

令和元年6月21日現在

機関番号：14301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K14365

研究課題名(和文) 強相関リユードベリ電子波束で探る量子多体ダイナミクス

研究課題名(英文) Quantum many-body dynamics explored by strongly correlated Rydberg electron wave packets

研究代表者

武井 宣幸 (Takei, Nobuyuki)

京都大学・理学研究科・特定准教授

研究者番号：20531841

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：私たちが開発した極低温リユードベリ原子集団に対するアト秒精度のコヒーレント制御技術を、数100nmというマクロなサイズに渡って振動運動するリユードベリ電子波束に適用する実験を進めると同時に、対称性の破れとその回復という極めて重要な研究課題に展開した。光双極子トラップ中の冷却ルビジウム原子の電子構造の対称性をレーザーパルスの照射によって破った後、アト秒精度で照射時刻を制御した別のレーザーパルスによって破れた対称性を高いコントラストで回復することに成功した。この対称性の破れとその回復という制御技術は、今後のリユードベリ原子を用いた量子シミュレータ研究に非常に有用であることが判明した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

量子シミュレータは古典計算機では計算することが難しい強相関系の量子多体問題を解明するのに強力なツールであり、基礎学術のみならず新機能性材料の開発への貢献など応用面においても非常に期待されている。私たち独自のシステムは、より強相関な状態を生成し易く、またそれが示す多体ダイナミクスを観測・制御できるため、量子多体問題の深い理解に有用であると期待される。今回実証した電子構造の対称性の破れとその回復技術は、量子シミュレータへの応用のみならず、分子間の化学反応や分子中の電荷移動の制御にも応用可能と考えられる。

研究成果の概要(英文)：Our two unique tools of ultrafast coherent control technique with attosecond precision and a strongly correlated ultracold Rydberg gas are applied to an important concept of symmetry breaking. Laser pulses can break the electronic structure symmetry of atoms and molecules by preparing a superposition of states with different irreducible representations. We discovered the reverse process, symmetry restoration, by means of two laser pulses. Symmetry restoration is achieved if the time delay is chosen such that the superposed states have the same phases at the temporal center. This condition must be satisfied with a precision of a few attoseconds. The experimental feasibility of symmetry restoration is demonstrated by means of high-contrast time-dependent Ramsey interferometry of the 87Rb atom. The demonstrated technique is useful to understand quantum many-body dynamics in a strongly correlated ultracold Rydberg gas.

研究分野：量子光学

キーワード：量子光学 原子物理 量子エレクトロニクス コヒーレント制御

## 1. 研究開始当初の背景

凝縮系物理における超伝導や磁性の発現など多くの重要な物理現象は多数の電子が相互作用する量子多体問題によって支配されている。しかしながら、実在のバルク固体を対象として量子多体問題を理解するためには技術的に克服すべき課題が多い。さらに理論面においても多数の電子が相互作用する強相関系の量子多体問題を古典計算機で厳密に計算することは極めて難しいことが知られている。そこで近年、制御性の良い別の量子多体系を準備し、これを用いて量子多体問題を実験的に解明するという量子シミュレータの研究が盛んに行われるようになった。その一例として、レーザー冷却技術によって極低温まで冷却された原子分子集団を利用した研究が盛んに行われている(例えば、Nature **501**, 521 (2013); Science **347**, 1455 (2015); Science **352**, 201 (2016); Nature **532**, 476 (2016); Nature **534**, 667 (2016))。

