

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	水素分子の光解離により生成するH(2p)原子ペア状態
Title(English)	The production of pairs of H(2p) atoms in the photodissociation of H ₂
著者(和文)	仲西祐子
Author(English)	Yuko Nakanishi
出典(和文)	学位:博士(理学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第9715号, 授与年月日:2015年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:河内 宣之,木口 学,大島 康裕,北島 昌史,河合 明雄
Citation(English)	Degree:., Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第9715号, Conferred date:2015/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Type(English)	Doctoral Thesis

学位論文

水素分子の光解離により生成する
H(2p) 原子ペア

(指導教員：河内宣之教授, 北島昌史准教授)

東京工業大学 大学院理工学研究科 化学専攻

仲西祐子

平成27年2月

2015, Nakanishi Yuko

本論文は、著者が東京工業大学大学院理工学研究科において
学位申請論文として執筆したものであり、その内容は、

Physical Review A 90, 043405 (2014).

に掲載された。

目次

第1章 序論	1
1.1 はじめに	1
1.2 量子もつれ	1
1.3 水素分子の2電子励起状態	3
1.4 H(2p) 原子ペア生成に到るH ₂ の光解離過程	5
1.5 Lyman- α 光子ペアの角度相関関数の理論研究	7
1.5.1 座標系	7
1.5.2 量子もつれ水素原子ペア	8
1.5.3 光子ペア状態	10
1.5.4 2光子相関関数	11
1.5.5 計算結果	14
1.6 他グループによる理論研究	17
1.7 量子もつれH(2p) 原子ペア生成の検証実験 -これまでの経緯-	19
1.8 本研究の目的	20
第2章 実験	22
2.1 光源	22
2.1.1 放射光	22
2.1.2 ビームライン	23
2.1.3 放射光の時間構造	27
2.2 実験装置	27
2.2.1 ガスセル	27
2.2.2 Lyman- α 光子検出器	31
2.2.3 真空排気系	32
2.2.4 2光子同時計数系	34
2.3 Lyman- α 光子ペアのコインシデンスタイムスペクトルの解析方法	37

2.3.1	偶然の同時計数	37
2.3.2	遅い時定数の成分	39
2.4	Lyman- α 光子ペアの角度相関関数の求め方	46
2.4.1	Lyman- α 光子ペアの角度相関関数の求め方	47
2.5	アライメントの評価	51
2.5.1	He 光電子の角度分布測定	52
2.5.2	H ₂ Lyman- α 光子の角度分布測定	55
2.5.3	アライメントのドリフトの指標	59
2.6	入射光の波長キャリブレーション	60

第3章 偽の同時計数の起源 63

3.1	偽の同時計数	63
3.2	偽のコインシデンスタイムスペクトル	64
3.3	偽の同時計数の角度分布	65
3.4	過去の実験に対する偽の同時計数の寄与	66

第4章 Lyman- α 光子ペアの角度相関関数の測定結果 67

4.1	概要	67
4.2	Lyman- α 光子ペアの角度相関関数の測定結果	69
4.2.1	2軸装置の評価	69
4.2.2	入射光の偏光度の効果	71
4.3	量子もつれを破壊しうる反応の寄与	73
4.4	理論予測との比較	78
4.4.1	量子もつれH(2p) 原子ペアに対する予測との比較	78
4.4.2	H(2p) 原子ペアの量子もつれが破れた場合の予測との比較	80

第5章 結論 83

付録 A	2012 年 10 月 ビームタイムにおける 3 配置の角度相関関数 を共通の縦軸へのせる方法	86
付録 B	コインシデンス測定結果の数値データ表	89
謝辞		97
引用文献		98

目次

1.3-1: H_2 の 2 電子励起状態と H_2^+ のポテンシャルエネルギー曲線	4
1.4-1: 水素分子の光解離による Lyman- α 光子ペア放出の角度 2 重微分 断面積を入射光子エネルギーの関数として測定した結果	6
1.5-1: 計算で用いた座標系	8
1.5-2: 過程(1.4-1)' の $\text{H}_2(\text{X } ^1\Sigma_g^+)$ がランダムに配向した場合の Lyman- α 光子ペアの角度相関関数の理論予測	16
1.6-1: 水素分子の核間軸がランダムに配向した場合の Jänkälä らによる 角度相関関数の理論予測	19
2.1-1: BL20A の概略図	25
2.1-2: BL20A の Robin-Romand 型直入射分光器の光学系	25
2.1-3: BL28B の概略図	26
2.1-4: マルチバンチ運転における放射光パルス列の測定結果	27
2.2-1: 1 軸装置のガスセルの概略図	29
2.2-2: 2 軸装置のガスセルの概略図	30
2.2-3: microchannel plate による光子検出効率の波長依存性	32
2.2-4: 2 軸装置の真空排気系	33
2.2-5: Lyman- α 光子ペアの同時計数系のブロック図	36
2.3-1: コインシデンスタイムスペクトルの概略図	37
2.3-2: 入射光子エネルギー 33.66 eV, 水素ガス圧力 1.4 Pa, (Θ_c, Θ_d) = (90°, -90°) において測定された Lyman- α 光子ペアのコインシデンスタイムスペクトル	38
2.3-3: 縦軸が対数表示のコインシデンスタイムスペクトル	39
2.3-4: 励起状態の水素原子からのカスケードと遷移確率	40
2.3-5: タイムスペクトルの模式図	43
2.3-6: 真の同時計数率 \dot{N}_{cd} を入射光量で規格化し、 H_2 ガス圧力 に対してプロットした図	45

2.4-1:	原点を O とする空間固定 XYZ 座標系と原点を O とする abc 座標系の関係	46
2.5-1:	光子検出器 $c(d)$ と光電子検出器 $c(d)$ の方向を示す角度の定義	53
2.5-2:	He からの光電子の角度分布の測定結果	54
2.5-3:	abc 座標系から見て $(\theta_i, \phi_i = \frac{\pi}{2})$ 方向を向いた単位ベクトル \hat{n} と、 \hat{n} に垂直な検出面の概略図	57
2.5-4:	BL28B において測定された H_2 の光吸収に起因する Lyman- α 光子 の角度分布の測定結果	58
2.5-5:	金プレートの光電流(i_{Au}) と後置鏡の光電流(i_{Mir}) を測定する 際の配置図	59
2.6-1:	BL28 B で測定された Ne と Ar の光電子励起スペクトル	61
2.6-2:	測定された共鳴ピークの見かけの波長と真の波長との関係	62
3.2-1:	入射光および水素ガスが無い条件において測定されたコインシデンス タイムスペクトル	64
3.3-1:	偽の同時計数率の角度分布の測定結果	66
4.2-1:	2 軸装置および 1 軸装置によって測定された対向配置($\Theta_d = \Theta_c + \pi$) における Lyman- α 光子ペアの角度相関関数	70
4.2-2:	偏向磁石ビームライン BL20A とアンジュレータービームライン BL28B にて測定された Lyman- α 光子ペアの角度相関関数	72
4.3-1:	入射光子エネルギー 33.66 eV, 水素ガス圧力 1.2 Pa および 0.14 Pa における Lyman- α 光子ペアの角度相関関数の測定結果	77
4.4-1:	入射光子エネルギー 33.66eV において得られた Lyman- α 光子ペアの 角度相関関数(量子もつれ H(2p) 原子ペアに対する予測との比較)	79
4.4-2:	入射光子エネルギー 33.66eV において得られた Lyman- α 光子ペアの 角度相関関数(H(2p) 原子ペアの量子もつれが破れた場合の予測との比較)	82

第1章 序論

1.1 はじめに

本論文の著者は、水素分子の光解離により生成するH(2p) 原子ペア状態を解明するために実験を行った。直線偏光した真空紫外光を吸収した水素分子が2電子励起状態($Q_2 \ ^1\Pi_u(1)$) に遷移すると、直ちに解離し、H(2p) 原子ペアが生成する[Oda04]。本研究室の宮城らは、この光解離過程において2電子励起状態の対称性が保存されることに注目し、核間距離無限大におけるH(2p) 原子ペア状態を導いた[Miy07]。宮城らによれば、H(2p) 原子ペアは量子もつれ状態にあり、この量子もつれは放出される光子ペアに転写される。宮城らは光子ペアの角度相関関数を量子光学の手法に基づいて計算し、光子ペアの角度相関関数には強い異方性が現れることを予測した[Miy07]。宮城らにより、原子ペアの量子もつれが、放出される光子ペアの角度相関関数測定により診断できることが分かった。すなわち、分子解離により量子もつれ原子ペアが生成するか否かは、実験により検証できる。本章では、まず本研究のキーワードである量子もつれについて概説し、本研究が注目する水素分子の光解離過程[Oda04]について述べ、さらに宮城らの理論研究[Miy07] および本研究室による量子もつれH(2p) 原子ペア生成の検証実験の経緯を述べる。それを踏まえて、本研究の目的を明らかにする。

1.2 量子もつれ

2個以上の粒子から構成される系を思い浮かべるとき、我々の常識では、全系は状態が定まった部分(系) から構成されると考えるであろう。しかし、量子力学においては、全系は状態が定まった部分系から構成される場合もあるが、全系の状態の中には、各々の部分(系) の状態が確定していないものもある。このような、我々の直感に反する全系の状態を量子もつれ状態という。量子もつれは量子力学の不可思議さの根源となっている。ただし、このような状態自体は特別珍しくはない。たとえばHe 原子の電子状態のうちスピン固有状態をとりあげよう。電子に1 および2 なるラベルをつけると、1重項状態は

$$\frac{1}{\sqrt{2}}(|\alpha\rangle_1|\beta\rangle_2 - |\beta\rangle_1|\alpha\rangle_2) \quad (1.2-1)$$

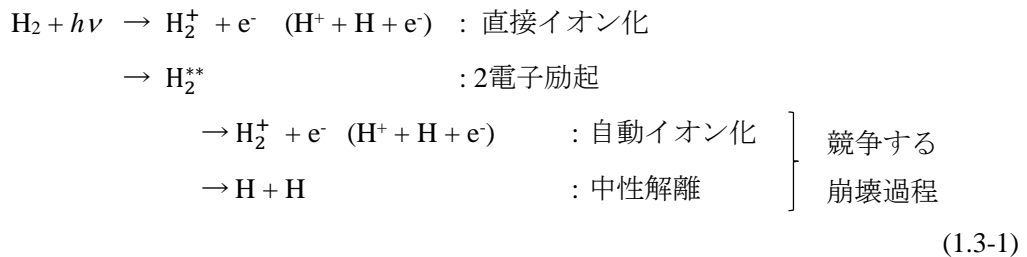
と表される。ただし、スピン角運動量の z 成分 S_z の2つの固有値 $+\hbar/2$ および $-\hbar/2$ に対応する固有状態をそれぞれ $|\alpha\rangle$, $|\beta\rangle$ とした。(1.2-1) 式において、電子1の状態も電子2の状態もスピン角運動量の z 成分は確定しない。つまり、全系を構成する部分(電子1と電子2)の状態は定まらない。したがって(1.2-1) 式は量子もつれ状態である。

また、(1.2-1) 式の量子もつれ状態の電子1,2 に対して S_z を測定すると、非常に興味深いことがおこる。例えば、電子1の S_z の測定結果が $+\frac{\hbar}{2}$ であれば、電子2の S_z は $-\frac{\hbar}{2}$ と決まる。一方、電子1の S_z の測定結果が $-\frac{\hbar}{2}$ であれば、電子2の S_z は $+\frac{\hbar}{2}$ と決まる。つまり、測定前には各々の電子の状態は定まっていないが、測定により片方の状態が決まると、もう一方の状態も確定するという相関がある。この相関は2個の電子がHe 原子として相互作用するほど接近している場合だけでなく、遠く離れた場合でも保持される。つまり、一方の粒子に対する測定結果が、何の相互作用も無いほど遠く離れたもう一方の粒子の状態に影響するということになる。この量子力学特有の奇妙な相関を非局所相関という。

現在では、量子もつれは量子情報技術において重要な役割を果たすことから、積極的に研究されている。1.1 節で述べたように、本研究室の宮城らは、水素分子の光解離により量子もつれH(2p) 原子ペアが生成することを予測した。宮城らは、H(2p) 原子ペアの状態を導くにあたり、量子もつれ状態を意図したわけではない。水素分子の電子ハミルトニアンと可換な演算子の固有状態となること、および直線偏光による励起を考慮することにより、'自然' に量子もつれ状態が導かれた。本実験により、量子もつれH(2p) 原子ペアの生成を確かめられれば、分子の光解離は、新たな量子もつれ原子ペアの発生方法と成り得るだろう。量子情報技術において、質量のない光子よりも、イオン[Bla08] や中性原子[Blo08] などの、質量のある粒子を用いることの利点は、粒子を静止できることである。一方不利な点は、環境との相互作用によって量子もつれが変化・消失しやすく、量子もつれ状態を維持し難いことである[Eda07]。本実験では、H(2p) 原子ペアと周囲の水素分子の反応の起こらない圧力条件で実験を行った。またH($n \geq 3$) 原子からH(2p) 原子へのカスケードの寄与を取り除き、解離H(2p) 原子ペア由来の角度相関関数を測定した。

1.3 水素分子の2電子励起状態

本節では、次節で登場する水素分子の2電子励起状態を概観する。水素分子2電子励起状態は第一イオン化ポテンシャル以上の内部エネルギーを持つため、イオン化連続状態と縮重している。また、それと強く結合している。つまり、基底状態や1電子励起状態とは異なり、1電子平均場近似や電子運動と原子核の運動を分離する近似(断熱近似)が、それほど良い近似ではない。図1.3-1 に H_2 の2 電子励起状態 H_2^{**} (実線) および H_2^+ (破線) のポテンシャルエネルギー曲線を示す[Oda04(転載許可済み)]。図中の2電子励起状態のポテンシャルエネルギー曲線は反発型である。したがって H_2^{**} は直ちに中性解離をおこす。中性解離の寿命は、核の振動周期と同程度と考えられ、 10^{-14} s 程度である[Nak95]。また、 H_2^{**} はイオン化連続状態との電子的結合により、自動イオン化をおこす。自動イオン化の寿命は 10^{-13} - 10^{-16} s 程度である[Nak95]。なお、その他の崩壊過程として輻射遷移があるが、寿命は 10^{-9} s 程度で、自動イオン化や中性解離の寿命よりずっと長く、輻射遷移は起こらないと考えてよい。したがって H_2^{**} は中性解離と自動イオン化が競争しながら崩壊する。2電子励起水素分子の生成と崩壊の過程を以下に示す。



H_2 の2電子励起状態では、 H_2^+ の第1励起状態 ($2p\sigma_u$) $^2\Sigma_u^+$ 、第2励起状態 ($2p\pi_u$) $^2\Pi_u$ 、第3励起状態($2s\sigma_g$) $^2\Sigma_g^+$ をイオンコアとする2電子励起状態を、それぞれ Q_1, Q_2, Q_3 状態と呼ぶ。各グループの中で、同じ対称性を持つ状態に対してエネルギーの低いほうから順に(1), (2), ... と番号を付けて区別する。なお、断熱近似のもとでは、ポテンシャルエネルギー曲線の非交差則があり、対称性が同じ電子状態のポテンシャルエネルギー曲線は交差しない。

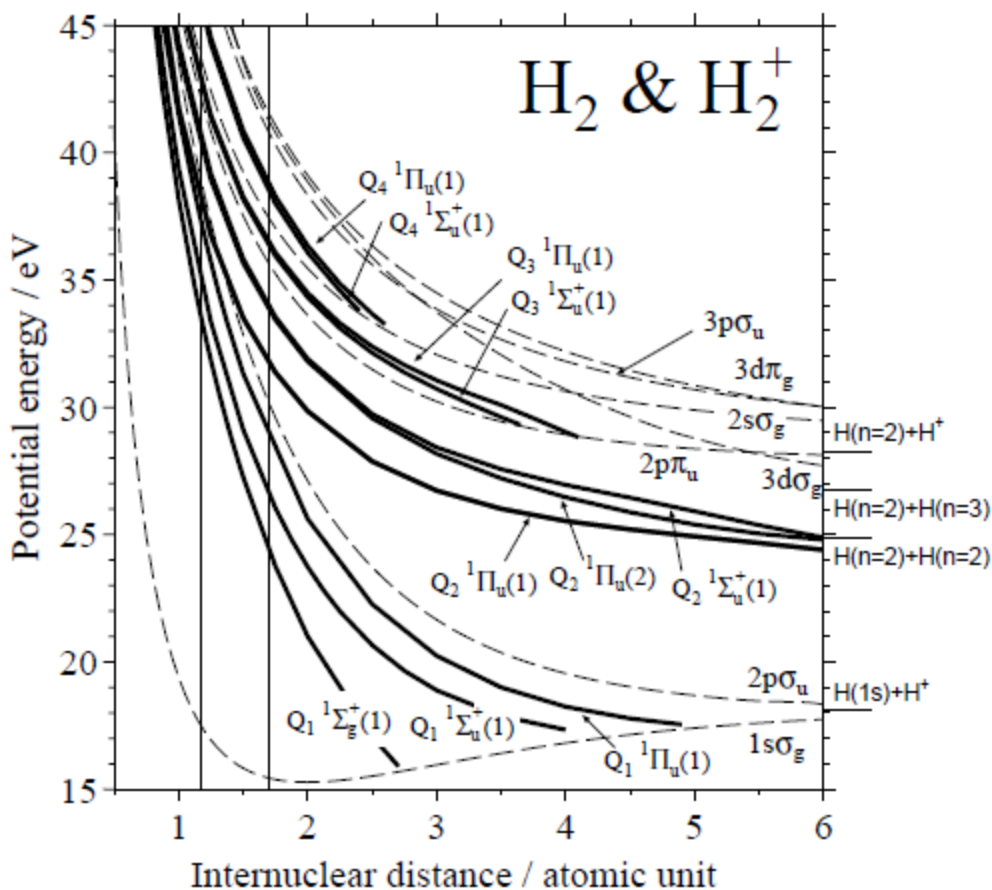
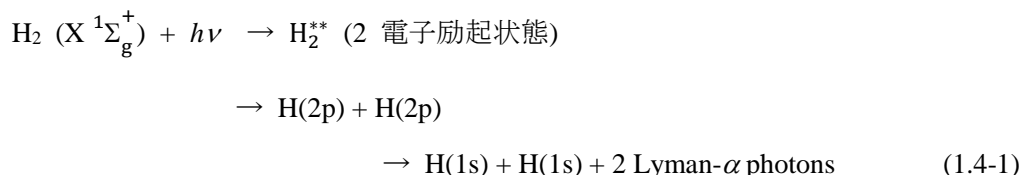


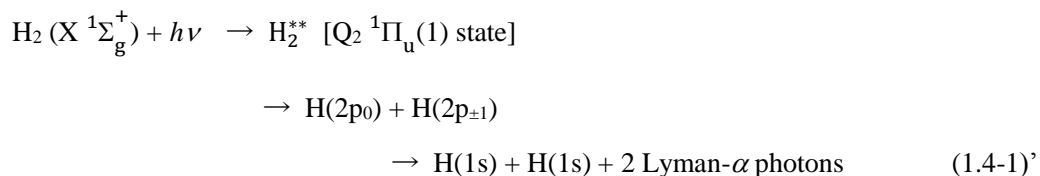
図1.3-1: H_2 の2電子励起状態(実線) と H_2^+ (破線) のポテンシャルエネルギー曲線[Oda04(転載許可済み)]. エネルギーの原点は $H_2(X^1\Sigma_g^+)$ の基底振動回転準位である。 H_2^+ の第1励起状態 $2p\sigma_u$ 、第2励起状態 $2p\pi_u$ 、第3励起状態 $2s\sigma_g$ をイオンコアとする H_2 の2電子励起状態を、それぞれ Q_1, Q_2, Q_3 状態と呼ぶ。各グループの中で、同じ対称性を持つ状態に対してエネルギーの低いほうから順に(1), (2), ... と番号を付ける。2本の縦線で囲まれた領域はFranck-Condon 領域であり、右側の枠外に解離極限を示した。各ポテンシャルエネルギー曲線の出典は、 Q_1 状態は[San97]、 Q_2 状態は[Sán99]、 Q_3 状態は[Fer01]、また H_2^+ は[Sha71] である。

1.4 H(2p) 原子ペア生成に到るH₂ の光解離過程

本研究室の小田切らは、H₂ の光解離によりH(2p) 原子ペアが生成することを、Lyman- α 光子ペアの同時計数実験により示した[Oda04]。彼らが観測した過程を以下に示す。入射光は直線偏光である。



小田切らは過程(1.4-1) により放出される2個のLyman- α 光子が、 Ω_i, Ω_j 方向の微小立体角要素 $d\Omega_i, d\Omega_j$ へ放出される角度2重微分断面積、 $d^2\sigma/d\Omega_i d\Omega_j$ を入射光子エネルギーに対して30 - 44 eV の範囲で測定した。得られた断面積曲線を図1.4-1 に示す[Oda04(転載許可済み)]。小田切らは、水素分子の2電子励起状態の崩壊過程を半古典的に扱い、さらに鏡映近似を用いて、過程(1.4-1) のH₂^{**} の状態とは、2電子励起Q₂ ¹Π_u(1) 状態であると突き止めた(図1.4-1を参照)。このことを考慮すると、小田切らが観測した過程は



のように書ける。2p の添え字0, ±1 は核間軸に関する磁気量子数を表す。本研究では、入射光子エネルギー33.66 eV においてLyman- α 光子ペアの角度相関を測定した。このエネルギーにおいて、図1.4-1 の角度2重微分断面積は最大となる。

最後に、過程(1.4-1)' によりLyman-a 光子ペアが放出されるときH(2p) 間距離の代表値を求めておこう。この距離は、解離における2 つのH(2p) 原子の相対速度 v_r とH(2p) 原子の寿命、1.6 ns [Bet97] の積として求まる。H₂ (X ¹Σ_g⁺) の基底振動回転準位に対して、H(2p) + H(2p) の解離極限のエネルギーは24.875 eV である[Sha71](図1.3-1 参照)。したがって、入射光子エネルギー33.66 eV では、2 つのH(2p) 原子の相対運動エネルギーは、

$$\frac{1}{2}\mu v_r^2 = 33.66 \text{ eV} - 24.875 \text{ eV} = 8.785 \text{ eV} \quad (1.4-2)$$

となる。 μ は2 つのH(2p) 原子の換算質量であり、プロトンの質量を m_p とすると、

$$\mu = \frac{m_p^2}{m_p + m_p} = \frac{m_p}{2} \quad (1.4-3)$$

と表される。したがって(1.4-2) 式および(1.4-3) 式から、解離における2 つのH(2p) 原子の相対速度 v_r は

$$v_r = \sqrt{\frac{2 \times 8.785 \text{ eV}}{\mu}} = \sqrt{\frac{2 \times 8.785 \times 1.60 \times 10^{-19} \text{ kg m}^2 \text{ s}^{-2}}{\left(\frac{1.67 \times 10^{-27} \text{ kg}}{2}\right)}} = 5.8 \times 10^4 \text{ m s}^{-1} \quad (1.4-4)$$

と求まる。したがって、過程(1.4-1)' によりLyman-a 光子ペアが放出されるとき2個のH(2p) 原子間の距離は、入射光子エネルギー33.66 eVにおいては、

$$5.8 \times 10^4 \text{ m s}^{-1} \times 1.6 \times 10^{-9} \text{ s} = 93 \mu\text{m} \quad (1.4-5)$$

