反铁磁体中的超快自发自旋切换

M. A. Weiss[1], A. Herbst[1], J. Schlegel[1], T. Dannegger[1], M. Evers[1], A. Donges[1], M. Nakajima[2], A. Leitenstorfer[1], S. T. B. Goennenwein[1], U. Nowak[1] & T. Kurihara[1,3]

[1]物理系，康斯坦茨大学，德国康斯坦茨 D-78457。[2]大阪大学激光工程研究所，日本。[3]东京大学固体物理研究所，日本。

由于磁振子频率较高，反铁磁体是未来高速自旋电子学的关键材料。几十年来，反铁磁序的皮秒级切换一直被视为一个里程碑，人们也一直试图仅通过超快外部扰动来实现这一目标。在此，我们展示了反铁磁正交铁氧体 $Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO_3$中的皮秒级自旋切换会因热涨落而自发发生。通过分析两个飞秒光学探测的脉冲间偏振涨落之间的相关性，我们提取了非相干磁振子涨落的自相关。我们观察到，在自旋重取向转变的临界温度附近，磁振子涨落振幅和相干时间均显著增强。频谱显示出两个截然不同的模式：一个对应于准铁磁模，另一个则是此前在泵浦-探测实验中未曾报道过的模式。与随机自旋动力学模拟的比较表明，这个新模式是双阱各向异性势中发生超快自发自旋切换的确凿证据。

物理学中一些最引人入胜的效应都源于涨落。自旋的非相干热涨落对关联体系的磁性起着决定性作用。热激发磁振子是诸多基本物理现象的驱动力，例如相变和自旋热电子效应[1–3]；而其非确定性特性则有望带来概率计算等独特应用[4]。传统上，人们主要通过两种方式研究非相干自旋涨落：一是间接考察热容、电导率和磁化率等宏观性质的温度依赖性[5,6], ，二是在频域利用光学探测手段，例如拉曼效应[7,8] 或衍射[9]。为测量顺磁体中频率范围为 MHz 至 GHz 的相对缓慢的自旋涨落动力学，人们采用了自旋噪声光谱（SNS）[10–15] 。与顺磁体不同，关联自旋系统具有集体激发，即磁振子。反铁磁体（AFM）具有频率特别高的磁振子，其频率可达太赫兹范围[16],，因此，从加速传统铁磁体自旋电子学器件的角度来看，它们正受到广泛关注[17,18]。然而，由于反铁磁自旋涨落的动力学极快，超出了当前电子学的能力，传统自旋噪声光谱无法探测它们。反铁磁体复杂自旋织构所产生的丰富自旋物理，迄今只能借助超快泵浦-探测光谱加以揭示，其时间分辨率可达飞秒甚至阿秒[19] 。不过，此类泵浦-探测测量具有微扰性质，因此无法探测由热或量子机制自发产生的非相干动力学。据我们所知，迄今尚无关于以飞秒时间尺度探测反铁磁体自旋涨落的报道。

在本研究中，我们首次通过实验展示了反铁磁体中自发的非相干亚太赫兹磁振子涨落动力学。这是通过一种受新兴领域亚周期量子光学启发的新型实验原理实现的[20–22]。在此，我们通过测量先后两个飞秒探测脉冲上所印刻的偏振噪声的统计关联，分析磁振子涨落动力学的时间自相关函数[图1a]。两束线偏振、光谱上分离且时间延迟可变的脉冲Δt 聚焦于样品上。在时刻 t 和$t + \Delta$t 透射脉冲时，沿传播方向的瞬态磁化涨落$\delta M_c(t)$和$\delta M_c(t + \Delta t)$分别通过法拉第效应使每束探测脉冲发生偏振变化$\delta\alpha$(t)和$\delta\alpha(t + \Delta t)$。透射探测脉冲的偏振态由独立的偏振测量探测器分别分析。利用次谐波锁相放大[21], 提取探测器输出的脉冲间涨落，在实时相乘后，针对每个延迟位置对~10^8 个脉冲进行平均。通过该方法，精确揭示了面外亚太赫兹磁化动力学的时间关联曲线〈$\delta M_c(t)\delta M_c(t + \Delta t)$〉[22,23] [。更多详情请参阅**方法**部分]。

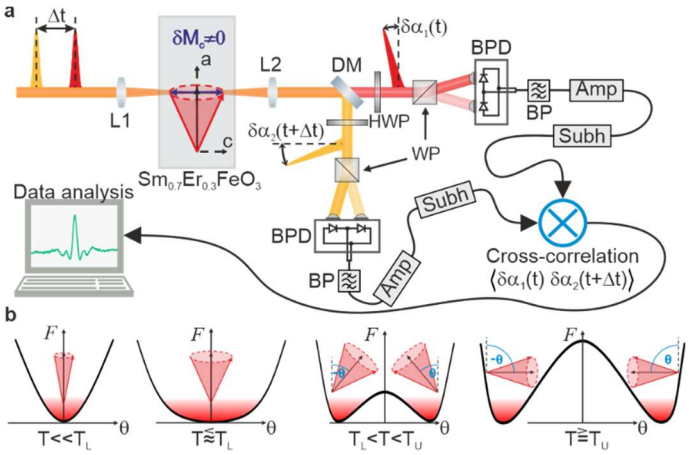


图 **1** | 实验装置与自旋系统示意图。a，由于法拉第效应，两个光谱分离、时间延迟 Δt 可调的飞秒脉冲（橙色和红色）会产生与面外自旋涨落成正比的偏振旋转 δM_c 。相应的旋转角$\delta\alpha_1$、$_2$ 由独立的椭偏仪测量。从每个通路提取脉冲间涨落后，实时计算互相关函数 $\langle\delta\alpha_1\delta\alpha_2\rangle$ ，并将其表示为延迟时间 Δt 的函数。L1、L2：透镜；DM：二向色镜；HWP：半波片；WP：沃拉斯顿棱镜；BPD：平衡光电探测器；BP：电子带通滤波器；Amp：跨阻放大器；Subh：次谐波解调方案。b，$Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO_3$中自旋重取向附近，自由能 F 随温度的演变及其对自旋噪声动力学（红色圆锥）的影响。弱铁磁矩$\boldsymbol{M}$ （黑色箭头）逐渐从 $T \le T_{\mathrm{L}}$ 处的 $\theta = 0°$旋转至 $T \ge T_{\mathrm{U}}$ 处的 $\theta = \pm 90°$。此处，θ 表示 $\boldsymbol{M}$ 与样品 a 轴之间的夹角。

我们的样品是$Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO_3$[24]正交铁氧体单晶。在这种材料中，Fe^{3+}离子的电子自旋呈反铁磁耦合。Dzyaloshinskii-Moriya相互作用[25,26] (DMI)导致自旋轻微倾斜，并产生弱净铁磁矩（净磁化强度$\boldsymbol{M}$）。正交铁氧体具有两个共振频率处于多太赫兹频段的交换模，以及两个处于亚太赫兹范围的磁振子模[27,28]。后者包括准铁磁模（F模）和准反铁磁模（AF 模）。F模的特征是弱铁磁矩绕其平衡轴进动，而AF 模则表现为其纵向振荡。$Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO_3$ 在接近室温处呈现温度诱导的二级自旋重取向转变（SRT）[29]。在自旋重取向转变区域（$T_{\mathrm{L}} < T < T_{\mathrm{U}}$），$\boldsymbol{M}$ 从晶体学 *a* 轴方向连续转向 *c* 轴方向，温度从 $T_{\mathrm{L}} = 310$ K 升至 $T_{\mathrm{U}} = 330$ K[24]。

自旋重取向转变（SRT）表现为自由能势的变化（见图 1b）。 T_L 标记了 a轴与 c轴之间的各向异性差消失的温度，从而使 a-c 平面内的磁化率增强，并使 F模的共振频率显著软化[24,30]。当此类系统受到热激发时，预期在 T_{L}处角分布宽度会显著增大。

首先，我们研究磁振子噪声动力学随时间延迟 Δt 的变化，以及其随探测体积 Ω 的标度关系，测量温度为 294.15 K（图2a）。样品的共焦位置由信号振幅最大值确定（z = 0 μm，绿色曲线）。随着 z 增大至 ±20 μm，振幅呈系统性下降（图2a 中蓝色、黄色、洋红色和红色曲线）。信号关于 Δt = 0 对称，这与我们测量系统时间动力学自相关的事实一致。所有波形在 Δt = 0 处均呈现明显峰值，随后逐渐下降，并在零值附近缓慢振荡，持续数十皮秒。图2b 显示了 Δt = 0 处的噪声振幅随样品纵向位置相对于光学焦点的变化（蓝色圆点）。如黑色曲线所示，关联法拉第噪声振幅与基模高斯模式 $\langle\delta\alpha(t)^2\rangle \propto \frac{1}{\Omega_z}$. 所探测体积 Ω(z) 成反比，拟合效果良好。请注意，在顺磁体中，