このような背景のもと、私たちはこれまでに「極低温まで冷却された強相関リウドベリ原子集団」と「アト秒精度のコヒーレント制御技術」という2つの独自ツールを用いて強相関系の量子多体問題に取り組んできた(N. Takei *et al.*, Nature Communications **7**, 13449 (2016); C. Sommer, N. Takei *et al.*, Phys. Rev. A **94**, 053607 (2016))。リウドベリ状態に励起された原子(リウドベリ原子)はその大きな電子軌道から非常に大きい電気双極子モーメントを持つ。ゆえに電気双極子-双極子相互作用によって原子間に強い長距離相互作用が生じる。その結果、極低温まで原子集団を冷却することによって、個々の原子の運動エネルギーよりも原子間の相互作用エネルギーを十分大きくすることが容易である。私たちはリウドベリ状態の励起光源にピコ秒パルスレーザーを用いるという独自の手法によって、原子間相互作用エネルギーが原子の運動エネルギーよりも4桁以上大きい強相関原子集団を作り出すことに成功した。他の先行研究よりも、この比が2桁ほど大きいことが私たちの特色である。これによって、原子運動や原子間衝突が主因となるデコヒーレンス過程を無視でき、それらよりも十分に速い時間スケールで生じるコヒーレントな相互作用だけに着目して観測することが可能となった。

リウドベリ原子を用いた量子シミュレータの研究は主に欧米において展開され、極低温リウドベリ原子に特化した研究拠点ネットワークがヨーロッパを中心に形成されるなど、多くの研究グループが参入している。

## 2. 研究の目的

私たちは上述のように強相関リウドベリ原子集団を作り出し、アト秒精度のコヒーレント制御技術を使って、その量子多体ダイナミクスを観測・制御することに成功した(N. Takei *et al.*, Nature Communications **7**, 13449 (2016); C. Sommer, N. Takei *et al.*, Phys. Rev. A **94**, 053607 (2016))。この原子集団中に生成された量子状態は、ルビジウム(Rb)原子の基底状態と単一のリウドベリ状態からなる重ね合わせ状態、いわゆるリウドベリ電子波束と呼ばれる状態であり、基底状態とリウドベリ状態の間のエネルギー差で決まる周期(今回の場合、約1フェムト秒)で空間的に振動する。数十個以上のリウドベリ原子が関与する多体効果によって、この波束運動の位相がシフトし、かつその振幅が相互作用時間とともに減衰する様子を私たちは観測・制御することに成功した。本研究では、この最近の研究成果を以下のように発展させ、強相関リウドベリ原子集団を用いた量子多体問題の研究をさらに推し進めることを目的とした。

- (1) 複数のリウドベリ状態からなるリウドベリ電子波束を生成し、原子間の多体相互作用の影響下において、波束のダイナミクスを観測・制御する。上述の成果においては理論解析における簡便さから単一のリウドベリ状態を利用したが、この場合の電子運動の広がりはいオンコア周辺の1nm程度に限られた。一方、複数のリウドベリ状態の重ね合わせによって生成された波束は、リウドベリ状態間のエネルギー差で決まる周期(今回の場合、約10ピコ秒)で、数100nmというマクロなサイズに渡ってイオンコアの周りを振動運動するようになる。
- (2) 上記(1)で生成されたリウドベリ電子波束間の相互作用強度の新奇制御手法を確立する。このような波束では、その波束運動に合わせて電子の空間的な存在確率が動的に変調される。これを積極的に利用し、原子間相互作用の制御を試みる。波束を生成する際に、励起パルスにパルス整形技術を導入することによって各リウドベリ状態の確率振幅および相対位相を調整し、生成される電子波束の初期構造を制御することができる。これによって、電子の存在確率を時間的・空間的に変調できると予想される。

このように、数100nmというマクロなサイズに渡って振動運動する複数のリウドベリ状態からなる電子波束に対して私たちがこれまでに開発してきた強相関リウドベリ原子集団の励起、および観測・制御手法を応用し、原子間相互作用強度の新奇制御手法を確立することを目的とした。