となる。すなわち0.1 mm である。

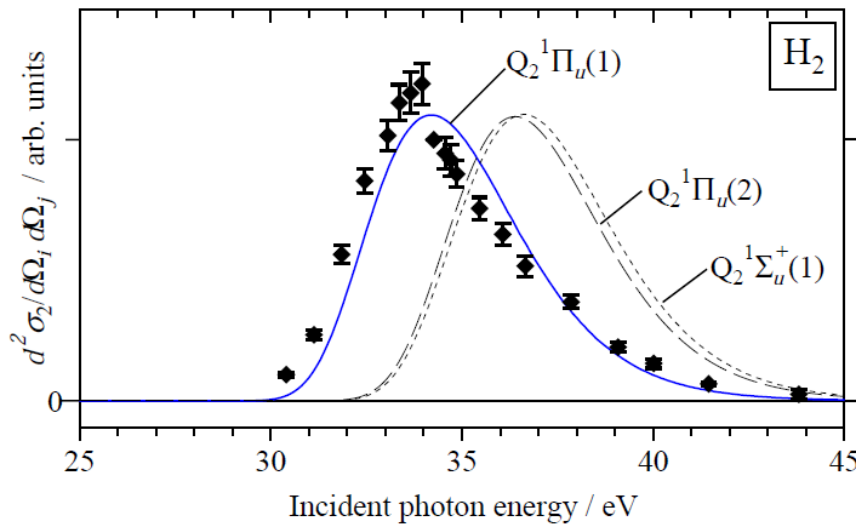


図1.4-1: 水素分子の光解離によるLyman- α 光子ペア放出の角度2重微分断面積を入射光子エネルギーの関数として測定した結果[Oda04(転載許可済み)]。◆ は実験結果を示す。曲線は、それぞれの2電子励起状態に由来する断面積の計算結果を示す。実線: $Q_2 \ ^1\Pi_u(1)$, 破線: $Q_2 \ ^1\Pi_u(2)$, 点線: $Q_2 \ ^1\Sigma_u^+(1)$ 。◆ と実線は入射光子エネルギー34 eV 付近で規格化し、破線と点線は実線と同じ高さになるように規格化した。

1.5 Lyman- α 光子ペアの角度相関関数の理論研究

1.4 節で述べた小田切らによる実験より [Oda04]、過程(1.4-1)' に対して $\frac{d^2\sigma}{d\Omega_i d\Omega_j}$ の入射光子エネルギー依存性が明らかとなった。 $\frac{d^2\sigma}{d\Omega_i d\Omega_j}$ は、それぞれの光子の放出方向(Ω_i と Ω_j) に依存する。この依存性を Lyman- α 光子ペアの角度相関関数と呼ぶ。すなわち角度相関関数とは、与えられた 2 方向に光子が放出される確率密度関数である。したがって角度相関関数は 4 つの角の関数である。本研究室の宮城らは [Miy07]、過程(1.4-1)' における Lyman- α 光子ペアの角度相関関数を理論的に計算し、H(2p) 原子ペアの量子もつれを角度相関測定により診断できることを示した。そこで、宮城らによる理論研究を概説する。

1.5.1 座標系

計算に用いる座標系を図1.5-1 に示す [Nak14(転載許可済み)]。空間固定 XYZ 座標系の原点 O は入射光軸上にある。Z 軸の正の向きを直線偏光した入射光の偏光ベクトル $\hat{\epsilon}$ の向きにとり、X 軸の正の向きを入射光の波数ベクトル \mathbf{k} の向きにとる。分子固定 xyz 座標系の原点は、H₂ 分子の2つのプロトンの重心にあり、空間固定 XYZ 座標系の原点 O と一致する。分子固定座標系の z 軸は水素分子の核間軸にとる。2つのプロトンに a, b なるラベルをつけ、2つの電子に 1, 2 なるラベルをつける。空間固定 XYZ 座標系に対し分子固定 xyz 座標系を与える Euler 角を $(\phi, \theta, 0)$ で表す。2つの Lyman- α 光子検出器を c, d とし、それらは元々 +Z 軸上にあるとする。そして空間固定 XYZ 座標系に対して、 c と d の方向を表す Euler 角をそれぞれ $(\Phi_c, \Theta_c, 0)$ および $(\Phi_d, \Theta_d, 0)$ とする。ここでは光子検出器は点とみなす。図1.5-1 のように光子検出器 c と d を入射光軸に直交する YZ 面内におく場合 (本実験ではそうである)、 $\Phi_c = \Phi_d = \frac{3\pi}{2}$ となる。この場合、X 軸周りの光子検出器の回転角度 Θ_c, Θ_d の正の向きは、X 軸の正の向きに向かってみると反時計周りの向きである。つまり図1.5-1 に示されている Θ_c と Θ_d の向きは正の向きである。

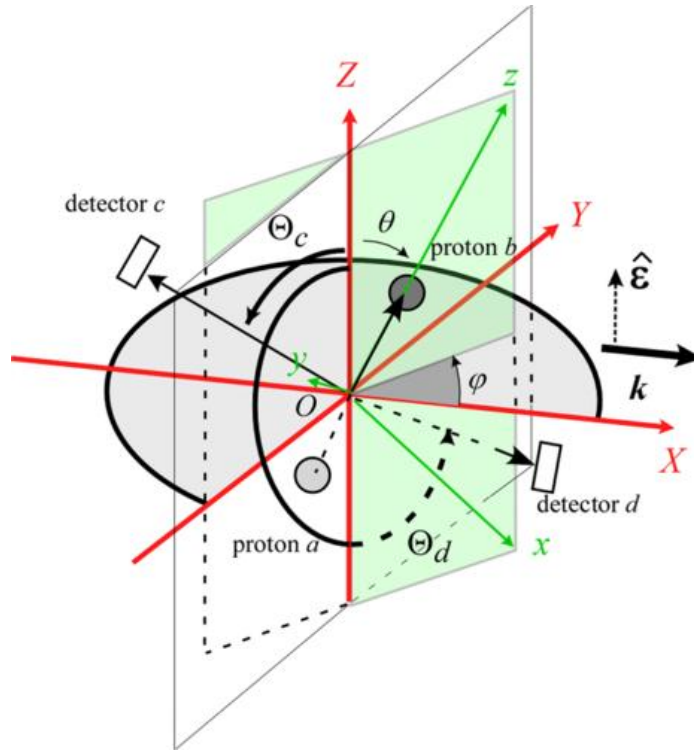


図1.5-1：計算で用いた座標系[Nak14(転載許可済み)]。直線偏光した入射光の偏光ベクトルを $\hat{\epsilon}$ 、波数ベクトルを \mathbf{k} で表す。空間固定XYZ座標系のZ軸の正の向きを入射光の偏光ベクトル $\hat{\epsilon}$ の向きにとる。入射光の波数ベクトル \mathbf{k} の正の向きをX軸の向きにとる。水素分子の2つのプロトンを a, b で表し、分子固定座標系の z 軸を分子の核間軸にとる。空間固定XYZ座標系に対し分子固定xyz座標系を与えるEuler角を $(\phi, \theta, 0)$ で表す。2つのLyman- α 光子検出器を c, d とし、それらは元々+Z軸上にあるとする。そして空間固定XYZ座標系に対して、 c と d の方向を表すEuler角をそれぞれ $(\Phi_c, \Theta_c, 0)$ および $(\Phi_d, \Theta_d, 0)$ とする。本図のように、光子検出器 c, d を入射光軸に直交するYZ面内におく場合は、 $\Phi_c = \Phi_d = \frac{3\pi}{2}$ となる。この場合、X軸周りの光子検出器の回転角度 Θ_c, Θ_d の正の向きは、X軸の正の向きに向かってみると反時計周りの向きである。つまり本図の Θ_c と Θ_d の向きは正の向きである。

1.5.2 量子もつれ水素原子ペア

宮城らは、過程(1.4-1)'における解離水素原子ペア $\text{H}(2p_0) + \text{H}(2p_{\pm 1})$ の電子状態を、前駆2電子励起状態 $\text{Q}_2^1\Pi_u(1)$ から導出した[Miy07]。 Π 準位は2重に縮重しており、電子の軌道

角運動量の z 軸成分 L_z が $\pm\hbar$ である ${}^1\Pi_u$ 状態を $\left| {}^1\Pi_u^{L_z=\pm 1} \right\rangle$ (復号同順) と書く。入射光が直線偏光の場合、過程(1.4-1)' の ${}^1\Pi_u$ 状態は、 $\hat{\boldsymbol{\varepsilon}}$ と核間軸(z 軸) によって与えられる面に対する鏡映演算子の固有ケット(固有値 1) でなければならない[Vig81, Vig83]。そのような面とは、図 1.5-1 の xz 面であり、それに対する鏡映演算子を σ_{xz} とする。 σ_{xz} の固有値 1 に対する ${}^1\Pi_u$ 状態を $\left| {}^1\Pi_u^+ \right\rangle$ と書くことにする。 $\left| {}^1\Pi_u^{L_z=\pm 1} \right\rangle$ の σ_{xz} に対する変換性

$$\sigma_{xz} \left| {}^1\Pi_u^{L_z=\pm 1} \right\rangle = - \left| {}^1\Pi_u^{L_z=\mp 1} \right\rangle \quad (1.5-1)$$

に注意すると、 $\left| {}^1\Pi_u^+ \right\rangle$ が $\left| {}^1\Pi_u^{L_z=\pm 1} \right\rangle$ の重ねあわせとして、以下のように表されることが分かる。

$$\left| {}^1\Pi_u^+ \right\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\left| {}^1\Pi_u^{L_z=1} \right\rangle - \left| {}^1\Pi_u^{L_z=-1} \right\rangle \right) \quad (1.5-2)$$

過程(1.4-1)' における水素原子ペア $H(2p_0) + H(2p_{\pm 1})$ の電子状態とは、 $\left| {}^1\Pi_u^+ \right\rangle$ 状態の核間距離無限大($r \rightarrow \infty$) における漸近形である。 $\left| {}^1\Pi_u^{L_z=\pm 1} \right\rangle$ の $r \rightarrow \infty$ における漸近形は、水素原子の $2p$ 状態 $\left| 2p_m^{a/b}(i) \right\rangle$ ($i=1,2$) を用いて以下のように書ける。ここで m は核間軸(z 軸) に関する磁気量子数である。例えば $\left| 2p_m^a(1) \right\rangle$ とは、原点 O におかれたプロトンに電子 1 が束縛された水素原子を考え、その $\left| 2p_m(1) \right\rangle$ 状態を z 軸に沿ってプロトン a の位置まで平行移動した状態である。

$$\left| {}^1\Pi_u^{L_z=1}(r \rightarrow \infty) \right\rangle = \frac{1}{2} \{ |2p_1^a(1)2p_0^b(2)\rangle + |2p_1^a(2)2p_0^b(1)\rangle - |2p_0^a(1)2p_1^b(2)\rangle - |2p_0^a(2)2p_1^b(1)\rangle \} \quad (1.5-3a)$$

$$\begin{aligned} \left| {}^1\Pi_u^{L_z=-1}(r \rightarrow \infty) \right\rangle &= \frac{1}{2} \{ |2p_{-1}^a(1)2p_0^b(2)\rangle \\ &\quad + |2p_{-1}^a(2)2p_0^b(1)\rangle - |2p_0^a(1)2p_{-1}^b(2)\rangle - |2p_0^a(2)2p_{-1}^b(1)\rangle \} \end{aligned} \quad (1.5-3b)$$

$\left| {}^1\Pi_u^{L_z=\pm 1} \right\rangle$ は、それらが演算子 L_z, i (空間反転), P_{12} (電子 1 と 2 の交換) の固有ケットとなるように $\left| 2p_1^a(1)2p_0^b(2) \right\rangle$ 等の線形結合をとることによって、得た。(1.5-3 a) 式と(1.5-3 b) 式を(1.5-2) 式に代入して

$$\begin{aligned} \left| {}^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty) \right\rangle = & \frac{1}{2\sqrt{2}} \left(\left| 2p_1^a(1)2p_0^b(2) \right\rangle + \left| 2p_1^a(2)2p_0^b(1) \right\rangle - \left| 2p_0^a(1)2p_1^b(2) \right\rangle - \left| 2p_0^a(2)2p_1^b(1) \right\rangle \right. \\ & \left. - \left| 2p_{-1}^a(1)2p_0^b(2) \right\rangle - \left| 2p_{-1}^a(2)2p_0^b(1) \right\rangle + \left| 2p_0^a(1)2p_{-1}^b(2) \right\rangle + \left| 2p_0^a(2)2p_{-1}^b(1) \right\rangle \right) \end{aligned} \quad (1.5-4)$$

を得る。(1.5-4) 式においては水素原子 a と水素原子 b の状態は確定しておらず(磁気量子数に注目)、 $\left| {}^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty) \right\rangle$ は量子もつれ状態である。ここで大切なことは、(1.5-4) 式を導くにあたり量子もつれ状態を意図したわけではないことである。水素分子の電子ハミルトニアンと可換な演算子の固有ケットとなること、および直線偏光による電子的励起状態を考慮することにより、'自然' に量子もつれ状態(1.5-4) が導かれた。

1.5.3 光子ペア状態

宮城らは、 $\left| {}^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty) \right\rangle$ ((1.5-4) 式) から、それが放出する Lyman- α 光子ペアの状態、つまり、2光子状態を導いた。時刻 $t=0$ において(1.5-4) 式で表される H(2p) 原子ペアが生成するとしよう。始状態は $\left| {}^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty) \right\rangle$ と光子数 0 の状態 $|0\rangle$ の直積

$$|\Psi(t=0)\rangle = \left| {}^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty) \right\rangle \otimes |0\rangle \quad (1.5-5)$$

である。各々の H(2p_m) 原子は寿命 1.6 ns [Bet97] で崩壊し、Lyman- α 光子を1つ放出する(自然放出)。 $\Delta m = -1, 0, +1$ の自然放出によって生成する Lyman- α 光子状態をそれぞれ $|\gamma\rangle, |\phi\rangle, |\rho\rangle$ と表す。(1.5-5) 式を展開すると、その各項は以下のように時間とともに移り変わる。

$$\left| 2p_1^a(i) \right\rangle \otimes |0\rangle \rightarrow \left| 1s^a(i) \right\rangle \otimes |\gamma_a\rangle, \quad \left| 2p_1^b(i) \right\rangle \otimes |0\rangle \rightarrow \left| 1s^b(i) \right\rangle \otimes |\gamma_b\rangle \quad (1.5-6 a)$$

$$|2p_0^a(i)\rangle \otimes |0\rangle \longrightarrow |1s^a(i)\rangle \otimes |\phi_a\rangle, \quad |2p_0^b(i)\rangle \otimes |0\rangle \longrightarrow |1s^b(i)\rangle \otimes |\phi_b\rangle \quad (1.5-6 \text{ b})$$

$$|2p_{-1}^a(i)\rangle \otimes |0\rangle \longrightarrow |1s^a(i)\rangle \otimes |\rho_a\rangle, \quad |2p_{-1}^b(i)\rangle \otimes |0\rangle \longrightarrow |1s^b(i)\rangle \otimes |\rho_b\rangle \quad (1.5-6 \text{ c})$$

と時間発展する。(1.5-6) 式より、 $|\Psi(t=0)\rangle$ の時間発展が以下のように導かれる。

$$\begin{aligned} |\Psi(t=0)\rangle \longrightarrow & \frac{1}{\sqrt{2}} \{ |1s^a(1)1s^b(2)\rangle + |1s^a(2)1s^b(1)\rangle \} \\ & \otimes \frac{1}{2} \{ (|\gamma_a\phi_b\rangle - |\phi_a\gamma_b\rangle) - (|\rho_a\phi_b\rangle - |\phi_a\rho_b\rangle) \} \end{aligned} \quad (1.5-7)$$

(1.5-7) 式から放出された Lyman- α 光子ペア状態が

$$|\psi\rangle = \frac{1}{2} \{ (|\gamma_a\phi_b\rangle - |\phi_a\gamma_b\rangle) - (|\rho_a\phi_b\rangle - |\phi_a\rho_b\rangle) \} \quad (1.5-8)$$

と求まる。(1.5-8) 式においては、水素原子 a から放出される光子と b から放出される光子の状態は確定しておらず (γ, ϕ, ρ に注目)、 $|\psi\rangle$ は量子もつれ状態である。原子ペア $\left| {}^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty) \right\rangle$ に生じた量子もつれが光子ペア ($|\psi\rangle$) に転写されることが分かる。

1.5.4 2 光子相関関数

宮城らは量子光学の手法に基づいて Lyman- α 光子ペアの角度相関関数を計算した。位置 r_c におかれた検出器 c が時刻 t_c に Lyman- α 光子を 1 つ検出し、位置 r_d におかれた検出器 d が時刻 t_d に Lyman- α 光子を 1 つ検出する確率密度は、2 光子相関関数

$$G^{(2)}(\mathbf{r}_c, t_c, \mathbf{r}_d, t_d) = \langle \psi | \mathbf{E}^{(-)}(\mathbf{r}_c, t_c) \mathbf{E}^{(-)}(\mathbf{r}_d, t_d) \mathbf{E}^{(+)}(\mathbf{r}_d, t_d) \mathbf{E}^{(+)}(\mathbf{r}_c, t_c) | \psi \rangle \quad (1.5-9)$$

に比例する [Scu97]。 $\mathbf{E}^{(+)}(\mathbf{r}, t)$ と $\mathbf{E}^{(-)}(\mathbf{r}, t)$ はそれぞれ電場演算子の正周波数成分と負周波数成分である。図 1.5-1 において原点 O から検出器 c, d までの距離を $R=|\mathbf{r}_c|=|\mathbf{r}_d|$ とする。また 2 つのプロトンの位置を $\mathbf{r}_a, \mathbf{r}_b$ とすると $|\mathbf{r}_a| \simeq |\mathbf{r}_b| \ll R$ の関係がある。(1.5-8) 式の $|\psi\rangle$ に対して、2 光子相関関数を計算して、以下が得られた。

$$G^{(2)}(\mathbf{r}_c, t_c, \mathbf{r}_d, t_d) = \frac{1}{2} \left(\frac{\omega^2 p}{4\pi\epsilon_0 c^2} \right)^4 f(\hat{\mathbf{r}}_c, \hat{\mathbf{r}}_d) \left[1 - \cos \left(\omega \frac{r_{ca} - r_{cb} + r_{db} - r_{da}}{c} \right) \right] \\ \times \frac{1}{R^4} \exp \left\{ -\Gamma \left[(t_c + t_d) - \frac{2R}{c} \right] \right\} \Theta \left(t_c - \frac{R}{c} \right) \Theta \left(t_d - \frac{R}{c} \right) \quad (1.5-10)$$

ただし、 $r_{ca} = |\mathbf{r}_c - \mathbf{r}_a|$, $r_{cb} = |\mathbf{r}_c - \mathbf{r}_b|$, $r_{da} = |\mathbf{r}_d - \mathbf{r}_a|$, $r_{db} = |\mathbf{r}_d - \mathbf{r}_b|$ であり、 c は光速である。また $\Gamma^{-1} = 1.6 \text{ ns}$ [Bet97] は H(2p) 原子の寿命である。 $\Theta(x)$ は階段関数であり、 $x > 0$ では $\Theta(x) = 1$, $x < 0$ では $\Theta(x) = 0$ となる。 $\hat{\mathbf{r}}_c$ と $\hat{\mathbf{r}}_d$ はそれぞれ \mathbf{r}_c 方向および \mathbf{r}_d 方向の単位ベクトルである。上式において $f(\hat{\mathbf{r}}_c, \hat{\mathbf{r}}_d)$ は時刻 t_c, t_d に依存せず、光子ペア状態 $|\psi\rangle$ (もとをたどれば励起水素原子ペア状態 $|^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty)\rangle$) および検出器 c, d の配置によって変化する。つぎに $\cos \left(\omega \frac{r_{ca} - r_{cb} + r_{db} - r_{da}}{c} \right)$ の項を考察しよう。Lyman- α 光子の波長 121.6 nm から $\omega/c = (19 \text{ nm})^{-1}$ である。一方、 $r_{ca} - r_{cb} + r_{db} - r_{da}$ は $\hat{\mathbf{r}}_c$ と $\hat{\mathbf{r}}_d$ を変えると大雑把に言うと 200 μm から -200 μm まで変化する(1.4 節で述べた H(2p) 原子間距離参照)。したがって $\cos(\dots)$ の項は $\hat{\mathbf{r}}_c$ と $\hat{\mathbf{r}}_d$ を変えると -1 と 1 の間を激しく振動することになる。このような振動は実際の検出器が点でないことや、観測領域が点でないことを考慮すると平均されてしまっ見えなくなってしまうであろう。すなわち $\cos(\dots)$ を 0 に置き換えても差し支えない。結局、 $f(\hat{\mathbf{r}}_c, \hat{\mathbf{r}}_d)$ が Lyman- α 光子ペアの角度相関関数となることがわかる。以下に具体的な表現を示す。

$$f(\hat{\mathbf{r}}_c, \hat{\mathbf{r}}_d) = 2 \left\{ |\hat{\mathbf{r}}_c \times \hat{\mathbf{p}}_\gamma|^2 |\hat{\mathbf{r}}_d \times \hat{\mathbf{p}}_\phi|^2 + |\hat{\mathbf{r}}_c \times \hat{\mathbf{p}}_\phi|^2 |\hat{\mathbf{r}}_d \times \hat{\mathbf{p}}_\gamma|^2 \right. \\ - [(\hat{\mathbf{r}}_c \times \hat{\mathbf{p}}_\gamma) \cdot (\hat{\mathbf{r}}_c \times \hat{\mathbf{p}}_\phi)] [(\hat{\mathbf{r}}_d \times \hat{\mathbf{p}}_\gamma) \cdot (\hat{\mathbf{r}}_d \times \hat{\mathbf{p}}_\phi)] \\ - [(\hat{\mathbf{r}}_c \times \hat{\mathbf{p}}_\gamma) \cdot (\hat{\mathbf{r}}_c \times \hat{\mathbf{p}}_\phi)] [(\hat{\mathbf{r}}_d \times \hat{\mathbf{p}}_\gamma^*) \cdot (\hat{\mathbf{r}}_d \times \hat{\mathbf{p}}_\phi)] \\ - [(\hat{\mathbf{r}}_c \times \hat{\mathbf{p}}_\gamma^*) \cdot (\hat{\mathbf{r}}_c \times \hat{\mathbf{p}}_\phi)] [(\hat{\mathbf{r}}_d \times \hat{\mathbf{p}}_\gamma) \cdot (\hat{\mathbf{r}}_d \times \hat{\mathbf{p}}_\phi)] \\ \left. - [(\hat{\mathbf{r}}_c \times \hat{\mathbf{p}}_\gamma^*) \cdot (\hat{\mathbf{r}}_c \times \hat{\mathbf{p}}_\phi)] [(\hat{\mathbf{r}}_d \times \hat{\mathbf{p}}_\gamma^*) \cdot (\hat{\mathbf{r}}_d \times \hat{\mathbf{p}}_\phi)] \right\} \\ + (\hat{\mathbf{r}}_c \times \hat{\mathbf{p}}_\gamma)^2 |\hat{\mathbf{r}}_d \times \hat{\mathbf{p}}_\phi|^2 + |\hat{\mathbf{r}}_c \times \hat{\mathbf{p}}_\phi|^2 (\hat{\mathbf{r}}_d \times \hat{\mathbf{p}}_\gamma)^2 \\ + (\hat{\mathbf{r}}_c \times \hat{\mathbf{p}}_\gamma^*)^2 |\hat{\mathbf{r}}_d \times \hat{\mathbf{p}}_\phi|^2 + |\hat{\mathbf{r}}_c \times \hat{\mathbf{p}}_\phi|^2 (\hat{\mathbf{r}}_d \times \hat{\mathbf{p}}_\gamma^*)^2 \quad (1.5-11)$$

$\hat{\mathbf{r}}_c$ と $\hat{\mathbf{r}}_d$ はそれぞれすでに説明したとおり、 $\hat{\mathbf{r}}_c = \mathbf{r}_c/|\mathbf{r}_c|$, $\hat{\mathbf{r}}_d = \mathbf{r}_d/|\mathbf{r}_d|$ である。本実験において検出器 c, d は YZ 面内におかれる。 $\hat{\mathbf{r}}_c$ と $\hat{\mathbf{r}}_d$ を空間固定 XYZ 座標系から観測してデカルト座標で表示すると、

$$\hat{\mathbf{r}}_c = \begin{pmatrix} 0 \\ -\sin \Theta_c \\ \cos \Theta_c \end{pmatrix}_{XYZ}, \quad \hat{\mathbf{r}}_d = \begin{pmatrix} 0 \\ -\sin \Theta_d \\ \cos \Theta_d \end{pmatrix}_{XYZ} \quad (1.5-12)$$