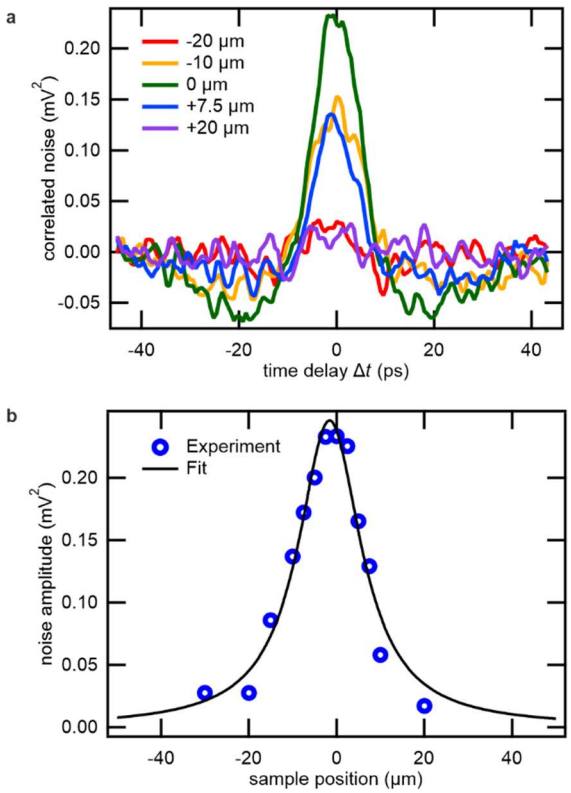


图 2 | 磁振子噪声动力学对探测体积的依赖关系。a，在温度恒定为 294.15 K 时，记录了相对于激光焦点处于多个纵向样品位置的自旋噪声波形。通过最大化 $\Delta t = 0$ 处的振幅（绿色曲线）确定共焦位置 $z = 0$ 。随着与焦点距离的增加，振幅单调下降（蓝色、黄色、洋红色和红色曲线）。**b**，$\Delta t = 0$ 处的关联噪声振幅随相对于焦点的样品横向位置变化（蓝色空心圆）。纵向位置依赖关系通过**方法**中给出的函数拟合。

已知探测体积 Ω 内N 独立自旋的统计涨落振幅 $\delta\alpha$ 遵循标度律 $\delta\alpha \propto \frac{1}{\sqrt{\Omega}} \propto \frac{1}{\sqrt{N}}$[10,13]。在此，我们发现法拉第噪声具有与传统自旋噪声光谱相同的体积标度关系。请注意，对于关联自旋系统而言，这种依赖关系并非显而易见，因为其中的单个自旋相互耦合，形成集体磁振子。尽管如此，基于这一特性，接下来我们将样品位置固定在 z $= 0$ μm，以使信号最大化。

图3a描绘了在自旋重取向转变附近发现的自旋噪声自相关波形的显著变化。其振幅、振荡周期和寿命都强烈依赖于温度。为聚焦于信号振幅的温度演变，图3b展示了$\Delta t = 0$ 处的振幅。在312.15 K附近的区域观察到振幅的急剧增加。该点略高于但接近根据我们样品估算的自旋重取向转变较低阈值温度T_L ~ 305 K，在该温度附近，各向异性软化导致磁化率增强[27]。这种紧密的一致性表明，所观察到的磁振子噪声振幅可以简单地理解为磁振子对各向异性势阱进行热占据所导致的自旋角度分布，这与图1b所述的模型一致。超过这一温度后，噪声振幅持续减小，在约为上阈值$T_U = 320$ K时几乎消失。向较高温度一侧出现的急剧下降，可由自旋系统在自旋重取向转变范围内的平衡旋转来解释。在这一温度区域，净磁化强度$\boldsymbol{M}$ 从$\boldsymbol{M}$ // $\boldsymbol{a}$（面内）持续旋转至$\boldsymbol{M}$ // $\boldsymbol{c}$（面外）。我们的法拉第探针仅对F模的c轴磁化强度涨落δM_c 敏感，[**Supplementary Materials**], 其预计会随着温度升高而按$\delta M_c \propto \cos(\theta)$减小。因此，噪声振幅预计将持续下降。

通过对通用正交铁氧体中自旋重取向转变附近的自旋噪声进行模拟，并使参数符合实验观测到的平衡性质，分析了这些发现 **[方法]**。该理论基于原子自旋模型和随机朗道-利夫希茨-吉尔伯特方程[31,32]。图 3c 展示了在 192x192x192 正交铁氧体自旋晶格中模拟得到的c 轴磁振子噪声自相关曲线。模拟再现了图 3a 中噪声波形的时间形状，包括关于$\Delta t = 0$ 的对称性，以及零时刻峰振幅和随后的缓慢振荡随温度的演变。图 3d 展示了计算所得波形的峰值振幅随温度的变化。在模拟中，自旋重取向转变表现为 302 K 附近噪声显著增强，随后在更高温度下减弱。理论计算与实验数据近乎定量一致，使我们能够在后续讨论中从微观角度考察自旋噪声动力学的随机性质。

现在我们分析频域中的动力学。检测到的噪声波形的傅里叶频谱如图 4a 所示。有趣的是，在大多数温度下都观察到两个明显的谱峰（紫色和绿色箭头）。两种模态的频率和振幅都强烈依赖于温度。当温度为 $T \leq 304$ K 时，两个峰清晰可辨；但随着温度接近 T_L 附近的噪声增强区，二者的频率变得相近，并最终因显著展宽而无法区分。在温度为 $T \gg T_L$ 时，由于自旋重取向转变，谱振幅显著降低。图4b显示了

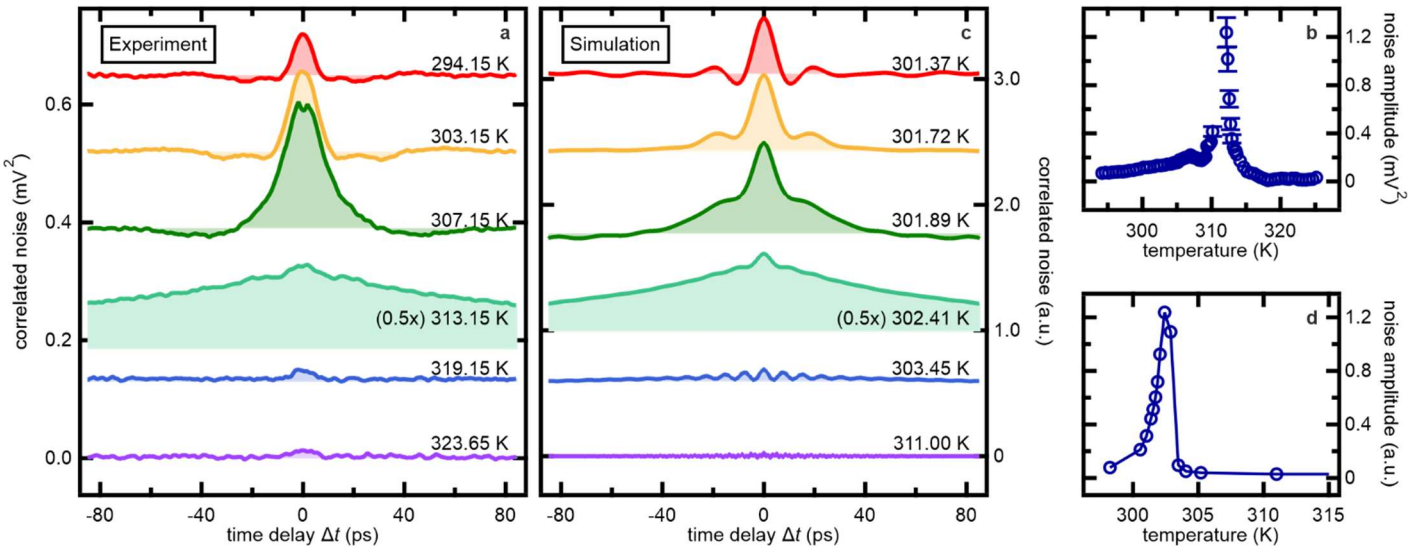


图3 | $Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO_3$附近自旋重取向的超快磁振子噪声动力学。a，$Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO_3$中自旋重取向附近多个温度下，探测脉冲之间的时间延迟 Δt 与关联噪声的关系。**b**，实验测得的零时刻振幅随温度的变化。在312 K附近的噪声增强区域，误差棒考虑了背景扣除程序的不确定性**[方法]**。**c**，基于原子自旋模型和随机朗道-利夫希茨-吉尔伯特方程的磁振子噪声模拟。**d**，模拟的零时刻振幅随温度的演变。

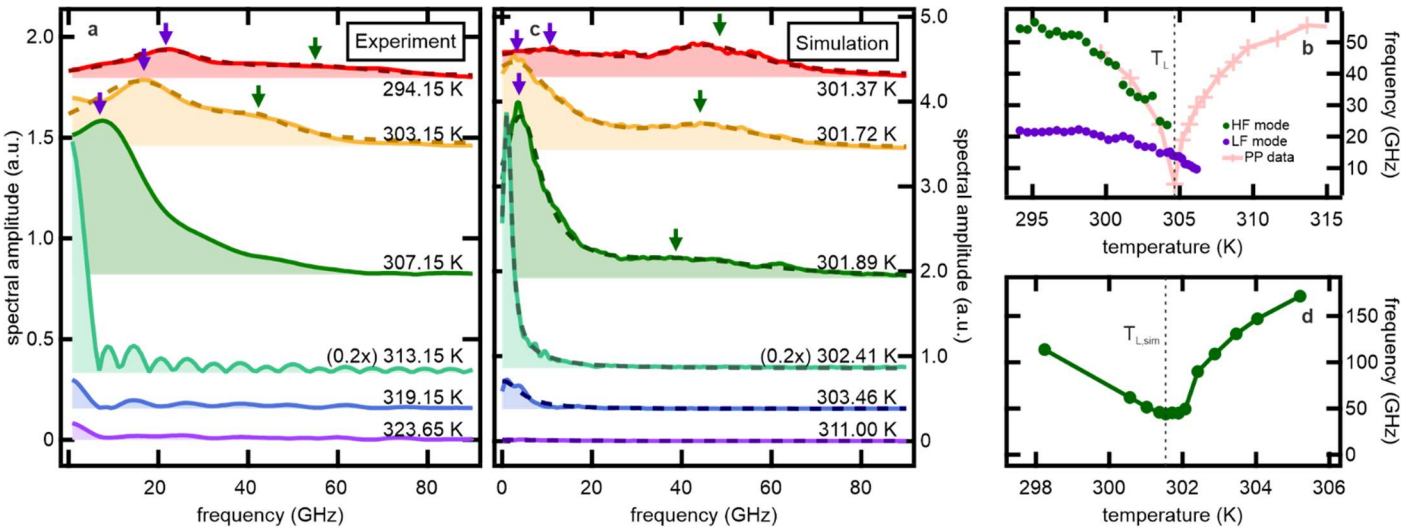


图4 | $Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO_3$自旋重取向转变附近的磁振子噪声谱。a，图 2a 中测得的磁振子噪声波形的傅里叶频谱。在 $T < 307.15$ K 时可分辨出两个极大值（紫色和绿色箭头），而在更高温度下仅低频模（紫色箭头）占主导地位。使用双洛伦兹函数（虚线）对光谱进行拟合，在能够区分两个独立峰的情况下进行拟合。 **b**，图 a 所示光谱中高频模（深绿色实心圆）和低频模（紫色实心圆）的温度演变。数值由拟合结果以及图 a 中 2nd 导数过零点的评估得到 **[方法]**。作为比较，还展示了通过太赫兹泵浦-近红外探测[30] 获得的准铁磁磁振子模（F模）频率数据，标记为粉色叉号。泵浦-探测数据向低温方向平移了 7.5 K，以补偿我们的实验中稳态加热量的差异。**c**，模拟波形（图 2c）的傅里叶频谱。绿色和紫色箭头分别表示 F 模和低频特征的中心频率。使用三重洛伦兹函数（虚线）对光谱进行拟合。**d**，模拟得到的 F 模频率沿*c*轴投影的温度演变。数值由图**c**中的拟合结果得到。