### 3. 研究の方法

本研究で使用した私たちがこれまでに開発してきた強相関リードベリ原子集団の励起・観測・制御手法の基本である時間領域ラムゼー干渉測定法を図1に示す。対象原子は光双極子トラップに捕捉された高密度  $^{87}\text{Rb}$  原子集団である。リードベリ状態は、波長 779nm および 481nm のピコ秒パルスレーザーを用いた基底状態  $5S_{1/2}$  からの二光子励起によって生成される(以下、このパルス対を励起パルスと呼ぶ)。この際、レーザー光の偏光と遷移選択則から  $nD_{5/2}$  状態が主に励起される。ここで  $n$  は主量子数である。励起パルスのスペクトル幅を調節することによって、単一リードベリ状態、あるいは複数の状態の重ね合わせ状態である波束を励起することができる(図1では波束と記した)。そして、遅延時間をつけた、励起パルスと同じ波長の別のパルス対(以下、プローブパルスと呼ぶ)を照射して参照用の波束2を励起し、元々励起されていた波束1と量子力学的な干渉を起こす。この干渉効果はリードベリ状態のポピュレーションに反映され、それをフィールドイオン化によりイオン信号として測定する。基底状態と単一のリードベリ状態からなる波束の場合には、干渉信号は周期約1フェムト秒で振動する。基底状態と複数のリードベリ状態からなる波束を励起した場合には、その1フェムト秒周期の干渉信号に約10ピコ秒のビート信号が重畳し、かつ波束のcollapse/revivalに相当する構造を示す。原子間に相互作用が生じた場合には、これらの干渉信号に位相シフトが生じ、また干渉信号の振幅が遅延時間とともに減衰する。私たちはこれまでに、リードベリ状態の主量子数や原子数密度・ポピュレーションの調整によって原子間相互作用を制御できることを示している。

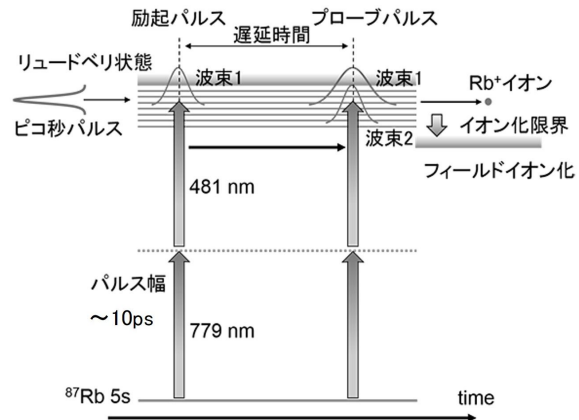


図1：強相関リードベリ原子集団の励起・観測スキーム（時間領域ラムゼー干渉測定法）

本研究では、特に複数のリードベリ状態からなる電子波束に着目する。まず、そのような電子波束を生成し、原子間の多体相互作用の影響下において、波束のダイナミクスを観測・制御する手法を確立する。次に、これまでに発展させてきた単一リードベリ状態に対する理論解析手法を、複数のリードベリ状態を含んだ波束の場合に展開して実験結果の詳細な検証を試みる。最後に、励起パルスにパルス整形技術を導入することによって、リードベリ電子波束の初期構造を制御し、原子間相互作用の積極制御を試みる。これらの測定において、励起状態の主量子数や原子数密度・ポピュレーションを調節しながら詳細な検証を行う。

なお、本研究は私の前所属先である分子科学研究所の大森賢治教授のグループにて、大森教授やグループメンバーと議論を行ないながら進めた。また、ドイツ Heidelberg 大学の Weidemüller 教授と実験の詳細について、フランス Strasbourg 大学の Pupillo 教授、およびオーストリア Innsbruck 大学の Genes 独立上級研究員と実験をサポートする理論について議論を行いながら研究を進めた。

### 4. 研究成果

当初計画していた数 100nm というマクロなサイズに渡って振動運動する電子波束に対する原子間相互作用強度の新奇制御手法を確立するまでには至らなかったが、本研究を開始した後に、私たちが開発した極低温リードベリ原子集団に対するアト秒精度のコヒーレント制御技術が、対称性の破れという物理学において極めて重要な研究課題に展開可能であることが判明した。そのため、本研究課題の遂行に向けた実験装置の制御性改善を進めると同時に、関連研究としてこの対称性の破れに関する実験を行った。なお、この研究はドイツ Berlin 自由大学・中国山西大学の Manz 教授のグループとの共同研究となった。