となる。また、 $\mathbf{p}_\gamma, \mathbf{p}_\phi, \mathbf{p}_\rho$ はそれぞれ $\Delta m = -1, 0, 1$ 遷移に対する電気的雙極子モーメントである。それぞれの方向の単位ベクトルを $\hat{\mathbf{p}}_\gamma, \hat{\mathbf{p}}_\phi, \hat{\mathbf{p}}_\rho$ とする。また $p = |\mathbf{p}_\gamma| = |\mathbf{p}_\phi| = |\mathbf{p}_\rho|$ である。 $\hat{\mathbf{p}}_\gamma, \hat{\mathbf{p}}_\phi, \hat{\mathbf{p}}_\rho$ を分子固定 xyz 座標系から観測し、デカルト座標で表示すると、

$$\hat{\mathbf{p}}_\gamma = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ i \\ 0 \end{pmatrix}_{xyz}, \quad \hat{\mathbf{p}}_\phi = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}_{xyz}, \quad \hat{\mathbf{p}}_\rho = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} -1 \\ i \\ 0 \end{pmatrix}_{xyz} \quad (1.5-13)$$

となる。なお、分子固定 xyz 座標系から観測したデカルト座標 $(x, y, z)_{xyz}$ と空間固定 XYZ 座標系から観測したデカルト座標 $(X, Y, Z)_{XYZ}$ のあいだには以下の関係がある。

$$\begin{pmatrix} X \\ Y \\ Z \end{pmatrix}_{XYZ} = \begin{pmatrix} \cos \varphi \cos \theta & -\sin \varphi & \cos \varphi \sin \theta \\ \sin \varphi \cos \theta & \cos \varphi & \sin \varphi \sin \theta \\ -\sin \theta & 0 & \cos \theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix}_{xyz} \quad (1.5-14)$$

(1.5-13) 式と(1.5-14) 式から、 $\hat{\mathbf{p}}_\gamma, \hat{\mathbf{p}}_\phi, \hat{\mathbf{p}}_\rho$ を空間固定 XYZ 座標系から観測したデカルト座標表示が得られる。このようにして(1.5-11) 式に現れる全てのベクトルについて、空間固定 XYZ 座標系から観測したデカルト座標表示が得られる。これを用いれば、 $\Theta_c, \Theta_d, \theta, \phi$ の関数として Lyman- α 光子ペアの角度相関関数が計算できる。ここで θ と ϕ により核間軸方向の向きが決まることに注意してほしい。Lyman- α 光子ペアの角度相関関数は光子ペア状態 $|\psi\rangle$ ((1.5-8) 式) を反映しており、もとをたどれば量子もつれ H(2p) 原子ペア状態 $\left| {}^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty) \right\rangle$ ((1.5-4) 式) に由来する。

さて実験で得られるコインシデンスタイムスペクトルは、検出器 c, d による光子の検出時刻差 $T = t_c - t_d$ の頻度分布であるから、2光子相関関数 $G^{(2)}(\mathbf{r}_c, t_c, \mathbf{r}_d, t_d)$ を用いて以下のように表される。

$$F(T; \mathbf{r}_c, \mathbf{r}_d) \propto \int_{-\infty}^{\infty} dt_c G^{(2)}(\mathbf{r}_c, t_c, \mathbf{r}_d, T + t_c) \propto f(\hat{\mathbf{r}}_c, \hat{\mathbf{r}}_d) \exp(-I|T|) \quad (1.5-15)$$

1.5.5 計算結果

1.5.4 節では、核間軸の向きが (θ, ϕ) に固定された H(2p) 原子ペアから放出される Lyman- α 光子ペアの角度相関関数、つまり(1.5-11) 式の $f(\hat{\mathbf{r}}_c, \hat{\mathbf{r}}_d)$ を求めた。ただし、実際には、過程(1.4-1)' の $\text{H}_2(\text{X } ^1\Sigma_g^+)$ はランダムに配向している。 $\text{H}_2^*[\text{Q}_2^1\Pi_u(1)]$ 状態のポテンシャルエネルギー曲線は反発型であり、したがってその解離においては axial recoil 近似が良く成り立つ[Zar72]。その場合の核間軸の分布は $\frac{3}{8\pi} \sin^2 \theta$ で与えられる[Zar72]。これを重みとして $f(\hat{\mathbf{r}}_c, \hat{\mathbf{r}}_d)$ の角度平均をとると、 $\text{H}_2(\text{X } ^1\Sigma_g^+)$ がランダムに配向した場合の Lyman- α 光子ペアの角度相関関数を得ることができる。具体的には

$$\begin{aligned} f^M\left(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2}\right) &= \frac{3}{8\pi} \int \sin^2 \theta \sin \theta d\theta d\phi f(\hat{\mathbf{r}}_c, \hat{\mathbf{r}}_d) \\ &= \frac{9}{512\pi^2} [3 - \cos(2\Theta_c) - \cos(2\Theta_d) - \cos\{2(\Theta_c - \Theta_d)\}] \end{aligned} \quad (1.5-16)$$

となり、 $f^M(\Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ は以下のように規格化されている。

$$\int f^M(\Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d) d\Omega_c d\Omega_d = 1 \quad (1.5-17)$$

この規格化は本節の冒頭で述べた角度相関関数の物理的意味、すなわち与えられた 2 方向に光子が放出される確率密度関数、に基づいている。図 1.5-2(a) に $f^M(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ を (Θ_c, Θ_d) に対して表示する。確率密度が 0 まで落ちるような強いコントラストが現れることが分かる。これは、H(2p) 原子ペアの量子もつれ状態 $\left| ^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty) \right\rangle$ の反映である。

宮城らは、H(2p) 原子ペア状態 $\left| ^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty) \right\rangle$ の量子もつれが破れた場合を想定し、(1.5-8) 式の光子ペア状態 $|\psi\rangle$ の各項、つまり $|\gamma_a \phi_b\rangle, |\phi_a \gamma_b\rangle, |\rho_a \phi_b\rangle, |\phi_a \rho_b\rangle$ と表されるペア状態に対しても、Lyman- α 光子ペアの角度相関関数を計算した。これら 4 つの光子ペアは、それぞれ

$$(1.5-4) \text{ 式の最初の 2 項} = |2p_1^a(1)2p_0^b(2)\rangle + |2p_1^a(2)2p_0^b(1)\rangle,$$

$$\begin{aligned}
(1.5-4) \text{ 式の 2 番目の 2 項} &= -(|2p_0^a(1)2p_1^b(2)\rangle + |2p_0^a(2)2p_1^b(1)\rangle), \\
(1.5-4) \text{ 式の 3 番目の 2 項} &= -(|2p_{-1}^a(1)2p_0^b(2)\rangle + |2p_{-1}^a(2)2p_0^b(1)\rangle), \\
(1.5-4) \text{ 式の 4 番目の 2 項} &= |2p_0^a(1)2p_{-1}^b(2)\rangle + |2p_0^a(2)2p_{-1}^b(1)\rangle \quad (1.5-18)
\end{aligned}$$

にある H(2p) 原子ペアから放出される。(1.5-4) 式の量子もつれ状態 $|^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty)\rangle$ においては、各々の水素原子の磁気量子数が定まらない重ね合わせ状態であるのに対し、(1.5-18) 式のどの状態においても、各々の水素原子の磁気量子数は定まっている。光子ペア状態 $|\gamma_a\phi_b\rangle, |\phi_a\gamma_b\rangle, |\rho_a\phi_b\rangle, |\phi_a\rho_b\rangle$ は、すべて同じ角度相関関数を与える(以下参照)。したがって(1.5-18) 式の H(2p) 原子ペア状態は、全て同じ角度相関関数を与えることになる。

$$f_{\gamma\phi}^M\left(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2}\right) = \frac{9}{8960\pi^2} [62 + 3 \cos(2\Theta_c) + 3 \cos(2\Theta_d) - 4 \cos\{2(\Theta_c - \Theta_d)\}] \quad (1.5-19)$$

上式は、 $\text{H}_2(\text{X } ^1\Sigma_g^+)$ がランダムに配向している場合の結果であり、また、(1.5-17) 式にしたがって規格化されている。図 1.5-2(b) に $f_{\gamma\phi}^M(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ を (Θ_c, Θ_d) に対して表示する。図 1.5-2(a) と(b) を比べると、各々の水素原子の磁気量指数が定まるか、定まらないかによって、角度相関関数が大きく異なることが一目瞭然である。すなわち確立密度がどこで最大になり、どこで最小となるかが、大きく異なる。また、コントラストの強さも著しく異なる。宮城らの研究により、解離 H(2p) 原子ペアの量子もつれが Lyman- α 光子ペアの角度相関関数により診断できることがわかった。

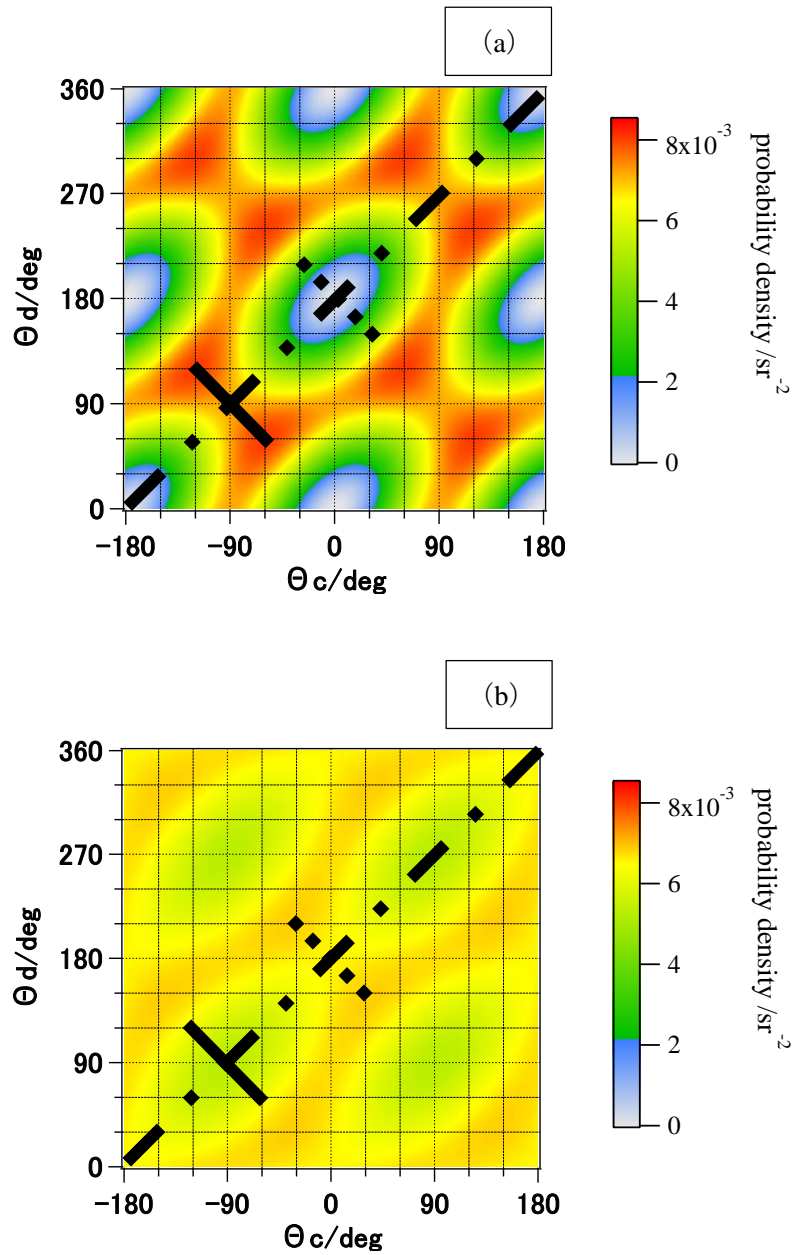


図 1.5-2 : 過程(1.4-1)' の $\text{H}_2 (X^1\Sigma_g^+)$ がランダムに配向した場合の Lyman- α 光子ペアの角度相関関数の理論予測[Miy07]。(a)各々の水素原子の磁気量子数が定まらない(1.5-4) 式の量子もつれ $\text{H}(2p)$ 原子ペア状態 $\left| {}^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty) \right\rangle$ に由来する $f^M(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$, (b) 各々の水素原子の磁気量子数が定まった(1.5-18) 式の $\text{H}(2p)$ 原子ペア状態に由来する $f_{Y\phi}^M(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$. 一点鎖線 ; 対向配置($\Theta_d = \Theta_c + \pi$), 点線 ; 非対向配置($\Theta_d = \pi - \Theta_c$), 実線 ; 非対向配置($\Theta_d = -\Theta_c$).

1.6 他グループによる理論研究

宮城らによる理論研究が報告された後、他のグループからも角度相関関数の計算結果が報告された[Jän10]。Jänkälä らは、任意の 2 原子分子を対象に光解離過程により発生する 2 光子の角度相関関数を定式化した。この定式化では摂動論に基づき分子の始状態から終状態までの遷移双極子モーメントが計算された。すなわち、直線偏光した入射光子による分子の励起とそれに続く 2 回の光子放出という計 3 種類の双極子モーメントである。各々の双極子遷移は、量子数 J, M, Ω で指定される分子の状態間の遷移である。ただし J は分子の全角運動量、 M, Ω はそれぞれ実験室座標系および分子固定座標系の量子化軸への射影である。2 光子放出過程は、宮城らのように 2 個の原子が独立に崩壊するモデルではなく、分子の状態間のカスケードとして記述される。Jänkälä らの計算手法は、分子の光解離により発生する 1 光子の角度微分断面積を定式化した van Brunt and Zare [Bru68] の手法を 2 光子放出過程に拡張したものである。van Brunt and Zare の理論では、ある分子配向における双極子モーメントの実験室座標軸への正射影をとり、絶対値 2 乗する。これを分子配向の重みを考慮し平均化すると射影軸方向に偏光した光子の角度微分断面積が得られる。ただし、Jänkälä らの角度微分断面積の計算においては、van Brunt and Zare の理論にはない coherent summation が考慮されている。これは、光子を放出する中間状態の射影量子数 Ω が $+\Omega$ 状態と $-\Omega$ 状態の重ね合わせ状態にあることを考慮して双極子モーメントを足し合わせる手法であり、角度微分断面積に干渉項を生み出す。Vigué *et al.* は Ca_2 の光解離により発生する Ca 原子から放出される蛍光の偏光度を測定し、van Brunt and Zare の予測よりも大きな偏光度を得た。そしてこの測定結果が、中間状態における射影量子数の重ね合わせ効果により説明できることを示した[Vig81, Vig83]。Jänkälä らによる過程(1.4-1)' 由来の角度相関関数の計算においても、光子をカスケード放出する 2 つの中間状態の射影量子数に対する coherent summation が考慮された。2 光子放出に伴い 2 つの中間状態の射影量子数が辿る経路は、放出もとである水素原子ペアの量子もつれ状態を反映する。ただし、Jänkälä らは過程(1.4-1)' により生成する量子もつれ $\text{H}(2p)$ 原子ペアの波動関数を明確には示していない。

Jänkälä らの計算の概略図は、おおよそ図 1.5-1 に示した宮城の理論の概略図と同じである。直線偏光した入射光の偏光ベクトル $\hat{\epsilon}$ の向きを空間固定座標系の Z 軸の正の向きにとり、入射光の波数ベクトル \mathbf{k} の向きを X 軸の正の向きにとる。ただし、入射光に直交する面内に置かれた 2 個の光子検出器の方位角を宮城らは $(\Phi_c, \Phi_d) = (\frac{3\pi}{2}, \frac{3\pi}{2})$ と表

したのに対し、Jänkälä らは $(\Phi_n, \Phi_m) = (\frac{\pi}{2}, \frac{3\pi}{2})$ と表した。 n, m とは、2 個の光子に対して放出された順につけるラベルである。 $(\Theta_n, \Phi_n = \frac{\pi}{2}, \Theta_m, \Phi_m = \frac{3\pi}{2})$ 空間で計算された Jänkälä らの角度相関関数を宮城らの $(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ 空間の角度相関関数に変換するには、極座標 (Θ_n, Θ_m) を $(-\Theta_n, \Theta_m)$ と変換する。このように変換された Jänkälä らの角度相関関数は、水素分子の核間軸がランダムに配向した場合には

$$f^J\left(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2}\right) = \frac{9}{1790\pi^2} \{111 - 25 \cos 2\Theta_c - 25 \cos 2\Theta_d + 3 \cos 2(\Theta_c - \Theta_d)\} \quad (1.6-1)$$

と表される。Jänkälä らは、4 変数関数としての角度相関関数 $f^J(\Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ の具体的な関数形ではなく、2 変数関数としての角度相関関数 $f^J(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ を示した。本研究では 4 変数関数としての角度相関関数 $f^J(\Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ を導出し、(1.5-17) 式と同様に $f^J(\Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ を規格化した。これにより、宮城らと Jänkälä らによる理論予測を絶対値スケールの縦軸に載せることができるようになり、両者の違いを定性的な観点だけでなく、定量的な観点からも議論できるようになった。図 1.6-1 に $f^J(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ の計算結果を示す。Jänkälä らの角度相関関数は、垂直対向配置 $(\Theta_c, \Theta_d) = (-\frac{\pi}{2}, \frac{\pi}{2}), (\frac{\pi}{2}, -\frac{\pi}{2})$ に付近で極大になり、水平対向配置 $(\Theta_c, \Theta_d) = (0, \pi), (\pi, 0)$ 付近で極小になるという点で、定性的には(1.5-16) 式の宮城らの角度相関関数と一致する。しかし宮城らのように強度が 0 まで落ちる強い異方性はない。現在までに、2 つの理論の不一致の原因は明らかになっていない。2 つの理論には多くの相違点があるが、どちらの理論も量子もつれ H(2p) 原子ペアから放出される 2 光子状態を導出し、2 光子の検出確率を 2 個の検出器の角度の関数として求めるという点は共通である。しかし、量子もつれ H(2p) 原子から放出される Lyman- α 光子ペアの検出を、宮城らは量子光学的に扱ったのに対し、Jänkälä らは古典的に扱った。

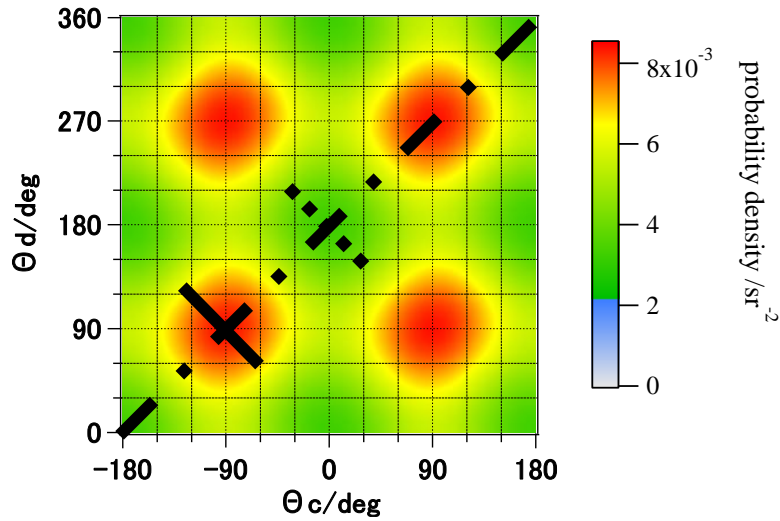


図 1.6-1 : 水素分子の核間軸がランダムに配向した場合の Jänkälä らによる角度相関関数の理論予測 $f^J(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ [Jän10]。角度 Θ_c, Θ_d は、入射光軸に垂直な空間固定 YZ 面内で、直線偏光した入射光の偏光ベクトル $\hat{\epsilon}$ から測った光子検出器 c, d の回転角度、縦軸は Lyman- α 光子ペアの検出強度の確率密度を表す。一点鎖線 ; 対向配置($\Theta_d = \Theta_c + \pi$), 点線 ; 非対向配置($\Theta_d = \pi - \Theta_c$), 実線 ; 非対向配置($\Theta_d = -\Theta_c$)。

1.7 量子もつれH(2p) 原子ペア生成の検証実験 -これまでの経緯-

1.5 節で述べたように、過程(1.4-1)' により生成する Lyman- α 光子ペアの角度相関関数は、その放出もとである解離 H(2p) 原子ペアの量子もつれの良いプローブとなる[Miy07]。そこで Lyman- α 光子ペアの角度相関関数を測定し、理論予測の検証を行う実験がこれまで本研究室により行われてきた[Tan09, Tan10, Tan10R, Nak12, Kou13]。田辺らは、入射光子エネルギー33.66 eV, 水素ガス圧力 0.02 – 0.40 Pa の範囲において Lyman- α 光子ペアの角度相関関数およびコインシデンスタイムスペクトルを測定した[Tan09, Tan10, Tan10R]。この測定において、2 個の光子検出器 c, d は入射光軸に直交する面内(図 1.5-1 の YZ 面内) で互いに向かい合う配置(対向配置, $\Theta_d = \Theta_c + \pi$) に固定された。これは、図 1.5-2 および図 1.6-1 の一点鎖線上で角度相関関数を測定したことを意味する。田辺らは、水素ガス圧力を下げるにつ

れて角度相関関数が宮城らの理論予測に近づくことを報告した。また、コインシデンスタイムスペクトル((1.5-15) 式参照) から求めた減衰時定数が、水素ガス圧力を下げるにつれて H(2p) 原子の寿命 1.6 ns [Bet97] よりも短くなり、水素ガス圧力 0.02 Pa ではその寿命の半分程度になることを報告した[Tan09, Tan10, Tan10R]。この圧力効果をより詳細に調べる過程で、実験チェンバーの外から飛来する偽の同時計数が 2 光子同時計数に混入していることが本研究室の向後により発見された[Kou13]。向後は水素ガスも入射光も無い条件で同時計数実験を行い、偽の同時計数の角度異方性と時間構造を測定し、その正体を調べた。偽の同時計数の詳細については第 3 章で述べるが、その寄与の全体(偽の同時計数 + 真の同時計数) に対する割合は、田辺らが測定を行った最低の水素ガス圧 0.02 Pa においては 30–60% におよび、無視できない大きさであることがわかった。一方圧力 0.40 Pa では、その割合は 10% 以下であった。向後は入射光子エネルギー 33.66 eV、水素ガス圧力 0.01 – 1.2 Pa の範囲において偽の同時計数の影響を受けない角度相関関数とコインシデンスタイムスペクトルを対向配置において測定した[Kou13]。向後は、測定中の装置のアライメントのドリフトをモニターし、reference 測定により装置のドリフトの影響を相殺した。その結果、水素ガス圧力 0.01–1.2 Pa の範囲において、対向配置に限られているが、角度範囲幅 2π にわたり、ほとんどゆがみの無い角度相関関数を測定することに成功した。また、角度相関関数にもコインシデンスタイムスペクトルの減衰時定数にも圧力効果は観測されなかった。詳細は 3.4 節で述べるが、田辺らが報告した角度相関関数とコインシデンスタイムスペクトルの圧力効果は、偽の同時計数に由来しているのであろう。向後の研究は、本研究と密接に関係しているので第 4 章において適宜引用する。

以上がこれまでの検証実験の経緯である。偽の同時計数を含まず、ゆがみのない角度相関関数を得ることができるようになった一方、理論予測の検証という点では、対向配置($\Theta_d = \Theta_c + \pi$) でしか角度相関関数を測定できていない。というのは、これまでの実験で使用した装置では、回転軸がひとつであるため、2 個の光子検出器を入射光軸まわりに独立に回転できなかつたからである。つまり図 1.5-1 において Θ_c と Θ_d を独立に変えられなかつたのである。

1.8 本研究の目的

本研究は、Lyman- α 光子ペアの角度相関関数を測定し、過程(1.4-1)' により生成する H(2p) 原子ペアの状態を解明する研究である。本研究室によるこれまでの角度相関関数測定にお

