

# 水素分子の光解離で生成する励起原子間の”もつれ”

## Entanglement between a pair of excited atoms produced in the photodissociation of H<sub>2</sub>

(原子衝突学会推薦)

代表研究者	東京工業大学	穂坂 綱一	Tokyo Institute of Technology	Kouichi HOSAKA
共同研究者	東京工業大学	鳥塚 祐太郎	Tokyo Institute of Technology	Yutaro TORIZUKA
	東京工業大学	河内 宣之	Tokyo Institute of Technology	Noriyuki KOUCHI

Entanglement is a unique resource that plays a key role in many areas of quantum applications, such as quantum computation and quantum information. Recently we tried to create entangled pairs of H(2p) atoms in the photoexcitation to the Q<sub>2</sub> <sup>1</sup>Π<sub>u</sub>(1) state of H<sub>2</sub>. The symmetry properties of the Q<sub>2</sub> <sup>1</sup>Π<sub>u</sub>(1) state is expected to transfer to the electronic state of the pair of H(2p) atoms, resulting in the formation of entangled atom-pairs. The electronic state of the pair of H(2p) atoms is identified through measuring the angular correlation function(ACF) of the pair of Lyman-α photons. However, it was found that the H(2p) atom-pairs are not in the <sup>1</sup>Π<sub>u</sub> state, inconsistent with our expectation [Phys. Rev. A **90**, 043405 (2014)]. To reveal the remarkable change of the symmetry properties during the dissociation from the Franck-Condon region to the infinite internuclear distance, the ACF in the photoexcitation to the Q<sub>2</sub> <sup>1</sup>Π<sub>u</sub>(1) state of HD molecules has been measured. The electronic state of the <sup>1</sup>Π<sub>u</sub> level of HD seems different from that of H<sub>2</sub> since the wavefunctions of HD molecules may not have the permutation symmetry of two nuclei. Interestingly, the ACF of HD is the same as that of H<sub>2</sub>.

### 研究目的

“もつれ (エンタングルメント)”とは全体の波動関数が部分系の波動関数の積では表せないことである。近年、“もつれ”を利用した新しい量子技術が発展している。更に最近では、原子やイオンの時空間制御により“もつれた”物質を作る技術が進展しつつある[1]。我々は、分子の光解離を利用した新しい“もつれ”原子ペア生成法を開発している。光解離片ペアは、分子励起状態の対称性を反映し、非局所的な相関、“もつれ”を持つ事が期待される[2]。我々は実証実験のため、Q<sub>2</sub> <sup>1</sup>Π<sub>u</sub>(1)状態を経由した水素分子の光解離でH(2p)ペアを生成した。原子ペアの電子状態は核間距離~100 μm で 2p→1s 遷移により放出される Lyman-α光子ペアの放出角度相関関数 (Angular correlation function : ACF)測定により診断で

きる(FIG. 1)。その結果、当初の予想に反し、以下の2つの事実が判明した[3]。

- ① H(2p)+H(2p)原子ペアの状態は、予測された“もつれ”状態ではない、
- ② しかし、“もつれ”が解けた状態でもない。

もちろん、H(2p)原子がその寿命内に周囲の H<sub>2</sub> 分子と反応することが無いことは検証している。分子の解離は想像以上に複雑であり、フランクコンドン(FC)領域から、核間距離∞に到るまでの間に、対称性の変化や消失がおこっていることを想起させる。本研究では、水素分子の解離過程で起きた、この予想外な状態変化の解明を目的とする。

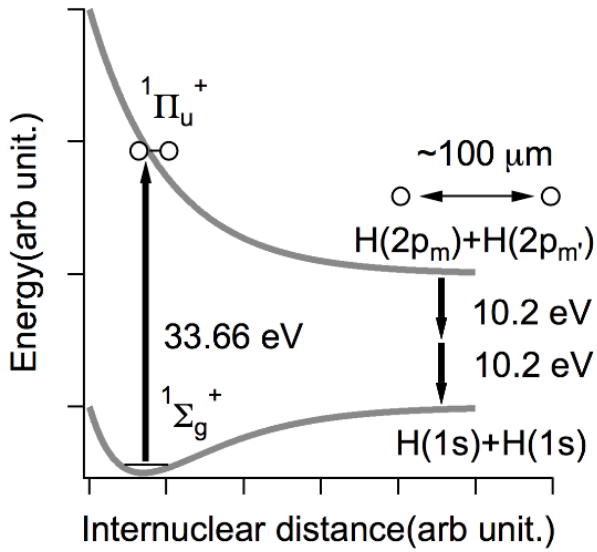


Fig.1 Photodissociation of H<sub>2</sub> molecules via the doubly excited states

## 研究経過

2光子放出過程(FIG. 1)の断面積を励起エネルギーの関数として測定し、2p原子ペア生成の前駆状態をQ<sub>2</sub> <sup>1</sup>Π<sub>u</sub>(1)状態と特定した[4,5]。2重縮退した<sup>1</sup>Π<sub>u</sub><sup>±</sup>状態のうち、直線偏光で励起される<sup>1</sup>Π<sub>u</sub><sup>+</sup>状態である。FC領域からの解離過程で対称性が変化しなければ、核間距離∞でも<sup>1</sup>Π<sub>u</sub><sup>+</sup>対称性を保持するはずである。本研究では、<sup>1</sup>Π<sub>u</sub><sup>+</sup>対称性の原子ペアから放出される光子ペアのACFを以下の方法で計算した[2,3]。