ある種の原子分子の基底状態の電子構造は高い対称性を持つ。これにレーザーパルスを照射して対称性の異なる励起状態との重ね合わせ状態を生成すると電子構造の対称性が破れる。その結果、原子分子内を電子がフェムト秒程度の周期で超高速運動する。適切なタイミングで2発目のレーザーパルスを照射すると、その超高速電子運動を止め、最初の対称性の高い基底状態に戻ることが出来る。つまり、破れた対称性が回復する。これら2発のレーザーパルスおよびそれらの照射タイミングに要求される条件を解析的に計算した。

この計算を元にも実証実験を行った。光双極子トラップ中に準備した基底状態の Rb 原子をピコ秒パルスレーザーでリードベリ状態へと励起し、電子構造の対称性が破れた電子波束を生成した。この電子波束は周期1フェムト秒程度の超高速振動運動を開始する。2発目のレーザーパルスの照射タイミングをアト秒精度で掃引しながら時間領域ラムゼー干渉信号を測定し0.94という非常に高いコントラストを得ることに成功した(図2)。これによって、レーザーパルスの適切な照射タイミングにおいて対称

性が回復していることを実証した。この成果は *Physical Review Letters* 誌に掲載された[発表論文 1]。

私たちのリュードベリ原子を用いた量子シミュレータの研究では、基底状態とリュードベリ状態の2状態を擬似スピンとして扱う。上述の対称性の破れとその回復という制御技術はスピン操作およびスピン読み出しそのものであり、今後の量子多体問題の研究に非常に有用であることが判明した。しかし、リュードベリ状態のポピュレーションが10%にも満たないという問題があった。本研究の課題である

原子間相互作用強度の新奇制御手法の確立において、100%近くまでポピュレーションを上げることが重要である。共同研究者と詳細な検討を行い、これを達成するためのパルス条件を求めた。また、光双極子トラップ中では原子の乱雑分布により相互作用効果が平均化されるため、真の効果を観測するには適さない。そこで、光格子中でモット絶縁体を実現し、規則配列した原子集団を使って量子多体効果を観測する実験を進めた。

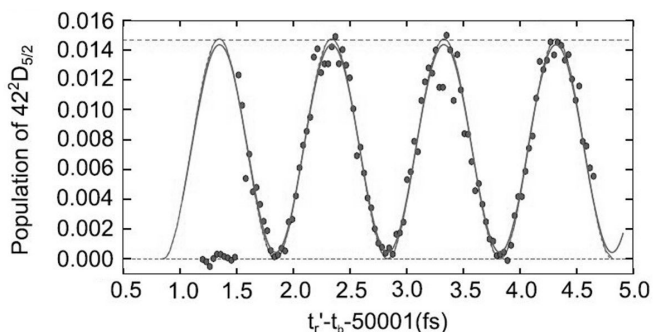


図2：時間領域ラムゼー干渉法による対称性の破れの回復 [発表論文 1]

## 5 . 主な発表論文等

### [ 雑誌論文 ] (計 2 件)

1. “Attosecond Control of Restoration of Electronic Structure Symmetry”, ChunMei Liu, Jörn Manz, Kenji Ohmori, Christian Sommer, Nobuyuki Takei, Jean Christophe Tremblay, and Yichi Zhang, *Physical Review Letters*, **121**, 173201 (2018). 査読有  
DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.121.173201>
2. “Ultrafast Coherent Control of Condensed Matter with Attosecond Precision”, Hiroyuki Katsuki, Nobuyuki Takei, Christian Sommer, and Kenji Ohmori, *Accounts of Chemical Research*, **51**, 1174-1184 (2018). 査読有  
DOI: <https://doi.org/10.1021/acs.accounts.7b00641>