各模态的峰值频率随温度的变化。两种模态的频率在 $T_L \approx 305$ K 附近均大幅降低，这与自旋重取向转变附近 F 模的软化行为十分相似。高频（HF）模态的温度依赖性（图 4b 中的绿色实心圆）与泵浦-探测数据[24] （粉色叉号）定量吻合，清楚地表明该 HF 模态是 $Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO_3$ 中的 F 模。另一方面，低频（LF）模态在泵浦-探测测量中没有对应信号。据我们所知，这是首次报道正交铁氧体的自旋重取向转变区域中出现此类模态。

随机LLG模拟的傅里叶频谱如图 4c 所示。两个峰的出现及其在 $T_{L,\ sim} \approx 301.5$ K 附近的软化（图4d）与图 4b 中的实验结果相符。模拟所得 F 模态涨落的温度依赖性与实验中观察到的 HF 模态相一致，这进一步支持了我们将其归属为原始 F 模态的判断。相反，在实验数据中，从温度为 $T = 294.15$ K 时记录的频谱一直到远高于 $T_L \approx 305$ K 的温度范围内，都能观察到 LF 特征；而在模拟中，该特征仅出现在较窄的温度范围 $T \gtrsim T_{L,\ sim}$ 内（图 4c ）。实验和模拟中 LF 频谱振幅的温度依赖性（补充图 1 、 4 ）均呈现出与图 3b 所示零时刻振幅随温度变化相似的趋势。这一发现表明，潜在的 LF 动力学对总噪声振幅（图3b、d）有显著贡献。

为深入了解 LF 特征的物理起源，我们现在对模拟数据进行更详细的研究。图5a展示了归一化磁化强度 m_c/m_S（m_S 为饱和磁化强度）的*c*轴投影随时间的演化结果。对于 $T < T_{L,sim}$，归一化磁化强度的平衡轴平行于*a*轴。因此，可以观察到以原点为中心的 m_c/m_S 涨落。接近 $T_{L,sim}$时，涨落幅度增大，振荡周期也变长，与我们此前的讨论一致。对于 $T \gtrsim T_{L,sim}$， m_c/m_S 在两个幅度相近但符号相反的离散态（上态和下态）之间切换的现象变得明显，呈现出皮秒时间尺度上的随机电报噪声（RTN[33–35]）行为。随着温度升高，观察到的切换次数逐渐减少，直至在 $T \gg T_{L,sim}$时不再记录到切换事件。此时，m_c/m_S 始终围绕某个优选态涨落。比较模拟光谱中观察到低频峰的温度（图4c）与磁化强度时间轨迹中记录到随机电报噪声的温度（图5a）可知，低频峰的出现与皮秒随机电报噪声的观测密切相关。需要指出的是，随机电报噪声信号的傅里叶变换应产生指数衰减的自相关函数，因而得到以零频为中心的洛伦兹型频谱[36]。与此相反，我们观察到的 LF 模态在有限频率处出现峰值。我们认为这是由于分析轨迹时所用的时间窗口有限所致。

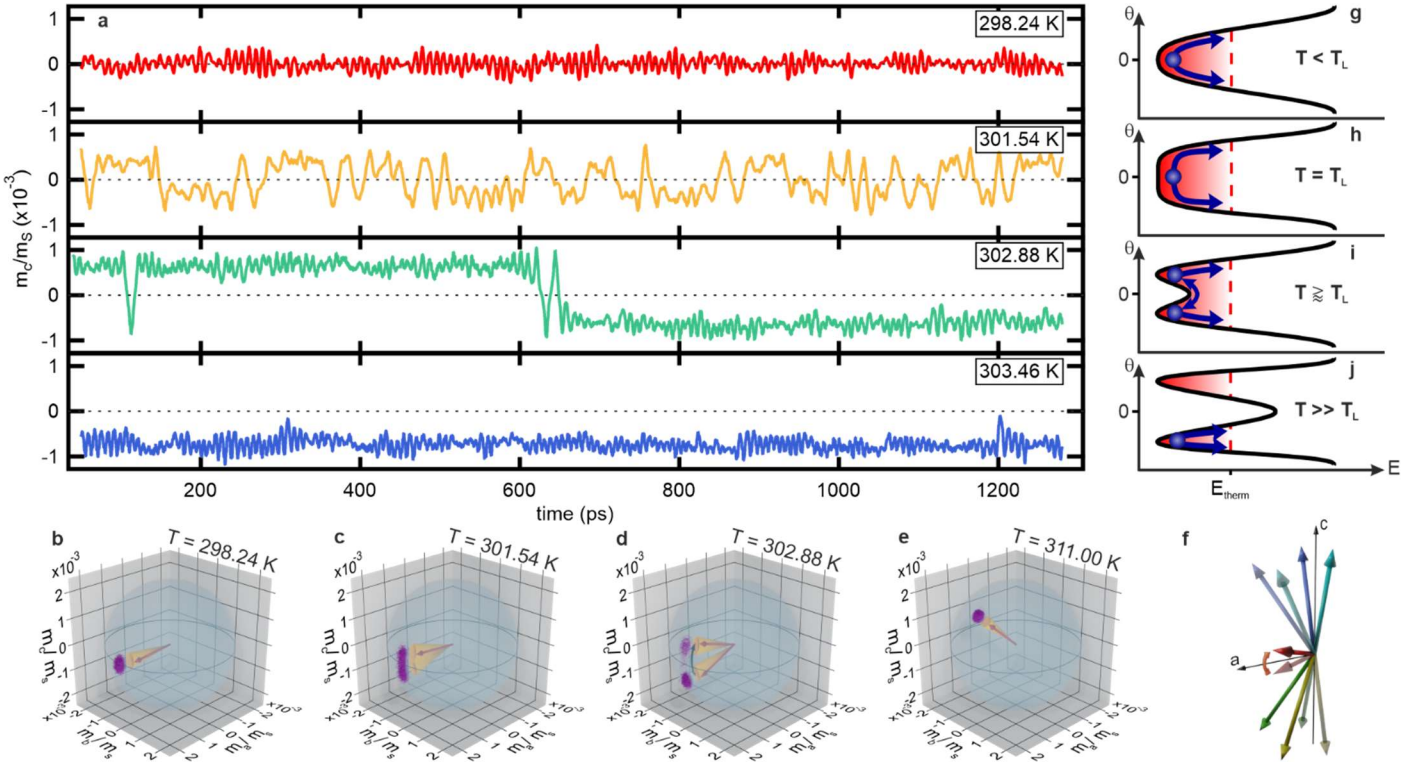


图 5 | $Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO_3$中的皮秒随机切换。a，模拟了 $Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO_3$在自旋重取向附近多个温度下，归一化到饱和磁化强度m_S 的磁化强度 c 轴分量m_c 的时间轨迹。**b-e**，模拟了 $Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO_3$. 在自旋重取向附近多个温度下的归一化磁化强度（红色箭头）轨迹（紫色线）。在温度$T \gtrapprox T_{L,\ sim}$ （**d**）下，沿*c*方向记录到切换事件。F模磁振子的进动锥以黄色标示。**f**，示意图展示了 $Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO_3$ 中能量简并的$\pm\theta$ 状态下的亚晶格磁化矢量（蓝色、薄荷色、绿色、黄色）和净磁化强度（红色）。为便于观察，亚晶格磁化矢量的倾斜角以及由此产生的净磁化强度均被大幅夸大。**g-j**，跨越自旋重取向转变的不同温度下的正铁氧体势能景观。红色虚线表示系统的热能 E_{therm} 。在温度$T < T_L$ （**g**）下，势能呈抛物线形状，涨落局限在$\theta = 0$附近的单个极小值内。略高于T_L（**h,i**）时，双势阱形成，粒子在位于$\pm\theta$的极小值之间随机切换。在$T_U > T \gg T_L$ （**j**）时，极小值之间的能垒大于系统的热能，因此不再发生切换事件。

为进一步详细研究这种随机电报噪声行为，我们绘制了自旋重取向转变（SRT）附近不同温度下经朗道-利夫希茨-吉尔伯特（LLG）模拟得到的磁化强度轨迹（图5b-f）。在 $T = 298.24\ \mathrm{K} < T_{L,sim}$ （图5b）时，平衡磁化强度沿*a*轴指向（$\theta = 0$），并且可以在*b*轴和*c*轴投影中观察到 F模噪声（见补充图5）。