- 1) 原子ペアの状態：核間距離∞において原子ペアの状態は、2p<sub>m</sub>原子の波動関数 $|2p_m^{ab}(1/2)\rangle$ の積の和で表される。ここで、電子を1,2,原子核をa,b,磁気量子数m,m'とラベルする。Π状態では $m+m'=\pm 1$ であり、更に<sup>1</sup>Π<sub>u</sub><sup>+</sup>の全ての対称性を満たすためには、以下のような8項の和をとる必要がある。

$$|^1\Pi_u^+\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} [ |2p_1^a(1)\rangle |2p_0^b(2)\rangle + |2p_1^a(2)\rangle |2p_0^b(1)\rangle - |2p_0^a(1)\rangle |2p_1^b(2)\rangle - |2p_0^a(2)\rangle |2p_1^b(1)\rangle - |2p_{-1}^a(1)\rangle |2p_0^b(2)\rangle - |2p_{-1}^a(2)\rangle |2p_0^b(1)\rangle + |2p_0^a(1)\rangle |2p_{-1}^b(2)\rangle + |2p_0^a(2)\rangle |2p_{-1}^b(1)\rangle ]. \quad (1)$$

この状態は部分系の波動関数に分割できない”もつれ状態”である。

- 2) 光子ペアの状態： $m=+1, 0, -1$ の各2p原子からは、それぞれ決まった偏光状態、 $|\gamma\rangle, |\phi\rangle, |\rho\rangle$ の光

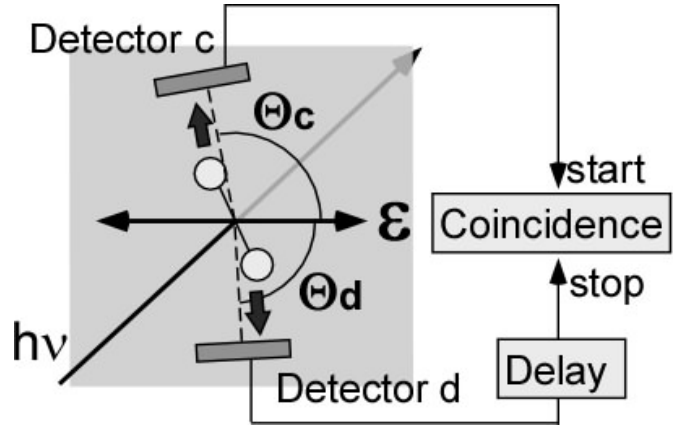


Fig.2 Schematic of the ACF measurements

子が放出される。(1)式の原子ペアから放出される光子ペア $|\Psi\rangle$ は以下ようになる。

$$|\Psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \{ (|\gamma_a\phi_b\rangle - |\phi_a\gamma_b\rangle) - (|\rho_a\phi_b\rangle - |\phi_a\rho_b\rangle) \}. \quad (2)$$

- 3) 励起光の進行方向に直交する平面内に2つの光子検出器c,dを配置し(FIG. 2)、各偏光状態の光子が検出器c,dで検出される確率を、量子光学でいう、2光子相関関数として計算する[6]。この予測と実験で得られたACFを比較する。

実験は高エネルギー加速器研究機構放射光施設(KEK-PF)の真空紫外ビームラインBL-20A, 28Bで行った[3]。FIG. 2の配置でLyman-α光子ペアを同時計数し、検出器の設置角(Θ<sub>c</sub>, Θ<sub>d</sub>)依存性を測定した。しかし、実験結果は<sup>1</sup>Π<sub>u</sub><sup>+</sup>原子ペア由来のACFを再現しなかった[3]。核間距離∞で、<sup>1</sup>Π<sub>u</sub><sup>+</sup>ではないことは明らかになったが、実験結果のACFを再現するという条件だけでは、それ以上の絞り込みは困難であった。

そこで、本研究ではFC領域における電子状態を変えるため、対象をH<sub>2</sub>からHDに変えた。HDでは、2つの原子核が異なるため、電子状態の波動関数には原子核の交換に対する制限はない。その違いを反映して、HDでは<sup>1</sup>Π<sub>u</sub><sup>+</sup>状態以外の任意の<sup>1</sup>Π<sub>u</sub>状態を取りうる。本研究では、計算結果と比較可能な実験データをH<sub>2</sub>とHDとに増やすことにより、核間距離∞での原子ペアの状態を探索した。