いて、2個の光子検出器 c, d は、入射光軸に直交する面内(図 1.5-1 の YZ 面内) で向かい合う配置(対向配置, $\Theta_d = \Theta_c + \pi$) に固定されていた[Tan09, Tan10, Tan10R, Nak12, Kou13]。しかし、1.5 節で述べた宮城らによる理論予測、および 1.6 節で述べた Jänkälä らによる理論予測を検証するには、対向配置の測定だけでは不十分である。それは、(i) 各々の水素原子の磁気量子数が定まらない量子もつれ $H(2p)$ 原子ペア状態に対する 2 種類の理論予測、 $f^M(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ [Miy07] および $f^J(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ [Jän10] と、(ii) 各々の水素原子の磁気量子数が定まった $H(2p)$ 原子ペア状態に対する理論予測 $f_{\gamma\phi}^M(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ の関数形を考えれば理解できる。これら 3 種類の理論予測はすべて

$$f\left(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2}\right) = a + b \cos 2\Theta_c + b \cos 2\Theta_d + c \cos 2(\Theta_c - \Theta_d) \quad (1.8-1)$$

と表され、係数 a, b, c が異なるだけである。ここで、対向配置($\Theta_d = \Theta_c + \pi$) の場合を考えてみる。(1.8-1) 式に $\Theta_d = \Theta_c + \pi$ を代入すると

$$\begin{aligned} f\left(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d = \Theta_c + \pi, \Phi_d = \frac{3\pi}{2}\right) &= a + b \cos 2\Theta_c + b \cos 2(\Theta_c + \pi) + c \cos(-2\pi) \\ &= (a + c) + 2b \cos 2\Theta_c \end{aligned} \quad (1.8-2)$$

となる。測定結果が(1.8-2) 式の理論予測とまったく同じ関数形になるという根拠は無いが、もしそうであるとしても、対向配置の測定により決まるのは係数の比 $(a + c) : b$ だけである。3 種類の係数の比 $a : b : c$ を決めるには、対向配置($\Theta_d = \Theta_c + \pi$) 以外の測定、つまり非対向配置における測定が必要である。言い換えれば、非対向配置における測定のほうが対向配置における測定よりも厳しく理論を検証できる。しかし、1.7 節で述べたように、これまでの角度相関関数測定に使用した装置では 2 個の光子検出器を独立に回転できなかった。そこで本研究では、(i) 2 個の光子検出器が独立に回転する装置を開発すること、(ii) 開発した装置により対向配置だけでなく非対向配置における角度相関関数を測定すること、さらに(iii) 測定結果と理論予測との比較から、過程(1.4-1)' により生成する $H(2p)$ 原子ペアの状態を解明することを目的とした。

第2章 実験

本章では、過程(1.4-1)'により発生するLyman- α 光子ペアの角度相関関数を測定する方法を述べる。本実験では、シンクロトロン放射光のパルス特性を利用し、Lyman- α 光子ペアの時間分解測定を行った。Lyman- α 光子が検出器 c, d に検出された時刻 t_c, t_d を測定し、検出時刻差が $T = t_d - t_c$ である事象の頻度を計数した(同時計数測定)。本章では、まず光源の性質について述べた後、2個の光子検出器を入射光軸のまわりに独立に回転できる装置の開発について述べる。さらに同時計数測定により得られたデータを解析し、角度相関関数を求める方法について述べる。

2.1 光源

2.1.1 放射光

実験は高エネルギー加速器研究機構(KEK)物質構造科学研究所(IMSS)、放射光科学研究施設(Photon Factory, 以下PF)で行った。電磁気学においてよく知られているように、光速で運動している電子を、運動方向に対して垂直に加速すると、運動方向前方に強い電磁波が発生する。シンクロトロン放射光とは、蓄積リング中を周回し光速に加速された電子が、外部磁場によって軌道を曲げられる際に接線方向に発生する光である。接線方向に放出された光は、観測者にとっては、時間幅の短いパルス光として観測される。また放射光には偏光特性があり、蓄積リングの軌道面で観測すると完全な直線偏光になり、水平面から外れると楕円偏光になる。放射光の特徴をまとめると、以下のようなになる [Kam05]。

1. 電子がほぼ光速にまで加速されているため、指向性が非常に高い。
2. 波長約0.05 nm 程度のX線領域から赤外領域におよぶ、広範囲な連続スペクトルを持つ。
3. PFの放射光は、100ピコ秒程度の時間幅を持つパルス光である。
4. 直線偏光、円偏光などの偏光を利用できる。

PFでは、2.5 GeV、もしくは3 GeV の電子が蓄積リングを周回している。蓄積リングは、500.1 MHz のradio frequency (以下RF) 加速空洞と、偏向電磁石が交互に並ぶよう構成されている。蓄積リング内の電子が、偏向電磁石により軌道を曲げられた際に放射光が放出される。蓄積リングの接線方向に放出された放射光は、ビームラインを通してユーザーに届く。ビームラインによっては、偏向磁石ではなくアンジュレーターからの放射光を利用することができる。アンジュレーターとは、永久磁石を組み合わせることで電子を何度も蛇行させ、より強度の大きい放射光を得る装置である。電子は放射光を放出することでエネルギーを失うが、RFで再び加速されてエネルギーを補充する。電子はRFの周波数500.1 MHz で決まる安定位置に電子群(バンチ) となってリング内を周回し、バンチとバンチの間隔は2 ns である。

PF では、マルチバンチ運転、シングルバンチ運転およびハイブリッド運転という3種類の運転モードがある。マルチバンチ運転ではリング内にバンチが複数あり、シングルバンチ運転ではリング内にバンチが1つのみ存在する。ハイブリッド運転では、リング内に連続したバンチ列と孤立したバンチが共存している、本実験は、マルチバンチ運転時に行った。

リング内を周回する電子は、放射光の放出やリング内の残留ガスとの衝突などにより蓄積電流値が徐々に減衰し、それに伴って光量も減衰していく。これを補うため入射器から連続的に電子を入射する方式(トップアップ入射) が採用されることがある。それに対してある程度蓄積電流値が減少してから入射する方式がある。これをストレージ入射モードという。PF ではストレージ入射モードでは、1日2回、12時間おきに行われることが多い。基本的にはトップアップモードで運転されているが、週に1回加速器のメンテナンスなどによりストレージモードに切り替わる。トップアップモードでは蓄積電流値が 449.98 ± 0.03 mA に保たれている[Hon12]。本研究では、主にトップアップモードにて測定を行ったが、一部、ストレージモードでも測定を行っている。

2.1.2 ビームライン

実験はBL20A および BL28B という2ヶ所のビームラインにて行った。BL20A は偏向磁石ビームライン、BL28B はアンジュレータービームラインであり、エネルギー分布、ビームのスポットサイズ、偏光などの特性が異なる。

BL20A は偏向磁石のビームラインで、5-40 eV のエネルギー領域をカバーする。ビーム

のスポットサイズは2 mm × 2 mm, 偏光度は~0.8 である[Hik03, Aot04]。BL20A の概略図を図2.1-1 に示す[Ito95(転載許可済み)]。BL20A は3 m Robin-Romand 型直入射分光器を中心に構成されている。図2.1-2 に示すように、この分光器は、球面回折格子、入口スリットおよび出口スリットから成り立っている[Mur06]。本実験で使用した2400 lines mm⁻¹ の回折格子では、分光器の逆線分散 $\frac{\Delta\lambda}{\Delta l}$ は0.14 nm / mm である。したがってスリット幅 Δl が1 mm の場合、波長分解能は $\Delta\lambda = 0.14$ nm となる。回折光には、若干の高次光が含まれているが、実験を行った入射光子エネルギー33.66 eV においては、その寄与は2 - 3% 程度と小さい[Mac97]。

一方BL28B はアンジュレータービームラインであり、30 - 300 eV のエネルギー領域をカバーする。ビームのスポットサイズはBL20A よりもずっと小さく、偏光度は0.98 である[Kin94]。BL28B の概略図を図2.1-3 に示す[Ono15]。分光器は、溝の間隔が一定でない不等間隔平面回折格子と出口スリットからなる。アンジュレータービームラインでは、ギャップ(アンジュレーター中の磁極の間隔) を変えることで放射光の波長分布のピーク位置を変えることができる。

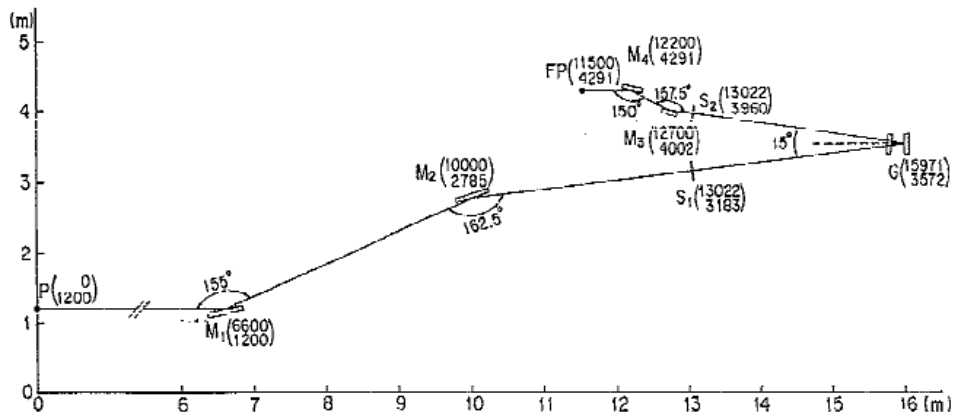


図2.1-1 : BL20A の概略図[Ito95 (転載許可済み)]。M1 : 前置第1鏡、M2 : 前置第2鏡、S1 : 入射スリット、G : 回折格子、S2 : 出射スリット、M3 : 後置第1鏡、M4 : 後置第2鏡、FP : 集光点。これら全ては紙面上にあり、分散方向は紙面上かつG-S2 に垂直方向である。図には示されていないが、本実験時には後置第2鏡の後にさらに後置第3鏡が設置されている。

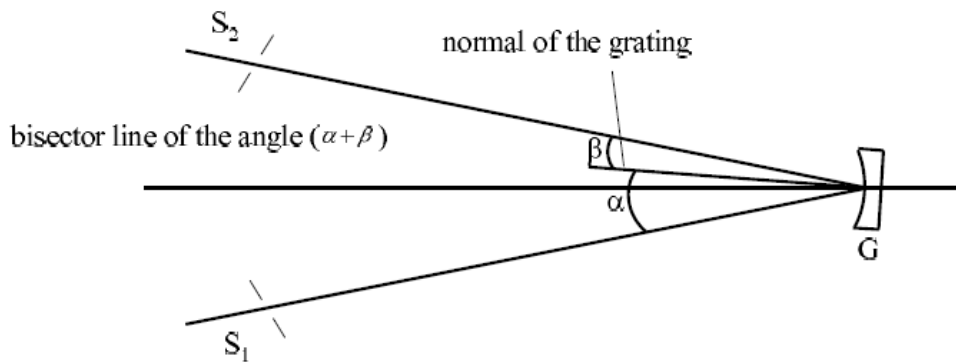


図2.1-2 : BL20A のRobin-Romand 型直入射分光器の光学系[Mur06]。回折格子の法線と入射スリットおよび出射スリットとのなす角度をそれぞれ α , β とすると、 $\alpha + \beta = 15^\circ$ である。

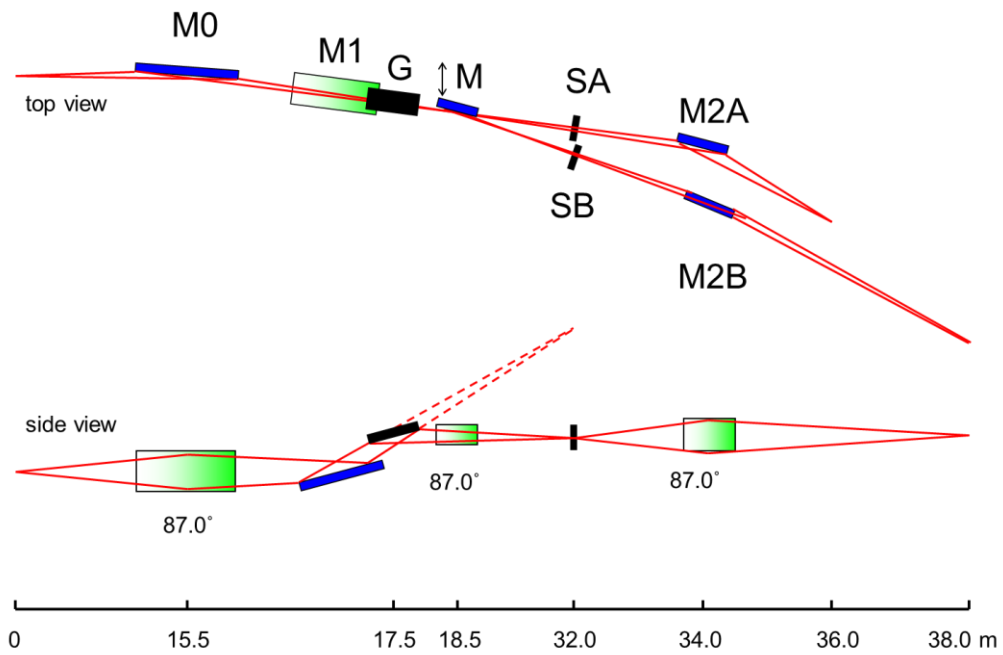


図2.1-3 : BL28B の概略図[Ono15]。M0:トロイダルミラー、 SAおよびSB: 出射スリット、 M1平面鏡、 M2およびM2B: トロイダルミラー。

2.1.3 放射光の時間構造

マルチバンチ運転における放射光パルス列を測定した結果を図2.1-4 に示す。具体的には、放射光パルスの入射が加速用RF と同期していることを利用し、放射光パルスの発生時刻と H_2 の光吸収により発生したLyman- α 光子の検出時刻との相関を測定した。横軸は、RF pick up 信号(ただし、1/312 divider (KN801) で624 ns 周期のパルス列に変換したもの) とLyman- α 光子の検出信号のtime to digital converter への到着時刻差である。縦軸は光子計数值である。放射光の時間構造は、蓄積リングのバンチの時間構造を反映する。バンチとバンチの間隔は2 ns であり、蓄積リングを1周するのに624 ns かかる。電子は63 バンチ連続して詰められ、15 バンチが連続して空となる78 バンチのパターンをもつ。したがって放射光は78 バンチ156 ns 間隔のパターンが4回繰り返されるという624 ns 周期の構造をもつ。

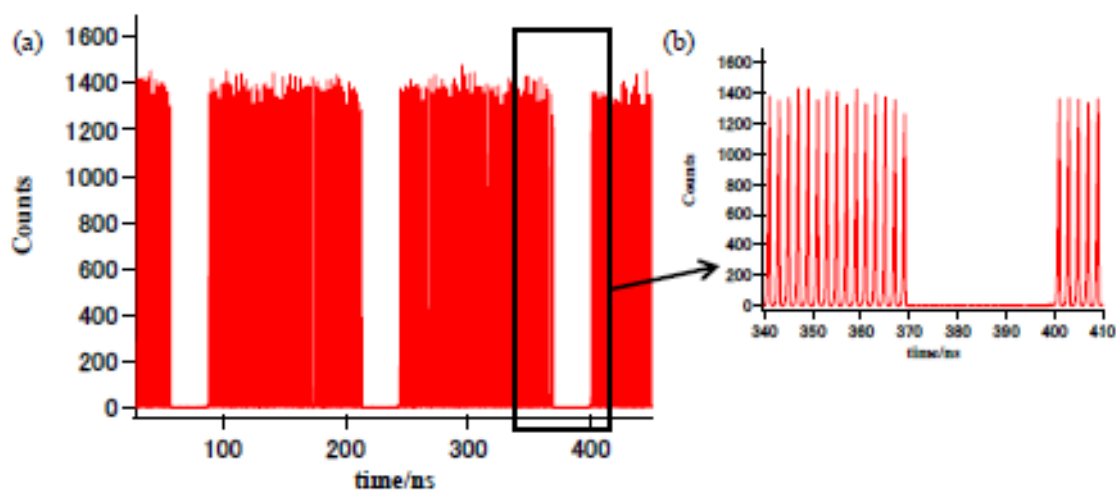


図2.1-4 :マルチバンチ運転における放射光パルス列の測定結果。

2.2 実験装置

2.2.1 ガスセル

本研究室によるこれまでの実験で使用した装置のガスセルを図2.2-1 に示す。直方体のガスセルの対向面に2個のLyman- α 光子検出器が固定されており、回転軸がひとつであるため2個の光子検出器を独立に回転することができない。本研究では、2個の光子検出器が

独立に回転する2軸装置を作成した。2軸装置のガスセルを図2.2-2 に示す。このガスセルは3層の半円形の筒からなり、内側と外側の円筒に1つずつ光子検出器が固定されている。本実験では、外側の円筒に取り付けた光子検出器を c 、内側の円筒に取り付けた光子検出器を d とラベルした。中間の筒は、内側と外側の円筒が重なり合わない部分からのガス漏れを防ぐ。外側と内側の円筒は、それぞれ真空チェンバー内のターンテーブルに設置されている。2台のターンテーブルは、真空の外から回転導入端子によりそれぞれ独立に回転できる。外側と内側の円筒の回転軸、つまり2 個の光子検出器 c と d の回転軸は一致する。2 個の光子検出器の回転範囲はそれぞれ $-180^\circ \leq \Theta_c \leq +180^\circ$, $-180^\circ \leq \Theta_d \leq +180^\circ$ であり、最近接角度 $|\Theta_c - \Theta_d|$ は 120° である。光子検出器 c と d の軸は回転軸に垂直であり、回転軸からの距離はともに 14.5 mm である。光子検出器 c と d の軸と回転軸が直交する点(空間固定XYZ 座標系の原点 O) から各光子検出器を見込む立体角の大きさは 0.64 sr である。

ガスセル前方には $\phi 2$ 、厚さ 5 mm のアパーチャー、後方には $\phi 4$, $L=45 \text{ mm}$ の筒状アパーチャーをそれぞれ取り付け、放射光ビームを整形した。後方のアパーチャーは、ガスセルから真空チェンバーへのコンダクタンスを制限する役割も担う。また、ガスセル後方には2 本の内径 $1/4$ インチパイプが通され、一方はガス導入用として、もう一方はガス圧モニター用として使用した。ガスセルの圧力はキャパシタンスマノメータ(MKS 社製Baratron Type127A) により測定した。

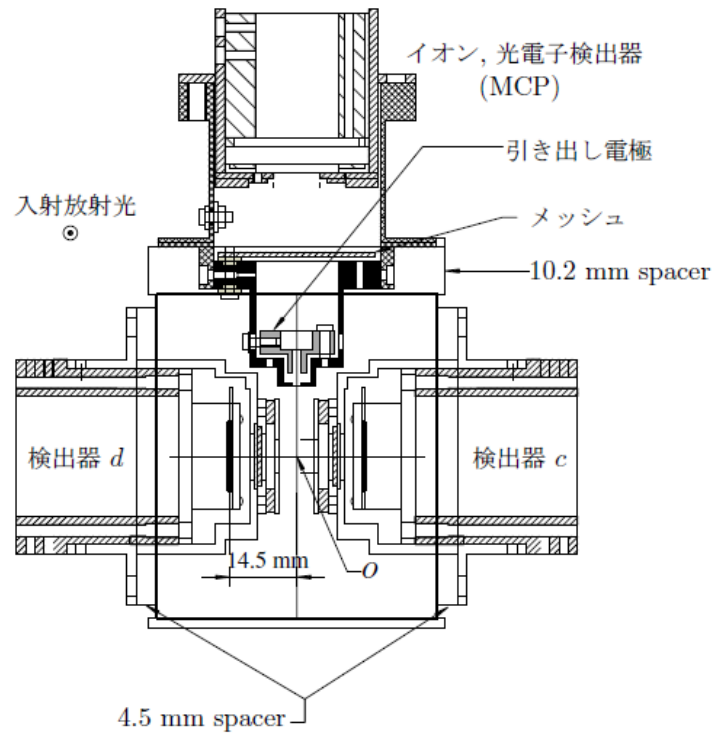
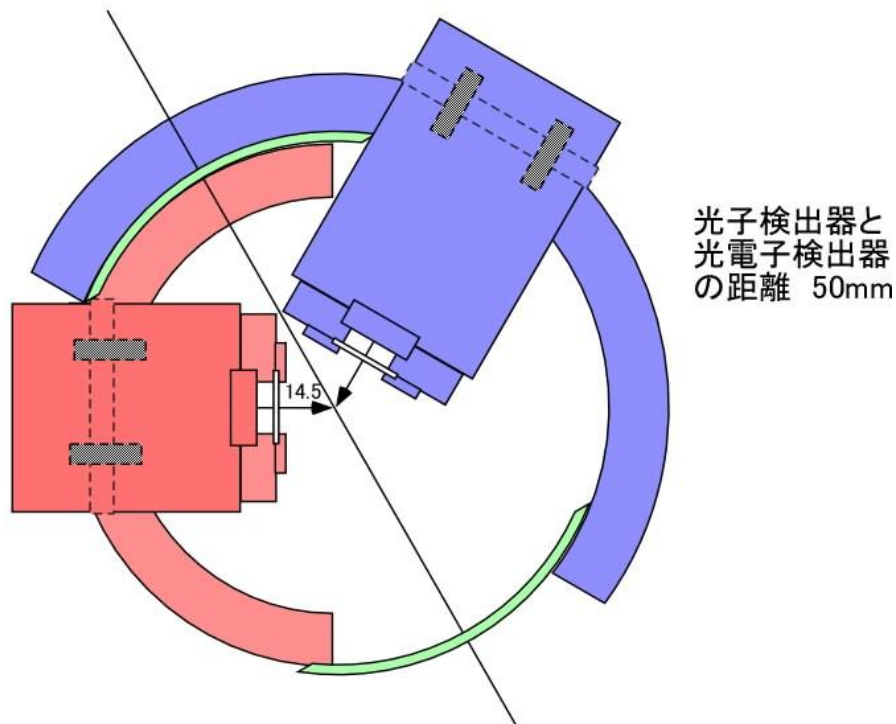


図2.2-1 : 1軸装置のガスセルの概略図。この図は、 $\Theta_c = 0^\circ$ において放射光が紙面に垂直に向かってくる向きから見た図である。直方体ガスセルの対向面に2個の光子検出器が固定されており、光軸(X 軸)からの距離はともに14.5 mmである。原点O から各検出器を見込む立体角の大きさは0.64 sr である。



内	内径 $\phi 80$	外径 $\phi 100.4$	
中	内径 $\phi 100.8$	外径 $\phi 104.6$	中央82mmカット
外	内径 $\phi 105$	外径 $\phi 128$	57mmカット

図2.2-2: 2軸装置のガスセルの概略図。この図は、放射光が紙面に垂直に向かってくる向きから見た図である。ガスセルは3層の円筒からなり、内側と外側の円筒に1つずつ光子検出器が固定されている。2個の光子検出器は光軸(X 軸) に垂直な直線上にあり、X 軸からの距離はともに14.5 mmである。原点O から各検出器を見込む立体角の大きさは0.64 sr である。図には描かれていないが、光子検出器から50 mm下流には、光電子・イオン検出器が取り付けられている。

2.2.2 Lyman- α 光子検出器

本研究では、光電面にCsI(ヨウ化セシウム)が塗布された microchannel plate (以下、MCP と記す) (浜松ホトニクス社製F4655-10) とMgF₂ 窓からなる真空紫外光子検出器を使用した。MgF₂ 窓を透過した光子が光電面を励起すると、発生した光電子が2段のMCP で2次電子増倍される。増幅された電子はアノード電極から負極性のパルスとして出力される。MCP 使用時には、約-2.3 kVの高電圧をブリーダー回路で抵抗分割し、MCP のイン-アウト間およびアウト-アノード間に電圧を供給する必要がある。この電圧は、MCP の検出効率が最大になるように決めた。