### [ 学会発表 ] (計 20 件)

1. N. Takei, “Ultrafast many-body electron dynamics in a strongly-correlated ultracold Rydberg gas”, Conference on Laser and Synchrotron Radiation Combination Experiment (LSC2018), Pacifico Yokohama, Yokohama, Japan (2018) [ 招待講演, 国際学会 ]
2. N. Takei, “Ultrafast many-body electron dynamics in a strongly-correlated ultracold Rydberg gas”, The 13th Japan-US Joint Seminar on Quantum Electronics and Laser Spectroscopy (US-Japan QELS-13), APA Hotel Kanazawa station, Kanazawa, Japan (2018) [ 招待講演, 国際学会 ]
3. N. Takei, C. Sommer, C. Genes, G. Pupillo, A. Tanaka, M. Mizoguchi, Y. Zhang, S. Takeda, H. Goto, K. Koyasu, H. Chiba, M. Weidemüller, and K. Ohmori, “Ultrafast quantum simulator with ultracold Rydberg atoms in an optical dipole trap”, The 2nd International Symposium on Advanced Photonics, Hotel Kokonoe, Hamamatsu, Japan (2018) [ 国際学会 ]
4. M. Mizoguchi, A. Tanaka, N. Takei, Y. Zhang, S. Takeda, C. Sommer, K. Koyasu, H. Chiba, T. Kishimoto, G. Pupillo, M. Weidemüller, and K. Ohmori, “Development of an ultrafast quantum simulator with ultracold Rydberg atoms in an optical lattice”, The 2nd International Symposium on Advanced Photonics, Hotel Kokonoe, Hamamatsu, Japan (2018) [ 国際学会 ]
5. A. Tanaka, N. Takei, C. Sommer, C. Genes, G. Pupillo, S. Takeda, M. Mizoguchi, Y. Zhang, K. Koyasu, H. Chiba, M. Weidemüller, and K. Ohmori, “Ultrafast many-body electron dynamics in a strongly correlated ultracold Rydberg gas and its application to ordered systems”, The 26th International Conference on Atomic Physics (ICAP2018), Palau Congressos Barcelona, Barcelona, Spain (2018) [ 国際学会 ]
6. M. Mizoguchi, A. Tanaka, N. Takei, Y. Zhang, S. Takeda, K. Koyasu, H. Chiba, T. Kishimoto, G. Pupillo, D. Jaksch, M. Kiffner, A.W. Glätzle, J. Schachenmayer, G. Masella, M. Weidemüller, and K. Ohmori, “Rydberg excitation of a Bose-Einstein condensate and Mott insulator with a picosecond

