, 2134 (1981).
- [28] J. Keeling, *Coulomb interactions, gauge invariance, and phase transitions of the Dicke model*, *J. Phys. Condens. Matter* **19**, 295213 (2007).
- [29] A. Vukics, T. Griebner, and P. Domokos, *Elimination of the A-square problem from cavity QED*, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 73601 (2014).
- [30] M. Bamba and T. Ogawa, *Stability of polarizable materials against superradiant phase transition*, *Phys. Rev. A* **90**, 063825 (2014).
- [31] A. Vukics, T. Griebner, and P. Domokos, *Fundamental limitation of ultrastrong coupling between light and atoms*, *Phys. Rev. A* **92**, 43835 (2015).
- [32] T. Griebner, A. Vukics, and P. Domokos, *Depolarization shift of the superradiant phase transition*, *Phys. Rev. A* **94**, 033815 (2016).
- [33] G. Mazza and A. Georges, *Superradiant Quantum Materials*, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 017401 (2019).
- [34] 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).
- [35] 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].
- [36] 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 ultrastrong coupling regime*, arXiv:1708.07773 [cond-mat.mes-hall].
- [37] J. M. Knight, Y. Aharonov, and G. T. C. Hsieh, *Are super-radiant phase transitions possible?*, *Phys. Rev. A* **17**, 1454 (1978).
- [38] M. Bamba, K. Inomata, and Y. Nakamura, *Superradiant Phase Transition in a Superconducting Circuit in Thermal Equilibrium*, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 173601 (2016).
- [39] 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).
- [40] 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).
- [41] E. Sanchez-Burillo, D. Zueco, J. J. Garcia-Ripoll, and L. Martin-Moreno, *Scattering in the ultrastrong regime: Nonlinear optics with one photon*, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 263604 (2014).
- [42] A. F. Kockum, A. Miranowicz, V. Macrì, S. Savasta, and F. Nori, *Deterministic quantum nonlinear optics with single atoms and virtual photons*, *Phys. Rev. A* **95**, 063849 (2017).