1.7 節で述べたように、本研究室の田辺らが行った角度相関関数測定[Tan09, Tan10, Tan10R] には、偽の同時計数が含まれていたことが最近分かった[Kou13]。田辺らによる角度相関関数の測定では、光電面にCsI が塗布されていないMCP を使用した。図2.2-3 に、MCP の検出効率の波長依存性を示す[Mar82(転載許可済み)]。Lyman- α 光子の波長121.6 nm において、本研究で使用したCsI 塗布型MCP の検出効率は、田辺らを使用したCsI が塗布されていないMCP に比べて約10倍大きい。一方、詳細は第3章にて述べるが、偽の同時計数に対する検出効率には、CsI の有無による差はなかった。つまりCsI 塗布型MCP はLyman- α 光子に対する感度だけを増大するため、偽の同時計数の寄与を減らすことができる。実際には、CsI塗布型MCP の検出効率は、CsI 塗布されていないMCP に対して3 - 10 倍増大した。これにより、全同時計数(真の同時計数 + 偽の同時計数) に対する偽の同時計数の寄与は、最低水素ガス圧力0.14 Pa においても1% 未満であった。

MgF₂ 窓は、応用光研工業株式会社製の ϕ 12.7 mm, 厚さ1 mm のものを使用した。これは、光子の波長を選別するフィルターの役割の他に、ガスセル内のH₂ ガス、電子およびイオンなどの荷電粒子がMCP へ流入するのを防ぐ役割も担っている。MgF₂ 窓によってガスセル内の圧力とMCP 付近の圧力は分離され、MCP 付近の圧力はチェンバー圧力にほぼ等しくなる。MCPとMgF₂ 窓からなる真空紫外光子検出器の検出波長範囲は約115 - 200 nmである[Mar82]。本研究におけるLyman- α 光子ペアの角度相関関数の測定は、入射光子エネルギー33.66 eV で行った。このエネルギーの光子によって励起される水素分子から発生する光子のうち、MgF₂ 窓のフィルターを透過して検出される光は、波長121.6 nm のLyman- α 光子のみである。

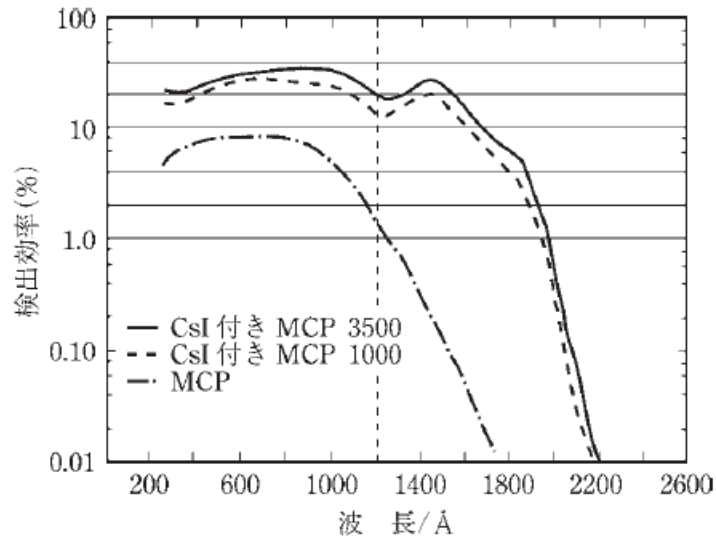


図2.2-3 : microchannel plate による光子検出効率の波長依存性[Mar82(転載許可済み)]。3500 や1000といった数字はCsIの膜の厚さである(単位はÅ)。本実験で検出するLyman- α 光子の波長は121.6 nm (1216 Å) である。

2.2.3 真空排気系

本実験では、2個の光子検出器が対向配置に固定された1軸装置と、2個の検出器を独立回転できる2軸装置を使用した。1軸装置の真空排気系は田辺博士論文[Tan10] に詳しい。2軸装置の真空排気系は1軸装置とほぼ同様である。概略図を図2.2-4 に示す。真空チェンバーは、排気速度550 L/s 及び排気速度510 L/s の2台のターボ分子ポンプ(TMP, Turbo Molecular Pump)で排気し、MCP 付近の真空を保持した。さらに、真空チェンバーとビームラインの間に差動排気室を挿入し、排気速度150 L/s のTMP で排気した。これら3 台のTMP の後段にはそれぞれロータリーポンプ(Rotary Pump, RP) をとりつけ、補助排気した。真空チェンバー内の圧力は、電離真空計(Ionization Gauge, IG) で測定した。最高到達真空度は約 10^{-6} Pa 程度であった。ガスセル内の圧力はキャパシタンスマンメータおよび小型の電離真空計で測定した。また、ガスセル内のガスがビームラインおよびチェンバーに流入するのを防ぐため、チェンバー入り口とガスセル後方にコンダクタンス制限アパーチャーを取り付けた。チェンバーの入り口には $\phi 8$, L=50 mm、ガスセル後方には $\phi 4$, L=45 mm のアパーチャーをそれぞれ取り付けた。

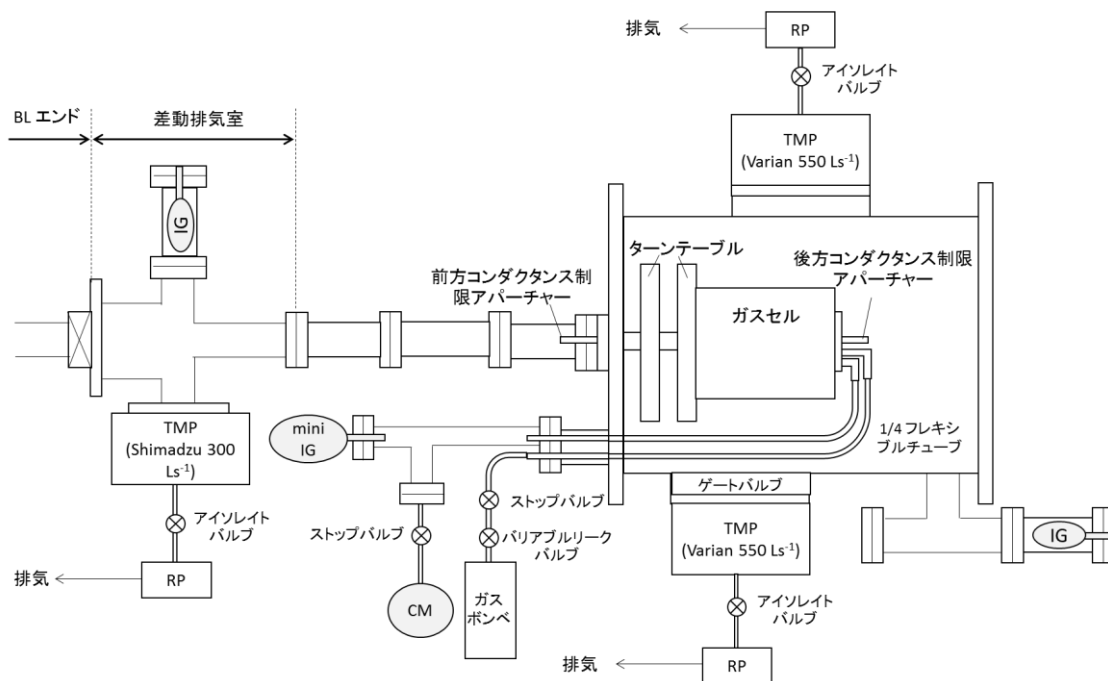


図2.2-4：2軸装置の真空排気系。ガスセルを設置したターンテーブルは、真空の外から回転導入端子で回転させる。TMP：ターボ分子ポンプ、RP：ロータリーポンプ、IG：電離真空計、CM：キャパシタンスマンメータ、mini IG：小型電離真空計。チェンバーの入り口とガスセル後方にコンダクタンス制限アパーチャーをそれぞれ取り付けた。

2.2.4 2光子同時計数系

Lyman- α 光子ペアの同時計数系のブロック図を図2.2-5 に示す。図2.2-5 は、入射放射光(直線偏光)により光解離した水素分子から発生するLyman- α 光子ペアを、2個の光子検出器 c と d で同時計数する様子を表している(水素分子は図中には示されていない)。光子検出器 c と d は入射光軸に直交する面内(YZ 面内)におかれ、入射光軸(X 軸)を回転軸として独立に回転する。それらの角度 Θ_c と Θ_d は入射光の偏光ベクトル $\hat{\epsilon}$ (Z 軸に平行)から測る。検出器 c, d からの信号は遅延同時計数回路を介してtime-to-digital converter (TDC)に入力し、それぞれの到着時刻 t_c, t_d を記録した。以下に、ブロック図中の略語の説明と役割を述べる。

▶ preAMP

MCPのアノード電極からの微弱な信号を増幅し、後段の回路へ入力するための前置増幅器のことである。本研究ではPhillips Scientific 社製Model 6954 Fast Pulse Amplifier を用いた。利得は20倍、周波数帯域は100 KHz - 1.5 GHz, 立ち上がり時間は220 ps である。

▶ CFD

コンスタントフラクシオンディスクリミネーターのことである。本研究では、ORTEC社製の584 CFD をLE (Leading Edge) モードで使用した。CFD に入力されるパルス信号には、Lyman- α 光子由来の信号と、光がなくても発生するノイズ信号が含まれる。ノイズ信号は波高が低いいため、CFD に適切なしきい値(ディスクリレベル)を設定することで、しきい値以上の波高のパルス信号のみを取り出すことができる。ディスクリレベルを横切ったパルス信号は波形整形を受け、時間ゆらぎの小さいfast negative output がTDC に出力される。また、slow positive output がカウンターへ出力される。

▶ Delay

検出器 d の信号は約20 m のケーブルによって約100 ns 遅延させた後、TDC に入力した。

▶ TDC (Time to Digital Converter)

検出器 c および d からの信号が入力される時刻をリストデータとして記録する。本研究ではRoentdek 社製のTDC8HP を用いた。TDC8HP の1チャンネルあたりの時間幅は25.1 ps

である。この値は、2種類の時間校正測定によって決めた。1つめは、タイムキャリブレータ(ORTEC 462 Time Calibrator) を用いた校正である。2つめは、PF リングの500.1 MHz の RF pick up 信号を1/312 divider(KN801) に取り込み、出力された624 ns 周期のパルス列を利用した測定である。

検出器 c の信号がトリガーであり、TDC に入力された時刻を $t_c=0$ する。トリガー入力後gate time 3 μ s 内に検出器 d の信号が入力されると、入力時刻 t_d が2回まで記録される。ただし、実験の圧力条件から考えて、gate time の間に1度でも同時計数される確率は非常に小さく、同時計数されてもせいぜい1回である。検出器 d の信号は約20 m のケーブルによって約100 ns 遅延されるため、真の同時計数に対しては $t_d \geq t_c$ となる ($t_d < t_c$ の事象は記録されない)。到着時刻差が $T = t_d - t_c$ である事象の頻度を T の関数としてプロットしたものがLyman- α 光子ペアのコインシデンスタイムスペクトルである。

▶ Counter

測定時の2つのLyman- α 光子検出器の計数率をモニターする。BL20A またはBL28B 備え付けのカウンタ(横河電機株式会社製WE800) を使用した。

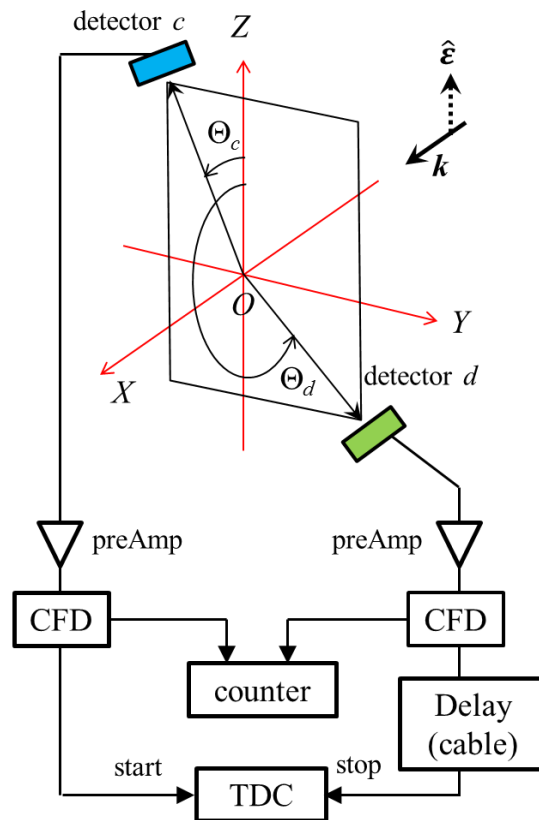


図2.2-5 : Lyman- α 光子ペアの同時計数系のブロック図。入射放射光(直線偏光)により光解離した水素分子から発生するLyman- α 光子ペアを、2個の光子検出器 c と d で同時計数する様子を表している(水素分子は図中には示されていない)。光子検出器 c と d は入射光軸に直交する面内(YZ 面内)におかれ、入射光軸(X 軸)を回転軸として独立に回転する。それらの角度 Θ_c と Θ_d は入射光の偏光ベクトル $\hat{\epsilon}$ (Z 軸に平行)から測る。本図に示した向きが Θ_c と Θ_d の正の向きである。検出器 c, d からの信号は遅延同時計数回路を介してtime-to-digital converter (TDC)に入力し、それぞれの到着時刻 t_c, t_d を記録した。preAMP: 前置増幅器, CFD: constant fraction discriminator (波高弁別器), Delay (cable): 遅延ケーブル, TDC: time-to-digital converter(時間波高変換器), counter: カウンター。

2.3 Lyman- α 光子ペアのコインシデンスタイムスペクトルの解析方法

本節では、与えられた検出器の角度($\Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d$)における同時計数測定により得られた Lyman- α 光子ペアのコインシデンスタイムスペクトルから真の同時計数率を求める方法を示す。

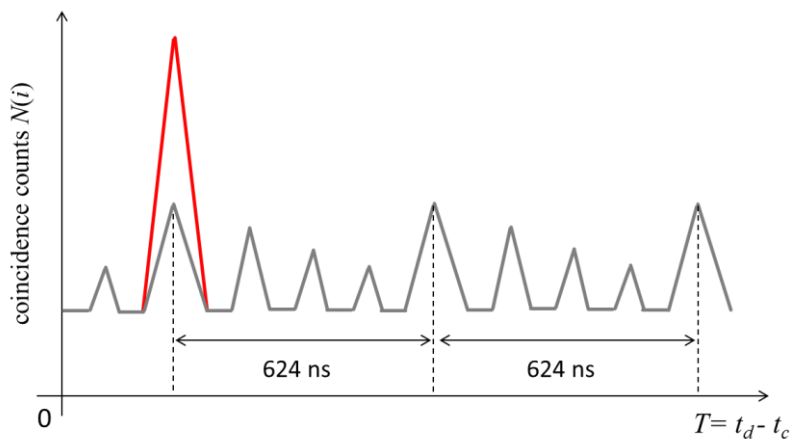


図2.3-1: コインシデンスタイムスペクトルの概略図。縦軸は同時計数値 $N(i)$ 、横軸は検出器 c からの信号と d からの信号がtime to digital converter (TDC) に到着する時刻の差 $T = t_d - t_c$ である。ただし T そのものではなく、 T の微小区間であるチャンネル i が横軸である。

2.3.1 偶然の同時計数

図2.3-1 にコインシデンスタイムスペクトルの概略図を示す。縦軸は同時計数値 $N(i)$ 、横軸は検出器 c からの信号と d からの信号がtime to digital converter (TDC) に到着する時刻の差 $T = t_d - t_c$ である。ただし T そのものではなく、 T の微小区間であるチャンネル i が横軸である。コインシデンスタイムスペクトルは、偶然の同時計数値 $N_{\text{acci}}(T)$ の上に真の同時計数値 $N_{\text{true}}(T)$ によるピークが乗った形となる。真の同時計数値 $N_{\text{true}}(T)$ とは、1個の H_2 分子から発生するLyman- α 光子ペアに由来する事象の計数値である。一方、偶然の同時計数値 $N_{\text{acci}}(T)$ とは、異なる H_2 分子から発生する2個のLyman- α 光子に由来する事象の計数値である。図2.1-4 に示したように放射光パルスは2 ns 間隔、624 ns 周期のパルス列である。

ため、偶然の同時計数部分にも624 ns 周期の構造が現れる。この周期構造を利用して、コインシデンスタイムスペクトルから偶然の同時計数部分を差し引いた。具体的には、時刻差 T における偶然の同時計数 $N_{\text{acci}}(T)$ がその1周期後および2周期後のそれと等価であることを利用し、その平均値を $N(T)$ から差し引いた。したがって真の同時計数値 $N_{\text{true}}(T)$ は

$$N_{\text{true}}(T) = N(T) - \frac{1}{2}\{N_{\text{acci1}}(T + 624 \text{ ns}) + N_{\text{acci2}}(T + 624 \text{ ns} \times 2)\} \quad (2.3-1)$$

と表される。ただし、 $N_{\text{acci1}}(T + 624 \text{ ns})$ および $N_{\text{acci2}}(T + 624 \text{ ns} \times 2)$ は、それぞれ T から1周期後、および2周期後の偶然の同時計数値である。入射光子エネルギー 33.66 eV, 水素ガス圧力1.4 Pa, $(\Theta_c, \Theta_d) = (90^\circ, -90^\circ)$ において測定されたLyman- α 光子ペアのコインシデンスタイムスペクトルを図2.3-2 に示す(Θ_c, Θ_d の定義は図2.2-5 に示した)。偶然の同時計数部分は差し引いてある。また、TDC 4チャンネル分を1点にまとめているため、タイムスペクトル1チャンネルの時間幅は0.1004 ns / ch である。

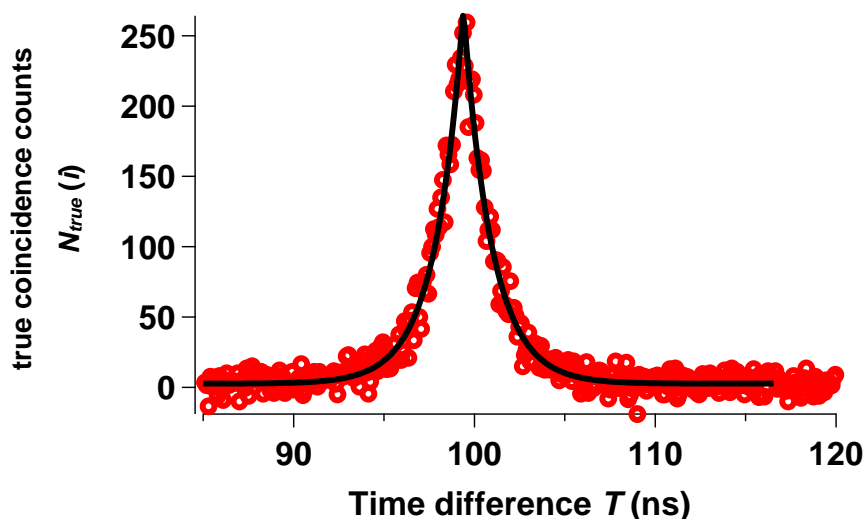


図2.3-2: 入射光子エネルギー33.66 eV, 水素ガス圧力1.4 Pa, $(\Theta_c, \Theta_d) = (90^\circ, -90^\circ)$ において測定されたLyman- α 光子ペアのコインシデンスタイムスペクトル。偶然の同時計数部分は差し引き済である。横軸は検出時刻差 $T = t_d - t_c$ である。1チャンネルあたりの時間幅は100 ps である。縦軸は(2.3-1) 式で示した真の同時計数値 $N_{\text{true}}(T)$ である。実線は(2.3-4) 式によるbest-fitted curveである。

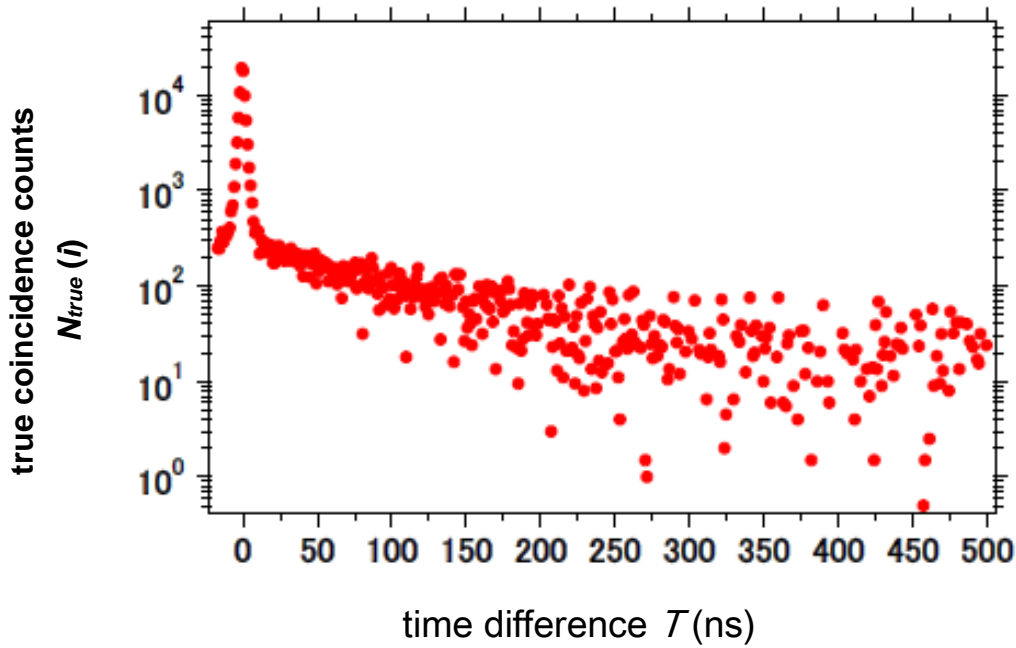
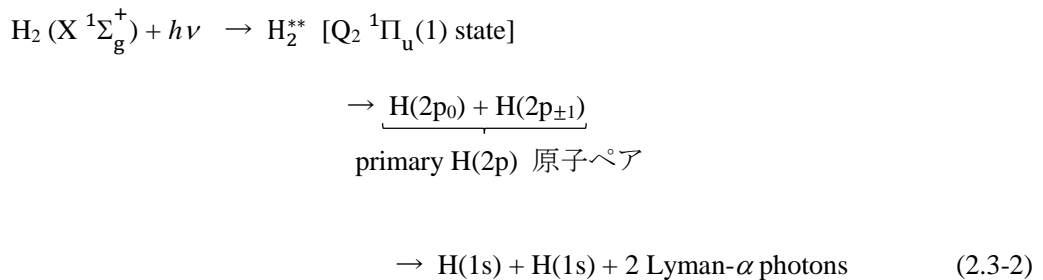


図2.3-3：縦軸が対数表示のコインシデンスタイムスペクトル[Kou13]。偶然の同時計数は差し引き済みである。横軸は検出時刻差 $T = t_d - t_c$ である。1チャンネルあたりの時間幅は100 ps である。縦軸は(2.3-1) 式で示した真の同時計数値 $N_{true}(T)$ である。

2.3.2 遅い時定数の成分

図2.3-3 に、Lyman- α 光子ペアのコインシデンスタイムスペクトルの縦軸を対数表示にて示す[Kou13]。偶然の同時計数部分は2.3.1 節で述べた方法で差し引き済みである。宮城らの理論によれば[Miy07]、過程(1.4-1)' により発生するLyman- α 光子ペアのコインシデンスタイムスペクトルの減衰時定数は、H(2p) 原子の寿命 $\tau^1 = 1.6$ ns [Bet97] に一致するはずである。本研究では、過程(1.4-1)' により生成するH(2p) 原子ペアをprimary H(2p) 原子ペアと呼ぶことにする。つまり



というわけである。図2.3-3 のコインシデンスタイムスペクトルにはprimary H(2p) ペアに由来する成分だけでなく、減衰時定数約100 ns の遅い成分も含まれていることが分かる。この遅い成分は、光解離により生成したH(2s) 原子の*l*-changing reaction、およびH($n \geq 3$) 原子からのカスケードの影響として説明できる。*l*-changing reaction とは、光解離により生成したH(2s) 原子とH₂ 分子との反応により、H(2p) 原子が生成する反応である。