在 $T = T_{L,sim} \approx 301.54$ K（图5c）时，观察到 F 模噪声增强。随后，自旋系统向有限角度 θ 旋转，持续时间为 $T > T_{L,sim}$。$\pm\theta$ 态能量简并，在温度略高于 $T_{L,sim}$时会发生态间切换，即在 $T = 302.88\ \mathrm{K} \gtrapprox T_{L,sim}$ 时（图5d）。这会产生额外的磁化噪声贡献（补充图5c），并解释了图4c中$T = 302.41\ \mathrm{K} \gtrapprox T_{L,sim}$ 波形中显著增强的噪声振幅。图5f展示了切换$\pm\theta$ 态时亚晶格磁化矢量的构型及净磁化强度。随着温度进一步升高（图5e），切换概率降低，直至不再发生切换。此处由于模拟的初始条件，始终优先出现向上态。接近上限温度 $T_{U,sim}$时，由于沿该方向的各向异性软化，在*a*轴投影中观察到切换。超过 $T_{U,sim}$后，平衡磁化强度变得与*c*轴平行（未显示），F模对噪声的贡献消失（见**补充材料图2、4**）。

通过一个考虑两个能量简并准平衡态之间随机切换的模型，可以清晰地理解随机电报噪声动力学的物理图像。这两个状态表现为由自旋重取向转变导致的平衡磁化强度的 $\pm\theta$ 旋转状态（见图 5g-j）。在 $Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO_3$, 中，对于 $T < T_L$，自由能密度呈周期性变化；而对于 $T > T_L$ ，它则演变为一个在 $\pm\theta$[24]处具有极小值的双势阱。旋转角 θ 和分隔两个极小值的势垒高度逐渐增大，直至 $T = T_U$[37]。当势垒高度相较于系统的热能较低时，$\pm\theta$ 状态之间会发生随机切换（图 5i，$T \gtrapprox T_L$）。温度进一步升高约 1 K，会显著改变势垒高度，而热能仅略有变化。因此，每个准平衡态上的平均寿命 τ增加，切换概率则降低。值得注意的是，该模型甚至

再现了我们的观测结果：自相关的零时刻振幅达到最大值时的温度（图3b、d）略高于 T_L （图 4b、d）。

模拟时间轨迹中的随机电报噪声与光谱中的低频峰之间显而易见的关联，有力地证实了皮秒随机电报噪声是实验中 LF 特征的物理起源。值得注意的是，呈现随机电报噪声的随机物理系统近来备受关注，被视为实现概率计算的关键推动因素。为此，人们希望采用呈现高频随机电报噪声的系统，以实现更快的计算速度和更高的精度[33–35]。几十年来，人们一直在深入研究电子时间尺度上的随机电报噪声，研究对象包括存在电荷载流子陷阱的系统，例如商用半导体结构[38,39], 。迄今报道的最快随机电报噪声器件仍处于纳秒范围，它利用了面内磁隧道结[40,41]。据我们所知，本文报道的皮秒随机电报噪声创下了迄今为止的最快切换速度纪录。我们认为，$Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO_3$ 中的高发生率源于亚太赫兹区域的磁振子频率；与传统铁磁体相比，这使切换尝试之间的间隔更短[41,42]。这一结果进一步凸显了超快自旋噪声光谱作为独特工具，在探测磁相变附近随机动力学方面的能力。

总之，我们首次在接近自旋重取向转变的反铁磁正铁氧体 $Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO_3$ 中实现了亚太赫兹磁振子涨落的时域观测。自旋重取向转变区间内振幅和相干时间大幅增加，同时频谱中观测到低频峰，这些现象直接证明了磁自由能的两个平衡态之间存在超快随机自旋切换。本文报告的随机自旋切换速度是迄今所记录到的最快速度，或可为工作于太赫兹频率的超快概率计算提供关键要素。我们的实验方案不仅适用于正铁氧体，也适用于各种关联磁性系统。此外，我们的结果为反铁磁体中的太赫兹磁振子学带来了新的认识；在这一领域，非相干自旋动力学的影响在很大程度上一直被忽视。

方法：

实验与数据后处理：

本研究采用锁模铒光纤激光系统，其输出脉冲宽度为 150 fs，中心波长为 1.55 μm，重复频率为 40 MHz，总能量为 5 nJ。该输出经周期性极化铌酸锂（PPLN）器件进行倍频，达到正铁氧体的透明窗口[43]。随后，二向色镜将脉冲进行光谱分离，得到两列线偏振、光谱不同的飞秒脉冲列，其中一支光路由光学延迟台提供时间延迟 Δt 。经另一块二向色镜在空间上重新合束后，透射式物镜（数值孔径为 0.4）将脉冲聚焦到正铁氧体样品上，光斑直径为 <2 μm。中心波长分别设为 770 nm 和 780 nm，偏振方向沿样品的 a轴。样品为一块厚度d =为 10 μm 的单晶 $Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO_3$ c切板。脉冲在时刻 t 和 $t + \Delta$t 透过厚度为 d 的样品时，沿脉冲列传播方向的瞬态磁化涨落$\delta M_c(t)$通过磁光法拉第效应引入偏振噪声$\delta\alpha(t) \propto V(\lambda) \cdot d \cdot \mu_0 \cdot \delta M_c(t)$，其中 $V(\lambda)$ 为费尔德常数，μ_0 为真空磁导率。经附加透镜准直后，二向色镜将两束探测光在空间上分开，并分别送入分析器以监测其偏振。每个探测器均由半波片（HWP）、沃拉斯顿棱镜和一对平衡光电二极管组成。半波片的角度经过设置，用于补偿由样品双轴双折射等因素引起的偏振旋转中的稳态分量[44]。沃拉斯顿棱镜（WP）将探测光分为 p 偏振和 s 偏振分量。随后，平衡光电探测器（BPD）检测偏振分量的强度差，并分别由跨阻放大器（Amp）放大。之后，信号通过 20 MHz 带通滤波器（BP），并由射频锁相放大器[20]在激光重复频率的第一分谐波（20 MHz）处进行解调。此时，这些解调通道的输出分别包含偏振噪声振幅 $\delta\alpha(t)$ 和 $\delta\alpha(t + \Delta t)$，以及由探测光子散粒噪声主导的非关联分量。最后，锁相放大器在实时处理中将两路解调信号相乘。每个时间延迟 Δt 下，对该乘积在约 10^8 对脉冲上取平均，从而有效得到法拉第噪声的互相关 $\langle \delta\alpha(t)\delta\alpha(t + \Delta t) \rangle$ 。通过这种方式，我们从幅度大得多的非关联背景中提取出源自样品响应的微弱关联涨落部分。同时，双波长方案避免了短延迟时间下有害的干涉效应，从而能够灵敏地探测高频信号。此外，该方案使两束探测光能够在物镜前共线重叠，从而最大程度地匹配样品表面的光斑模态。这对于获取幅度足够强、可测量的磁振子关联信号至关重要。

对原始波形进行后处理，采用三阶萨维茨基–戈莱滤波器平滑，并进行线性基线扣除，其中将最初和最后 5 ps 的平均值作为参考。接近自旋重取向转变（SRT）时，磁振子软化与热诱导随机切换的综合作用，使磁化噪声在观测窗口内未能完全衰减至零。在这种情况下，若采用上述线性基线扣除，会使波形发生失真。因此，对于 307.15 K 及以上的温度，我们采用 307.15 K 以下记录的所有波形的平均基线作为线性基线扣除的参考。此外，在 307.15 K 以上的自旋重取向转变区域内，观察到明显的基线升高，其幅度强烈依赖于温度，并在约 311 K 时最为显著。基线升高相对于$\Delta t = 0$ 呈非对称分布，因此必定由外部因素造成，例如延迟台的轻微错位。在 310.35 K 至 311.95 K 的温度范围内，由于存在较大的非对称背景，未观察到关联噪声的特征。因此，无法进行有意义的评估，我们在讨论中相应地忽略了该温度范围内的数据。对于其他所有温度高于 307.15 K 的可靠数据集，若关联自旋噪声上叠加有轻微的非对称背景，则采用斜率校正去除这种不对称性。为考虑此步骤可能在关联自旋噪声中引入的伪影，我们将每个时间延迟下测得振幅的 10% 设为相对不确定度。

原子自旋模型模拟：

$Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO_3$ 被建模为一种典型的正交铁氧体，其中只有铁位点带有磁矩。这些磁矩被视为经典矢量$\boldsymbol{S_i}$，排列在具有四个子晶格的简单立方晶格上。稀土磁矩仅在通常为$T < 6$ K的极低温度下才会有序，因此在此被忽略。在正交铁氧体中，最近邻交换常数J_1 约为-20 meV，形成奈尔温度约为630 K的反铁磁序；而次近邻交换常数J_2 要小得多，约为-1 meV [45–47]。如参考文献[48]所述，可以通过不同的热稳定各向异性来模拟自旋重取向转变。

此处的自旋重取向转变源于二阶单点各向异性与二阶双位点各向异性的竞争：前者偏好[001]方向，后者偏好 [001] 平面。低温态由单点各向异性主导，而高温态则由热稳定性更强的双位点各向异性主导。仅有这两种各向异性时，会产生一级自旋重取向转变。加入一个偏好 [111] 方向的微弱立方各向异性后，便会得到与实验结果一致的二级自旋重取向转变。立方各向异性的强度决定了自旋重取向转变的宽度。反平行排列的子晶格磁化因倾斜而产生弱铁磁性，其根源是氧介导的Dzyaloshinskii-Moriya相互作用（DMI）。

因此，我们模型的哈密顿量为

$$H\{\boldsymbol{S_i}\} = -\sum_{\langle i,j\rangle} J_1 S_i^{\upsilon} S_{j\upsilon} - \sum_{\langle\langle i,j\rangle\rangle} J_2 S_i^{\upsilon} S_{j\upsilon} - \sum_{\langle i,j\rangle} \varepsilon_{\upsilon\eta\lambda} D_{ij}^{\upsilon} S_i^{\eta} S_j^{\lambda} - \sum_{\langle i,j\rangle} \kappa^{\upsilon\eta} S_{i\upsilon} S_{j\eta} - \sum_i \kappa_2^{\upsilon\eta} S_{i\upsilon} S_{i\eta} - \sum_i \kappa_4^{\upsilon\upsilon\eta\eta} S_{i\upsilon} S_{i\upsilon} S_{i\eta} S_{i\eta},$$