## 考察

H<sub>2</sub>とHDではACFが異なると予測したが、実測したH(2p)+D(2p)ペア由来のACFは、H(2p)+H(2p)ペア由来のACFと同じであった。FC領域における

波動関数の違いにもかかわらず ACF が共通という結果はΣ状態への遷移を示している。縮退していないΣ状態は、原子核の交換に対する制限の有無で状態が変わらないためである。では、どのようなΣ状態ができているのであろうか。

Herzberg[7]によれば、<sup>2</sup>P 状態の原子 2 つから構成される分子の 1 重項状態は、<sup>1</sup>Σ<sub>g</sub><sup>+</sup>、<sup>1</sup>Σ<sub>u</sub><sup>-</sup>、<sup>1</sup>Π<sub>g</sub>、<sup>1</sup>Π<sub>u</sub>、<sup>1</sup>Δ<sub>g</sub> であり、<sup>1</sup>Π<sub>u</sub> 状態からは、<sup>1</sup>Σ<sub>u</sub><sup>-</sup> 状態へのみ非断熱遷移する。<sup>1</sup>Σ<sub>u</sub><sup>-</sup> 状態の波動関数は以下のように 4 項の和で表せる。

$$|{}^1\Sigma_u^-\rangle = \frac{1}{2} [ |2p_1^a(1)\rangle |2p_1^b(2)\rangle + |2p_1^a(2)\rangle |2p_1^b(1)\rangle - |2p_1^a(1)\rangle |2p_1^b(2)\rangle - |2p_1^a(2)\rangle |2p_1^b(1)\rangle ] \quad (3)$$

この <sup>1</sup>Σ<sub>u</sub><sup>-</sup> 状態の ACF は実験結果と定性的には一致したが、定量的な不一致が残った。計算と比べて、コントラストが小さいという実験結果は、より低い対称性を示唆している。そこで、4 項からなる(3)式の、前半 2 項(式の\_\_\_\_部)、及び、後半 2 項(式の\_\_\_\_部)のみを取り出し、ACF を計算したところ、実験結果をよく再現した。このことから 2p 原子ペアはこれら 2 つの状態にあると結論される。これら 2 つの状態はもつれ状態ではあるが、空間反転対称性 (gerade / ungerade) , 核間軸を含む平面での鏡映対称性(±)を失っている。分子の解離過程において、失われる対称性があるのは興味深い

我々は、Q<sub>2</sub> <sup>1</sup>Π<sub>u</sub>(1) 状態の光解離では、最終的に(4)、(5)式の状態になって光子ペアを放出することを見出した。次のステップとして、Q<sub>2</sub> <sup>1</sup>Π<sub>u</sub>(1) 状態以外の状態を経由した光解離過程の観測に向けて準備を進めている。2p+2p 原子ペアは Q<sub>2</sub> <sup>1</sup>Π<sub>u</sub>(1) 状態のみから生成するため、2p+3p 原子ペアを生成する前駆電子状態を探索する。その第一歩として、2p 原子ペア由来の Lyman-α 光子と 3p 原子ペア由来の Lyman-β 光子の同時計測に成功した[8]。観測された Lyman-β 光子には、直接解離生成した 3p 原子由来だけではなく、4d 原子からのカスケード緩和過程由来の成分が予想以上に多く含まれていたが、これらは蛍光放出の時定数の違いを用いて分離可能である。前駆電子状態を特定し、ACF 測定を行うことにより、Q<sub>2</sub> <sup>1</sup>Π<sub>u</sub>(1) 状態の崩壊過程で見られた予想外の対称性変化が、特殊な事例なのか、一般的な事例なのかを明らかにしていく。

## 参考文献

1. R. Blatt and D. Wineland, *Nature* **453**, 1008(2008).
2. H. Miyagi, A. Ichimura, and N. Kouchi, *J. Phys. B* **40**, 617(2007).
3. Y. Nakanishi, K. Hosaka, R. Kougo, T. Odagiri, M. Nakano, Y. Kumagai, K. Shiino, M. Kitajima, and N. Kouchi, *Phys. Rev. A* **90**, 043405(2014).
4. T. Odagiri, M. Murata, M. Kato, and N. Kouchi, *J. Phys. B* **37**, 3909(2004).
5. K. Hosaka, K. Shiino, Y. Nakanishi, T. Odagiri, M. Kitajima, and N. Kouchi, *Phys. Rev. A* **93**, 063423 (2016).
6. M. O. Scully and M. S. Zubairy, *Quantum Optics* (Cambridge University Press, Cambridge, 1997), p. 33.
7. G. Herzberg, *Molecular Spectra and Molecular Structure*, Vol. 1. Spectra of Diatomic Molecules (D. Van Nostrand, Princeton, NJ, 1950), pp. 315–322.
8. K. Hosaka, Y. Torizuka, P. Schmidt, T. Odagiri, A. Knie, K. Jänkälä, A. Ehresmann, M. Kitajima, and N. Kouchi, *J. Phys. Conf. Ser.* accepted.