また、この場合のカスケードとは、主量子数 n が3 以上の励起水素原子がH(2p) 原子に到る過程である。起こりそうなカスケードと遷移確率を図2.3-4 に示す。1.4 節で述べたように、角度相関関数の測定は入射光子エネルギー33.66 eV でおこなった。これはH($n=3$) + H($n=3$) の解離極限(28.65 eV) およびH($n=4$) + H($n=4$) の解離極限(29.97 eV) よりも高いエネルギーであるため、H₂ 分子の光励起により生成可能である。ただし、これらの状態の生成断面積は $1/n^3$ 則に従うため、H($n=3$) の寄与が主であると考えられる。H(3s) 原子の寿命は160 ns であり、H(3d) 原子の寿命は15.6 ns である[Bet97, Lau98]。

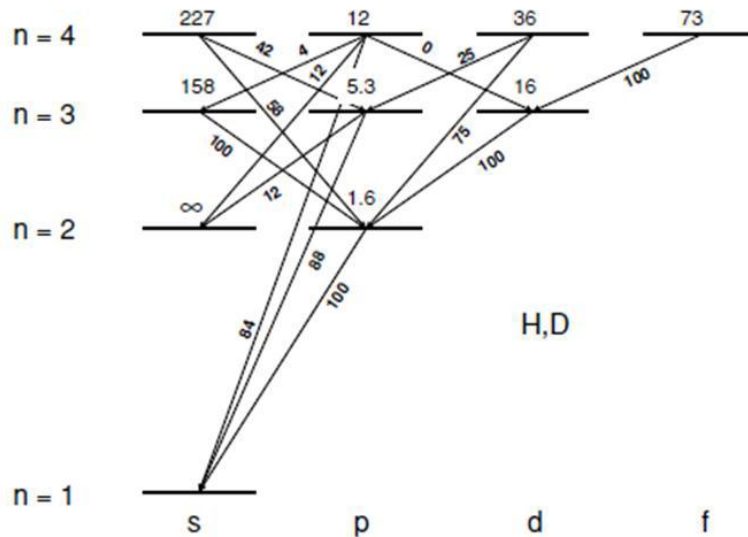


図2.3-4：励起状態の水素原子からのカスケードと遷移確率[Kou13]。

図2.3-2 のコインシデンスタイムスペクトルにおいて、ピーク中心 ± 16 ns の領域は、寿命1.6 ns のprimary H(2p) 原子ペアに由来するピークをほぼ網羅する。この領域において減衰時定数約100 ns の遅い成分は、一定とみなすことができる。そこで、コインシデンスタイムスペクトルのピーク中心 ± 16 ns の範囲に対して、以下の(2.3-4) 式をフィットし、真の同時計数値 $N_{true}(i)$ から遅い成分を分離した。

$$N_{true}(T) = C_1 \exp\left(-\frac{|T-T_0|}{\tau}\right) + C_2 \quad (2.3-4)$$

- C_1 : 真の同時計数ピークの高さ(counts)
- T_0 : 真の同時計数ピーク的位置 (ns)
- τ : 減衰時定数 (ns)
- C_2 : 遅い成分の同時計数値 (counts)

フィッティングパラメーターは C_1, T_0, τ および C_2 である。第2項が遅い成分を表す。図2.3-2 の実線は、(2.3-4) 式をフィットしたbest-fitted curve である。減衰時定数 τ はH(2p) 原子の寿命1.6 ns [Bet97] によく一致した。また、 C_2 の値は C_1 の値の1パーセント以下であった。しかし、念のため、真の同時計数値 $N_{true}(T)$ から遅い成分の寄与を取り除いた。これを $N_{cd}(T)$ とすると、以下のように表される。

$$N_{cd}(T) = N_{true}(T) - C_2 = C_1 \exp\left(-\frac{|T-T_0|}{\tau}\right) \quad (2.3-5)$$

図2.3-5 に示すように、真の同時計数ピークから (2.3-4) 式のフィットにより求めたオフセット C_2 を差し引いた部分が $N_{cd}(T)$ である。 $N_{cd}(T)$ のピーク部分の面積を N_{cd} とし、ピーク中心 ± 50 ns の範囲において求める。

$$N_{cd} = \sum_{T=\text{peak}-50 \text{ ns}}^{T=\text{peak}+50 \text{ ns}} N_{cd}(T) \quad (2.3-6)$$

N_{cd} は、(2.3-3) 式の l -changing 反応、およびカスケードに由来する遅い成分の寄与を除い

た真の同時計数値である。(2.3-1) 式および(2.3-5) 式より、

$$\begin{aligned}
 N_{cd} &= \sum_{T=\text{peak}-50 \text{ ns}}^{T=\text{peak}+50 \text{ ns}} \{N_{true}(T) - C_2\} \\
 &= \sum_{T=\text{peak}-50 \text{ ns}}^{T=\text{peak}+50 \text{ ns}} \left\{ N(T) - \frac{1}{2} \{N_{acci1}(T + 624 \text{ ns}) + N_{acci2}(i + 624 \text{ ns} \times 2)\} - C_2 \right\} \\
 &= N_{tot} - \frac{1}{2} \{N_{acci2} + N_{acci2}\} - N_{sec}
 \end{aligned} \tag{2.3-7}$$

と表される。ただし、 N_{tot} , N_{acci} , N_{sec} はそれぞれ以下の式で与えられる。

$$N_{tot} = \sum_{i=\text{peak}-50 \text{ ns}}^{T=\text{peak}+50 \text{ ns}} N(T) \tag{2.3-8a}$$

$$N_{acci} = \sum_{i=\text{peak}-50 \text{ ns}}^{T=\text{peak}+50 \text{ ns}} N_{acci}(T) \tag{2.3-8b}$$

$$N_{sec} = \sum_{i=\text{peak}-50 \text{ ns}}^{T=\text{peak}+50 \text{ ns}} C_2 \tag{2.3-8c}$$

また、 N_{cd} を測定時間 t で規格化した量を \dot{N}_{cd} (counts s⁻¹)とする。(2.3-7) 式より

$$\begin{aligned}
 \dot{N}_{cd} &= \frac{N_{cd}}{t} \\
 &= \frac{N_{tot} - \frac{1}{2} \{N_{acci2} + N_{acci2}\} - N_{sec}}{t}
 \end{aligned} \tag{2.3-9}$$

と書ける。 \dot{N}_{cd} は、(2.3-3) 式の l -changing 反応、およびカスケードに由来する遅い成分の寄与を除いた真の同時計数率である。

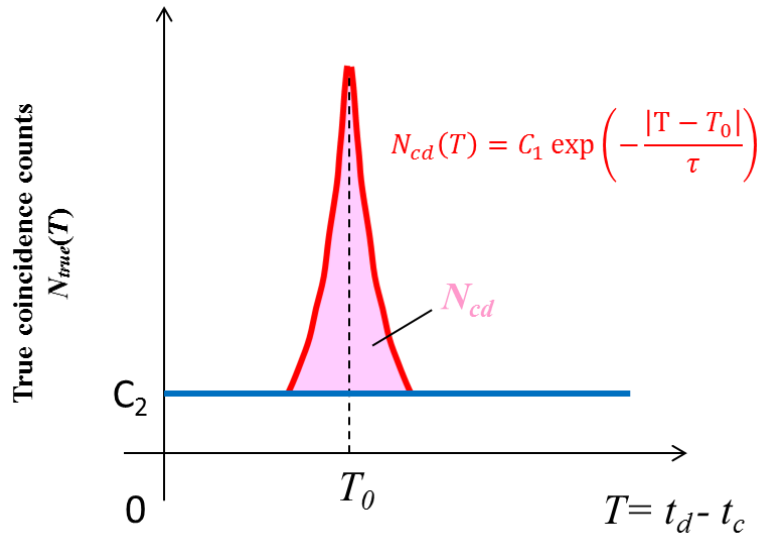
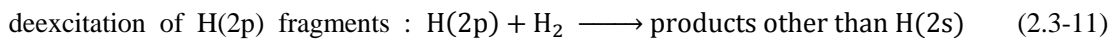


図2.3-5：タイムスペクトルの模式図。縦軸は(2.3-4) 式の真の同時計数値 $N_{\text{true}}(T)$ である。ピーク中心 $\pm 16 \text{ ns}$ の範囲において、減衰時定数約 100 ns の遅い成分は定数とみなせる。真の同時計数値 $N_{\text{true}}(T)$ から遅い成分の寄与 C_2 を差し引いた部分が $N_{\text{cd}}(T)$ である。 $N_{\text{cd}}(T)$ が成すピーク部分の面積が真の同時計数値 N_{cd} である。

過程(2.3-2) に示したprimary H(2p) 原子ペアから放出されるLyman- α 光子ペアの同時計数率は、水素ガス圧力と比例関係にある。しかし、解離生成したH($n=2$) 原子と水素原子の反応が含まれる場合、同時計数率は圧力に対して単純な比例関係ではない。(2.3-3) 式のH(2s) 原子の*l*-changing reaction の寄与は先に述べた方法で差し引いたが、以下の2種類の反応



の影響も考慮しなければならない。(2.3-10) 式および(2.3-11) 式は、ともに解離生成したH(2p) 原子が水素分子と反応し、Lyman- α 光子を放出する前に消失する過程であり、primary H(2p) 原子ペアの見かけの寿命を短くする。これらの反応の寄与を調べるため、遅い成分の寄与を除いた同時計数率 \dot{N}_{cd} ((2.3-9) 式参照) を入射光量で規格化し、水素ガス圧力依存性を調べた。結果を図2.3-6 に示す[Nak14(転載許可済み)]。入射光子エネルギーは 33.66 V であり、対向配置 ($\Theta_d = \Theta_c + \pi$) における4種類の角度、 $(\Theta_c, \Theta_d) = (-180^\circ, 0^\circ), (-90^\circ, 90^\circ), (0^\circ,$

180°), (90°, -90°) にて行った。図2.3-6 より、入射光量で規格化された \dot{N}_{cd} は、水素ガス圧力 1.2 Pa までの範囲で、圧力に対して比例関係にあることが分かる。したがって、 \dot{N}_{cd} には、水素分子と解離生成したH(2p) 原子ペアの反応の影響は含まれていないと言える。また、この比例関係より、角度相関関数を測定した圧力の範囲は適切であることを示す。そこで、 \dot{N}_{cd} を入射光量と圧力で規格化した量を角度(Θ_c, Θ_d) の関数としてプロットすることで角度相関関数を得た。図2.3-6 の比例関係は、角度相関関数がほとんど圧力に依存しないことを示している。

また、水素ガス圧力および検出器の角度(Θ_c, Θ_d) によらず、コインシデンスタイムスペクトルに(2.3-4) 式をフィットして求めた減衰時定数 τ はH(2p) 原子の寿命1.6 ns [Bet97] によく一致した。したがってコインシデンスタイムスペクトルには、(2.3-10) 式のH(2p) 原子の*l*-changing reaction や(2.3-11) 式のdeexcitation の影響は含まれていないと言える。この結論は、図2.3-6 の比例関係とも矛盾しない。以上より、水素ガス圧1.2 Pa までの範囲において、本研究で測定された角度相関関数は、解離生成したH($n=2$) 原子と水素原子の反応の影響、およびH($n \geq 3$) 原子からのカスケードの影響を含まない。つまり、解離生成したprimary H(2p) 原子ペアに由来するLyman- α 光子ペアの角度相関関数であると言える。

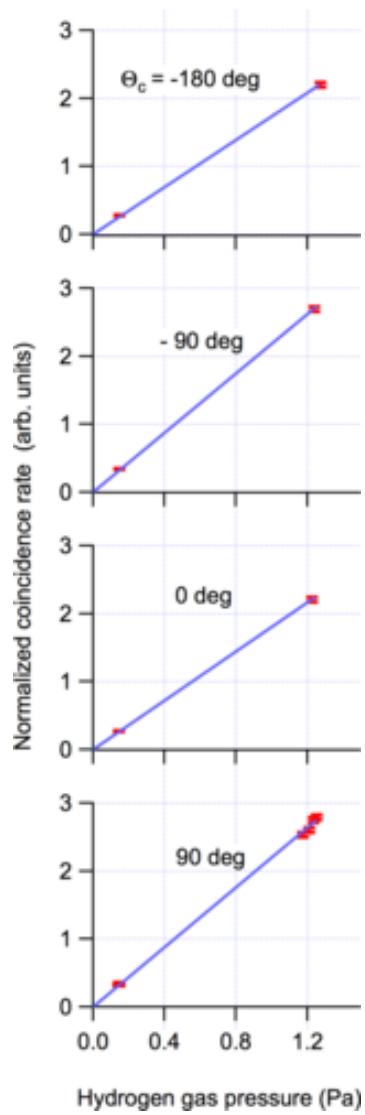


図2.3-6: 真の同時計数率 \dot{N}_{cd} を入射光量で規格化し、 H_2 ガス圧力に対してプロットした図[Nak14(転載許可済み)]。測定は入射光子エネルギー33.66 eV, 対向配置 ($\Theta_d = \Theta_c + \pi$) における4種類の角度、 $(\Theta_c, \Theta_d) = (-180^\circ, 0^\circ), (-90^\circ, 90^\circ), (0^\circ, 180^\circ), (90^\circ, -90^\circ)$ にて行った。

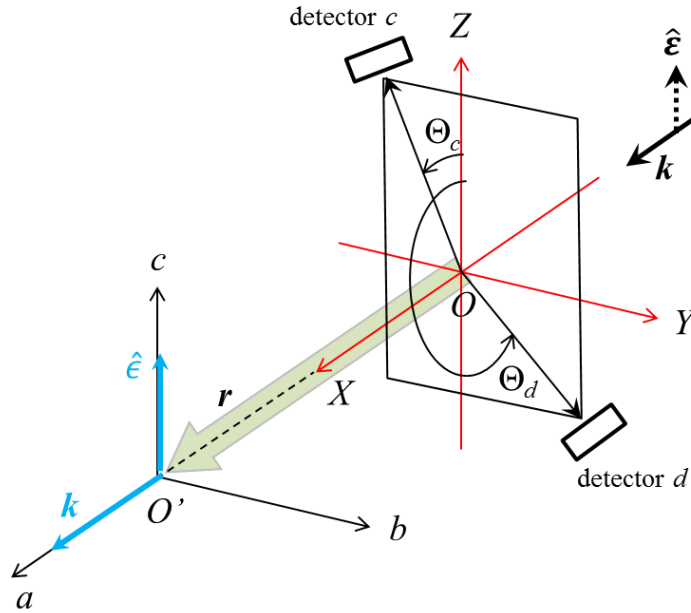


図2.4-1: 原点を O とする空間固定 XYZ 座標系と原点を O' とする abc 座標系の関係。 X 軸と入射光の波数ベクトル k が平行、 Z 軸と入射放射光の偏光ベクトル $\hat{\epsilon}$ が平行である。2つの光子検出器を c と d は元々 Z 軸上にあるとする。そして空間固定 XYZ 座標系に対して、 c と d の方向を表すEuler角をそれぞれ $(\Phi_c, \Theta_c, 0)$ および $(\Phi_d, \Theta_d, 0)$ とする。本図のように、光子検出器 c, d を入射光軸に直交する YZ 面内におく場合は、 $\Phi_c = \Phi_d = \frac{3\pi}{2}$ となる。この場合、入射光軸(X 軸に平行) 周りの光子検出器の回転角度 Θ_c, Θ_d の正の向きは、 X 軸の正の向きに向かってみると反時計周りの向きである。つまり本図の Θ_c と Θ_d の向きは正の向きである。2個のプロトンの重心 O' を原点とする abc 座標系を、 X 軸と a 軸が平行、 Y 軸と b 軸が平行、 Z 軸と c 軸が平行になるように定義する。 abc 座標系から見た2個のLyman- α 光子の放出方向を (θ_i, ϕ_i) および (θ_j, ϕ_j) とする。原点 O から原点 O' へ向かうベクトルを $\mathbf{r} = (X, Y, Z)$ とする。

2.4 Lyman- α 光子ペアの角度相関関数の求め方

本節では、与えられた検出器の角度 $(\Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ における同時計数測定により得られた同時計数率 $\dot{N}_{cd}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ から、角度相関関数を求める方法を示す($\dot{N}_{cd}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ の求め方は2.3節 (2.3-9) 式に示した)。 \dot{N}_{cd} は解離生成した $H(n=2)$ 原子と水素原子の反応の影響、および $H(n \geq 3)$ 原子からのカスケードの影響を含まない。したがって本節において求まる角度相関関数は解離生成したprimary $H(2p)$ 原子ペアに由来する

Lyman- α 光子ペアの角度相関関数である。

2.4.1 Lyman- α 光子ペアの角度相関関数の求め方

過程(1.4-1)' により発生した2個のLyman- α 光子が、図2.4-1 の abc 座標系の原点 O' から見た Ω_i 方向(θ_i, ϕ_i)、および Ω_j 方向(θ_j, ϕ_j) へ放出される過程の角度2重微分断面積を

$$q_2(E_{\text{ex}}, \theta_i, \phi_i, \theta_j, \phi_j) = \frac{d^2\sigma}{d\Omega_i d\Omega_j}(E_{\text{ex}}, \theta_i, \phi_i, \theta_j, \phi_j) \quad (2.4-1)$$

とする。ここで $d\Omega_i$ と $d\Omega_j$ は、それぞれ Ω_i および Ω_j 方向の微小立体角要素である($d\Omega_i = \sin \theta_i d\theta_i d\phi_i$, $d\Omega_j = \sin \theta_j d\theta_j d\phi_j$)。1.5 節にて述べたように、 $q_2(E_{\text{ex}}, \theta_i, \phi_i, \theta_j, \phi_j)$ の角度依存性が求めるべきLyman- α 光子ペアの角度相関関数である。2.3.2 節に示したように、本実験の水素ガス圧力は $q_2(E_{\text{ex}}, \theta_i, \phi_i, \theta_j, \phi_j)$ を測定するに適切である。 $\dot{N}_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ と $q_2(E_{\text{ex}}, \theta_i, \phi_i, \theta_j, \phi_j)$ の間には以下の関係がある[Tan10]。

$$\begin{aligned} \dot{N}_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d) &= nI(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d) 2\langle q_2 \rangle(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d) \eta_{cd} \\ &\quad \times A_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d) G_{cd}(\Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d) \end{aligned} \quad (2.4-2)$$

n :	H ₂ 分子の数密度 (cm ⁻³)
$I(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$:	領域 V_{cd} における入射放射光のphoton flux density (cm ⁻² s ⁻¹)
η_{cd} :	検出器 c と d のLyman- α 光子に対する同時検出効率 (無次元)
$A_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$:	領域 V_{cd} における入射放射光ビームの断面積 (cm ²)
$G_{cd}(\Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$:	幾何学的因子(cm sr ²)

$\langle q_2 \rangle(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ とは、 $q_2(E_{\text{ex}}, \theta_i, \phi_i, \theta_j, \phi_j)$ を角度分解能で平均した量(cm² sr⁻²) である。また、領域 V_{cd} とは $I(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ および n が0 でない領域である。

$$V_{cd}(E_{\text{ex}}) \equiv \{ \mathbf{r} = (X, Y, Z) \mid I(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d) \neq 0 \text{ かつ } n \neq 0 \} \quad (2.4-3)$$

$G_{cd}(\Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ は、検出器 c と d を見込む立体角を空間固定 X 軸について積分した量であり、その積分範囲は領域 V_{cd} の幾何学的な形状のみで決まる。(2.4-2)式より、同時計数率 $\dot{N}_{cd}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ は $I(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ および n に比例するため、これらで規格化することで、 $\langle q_2 \rangle(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ を求めることができる。実は $\dot{N}_{cd}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ の n に対する比例性を確かめたのが図2.3-6である。ただし、本実験では n は測定されるが $I(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ は測定されない。本研究では $I(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ の代わりにガスセル後方に置かれた金プレートにおける光電流値 $i_{Au}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ ($C s^{-1} = A$)を測定する。 $i_{Au}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ と $I(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ の関係を以下に示す。

$$i_{Au}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d) = c_9(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)A(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d) \times \eta_{Au}(E_{ex})I(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d) \quad (2.4-4)$$

$c_9(\Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$: 入射光がガスセル後方のアパーチャーを通り、金プレートの有効面内に入る割合 (無次元)

$\eta_{Au}(E_{ex})$: 金プレートの光電変換効率 ($C photon^{-1}$)

$A(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$: 金プレートの位置における入射放射光ビームの断面積 (cm^2)

H_2 分子の数密度 n (cm^{-3})は、測定されるガスセル内の水素ガス圧力 P (Pa)から、以下のよう求められる。

$$P = \frac{nRT}{N_A} \quad (2.4-5)$$

n : H_2 分子の数密度 (m^{-3})

R : 気体定数 $8.3 m^2 kg s^{-2} K^{-1} mol^{-1}$

N_A : アボガドロ数 $6.02 \times 10^{23} mol^{-1}$

T : 気体の温度 (K)

ただし、(2.4-4)式および(2.4-5)式から、金プレートにおける光電流値 $i_{Au}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ および H_2 ガス圧力 P で規格化された同時計数率 $\dot{N}_{cd}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ と、平均の角度2重微分断面積 $\langle q_2 \rangle(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ の関係が求まる[Tan10]。

$$\frac{\dot{N}_{cd}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)}{P i_{Au}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)} = \frac{N_A}{RT} 2 \langle q_2 \rangle (E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d) \\ \times \frac{1}{c_9(\Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d) \eta_{Au}(E_{ex}) A(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)} \eta_{cd} A_{cd}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d) G_{cd}(\Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d) \quad (2.4-6)$$

(2.4-6) 式において、

$$\frac{1}{c_9(\Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d) \eta_{Au}(E_{ex}) A(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)} \eta_{cd} A_{cd}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d) G_{cd}(\Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d) \quad (2.4-7)$$

の部分は測定が困難である。しかも $(\Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ に依存する。ただし装置のアライメントが良ければ、つまり入射光軸と検出器の回転軸が一致していれば

$$\frac{A_{cd}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})}{A(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})} \quad (2.4-8 a)$$

$$G_{cd}(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2}) \quad (2.4-8 b)$$

$$c_9(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2}) \quad (2.4-8 c)$$

は Θ_c と Θ_d にはほとんど依存しないであろう(本実験では $\Phi_c = \Phi_d = \frac{3\pi}{2}$ であることに留意のこと)。したがって(2.4-6) 式左辺の量を $\Phi_c = \Phi_d = \frac{3\pi}{2}$ なる条件の下で Θ_c と Θ_d の関数として測定することは、 $\langle q_2 \rangle (E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ (ただし相対値) を Θ_c と Θ_d の関数として測定すること、すなわち Lyman- α 光子ペアの角度相関関数を測定することを意味する。そこで(2.4-6) 式の左辺の量を

$$S'''_{cd}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d) \quad (2.4-9)$$

と定義しておこう。つまり、

$$S'''_{cd}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d) = \frac{\dot{N}_{cd}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)}{P i_{Au}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)} \quad (2.4-10)$$

である。ただし $S'''_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ を (Θ_c, Θ_d) に対してプロットすると、得られた角度相関関数がゆがんでしまう[Tan09, Tan10, Tan10R]。その原因は、(2.4-7) 式の量がドリフトするからであると予想される。そこで $S'''_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ の測定の前後にreference 測定を $(\Theta_c, \Theta_d) = (-\frac{\pi}{2}, \frac{\pi}{2})$ または $(\frac{\pi}{2}, -\frac{\pi}{2})$ において行うことにした。 S'''_{cd} 測定とreference 測定のあいだにおいて、(2.4-7) 式の量のドリフトは無視できるであろう。したがって、

$$\frac{S'''_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})}{S'''_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c = -\frac{\pi}{2}, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d = \frac{\pi}{2}, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})} = \frac{\langle q_2 \rangle(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})}{\langle q_2 \rangle(E_{\text{ex}}, \Theta_c = -\frac{\pi}{2}, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d = \frac{\pi}{2}, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})} \quad (2.4-11)$$

を得る。(2.4-11) 式左辺の量を (Θ_c, Θ_d) に対してプロットする方が $S'''_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ を (Θ_c, Θ_d) に対してプロットするよりも、よりゆがみの少ない角度相関関数が得られる。そこで(2.4-11) 式左辺の量を

$$R'''_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Theta_d) \quad (2.4-12)$$