采用爱因斯坦求和约定，其中 i 和 j 表示格点指标，υ、η 和 λ 表示笛卡尔方向。前两个双重求和项对应最近邻相互作用，数值为 $J_1 = -22.32$ meV；第三个双重求和项对应次近邻相互作用，数值为 $J_2 = -1.4$ meV。最近邻壳层中还包含 Dzyaloshinskii-Moriya相互作用，其 DMI 矢量在面内相互作用和面外相互作用中的长度分别为 0.18 meV 和 0.25 meV。DMI 矢量的方向可根据文献 [26] 的对称性规则确定。在哈密顿量中，D_{ij}^{υ} 对应于 DMI 矢量的 υ 分量，该矢量描述晶格位点 i 和 j上的自旋之间的相互作用。第一壳层中还包含双位点各向异性，数值为 $\kappa^{zz} = -0.1255$ meV，从而形成易磁化的 x-y平面。二阶单点各向异性为 $\kappa_2^{zz} = 0.905$ meV，因此易磁化轴为 z轴。此外，面内贡献也较小，分别为 $\kappa_2^{xx} = \kappa_2^{yy} = 0.015$ meV 和 $\kappa_2^{xy} = \kappa_2^{yx} = -0.015$ meV。后一项并非发生自旋重取向转变所必需，但会解除 xy平面内自旋的简并。四阶单点各向异性为 $\kappa_4^{xxyy} = \kappa_4^{xxzz} = \kappa_4^{yyzz} = 0.036$ meV。采用这些参数时，模型会在 302 K 至 322 K 之间发生自旋重取向转变：奈尔矢量从 z方向连续旋转至 $x\bar{y}$方向，磁化强度则从 $x\bar{y}$方向旋转至 z方向 **[补充材料]**。请注意，哈密顿量中的 x、 y 和z 坐标轴平行或反平行于铁原子之间的连线，但不平行于正交铁氧体的晶轴 a， b， c。晶体学单位矢量表示为

$$\boldsymbol{e}_a = \frac{1}{\sqrt{2}}(\boldsymbol{e}_x - \boldsymbol{e}_y),\ \boldsymbol{e}_b = \frac{1}{\sqrt{2}}(\boldsymbol{e}_x + \boldsymbol{e}_y),\ \boldsymbol{e}_c = \boldsymbol{e}_z,$$

因此，a方向对应于 $x\bar{y}$方向，b方向对应于 xy方向，而 c方向等于 z方向。

为模拟磁矩的动力学，采用随机朗道-利夫希茨-吉尔伯特方程[31,32] ，其形式为

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\boldsymbol{S}_i = -\frac{\gamma}{\mu_S(1+\alpha^2)}\boldsymbol{S}_i \times (\boldsymbol{H}_i + \alpha \boldsymbol{S}_i \times \boldsymbol{H}_i),$$

with

$$\boldsymbol{H}_i = -\frac{\partial H}{\partial \boldsymbol{S}_i} + \boldsymbol{\xi}_i,$$

以及一个热高斯白噪声项，其

$$\langle \boldsymbol{\xi}_i(t) \rangle = 0, \ \ \langle \xi_{iv}(t)\xi_{j\eta}(t') \rangle = \frac{2\mu_S \alpha k_B T}{\gamma_i}\delta_{ij}\delta_{v\eta}\delta(t-t')$$

无量纲阻尼参数为 $\alpha = 0.0002$。旋磁比设为自由电子的值$\gamma_i = 1.76086 \times 10^{11}\,\frac{\mathrm{Hz}}{\mathrm{T}}$，磁矩的大小为 $\mu_S = 3.66\mu_B$。在此基础上，通过随机海恩方法对由 192^3 个自旋组成的系统进行数值计算。我们的主要输出量是磁化强度 $\boldsymbol{m}(t)$，其形式为

$$\boldsymbol{m}(t) = \frac{1}{N}\sum_i \boldsymbol{S}_i \,.$$

N 是自旋的数量，$\boldsymbol{S}_i$ 表示晶格位点 i 处的自旋。因此，$\boldsymbol{m}(t)$为无量纲量，以下将其归一化为 1。谱噪声振幅（谱功率密度）P_η 通过下式计算

$$P_\eta(f) = \left\langle \frac{\left| m_\eta^T(f) \right|^2}{T} \right\rangle$$

通过傅里叶变换

$m_\eta^T(f) = \int_0^T m_\eta(t) e^{-i2\pi f}\ \mathrm{d}t.$

此外，对 20 至 30 次模拟运行得到的谱振幅取平均。利用维纳-辛钦定理，通过对谱噪声振幅进行傅里叶逆变换，确定时变相关噪声振幅（自协方差）。

Z 扫描：当一个

厚度为 d 的样品置于高斯激光束的焦点处时，照明体积会形成一个位置相关的双曲面

$\Omega(\mathrm{z}) = \pi w_0^2 \left[d + \frac{d^3/12 + dz^2}{z_R^2} \right],$

其中，z 是样品相对于激光焦点沿光传播轴的位置，w_0 是最窄处的光束半径，$z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$ 是与波长 λ 相关的瑞利长度。我们估计 z_R 为 7 μm。在传统的自旋噪声光谱（SNS）中，探测体积 Ω 内 N 个自旋的统计涨落会产生量级为 $\delta\alpha \propto \frac{1}{\sqrt{\Omega}}$ 的法拉第噪声。因此，对于相关噪声振幅，我们预期 $\langle \delta\alpha^2 \rangle \propto \frac{1}{\Omega}$ 在 Δt = 0 时成立。代入 Ω (z) 的公式后，可得相关噪声振幅关于样品横向位置的以下拟合函数（图 2b）：

$$\frac{A}{\pi w_0^2 \left[d + \frac{d^3/12 + dz^2}{z_R^2} \right]}$$

其中 A 是比例常数。

实验噪声波形经过插值、补零和平滑处理。随后，采用快速傅里叶变换算法获得高分辨率光谱。使用双洛伦兹峰拟合分析光谱特征。对于 F模与 LF 特征（见图 4b）重叠的光谱，通过估算二阶导数的过零点来确定中心频率。模拟光谱也经过插值和平滑处理。随后，使用三重洛伦兹峰拟合分析光谱特征，其中各峰分别对应 LF 特征、F模和 AF 模（见补充图 4a-c）。

致谢：

本研究获得日本学术振兴会（JSPS）海外研究奖学金、康斯坦茨大学 Zukunftskolleg 奖学金、日本学术振兴会科研经费（JP21K14550、JP20K22478、JP20H02206）以及德国研究联合会（DFG，德国研究基金会）项目编号 425217212 - 协同研究中心 1432 的资助。

作者贡献：

T.K. 和 A.L. 构思了实验。M.A.W.、A.H. 和 T.K. 搭建了实验系统、进行了测量并分析了数据。J.S.、T.D.、M.E. 和 A.D. 在 U.N. 的指导下进行了数值模拟。M.N. 制备了样品。T.K. 、 A.L. 和 S.T.B.G. 共同指导了该项目。M.A.W. 和 T.K. 在所有合著者的协助下撰写了论文。

附加信息：

有关材料的通信和索取事宜，请联系 T. Kurihara。本文的补充信息可供查阅。

参考文献

1. Weller, D. & Moser, A. 超高密度磁记录中的热效应极限。《*IEEE*磁学汇刊》**35，**4423–4439；10.1109/20.809134 (1999). 2. Moriya, T. 《巡游电子磁性中的自旋涨落》(Springer International Publishing, Cham, 20). 3. Bauer, G. E. W., Saitoh, E. & van Wees, B. J. 自旋热电子学。《自然材料》**11，**391–399；10.1038/nmat3301 (2012). 4. Camsari, K. Y., Salahuddin, S. & Datta, S. 利用嵌入式磁隧道结实现概率位。《*IEEE*电子器件快报》**38，**1767–1770；10.1109/LED.2017.2768321 (2017). 5. Falk, H. & Bruch, L. W. 磁化率与涨落。《物理评论》**180，**442–444；10.1103/physrev.180.442 (1969). 6. Eckel, S., Sushkov, A. O. & Lamoreaux, S. K. 钆钇混合铁石榴石的磁化率与磁化强度涨落测量。《物理评论*B*》**79**；10.1103/physrevb.79.014422 (2009). 7. van Loosdrecht, P. H. M., Boucher, J. P., Martinez, G., Dhalenne, G. & Revcolevschi, A. $CuGeO_3$的磁涨落谱：拉曼散射。《应用物理学杂志》**79，**5395；10.1063/1.362316 (1996). 8. Weber, M. C.等稀土正铁氧体$RFeO_3$（R =La、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy）的拉曼光谱。《物理评论*B*》**94**；10.1103/PhysRevB.94.214103 (2016). 9. Yakhou, F., Létoublon, A., Livet, F., Boissieu, M. de & Bley, F. 相干X射线散射观测到的磁畴涨落。《磁学与磁性材料杂志》**233，**119–122；10.1016/S0304-8853(01)00241-4 (2001). 10. Crooker, S. A., Rickel, D. G., Balatsky, A. V. & Smith, D. L. 自发自旋噪声光谱：探测自旋动力学与磁共振。《自然》**431，**49–52；10.1038/nature02804 (2004). 11. Römer, M., Hübner, J. & Oestreich, M. 半导体中的自旋噪声光谱。《科学仪器评论》**78，**103903；10.1063/1.2794059 (2007).