## 研究の発表

### 口頭発表

1. 穂坂綱一, 仲西祐子, 向後陵子, Philipp Schmidt, 鳥塚祐太郎, 谷内一史, 小田切丈, Andre Knie, Kari Jankala, Arno Ehresmann, 中野元善, 熊谷嘉晃, 椎野健一, 北島昌史, 河内宣之, 「水素分子の光解離により生成する H(2p)原子ペアの量子もつれ」第 29 回日本放射光学会年会, 放射光科学合同シンポジウム, 2016 年 1 月 9 日-11 日, 東京大学(柏市).
2. 穂坂綱一, 鳥塚祐太郎, 谷内一史, Philipp Schmidt, Andre Knie, Kari Jankala, Arno Ehresmann, 小田切丈, 北島昌史, 河内宣之, 「2 電子励起水素分子のダイナミクス 2p 原子ペア生成断面積に現れる同位体効果」日本物理学会, 第 71 回年会, 2016 年 3 月 19 日-22 日, 東北学院大学(仙台市).
3. HOSAKA, Kouichi; TORIZUKA, Yutaro; YACHI, Kazufumi; SCHMIDT, Philipp; KNIE, Andre; JANKALA, Kari; EHRESMANN, Arno; ODAGIRI, Takeshi; KITAJIMA, Masashi; KOUCHI, Noriyuki, “Unexpected isotope effect on the cross section of 2p pair formation in the photoexcitation of H<sub>2</sub>, D<sub>2</sub> and

HD” 第 32 回化学反応討論会、2016 年 6 月 1 日 -3 日、大宮ソニックシティ(さいたま市).

4. 穂坂綱一, 鳥塚祐太郎, Schmidt Philipp, 谷内一史, 小田切丈, Knie Andre, Jänkälä Kari, Ehresmann Arno, 北島昌史, 河内宣之, 「2 電子励起水素分子のダイナミクス-H<sub>2</sub>, HD, 及び D<sub>2</sub>からの 2p 原子ペア生成断面積の比較」第 10 回分子科学討論会 2016、2016 年 9 月 13 日-15 日、神戸ファッションマート(神戸市).
5. 鳥塚祐太郎, 穂坂綱一, Schmidt Philipp, 谷内一史, 小田切丈, Knie Andre, Jänkälä Kari, Ehresmann Arno, 北島昌史, 河内宣之, 「水素(H<sub>2</sub>, HD, D<sub>2</sub>)の光解離で生成する Lyman- $\alpha$  光子ペアの角度相関」第 10 回分子科学討論会 2016、2016 年 9 月 13 日-15 日、神戸ファッションマート(神戸市).
6. 鳥塚祐太郎, 穂坂綱一, Philipp Schmidt, 谷内一史, 小田切丈, Andre Knie, Kari Jankala, Arno Ehresmann, 向後陵子, 北島昌史, 河内宣之, 「水素(H<sub>2</sub>, D<sub>2</sub>, HD)の光解離により生成する 2p 原子ペアのもつれと前駆 2 電子励起状態の対称性」,

日本物理学会, 第 72 回年会, 2017 年 3 月 17 日-20 日, 大阪大学(豊中市).

#### 誌上発表

1. Kouichi Hosaka, Kennichi Shiino, Yuko Nakanishi, Takeshi Odagiri, Masashi Kitajima, and Noriyuki Kouchi, “Dynamics of the Q<sub>2</sub><sup>1</sup> $\Pi_u$ (1) state studied from the isotope effect on the cross sections for the formation of the 2p atom pair in the photoexcitation of H<sub>2</sub> and D<sub>2</sub>”, Phys. Rev. A, **93**, 063423 (2016).
2. 穂坂綱一, 「分子の 2 電子励起状態」、原子衝突学会誌 しょうとつ 第 **13** 巻第 **1** 号、26 (2016).
3. 穂坂綱一, 「量子もつれ」、原子衝突学会誌 しょうとつ 第 **13** 巻第 **2** 号、55 (2016).
4. K. Hosaka, Y. Torizuka, P. Schmidt, T. Odagiri, A. Knie, K. Jänkälä, A. Ehresmann, M. Kitajima, and N. Kouchi, ”The observation of the pair of Lyman- $\alpha$  and Lyman- $\beta$  photons produced in the photodissociation of H<sub>2</sub>”, J. Phys. Conf. Ser. accepted.