と定義しておこう。ただし実際には(2.4-11) 式左辺分母の $S'''_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c = -\frac{\pi}{2}, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d = \frac{\pi}{2}, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ のかわりに、前後におけるreference 測定の平均を用いる。すなわち

$$R'''_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Theta_d) = \frac{S'''_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})}{\frac{1}{2} \left\{ S'''_{cd}{}^{\text{ref}1}(E_{\text{ex}}, \Theta_c = -\frac{\pi}{2}, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d = \frac{\pi}{2}, \Phi_d = \frac{3\pi}{2}) + S'''_{cd}{}^{\text{ref}2}(E_{\text{ex}}, \Theta_c = -\frac{\pi}{2}, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d = \frac{\pi}{2}, \Phi_d = \frac{3\pi}{2}) \right\}} \quad (2.4-13)$$

で求まる $R'''_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Theta_d)$ を (Θ_c, Θ_d) に対してプロットして、角度相関関数を得る。添え字ref1 およびref2 は、前後のreference 測定における測定値であることを示す。また検出器 c と d の Lyman- α 光子に対する検出効率の積 η_{cd} のドリフトの影響も、reference 測定との比を取ることで相殺することができ、同様のことが $\eta_{\text{Au}}(E_{\text{ex}})$ にも言える。最後に、 $S'''_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ および $R'''_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Theta_d)$ の統計誤差を結果のみ示す[Kou13]。

$$\Sigma_{S'''cd} = \frac{1}{t P i_{Au}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)} \left[N_{tot} + \left(\frac{1}{2}\right)^2 (N_{acci1} + N_{acci2}) \right]^{\frac{1}{2}} \quad (2.4-14a)$$

$$\Sigma_{R'''cd} = \sqrt{\left[\frac{\Sigma_{S'''cd}}{\frac{1}{2}(S'''_{cd}{}^{ref1} + S'''_{cd}{}^{ref2})} \right]^2 + \left(\frac{1}{2}\right)^2 \left[\frac{S'''_{cd}}{\frac{1}{2}(S'''_{cd}{}^{ref1} + S'''_{cd}{}^{ref2})} \right]^2 (\Sigma_{S'''_{cd}{}^{ref1}}^2 + \Sigma_{S'''_{cd}{}^{ref2}}^2)} \quad (2.4-14b)$$

t は測定時間である。また、 N_{tot} および N_{acci} はそれぞれ(2.3-8a) 式および (2.3-8b) 式で与えられる。ただし、遅い成分の同時計数値 N_{sec} から生じる統計誤差は無視した(N_{sec} は(2.3-8c) 式により与えられる)。

2.5 アライメントの評価

2.4.1 節で述べた方法でLyman- α 光子ペアの角度相関関数を測定するためには装置のアライメントが良くななくてはならない。つまり(図2.4-1 参照)

- i) 検出器 c と d の回転軸が一致する。
- ii) 検出器 c と d の軸と回転軸が直交し、かつ1点で交わる。
- iii) i) の回転軸と入射光軸が一致する。

の3つが同時に満たされなくてはならない。i) - iii) のうち、i) とii) は実験装置製作時の機械工作精度により保証される。iii) は実験者の手に委ねられている。iii) のアライメントを評価するためにHe の光電子の角度分布測定およびH₂ のLyman- α 光子の角度分布測定を行った。というのは、これらの角度分布はすでに分かっているからである[Sch97,Kou07]。本節ではまずHe の光電子の角度分布測定およびH₂ のLyman- α 光子の角度分布測定について述べる。最後に装置のアライメントのドリフトをモニターする指標について述べる。

2.5.1 He 光電子の角度分布測定

光電子の角度分布測定のために、2つのchannel electron multiplier (CEM) を光子検出器 c, d の位置から入射光軸に沿って50 mm 平行移動した位置に設置した(2.2.1 節参照)。そこで光電子検出器にも c, d なるラベルをつける。2軸装置では、入射光の偏光ベクトル $\hat{\boldsymbol{\epsilon}}$ から見た光子検出器 c (d) の向きと光電子検出器 c (d) の向きは一致する。そこで光電子検出器 c, d の向きもそれぞれ $(\Theta_c, \Phi_c), (\Theta_d, \Phi_d)$ で表す(ただし本実験では $\Phi_c = \Phi_d = \frac{3\pi}{2}$ である)(図2.4-1 参照)。CEM の前面には阻止電場を印加できる。

さて、実際は図2.4-1 の宮城らの理論における定義どおりの角度 Θ_c, Θ_d でなく、回転導入端子の目盛りの読み値 Θ_s^c, Θ_s^d として検出度 c, d の向きを測った。原点に置かれた原子・分子をエネルギー E_{ex} の入射光子により光イオン化するとしよう。光電子の角度分布は

$$\frac{d\sigma_e}{d\Omega_{c/d}} = \frac{\sigma_e(E_{\text{ex}})}{4\pi} \left[1 + \frac{\beta(E_{\text{ex}})}{4} \left\{ 1 + 3\tilde{S}_1^{c/d} \cos 2(\Theta_s^{c/d} + \lambda^{c/d}) \right\} \right] \quad (2.5-1)$$

と表される[Sch97]。ただし、 $\sigma_e(E_{\text{ex}})$ は光イオン化断面積(cm^2)、 $\tilde{S}_1^{c/d}$ は入射直線偏光の偏光度と光電子検出器 c (d) の角度分解能により決まる量(無次元) である。 $\beta(E_{\text{ex}})$ は異方性パラメーターであり、He に対しては $\beta(E_{\text{ex}} = 33.66 \text{ eV}) = 2$ であることが分かっている[Sch97]。入射光の偏光ベクトル $\hat{\boldsymbol{\epsilon}}$ は $\Theta_s^{c/d} = -\lambda^{c/d}$ の向きを向いている。2.5 節冒頭で述べた、iii) の条件が満たされていれば、測定された光電子の角度分布は周期 $\pi = 180^\circ$ の周期関数となるはずである。光電子検出器 c で測定した光電子の角度分布を図2.5-2 に示す。ただし縦軸は光電子の計数率をHe ガス圧で規格化した量であり、相対値の意味しかもたない。角度分布測定は、1 時間程度の時間しか要しないので、その間における入射光量の変化や装置のドリフトは無視できる。実線は(2.5-1) 式をフィットした結果である。フィッティングパラメーターは $\sigma_e, \tilde{S}_1^c, \lambda^d$ の3つである。図2.5-2 のようにゆがみのない、つまり 180° の周期が現れる角度分布が得られるまでアライメントを念入りに調整した。

また、フィットにより求めた入射光の偏光ベクトル $\hat{\boldsymbol{\epsilon}}$ の傾き $\lambda^{c/d}$ を用いて、回転導入端子の目盛りの角度 $\Theta_s^{c/d}$ の校正を行った。 $\Theta_s^{c/d} = -\lambda^{c/d}$ の向きに入射光の偏光ベクトル $\hat{\boldsymbol{\epsilon}}$ が向いているので、 $\hat{\boldsymbol{\epsilon}}$ から測った検出器の向きを表す角度 $\Theta_s^{c/d'}$ と $\Theta_s^{c/d}$ の関係は (図2.5-1 参照)、

$$\Theta_s^{c/d'} = \Theta_s^{c/d} + \lambda^{c/d} \quad (2.5-2)$$

となる。宮城らの理論において定義された角度 $\Theta_{c/d}$ と $\Theta_s^{c/d'}$ の関係は

$$\Theta_{c/d} = -\Theta_s^{c/d'} \quad (2.5-3)$$

なので、宮城らの理論において定義された角度 $\Theta_{c/d}$ と回転導入端子の目盛りの読み値 $\Theta_s^{c/d}$ との関係は

$$\Theta_s^{c/d} + \lambda^{c/d} = -\Theta_{c/d} \quad (2.5-4)$$

と表される。

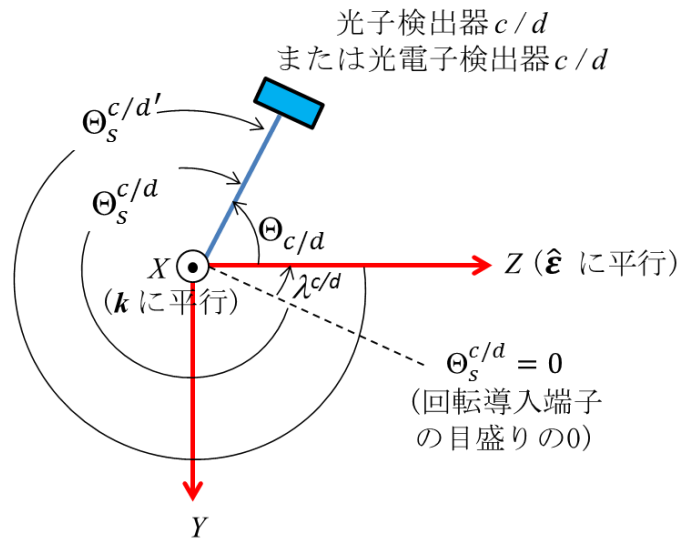


図 2.5-1: 光子検出器 $c(d)$ と光電子検出器 $c(d)$ の方向を示す角度の定義。光子検出器 $c(d)$ と光電子検出器 $c(d)$ はともに入射光軸に直交する面内 (YZ 面内) にある (本実験では $\Phi_c = \Phi_d = \frac{3\pi}{2}$ である)。 $\Theta_{c/d}$ は宮城らの理論において定義された検出器の向きを表す角度であり、入射光の偏光ベクトル $\hat{\epsilon}$ (Z 軸に平行) から測る。本図に示した向きが $\Theta_{c/d}$ の正の向きである。 $\Theta_s^{c/d}$ は、回転導入端子の目盛りの 0 から測った検出器の角度であり、本図に示した向きが正の向きである。 $\Theta_s^{c/d'}$ は入射光の偏光ベクトル $\hat{\epsilon}$ の傾き $\lambda^{c/d}$ を用いて $\Theta_s^{c/d}$ を校正した角度である。 $\lambda^{c/d}$ の正の向きと $\Theta_{c/d}$ の正の向きは同じである。

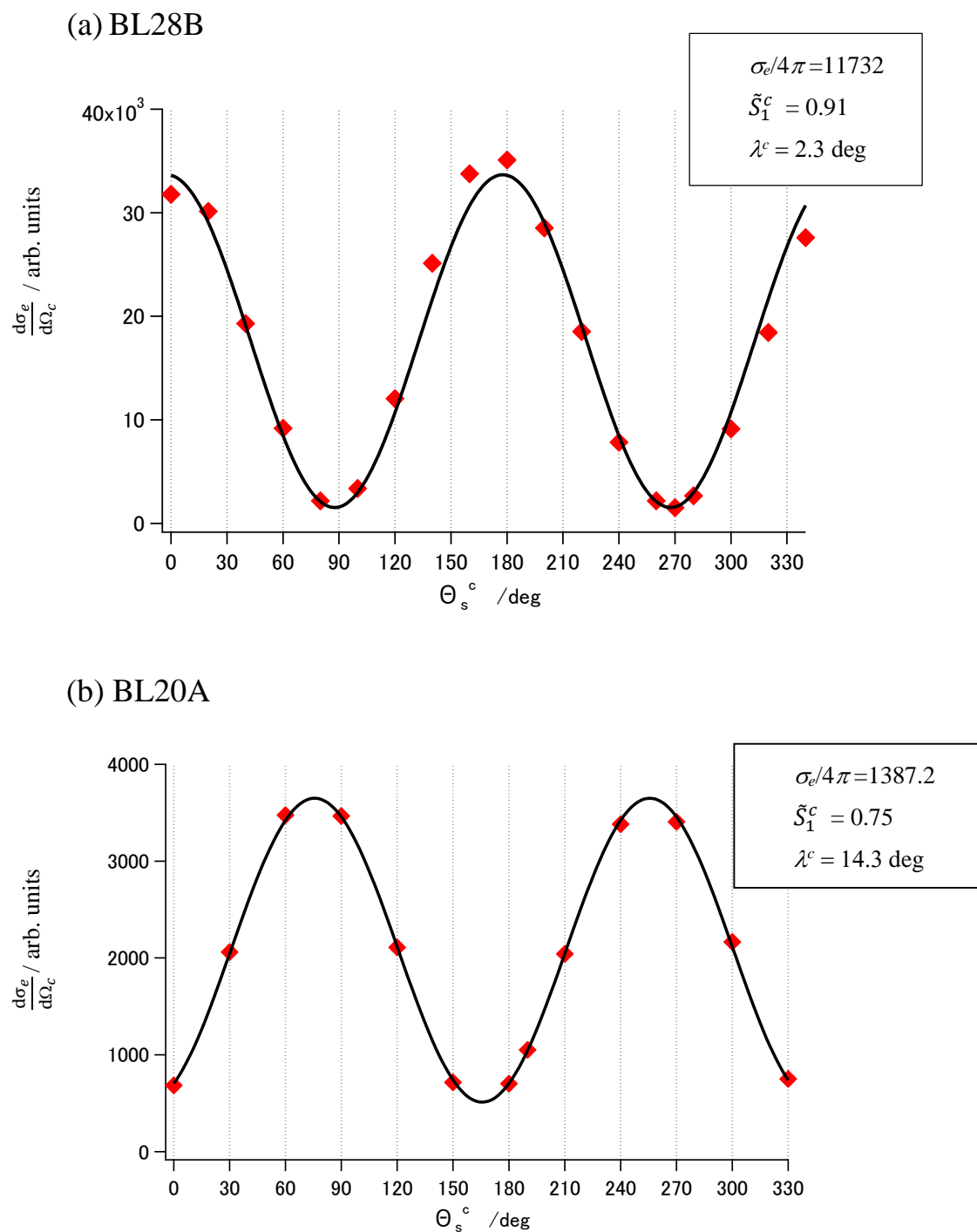


図2.5-2: Heからの光電子の角度分布の測定結果。入射光子エネルギーはともに33.66 eVである。(a)と(b)はそれぞれBL28BとBL20Aにおける測定結果である。実線は(2.5-1)式をフィットしたときのbest-fitted curveである。ただし、BL20Aでの測定には1軸装置を用いたため、(2.5-1)式のcosinの位相角を90degずらした式をフィットした。BL20AとBL28Bにおける偏光度の差がコントラストの差として現れている。

2.5.2 H₂ Lyman- α 光子の角度分布測定

H₂ の光吸収に起因するLyman- α 光子が、 abc 座標系の原点 O' から見た Ω_i 方向(θ_i, ϕ_i) へ放出される過程の角度微分断面積を

$$q_1(E_{\text{ex}}, \theta_i, \phi_i) = \frac{d\sigma}{d\Omega_i}(E_{\text{ex}}, \theta_i, \phi_i) \quad (2.5-5)$$

とする(図2.4-1 参照)。ここで $d\Omega_i$ は、 Ω_i 方向の微小立体角要素である($d\Omega_i = \sin \theta_i d\theta_i d\phi_i$)。図2.4-1 に示したように、 abc 座標系の O' (2個のプロトンの重心に一致する) は空間固定 X 軸上の任意の位置にある。ここでは簡単のため、 abc 座標系の原点 O' は空間固定座標の原点 O に一致しているとする。本実験では、空間固定 YZ 面内に光子検出器が存在することを考慮し、 $\phi_i = \frac{\pi}{2}$ における角度微分断面積 $q_1(E_{\text{ex}}, \theta_i, \phi_i = \frac{\pi}{2})$ を求める。ただし $q_1(E_{\text{ex}}, \theta_i, \phi_i)$ は ϕ_i に依存しない。ここでは光の古典論に基づき、Lyman- α 光子の偏光ベクトルを検出面に射影することで検出強度を計算しよう [Kou07]。図2.5-3 に示すように、 $(\theta_i, \phi_i = \frac{\pi}{2})$ 方向を向いた単位ベクトル $\hat{\mathbf{n}}$ と、 $\hat{\mathbf{n}}$ に垂直な面(検出面) を考える。 a 軸に平行な単位ベクトル $\hat{\mathbf{e}}_a$ の検出面に対する射影を $P_{\hat{\mathbf{n}}}(\hat{\mathbf{e}}_a)$ とすると、

$$|P_{\hat{\mathbf{n}}}(\hat{\mathbf{e}}_a)|^2 = 1 \quad (2.5-6a)$$

となる。同様に、 b 軸に平行な単位ベクトル $\hat{\mathbf{e}}_b$ 、 c 軸に平行な単位ベクトル $\hat{\mathbf{e}}_c$ に対して

$$|P_{\hat{\mathbf{n}}}(\hat{\mathbf{e}}_b)|^2 = \cos^2 \theta_i \quad (2.5-6b)$$

$$|P_{\hat{\mathbf{n}}}(\hat{\mathbf{e}}_c)|^2 = \sin^2 \theta_i \quad (2.5-6c)$$

となる。また、以下の3種類の断面積を導入する。

σ_a : 偏光ベクトルが a 軸に平行なLyman- α 光子が放出される過程の断面積

σ_b : 偏光ベクトルが b 軸に平行なLyman- α 光子が放出される過程の断面積

σ_c : 偏光ベクトルが c 軸に平行なLyman- α 光子が放出される過程の断面積

したがって、角度微分断面積は以下のように表される。

$$q_1(E_{\text{ex}}, \theta_i, \phi_i = \frac{\pi}{2}) = \sigma_a + \sigma_b \cos^2 \theta_i + \sigma_c \sin^2 \theta_i \quad (2.5-7)$$

光吸収において、基底状態の水素分子はランダムに配向している。また、空間に生じる異方性の原因は $\hat{\epsilon}$ (空間固定Z 軸、およびc 軸に平行) のみである。したがって

$$\sigma_a = \sigma_b \quad (2.5-8)$$

であり、これらは入射光の偏光ベクトル $\hat{\epsilon}$ に垂直な成分であるから

$$\sigma_{\perp} = \sigma_a = \sigma_b \quad (2.5-9)$$

とおく。同様に σ_c は入射光の偏光ベクトル $\hat{\epsilon}$ に平行な成分であるから

$$\sigma_{\parallel} = \sigma_c \quad (2.5-10)$$

とおく。したがって角度微分断面積は以下のように書き換えられる。

$$\begin{aligned} q_1(E_{\text{ex}}, \theta_i, \phi_i = \frac{\pi}{2}) &= \sigma_{\perp}(1 + \cos^2 \theta_i) + \sigma_{\parallel} \sin^2 \theta_i \\ &= (\sigma_{\parallel} + \sigma_{\perp}) \left(1 - \frac{\sigma_{\parallel} - \sigma_{\perp}}{\sigma_{\parallel} + \sigma_{\perp}} \cos^2 \theta_i \right) \\ &= (\sigma_{\parallel} + \sigma_{\perp})(1 - \Pi \cos^2 \theta_i) \end{aligned} \quad (2.5-11)$$

ただし、 Π は放出されるLyman- α 光子の偏光度を表す。

$$\Pi = \frac{\sigma_{\parallel} - \sigma_{\perp}}{\sigma_{\parallel} + \sigma_{\perp}} \quad (2.5-12)$$

実際には、 abc 座標系の原点 O' (2個のプロトンの重心に一致する) は、空間固定 X 軸上の任意の位置にある。したがって実際に観測される角度微分断面積は、光子検出器 c を $\Theta_c, \Phi_c = \frac{\pi}{2}$ の向きにおいたとき、 $q_1(E_{\text{ex}}, \theta_i, \phi_i = \frac{\pi}{2})$ を検出器 c の角度分解能で平均した量、 $\langle q_1 \rangle(E_{\text{ex}},$

$\Theta_c, \Phi_c = \frac{\pi}{2}$) である。 $\phi = \frac{\pi}{2}, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}$ という違いにより、 θ と Θ_c の正の向きは逆($\Theta_c = -\theta$) になる。また、 $\langle q_1 \rangle(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c = \frac{\pi}{2})$ は Φ_c に依存しないことに注意してほしい。

$$\langle q_1 \rangle(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c = \frac{\pi}{2}) = C(1 - \Pi'_c \cos^2 \Theta_c) \quad (2.5-13)$$

Π' は検出器の角度分解能で平均化したLyman- α 光子の偏光度、つまり見かけの偏光度である。なお、検出器 d についても(2.5-13) と同様の式が得られる。

実際の測定では図2.4-1 の定義どおりの角度 Θ_c ではなく、回転導入端子の目盛りの読み値 Θ_s^c の関数として角度微分断面積を測定した(図2.5-1 参照)。角度 Θ_c と Θ_s^c の関係を表す(2.5-4) 式より、 Θ_s^c の関数としての角度微分断面積 $\langle q_1 \rangle(E_{\text{ex}}, \Theta_s^c)$ は

$$\langle q_1 \rangle(E_{\text{ex}}, \Theta_s^c) = C\{1 - \Pi'_c \cos^2(\Theta_s^c + \lambda^c)\} \quad (2.5-14)$$

となる。2.5.1 節で述べたように、 $\Theta_s^c = -\lambda^c$ の向きに入射光の偏光ベクトル $\hat{\mathbf{e}}$ が向いている。なお、検出器 d についても(2.5-14) と同様の式が得られる。図2.5-4 は入射光子エネルギー 33.66 eV において測定された H_2 の光吸収に起因するLyman- α 光子の角度分布である。横軸は Θ_s^c 、縦軸は光子計数率を水素ガス圧力で規格化した量であり、相対値の意味しかもたない。実線は(2.5-14) 式をフィットした結果である。フィッティングパラメータは C, Π', λ^c である。

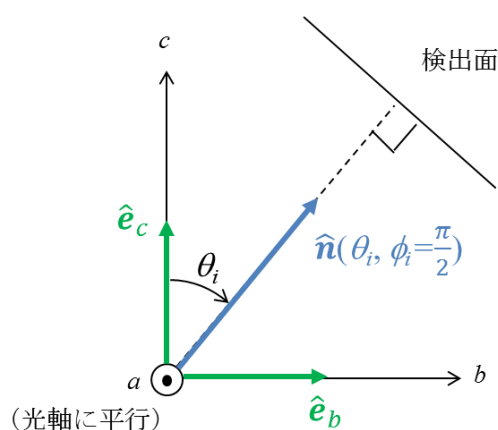


図2.5-3: abc 座標系から見て $(\theta, \phi = \frac{\pi}{2})$ 方向を向いた単位ベクトル $\hat{\mathbf{n}}$ と、 $\hat{\mathbf{n}}$ に垂直な検出面の概略図。 $\hat{\mathbf{n}}$ は bc 面内にあり、 c 軸から測った角度を θ とする。

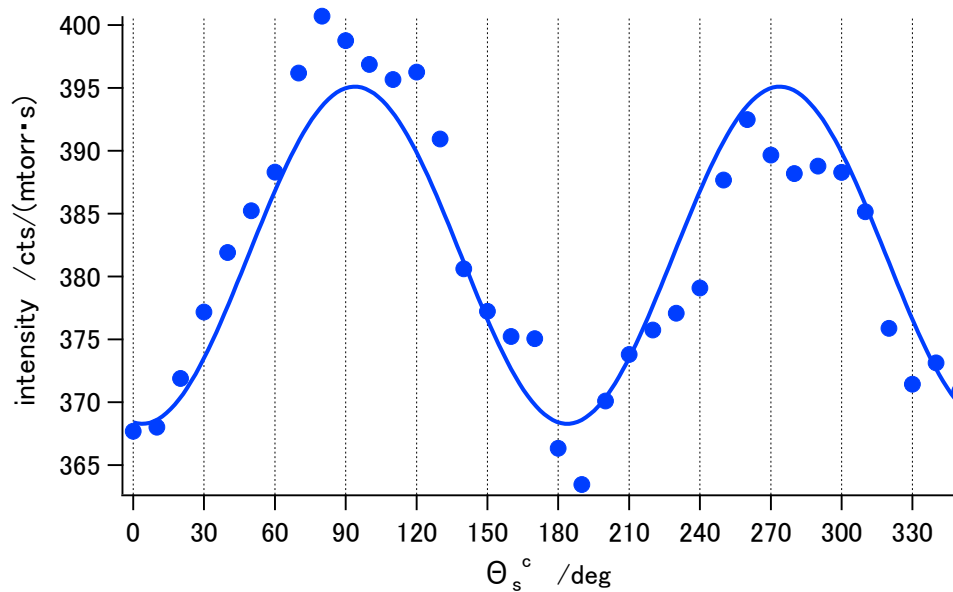


図2.5-4 : BL28Bにおいて測定された H_2 の光吸収に起因するLyman- α 光子の角度分布の測定結果。入射光子エネルギー33.66 eV である。実線は(2.5-14) 式をフィットしたときのbest-fitted curve である。フィットの結果、 $C_c = 395.1 \times 10^3 \text{ Torr}^{-1} \text{ s}^{-1}$, $\Pi' = 0.068$, $\lambda^c = -3.8 \text{ deg}$ を得た。