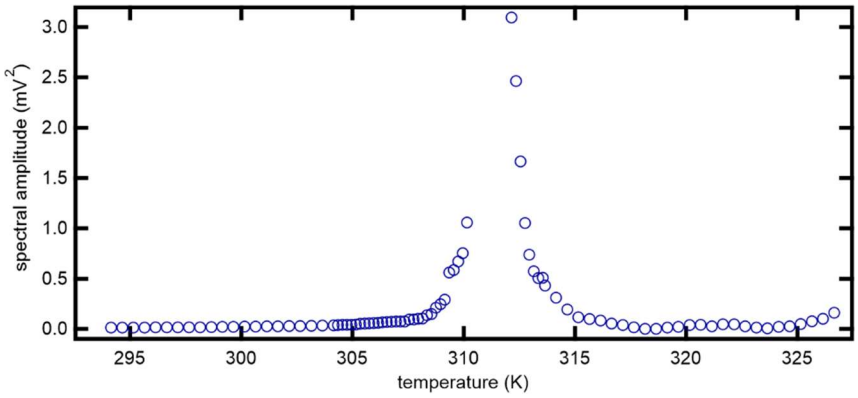
12. Zapasskii, V. S. 等. 自旋噪声的光学光谱学。《物理评论快报》110, 176601；10.1103/PhysRevLett.110.176601 (2013). 13. Zapasskii, V. S. 自旋噪声光谱学：从原理验证到应用。《先进光学与光子学》5, 131；10.1364/AOP.5.000131 (2013). 14. Berski, F., Kuhn, H., Lonnemann, J. G., Hübner, J. & Oestreich, M. 超高带宽自旋噪声光谱学：探测高n型掺杂砷化镓中的大幅g因子涨落。《物理评论快报》111, 186602；10.1103/PhysRevLett.111.186602 (2013). 15. Hübner, J. 等. 利用两台自由运行的超快振荡器快速扫描自旋噪声。《光学快报》21, 5872–5878；10.1364/OE.21.005872 (2013). 16. Bloch, F. 核感应。《物理评论》70, 460–474；10.1103/physrev.70.460 (1946). 17. Keffer, F. & Kittel, C. 反铁磁共振理论。《物理评论》85, 329–337；10.1103/physrev.85.329 (1952). 18. Jungwirth, T., Marti, X., Wadley, P. & Wunderlich, J. 反铁磁自旋电子学。《自然·纳米技术》11, 231–241；10.1038/nnano.2016.18 (2016). 19. Siegrist, F. 等. 光波动态磁性调控。《自然》571, 240–244；10.1038/s41586-019-1333-x (2019). 20. Riek, C. 等. 亚周期量子电动力学。《自然》541, 376–379；10.1038/nature21024 (2017). 21. Riek, C. 等. 电场真空涨落的直接采样。《科学》350, 420–423；10.1126/science.aac9788 (2015). 22. Benea-Chelmus, I.-C., Settembrini, F. F., Scalari, G. & Faist, J. 电磁真空态的电场关联测量。《自然》568, 202–206；10.1038/s41586-019-1083-9 (2019). 23. Yang, L. 等. 双颜色自旋噪声光谱学与涨落关联揭示量子点系综中的均匀线宽。《自然·通讯》5, 4949；10.1038/ncomms5949 (2014). 24. Fitzky, G., Nakajima, M., Koike, Y., Leitenstorfer, A. & Kurihara, T. 共振激发Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO_{3}中的4f电子与声子，实现磁各向性的超快调控。《物理评论快报》127, 107401；10.1103/PhysRevLett.127.107401 (2021). 25. Dzyaloshinsky, I. 反铁磁体"弱"铁磁性的热力学理论。《固体物理与化学杂志》4, 241–255；10.1016/0022-3697(58)90076-3 (1958). 26. Moriya, T. 各向异性交换作用与弱铁磁性。《物理评论》120, 91–98；10.1103/PhysRev.120.91 (1960). 27. Herrmann, G. F. 倾斜反铁磁物质中的共振与高频磁化率。《固体物理与化学杂志》24, 597–606；10.1016/S0022-3697(63)80001-3 (1963). 28. Herrmann, G. F. 正铁氧体中的磁共振与磁化率。《物理评论》133, A1334-A1344；10.1103/physrev.133.a1334 (1964). 29. Zhao, X. 等. Sm0.4Er0.6FeO3正铁氧体的晶体生长与自旋重取向转变。《固态通讯》231-232, 43–47；10.1016/j.ssc.2016.02.002 (2016). 30. Yamaguchi, K., Kurihara, T., Minami, Y., Nakajima, M. & Suemoto, T. 通过磁自由感应衰减对正铁氧体ErFeO3中的自旋重取向进行太赫兹时域观测。《物理评论快报》110, 137204；10.1103/PhysRevLett.110.137204 (2013). 31. Gilbert, T. L. 磁学经典：铁磁材料阻尼的唯象理论。《IEEE磁学汇刊》40, 3443–3449；10.1109/TMAG.2004.836740 (2004). 32. Nowak, U. 经典自旋模型。载于《磁学与先进磁性材料手册》，H. Kronmüller & S. S. P. Parkin 编（约翰·威立父子公司，奇切斯特，英格兰，2007）。33. Borders, W. A. 等. 利用随机磁隧道结进行整数分解。《自然》573, 390–393；10.1038/s41586-019-1557-9 (2019). 34. Debashis, P. 等. 利用随机自旋电子器件硬件实现贝叶斯网络构件。《科学报告》10, 16002；10.1038/s41598-020-72842-6 (2020).

35. Kaiser, J. & Datta, S. 使用概率位进行概率计算。Appl. Phys. Lett. **119,** 150503; 10.1063/5.0067927 (2021). 36. Machlup, S. 半导体中的噪声：双‐参数随机信号的频谱。应用物理学杂志 **25,**341–343; 10.1063/1.1721637 (1954). 37. Suemoto, T., Nakamura, K., Kurihara, T. & Watanabe, H. 利用太赫兹时域光谱对正铁氧体中的自旋取向进行无磁化测量。Appl. Phys. Lett. **107,** 42404; 10.1063/1.4927431 (2015). 38. Hung, K. K., Ko, P. K., Hu, C. & Cheng, Y. C. 深亚微米金属氧化物半导体场效应晶体管的随机电报噪声。IEEE Electron Device Lett. **11,** 90–92; 10.1109/55.46938 (1990). 39. Ralls, K. S. 等. 亚微米硅反型层中的离散电阻开关：单个界面陷阱与低频（1f ?）噪声。Phys. Rev. Lett. **52,** 228–231; 10.1103/PhysRevLett.52.228 (1984). 40. Safranski, C. 等. 随机磁隧道结纳秒级运行的演示。纳米快报 **21,**2040–2045; 10.1021/acs.nanolett.0c04652 (2021). 41. Hayakawa, K. 等. 面内磁隧道结中的纳秒随机电报噪声。物理评论快报**126,** 117202; 10.1103/PhysRevLett.126.117202 (2021). 42. Kanai, S., Hayakawa, K., Ohno, H. & Fukami, S. 随机纳米磁体弛豫时间理论。Phys. Rev. B **103**; 10.1103/PhysRevB.103.094423 (2021). 43. Wood, D. L., Remeika, J. P. & Kolb, E. D. 稀‐土正铁氧体的光学光谱。应用物理学杂志 **41,**5315–5322; 10.1063/1.1658669 (1970). 44. Usachev, P. A. 铥正铁氧体 TmFeO[sub 3] 的光学性质。Phys. Solid State **47,** 2292; 10.1134/1.2142893 (2005). 45. White, R. L. 稀‐土正铁氧体磁性和光谱性质近期研究综述。J. Appl. Phys. **40,** 1061–1069; 10.1063/1.1657530 (1969). 46. Treves, D. 魏茨曼科学研究所的正铁氧体研究。J. Appl. Phys. **36,** 1033–1039; 10.1063/1.1714088 (1965). 47. Shapiro, S. M., Axe, J. D. & Remeika, J. P. 稀土正铁氧体中自旋波的中子散射研究。Phys. Rev. B **10,** 2014–2021; 10.1103/PhysRevB.10.2014 (1974). 48. Donges, A. 等. 亚铁磁性DyCo5中的磁化补偿与自旋重取向转变：多尺度建模与元素分辨测量。Phys. Rev. B **96**; 10.1103/PhysRevB.96.024412 (2017)。