- laser pulse”, The 26th International Conference on Atomic Physics (ICAP2018), Palau Congressos Barcelona, Barcelona, Spain (2018) [ 国際学会 ]
7. H. Chiba, T. Toyoda, N. Takei, and K. Ohmori, “Development of a NIM Module adaptor”, 34th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, Multipurpose Conference Hall, Kansai Photon Science Institute, QST, Kizugawa, Kyoto, Japan (2018) [ 国際学会 ]
  8. T. Toyoda, H. Chiba, N. Takei, and K. Ohmori, “Development of a Delay Pulse Generator”, 34th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, Multipurpose Conference Hall, Kansai Photon Science Institute, QST, Kizugawa, Kyoto, Japan (2018) [ 国際学会 ]
  9. K. Matsumoto, A. Tanaka, M. Mizoguchi, Y. Zhang, N. Takei, H. Katsuki, H. Yanagi, and K. Ohmori, “光格子中の極低温リユードベリ原子集団の多体ラムゼー干渉実験装置の開発”, 第12回分子科学討論会2018, 福岡国際会議場, 福岡 (2018)
  10. 武井宣幸, Christian Sommer, Claudiu Genes, Guido Pupillo, 田中陽, 溝口道栄, Yichi Zhang, 武田俊太郎, 岸本哲夫, 後藤悠, 子安邦明, 千葉寿, Matthias Weidemüller, 大森賢治, “光双極子トラップ中の強相関・極低温リユードベリ原子集団を用いた超高速量子シミュレーターの開発”, 第10回 文部科学省「最先端の光の創成を目指したネットワーク研究拠点プログラム」シンポジウム, 京都大学吉田キャンパス, 京都 (2018)
  11. 田中陽, 溝口道栄, 武田俊太郎, 武井宣幸, Christian Sommer, 子安邦明, 千葉寿, 岸本哲夫, Guido Pupillo, Matthias Weidemüller, 大森賢治, “光格子中の強相関・極低温リユードベリ原子集団を用いた超高速量子シミュレーターの開発”, 第10回 文部科学省「最先端の光の創成を目指したネットワーク研究拠点プログラム」シンポジウム, 京都大学吉田キャンパス, 京都 (2018)
  12. 武井宣幸, “強相関リユードベリ原子を用いた超高速量子シミュレーター”, 第14回原子・分子・光科学 (AMO) 討論会, 電気通信大学, 東京 (2017) [ 招待講演 ]
  13. N. Takei, “Ultrafast many-body electron dynamics in a strongly-correlated ultracold Rydberg gas”, BIT's 1st Annual Conference of Quantum World-2017, World hotel Grand Jiaxing Changsha, Changsha, China (2017) [ 招待講演, 国際学会 ]
  14. 武井宣幸, “強相関リユードベリ原子を用いた超高速量子シミュレーター”, 第14回エクストリーム・フォトニクス研究会「アト秒から秒にいたるダイナミクス研究の最前線」, 理化学研究所和光キャンパス, 埼玉 (2018) [ 招待講演 ]
  15. N. Takei, “Future directions of IMS Rydberg experiments”, The 2nd meeting on Rydberg quantum matter, Institut de Science et d'Ingénierie Supramoléculaires (ISIS), Strasbourg university, France (2017) [ 国際学会 ]
  16. 田中陽, 溝口道栄, 武井宣幸, Yichi Zhang, 武田俊太郎, Christian Sommer, 子安邦明, 千葉寿, 岸本哲夫, Matthias Weidemüller, 大森賢治, “光格子中の極低温リユードベリ原子集団の超高速電子ダイナミクス”, 日本物理学会第73回年次大会, 東京理科大学野田キャンパス, 千葉 (2018)
  17. N. Takei, C. Sommer, C. Genes, G. Pupillo, Y. Zhang, A. Tanaka, M. Mizoguchi, H. Chiba, M. Weidemüller, and K. Ohmori, “Ultrafast many-body electron dynamics in a strongly correlated ultracold Rydberg gas”, Gordon Research Conference on “Atomic Physics”, Salve Regina University, Newport, RI, USA (2017) [ 国際学会 ]
  18. M. Mizoguchi, A. Tanaka, S. Takeda, N. Takei, C. Sommer, K. Koyasu, H. Chiba, T. Kishimoto, G. Pupillo, M. Weidemüller, and K. Ohmori, “Manipulating a Mott insulator of ultracold  $^{87}\text{Rb}$  atoms towards the realization of an ultrafast quantum simulator”, Gordon Research Conference on “Atomic Physics”, Salve Regina University, Newport, RI, USA (2017) [ 国際学会 ]
  19. A. Tanaka, M. Mizoguchi, S. Takeda, N. Takei, C. Sommer, K. Koyasu, H. Chiba, T. Kishimoto, G. Pupillo, M. Weidemüller, and K. Ohmori, “Development of an ultrafast quantum simulator of strongly correlated electron dynamics in an optical lattice”, Gordon Research Conference on “Quantum Control of Light and Matter”, Mount Holyoke College, South Hadley, MA, USA (2017) [ 国際学会 ]

20. Y. Zhang, N. Takei, C. Sommer, A. Tanaka, H. Chiba, G. Pupillo, M. Weidemüller and K. Ohmori, “Observation of Rydberg wave-packet dynamics in a many-body regime”, Gordon Research Conference on “Quantum Control of Light and Matter”, Mount Holyoke College, South Hadley, MA, USA (2017) [ 国際学会 ]

[ その他 ]

分子科学研究所大森グループホームページ

[https://groups.ims.ac.jp/organization/ohmori\\_g/](https://groups.ims.ac.jp/organization/ohmori_g/)

## 6 . 研究組織

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。