补充材料

实验：LF 特征谱振幅随温度的变化

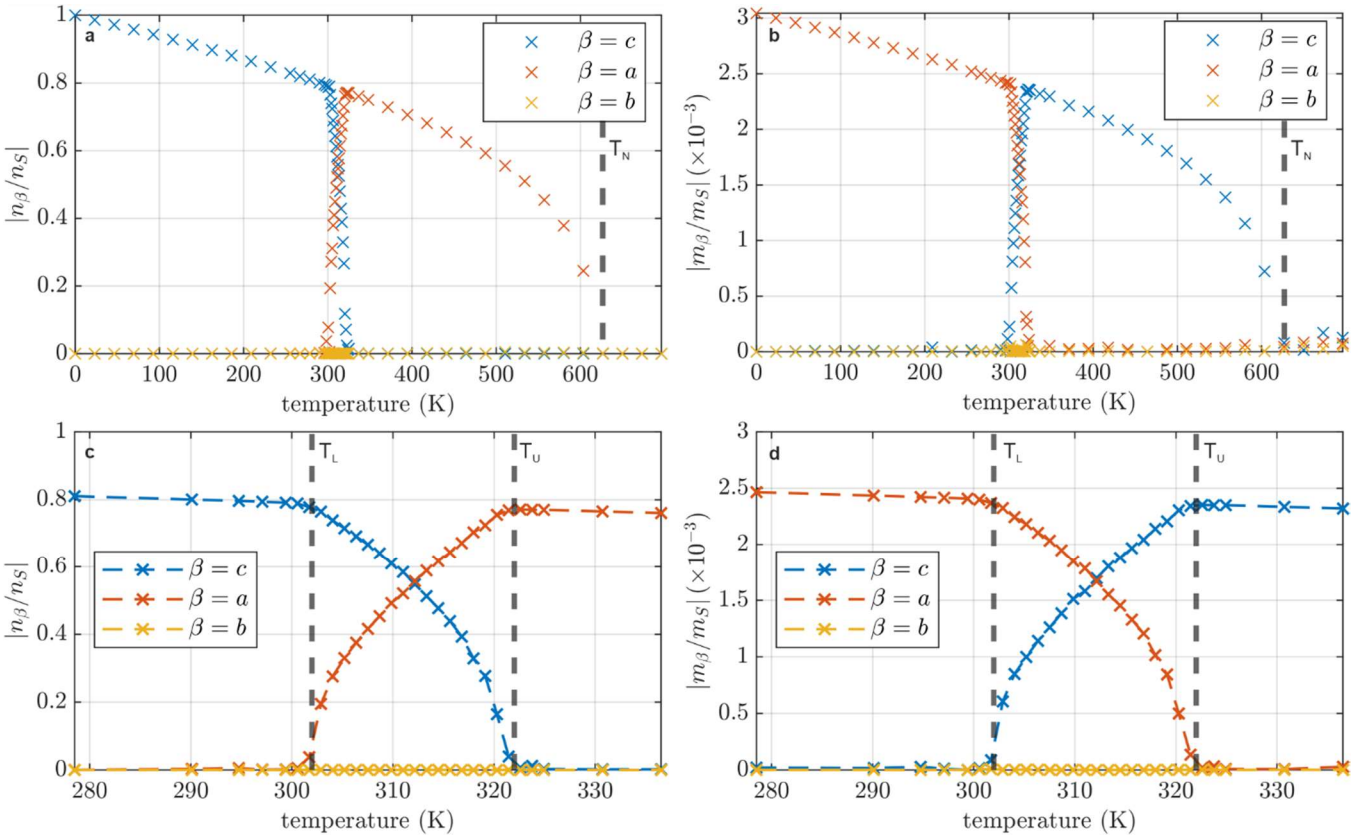
低频峰的谱振幅随温度的变化如补充图1所示。与零时刻峰的温度演变（图3b）类似，在$T \approx 312$ K $> T_{\mathrm{L}}$处观察到显著的噪声增强。在此温度范围内，谱振幅比 F 模噪声大一个数量级（见补充图2）。这一发现表明，对于温度为 $T \gtrapprox T_{\mathrm{L}}$ 的情况，两个准平衡态之间的随机切换是观测到的总噪声振幅（图3b）的主要来源（见正文）。



补充图 F 图 1 | $Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO$ 中测得的低频峰谱振幅随温度的变化 3.

理论：模拟正交铁氧体的平衡性质

补充图2展示了模拟正交铁氧体的平衡性质随温度的变化。平衡奈尔矢量 n_β/n_S 和磁化矢量分量 m_β/m_S ($\beta = a, b, c$)，以

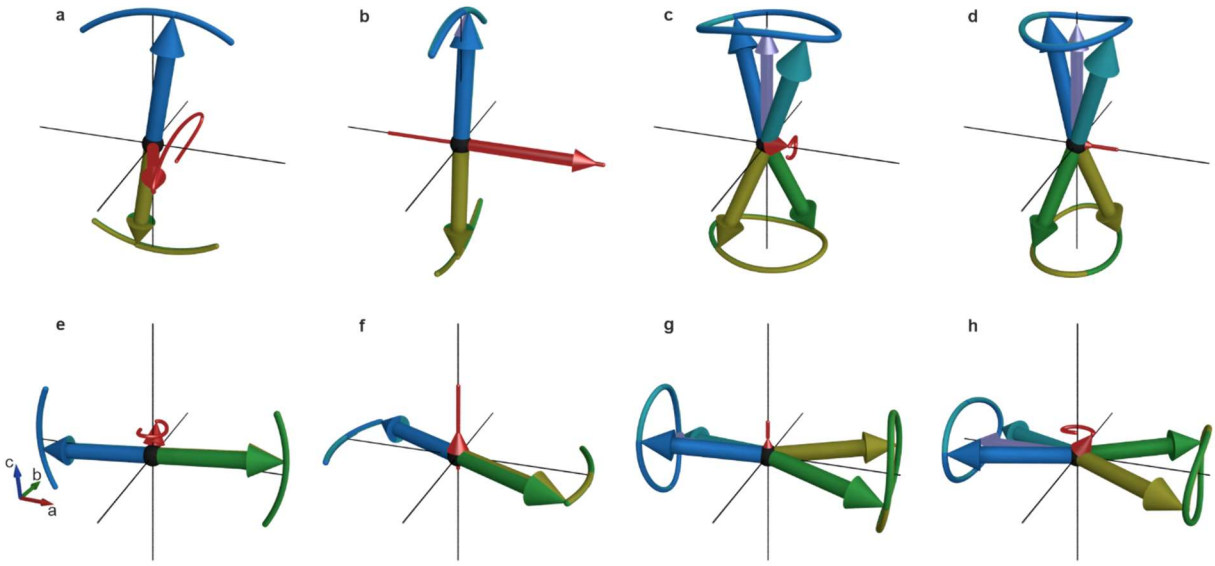


补充图 2 | 模拟正交铁氧体的平衡性质。 a,b，磁有序温度范围内系统的奈尔矢量 n_β/n_S (**a**) 和磁化矢量分量 m_β/m_S (**b**)。虚线表示磁有序消失、系统转变为顺磁态时的温度 $T_N \approx 630$ K。**c,d**，自旋重取向转变期间多个温度下的奈尔矢量 n_β/n_S (**c**) 和磁化矢量分量 m_β/m_S (**d**)；奈尔矢量和磁化 矢量在 $T_{\mathrm{L,sim}} \approx 301.5$ K 时从*c*轴和*a*轴旋转 90°，分别转至*a*轴和*c*轴，并在 $T_{\mathrm{U,sim}} \approx 322$ K 时到达。

饱和值 n_S 和 m_S归一化后，通过对多次模拟运行取平均得到。模拟系统在奈尔温度 $T_{N,sim} \approx 630$ K 时转变为顺磁态，并且在有限温度范围内表现出温度诱导的二级重取向相变；在 $T_{L,sim} \approx 301.5$ K 时，奈尔矢量和磁化矢量从*c*轴和*a*轴旋转90°，分别转向*a*轴和*c*轴，并在 $T_{U,sim} \approx 322$ K 时完成转变。

理论：$Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO_3$中的共振模

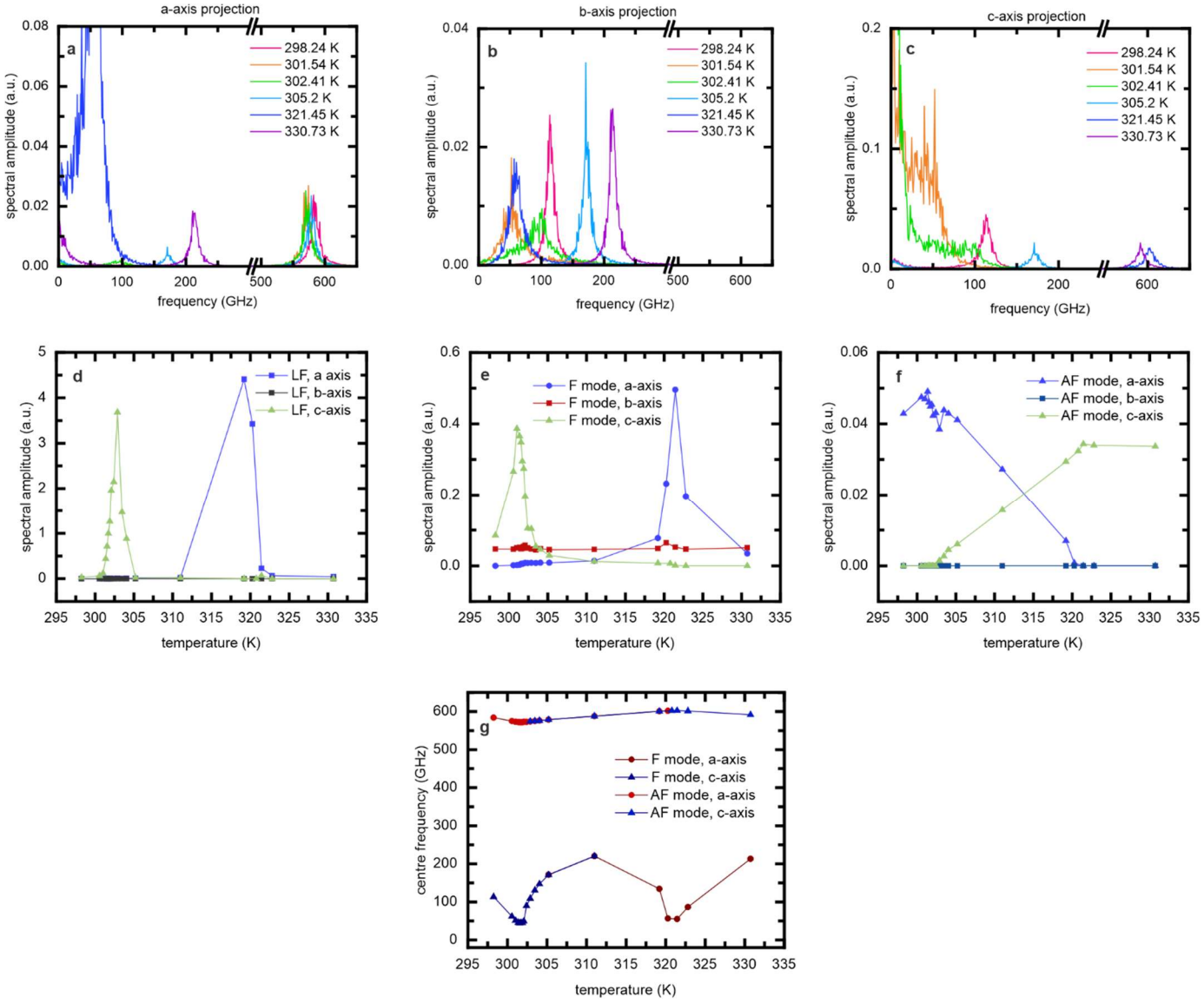
补充图3展示了$Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO3$在自旋重取向转变（SRT）以下温度下的共振模。这些共振模是根据线性化LLG方程的特征函数确定的。在SRT以下（低温区，LT），奈尔矢量沿*c*轴取向，而在SRT以上（高温区，HT），则平行于*a*-轴。在这两个温区中，我们都观察到两个亚太赫兹模，其子晶格磁化成对共线；此外还有两个多太赫兹交换模，其亚晶格磁化矢量彼此不共线。就净磁化矢量而言，这些模可分为铁磁模和反铁磁模：铁磁模的磁化矢量沿椭圆轨迹运动，而反铁磁模的磁化强度模长沿固定方向振荡。



Suppl. Figure 3 | Resonance modes of $Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO_3$ across the spin reorientation transition. a-d, Resonance modes in the low temperature regime (below the lower threshold temperature T_L). **e-f**, Resonance modes in the high temperature regime (above 限温度T_U）中的共振模。蓝色、黄色、薄荷色和绿色箭头表示奈尔亚晶格磁化矢量，紫色箭头表示净磁化矢量。红色箭头表示奈尔净磁化矢量；为便于观察，其长度相对于亚晶格磁化矢量放大了75倍。同色线条表示相应磁化矢量随时间变化的轨迹。

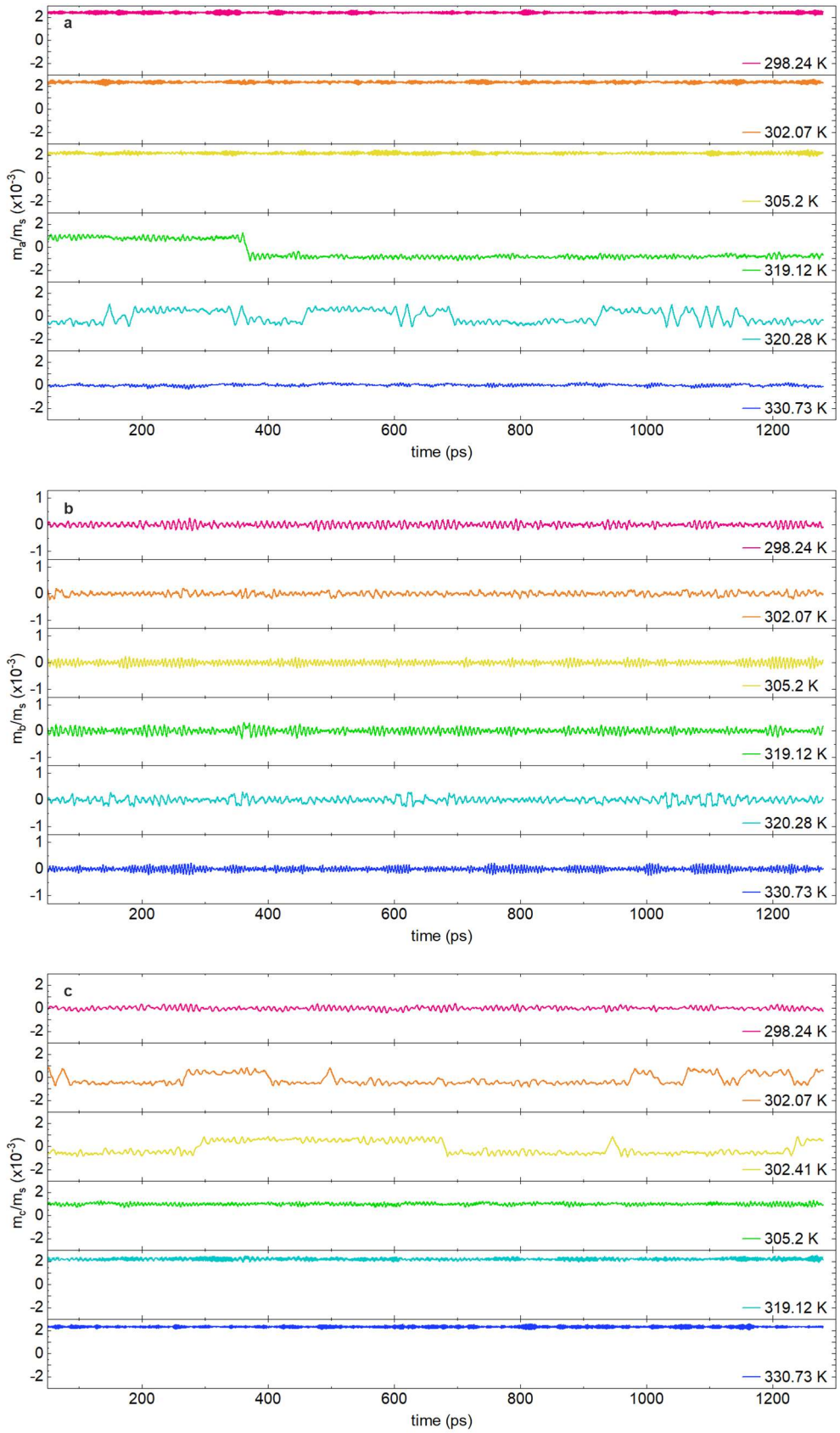
理论：扩展数据

补充图4a-c展示了跨越自旋重取向转变的多个温度下，沿晶轴投影的模拟自旋噪声光谱。在*a*轴和*c*轴投影中，最多可分辨出三个噪声峰，分别为低频峰（<100 GHz）、铁磁模峰（100-200 GHz）和反铁磁模峰（~600 GHz）；而在*b*轴投影中仅观察到F模。低频峰的谱振幅随温度的变化绘于补充图4d。沿*a*轴，在$T \gtrsim T_{L,sim} \approx 301.5$ K时可观察到低频峰；沿*c*轴，则在接近上限温度阈值$T_{U,sim} \approx 320$ K时观察到。记录到低频峰的温度范围与磁化强度时间轨迹中观察到随机电报噪声的温度范围完全吻合（补充图5）。这进一步支持了我们的观点：两个准平衡态之间的随机切换会产生皮秒随机电报噪声，这正是实验中低频峰出现的物理机制。此外，在模拟自旋噪声的*b*轴投影中，既未观察到低频峰，也未观察到随机电报噪声。这是预期之中的，因为*b*轴是$Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO_3$中的硬轴。因此，在任何温度下，该方向都不会出现准平衡态。补充图4e展示了不同晶轴方向上F模磁振子的谱振幅随温度的演变



补充图 4 | $Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO_3$在不同投影下的光谱及模拟自旋噪声评估。 ~600 GHz 附近的峰归因于准反铁磁磁振子模（AF 模），中间的峰表现出强烈的温度依赖性，归因于准铁磁模（F模），而低频特征（LF）则归因于两个能量简并的准平衡态之间的随机切换。**d-f**，不同轴的低频峰、F模和 AF 模谱振幅的温度演变。 **g**，F模和 AF 模中心频率随温度的变化。

。最显著的是，接近$T_{\mathrm{L,sim}}$ 时，沿c轴的信号明显增强，这与涨落耗散定理相符。对于$T_{\mathrm{L,sim}} < T < T_{\mathrm{U,sim}}$，自旋重取向转变发生，因此F模噪声在c轴上的投影按∝ cos(θ)减小。在$T_{\mathrm{U,sim}}$时，平衡磁化强度$\boldsymbol{M}$ 与c轴对齐，因此在c轴方向上不再观察到横向F模噪声。同时，在$T_{\mathrm{U,sim}}$时，a轴方向的F模噪声达到最大。对于所有温度，磁化强度的b轴分量$m_{\mathrm{b}} = 0$。因此，沿该方向始终能观察到横向F模噪声分量，不过其振幅小于a轴和c轴方向，这是因为b轴是我们系统中的硬轴。后者还体现为轨迹图（图5b-e）中噪声锥的椭圆率。只有当某一特定轴方向上的平衡磁化强度分量非零时，才能沿该方向观察到纵向AF模噪声。因此，补充图4f中沿b轴观察不到AF模噪声。此外，a方向上的AF模谱振幅在$T < T_{\mathrm{L,sim}}$ 时达到最大（$\boldsymbol{M}$ // a），随后在自旋重取向转变区域（$T_{\mathrm{L,sim}} < T < T_{\mathrm{U,sim}}$）内减小，直至$T \geq T_{\mathrm{U,sim}}$时$\boldsymbol{M}$ // c。相比之下，沿c轴的AF噪声起初为零，随后在自旋重取向转变期间增大，并在$T \geq T_{\mathrm{U,sim}}$时达到最大。补充图4g绘出了F模和AF模的中心频率随温度的变化。与先前的观察一致[30]，，F模在接近自旋重取向转变区域时显著软化，而AF模的频率仅略有变化。上述结果表明，我们的随机自旋模型能够正确再现实验观察结果，并且符合物理预期。



补充图5 | 自旋重取向附近 $Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO_3$中归一化磁化强度不同分量的模拟时间轨迹。a-c，归一化*a*轴（**a**）、*b*轴（**b**）和*c*轴（**c**）方向的磁化强度分量。对于每种温度，仅显示总计20条模拟轨迹中的第一条。前50皮秒未显示，因为此时系统仍在从初始条件逐渐达到平衡。

补充图5展示了模拟磁化强度时间轨迹的不同投影。在温度$T \gtrapprox T_{\mathrm{L,\ sim}}$ 和 $T \lessapprox T_{\mathrm{U,\ sim}}$ 下，由于各向异性软化，分别在*c*轴（补充图5c）和*a*轴（补充图5a）方向记录到切换事件。对于所有温度，*b*轴投影中的涨落都以0为中心。