2.5.3 アライメントのドリフトの指標

さて、1度良いアライメントが得られても、実験中にそれが悪くなることが考えられる。特にひとつの角度相関関数を測定するためには1日～2日程度を要するので、この問題は深刻である。そこで検出器 c と d の計数率の比

$$\frac{\dot{N}_c(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2})}{\dot{N}_d(E_{\text{ex}}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})} \quad (2.5-15)$$

に注目する。本実験で角度相関関数を測定した(a) $\Theta_d = \Theta_c + \pi$ (対向配置), (b) $\Theta_d = -\Theta_c$ および(c) $\Theta_d = -\Theta_c + \pi$ においては、(2.5-15) 式の量は、アライメントがよければ、 (Θ_c, Θ_d) に依存しないはずである(しかもほぼ1となるはずである)。したがって(2.5-15) 式の量のドリフトをもってアライメントを評価できる。また、BL20A での実験では、金プレート(光電流値 i_{Au}) と後置鏡(図2.5-5 参照) における光電流(i_{Mir}) の比

$$\frac{i_{\text{Au}}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})}{i_{\text{Mir}}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})} \quad (2.5-16)$$

にも注目した。(2.5-16) 式の量も、アライメントがよければ、 (Θ_c, Θ_d) に依存しないはずであり、この量のドリフトをもってアライメントのドリフトを評価できる。

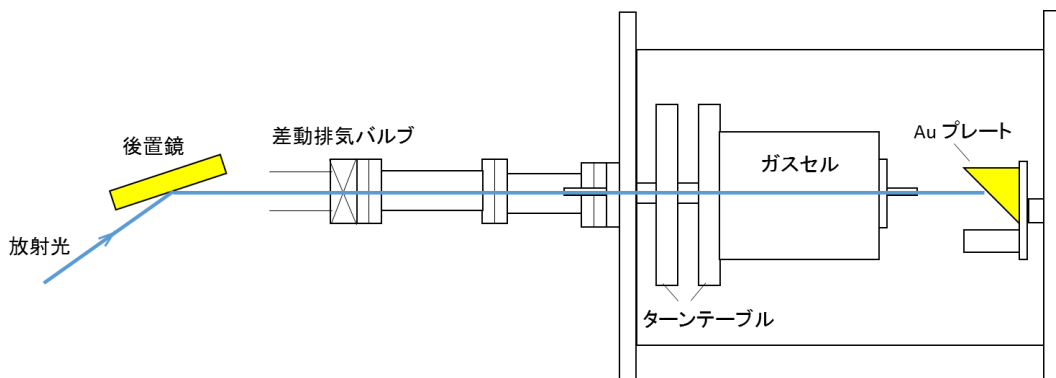


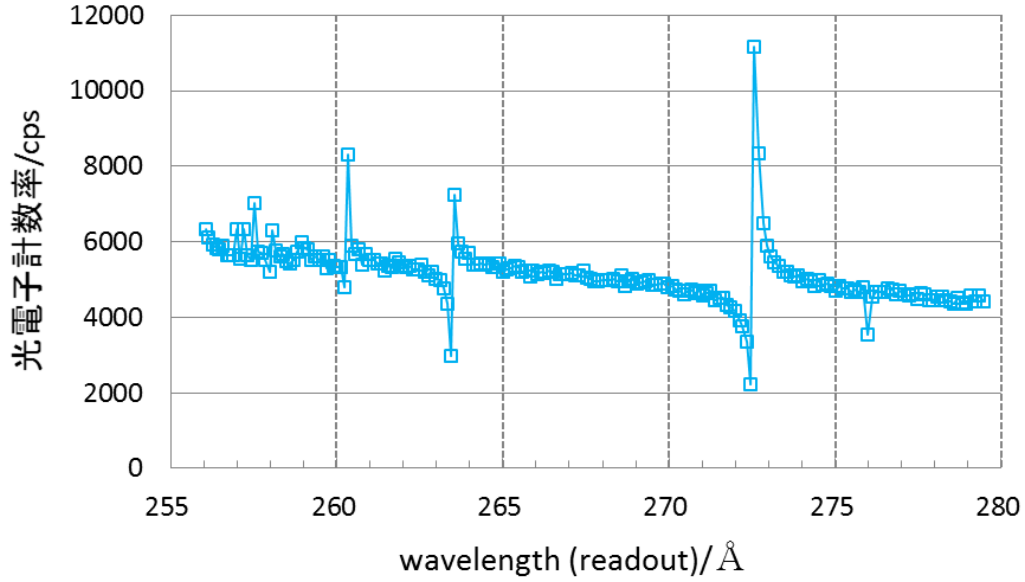
図2.5-5: 金プレートの光電流(i_{Au}) と後置鏡の光電流(i_{Mir}) を測定する際の配置図。

2.6 入射光の波長キャリブレーション

本研究では、希ガス原子(Ne とAr) の光電子励起スペクトルを測定し、入射光の波長校正を行った。1.4 節で述べたように、Lyman- α 光子ペアの角度相関関数測定は入射光子エネルギー33.66 eV (368.3 Å) にて行った。波長校正は260 Å–440 Å の範囲にて行った。BL28B において測定された(a) Neおよび(b) Ar の光電子励起スペクトルを図2.6-1 に示す。光電子の検出にはchannel electron multiplier (2.5-1 節で述べた光電子検出器c) を使用した。横軸は入射光の波長(readout)、縦軸は光電子計数率である。波長を変化させることにより入射光量も変動するが、その変化はなだらかなため、図2.6-1 のスペクトルに表れるピークはすべて共鳴ピークとしてよい。これらのピークは、内殻励起された希ガス原子の電子の自動イオン化に由来する共鳴ピーク(Fano profile) である。波長の校正に用いたNe とAr の遷移の種類と、観測された共鳴ピークの波長(readout)、およびその真の波長(文献値)の一覧を表2.6-1 に示す。真の波長とreadout とのずれは1 Å 以下であった。共鳴のピークの見かけの波長とその真の波長をプロットした結果を図2.6-2 に示す。実験データに対して以下の3 次関数をフィットすることで波長キャリブレーションカーブを得た。

$$y(x) = a_0 + a_1x^1 + a_2x^2 + a_3x^3 \quad (2.6-1)$$

(a) Ne



(b) Ar

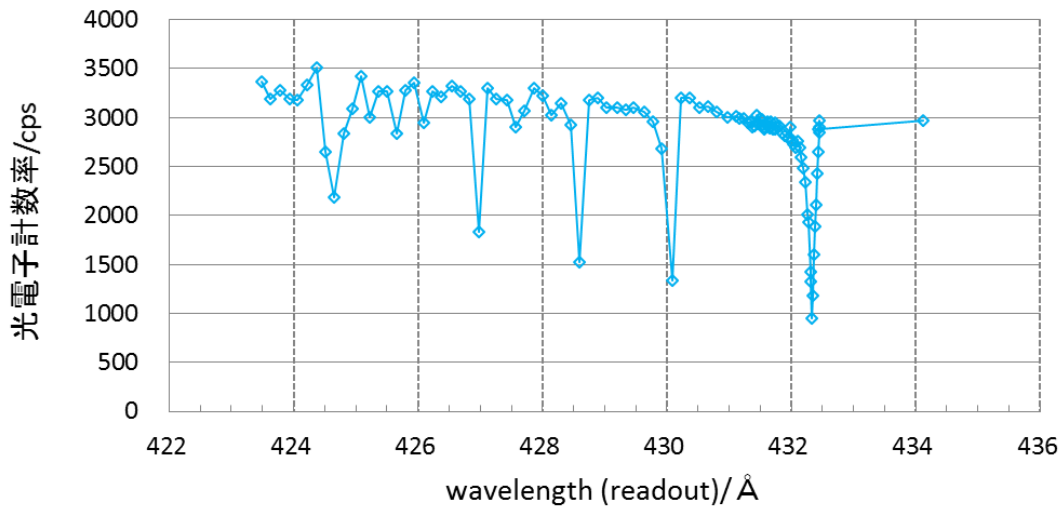


図2.6-1 : BL28 B で測定された(a) Ne と(b) Ar の光電子励起スペクトル。測定には光電子検出器cを使用した。横軸は見かけの波長、縦軸は光電子の計数率である。(a) Ne: 波長256–279 Å, Ne ガス圧力 0.14 Pa, $\Theta_c = -90^\circ$ における結果。(b) Ar: 波長424–434 Å, Ar ガス圧力 0.14 Pa, $\Theta_c = 0^\circ$ による結果。

表2.6-1(a) : 入射光の波長校正に用いたNeの基底状態($2s^2 2p^6$)からの遷移とその波長

励起状態	測定値(readout) / Å	文献値 ^a / Å
$2s2p^6 4p$	263.5530	263.11
$2s2p^6 3p$	272.5657	272.21
$2s^2 2p^4 3s3p$	275.9662	275.64

^a From [Cod67]

表2.6-1(b) : 入射光の波長校正に用いたArの基底状態($3s^2 3p^6$)からの遷移とその波長

励起状態	測定値(readout) / Å	文献値 ^a / Å
$3s3p^6 11p$	426.9731	426.55
$3s3p^6 10p$	427.6041	427.13
$3s3p^6 9p$	428.5856	427.87
$3s3p^6 8p$	430.0855	429.20
$3s3p^6 7p$	432.3310	431.44

^a From [Sam63]

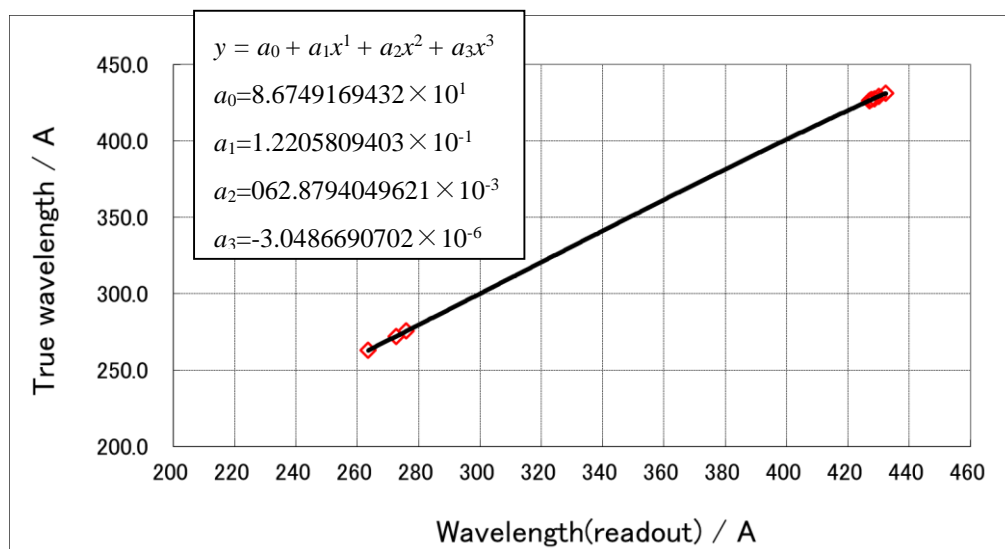


図2.6-2 : 測定された共鳴ピークの見かけの波長と真の波長との関係。実験データに(2.6-1)式をフィットし、キャリブレーションカーブを得た。

第3章 偽の同時計数の起源

本章では、1.7 節で述べた偽の同時計数の正体について述べる。本研究では、偽の同時計数の時間構造と角度分布の特徴から、その正体を考察した。また、本研究室による過去の角度相関関数測定 [Tan09, Tan10, Tan10R] に対する偽の同時計数の影響を調べた。

3.1 偽の同時計数

田辺らは、入射光子エネルギー33.66 eV、水素ガス圧力0.02 – 0.40 Pa の範囲において Lyman- α 光子ペアの角度相関関数およびコインシデンスタイムスペクトルを測定した [Tan09, Tan10, Tan10R]。この測定において、2個の光子検出器は対向配置($\Theta_d = \Theta_c + \pi$) に固定された。田辺らは、水素ガス圧力を下げるにつれて角度相関関数が宮城らの理論予測 [Miy07] に近づくことを報告した。また、コインシデンスタイムスペクトルに(2.3-4) 式をフィットして求めた減衰時定数が、水素ガス圧力を下げるにつれてH(2p) 原子の寿命1.6 ns [Bet97] よりも短くなり、水素ガス圧力0.02 Pa ではその寿命の半分程度になることを報告した [Tan09, Tan10, Tan10R]。その後、この圧力効果をより詳細に調べる過程で、水素ガスにも入射光にも由来しない偽の同時計数の存在が本研究室の向後により発見された [Kou13]。そのきっかけは、水素ガス圧力0.007 Pa というさらなる低圧条件での測定において、2光子同時計数率が予想される値を大きく上回ったことである。水素ガス圧力0.02 Pa における同時計数率から予想される0.007Pa の同時計数率は0.3 mcps 程度であるにもかかわらず、実際には ~1 mcps という結果であった。さらに、検出器の信号と入射光の時間相関を調べてみたところ、入射光とは相関のない成分が存在した。そこで向後は、入射光も水素ガスも無い条件で同時計数測定を行った。その結果、コインシデンスタイムスペクトルの真の同時計数ピークと同じ位置に鋭いピークが現れた。

以上が偽の同時計数を発見した経緯である。向後は、偽の同時計数の時間構造と角度分布を測定し、その起源を考察したが [Kou13]、実験データ点数は少ない。そこで本研究では、実験データ点を大幅に増やし、改めて偽の同時計数の起源について述べる。

3.2 偽のコインシデンスタイムスペクトル

入射光および水素ガスが無い条件において測定されたコインシデンスタイムスペクトルを図3.2-1 に示す[Nak14(転載許可済み)]。測定において2個の光子検出器は対向に配置した。ここで、鉛直線から測った検出器 c の角度を Θ_p とする(図3.2-1 参照)。たとえば検出器 c が上側、検出器 d が下側にあるときは $\Theta_p = 0^\circ$ であり、2個の検出器が水平に配置されているときは $\Theta_p = 90^\circ$ または 270° である。タイムスペクトル1チャンネルの時間幅は 0.1004 ns / ch である。横軸は検出時刻差 $T = t_d - t_c$ であるが(2.2.4 節参照)、 $\Theta_p = 180^\circ$ と 0° における2つのピークが中心が $T = 0$ に位置するよう横軸をずらした。図3.2-1 の偽の同時計数ピークは真の同時計数ピークとほぼ同じ位置に現れ、その減衰はH(2p) 原子の寿命 1.6 ns [Bet97]よりもずっと速い。また、偽の同時計数ピークは角度 Θ_p によってピーク位置がシフトしており、時間が早い順に $\Theta_p = 180^\circ, 90^\circ, 0^\circ$ の順に現れた。 $\Theta_p = 180^\circ$ と 0° のピーク位置は約 200 ps シフトしていた。このピークシフトは、実験装置の外から飛来する粒子が光速に近い速度でまず上の検出器を貫き、その後下の検出器を貫いていると考えれば説明できる。 200 ps のシフトは光速で換算すると 6 cm に相当し、検出器 c と d の距離($14.5 \text{ mm} \times 2 = 29 \text{ mm}$ (2.2.1 節参照)) の2倍(58 mm) にほぼ一致する。つまり $\Theta_p = 180^\circ$ では上側の検出器 d が下側の検出器 c よりも 100 ps 先に粒子が通り、 $\Theta_p = 0^\circ$ ではその逆のことが起きていると考えられる。

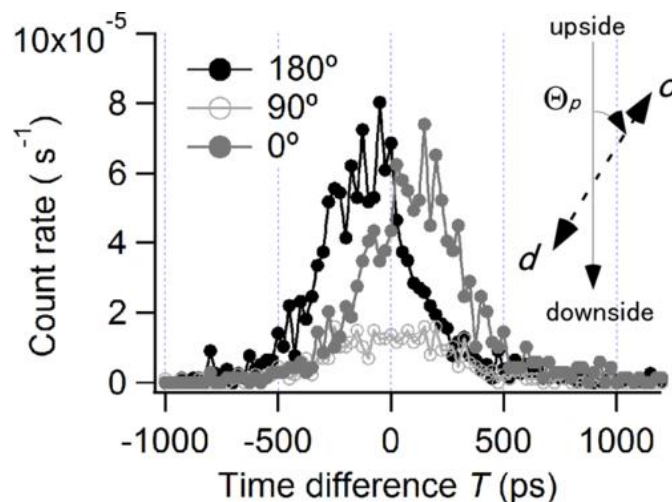


図 3.2-1 : 入射光および水素ガスが無い条件において測定されたコインシデンスタイムスペクトル[Nak14(転載許可済み)]。2 個の光子検出器 c, d は対向に配置されており、鉛直線から測った検出器 c の角度を Θ_p とする。● : $\Theta_p = 180^\circ$, ○ : $\Theta_p = 90^\circ$, ● : $\Theta_p = 0^\circ$ 。

3.3 偽の同時計数の角度分布

前節より、偽の同時計数の起源は実験装置の外にありそうである。偽の同時計数率の角度分布を測定したところ、図 3.3-1 の結果が得られた[Nak14(転載許可済み)]。縦軸は同時計数率、横軸は Θ_p である。●は、CsI が塗布された microchannel plate (以下、MCP と記す) による結果であり、○は CsI が塗布されていない MCP による結果である。Lyman- α 光子に対する CsI 塗布型 MCP の検出感度は CsI が塗布されていない MCP の約 10 倍である(2.2.2 節参照)。一方、図 3.3-1 に示すように、偽の同時計数に対する検出効率には CsI の有無による差はない。つまり CsI 塗布型 MCP は Lyman- α 光子に対する感度だけを増大するため、偽の同時計数の寄与を減らすことができる。一方、角度分布に注目すると、2つの検出器を鉛直方向に配置した $\Theta_p=0^\circ$ および 180° における計数率が、水平に配置した $\Theta_p=90^\circ$ および 270° における計数率の約 3 倍になる。この強い異方性は、前節で述べた、粒子が天空から飛来するという結論と矛盾しない。図 3.3-1 の実線は実験データに対して以下の(3.3-1) 式をフィットした結果である。良いフィットが得られた。

$$A \cos^2 \Theta_p + B \quad (3.3-1)$$

(3.3-1) 式は宇宙線ミュオンの角度分布として知られている。第 1 項 $A \cos^2 \Theta_p$ は primary ミュオンの寄与を表し、第 2 項 B は 1 次宇宙線の空気シャワーにより生じる secondary ミュオンの寄与を表している。空気シャワーとは、1 次宇宙線が大気に突入するときが発生する放射線や粒子のカスケードである[Par12]。

以上から、偽の同時計数の起源は宇宙線ミュオンであると考えられる。これを実証するため、検出器の回転中心から 400 mm 離れた実験チェンバーの外側に 200 mm × 200 mm のプラスチックシンチレータを設置し、検出器 c 、検出器 d およびプラスチックシンチレータによる 3 重同時計数測定を行った。プラスチックシンチレータは、ミュオンのような高エネルギーの荷電粒子に対する検出効率がほぼ 100% である[Ara05]。プラスチックシンチレータがチェンバーの上部にあり、かつ $\Theta_p=0^\circ$ のとき、つまり、上からシンチレータ、検出器 c 、検出器 d が鉛直線上に並ぶとき、検出器 c と d の 2 重同時計数率と、検出器 c 、 d およびシンチレータの 3 重同時計数率の比は約 40% であった。これは 2 個の検出器とシンチレータの幾何学的配置をもとに、ミュオンの軌跡を直線としてシュミレーションした結果により説明できる。偽の同時計数の起源は、宇宙線ミュオンと結論して、間違いなさそうである。

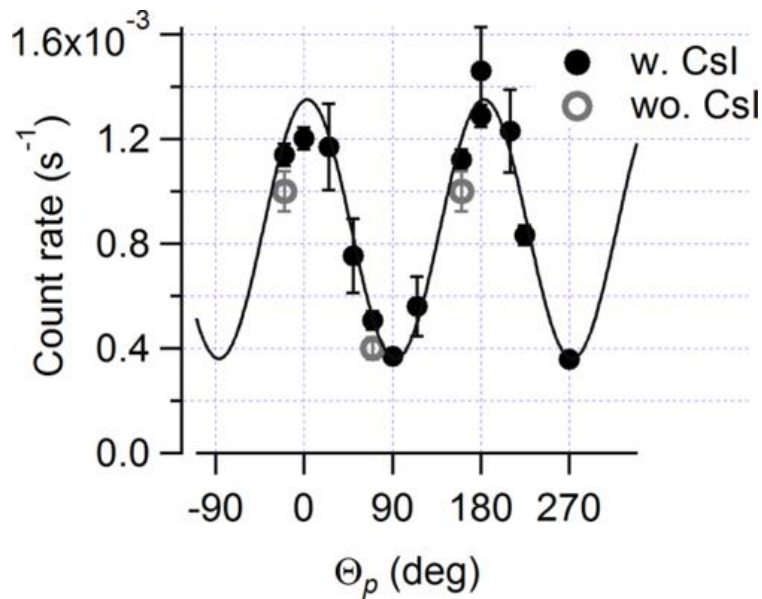


図 3.3-1 : 偽の同時計数率の角度分布の測定結果[Nak14(転載許可済み)]。2 つの検出器は図 3.2-1 に示すように対向に配置されている。縦軸は同時計数率、横軸は Θ_p である。●は、CsI 塗布型 microchannel plate (MCP) による結果であり、○は CsI が塗布されていない MCP による結果である。

3.4 過去の実験に対する偽の同時計数の寄与

本研究室の田辺らが行った Lyman- α 光子ペアの角度相関関数およびコインシデンスタイムスペクトルの測定では、CsI が塗布されていない microchannel plate (MCP) が使用された [Tan09, Tan10, Tan10R]。そこで、本研究では、CsI が塗布されていない MCP を用いて全同時計数(偽の同時計数 + 真の同時計数) に対する偽の同時計数の寄与を測定した。その結果、水素ガス圧 0.02 Pa においては 30 – 60% であり、0.4 Pa においては 10% 以下であった。これらの値は、田辺らによる実験に適用できるであろう。(i)田辺ら測定を行った最低水素ガス圧力 0.02 Pa において、全同時計数に対する偽の同時計数の寄与が無視できない大きさであったこと、および(ii) 偽のコインシデンスタイムスペクトルのピークは真の同時計数ピークとほぼ同じ位置にあり、その減衰は H(2p) 原子の寿命 1.6 ns [Bet97]よりもずっと速いこと、(iii) 偽の同時計数の角度分布が強い異方性をもつことを考慮すると、田辺らが報告した角度相関関数とコインシデンスタイムスペクトルの圧力効果は、宇宙線ミュオン由来の偽の同時計数に由来すると結論できる。

第4章 Lyman- α 光子ペアの角度相関関数の測定結果

本章では、Lyman- α 光子ペアの角度相関関数の測定結果について述べる。まず、2 軸装置で測定された角度相関関数の測定結果が 1 軸装置の結果を再現することを確認する。さらに、2つのビームラインにて測定された角度相関関数を比較する。また、測定結果を 1.5 節および 1.6 節で述べた理論予測と比較し、水素分子の光解離により生成する H(2p) 原子ペアの状態について考察する。

4.1 概要

本研究で報告するLyman- α 光子ペアの角度相関関数は、2012年4月、2012年10月および2013年1月の計3回のビームタイムで測定された。測定内容のまとめを表4.1-1 に示す。すべての測定はマルチバンチ (MB) 運転時に行った。ほとんどトップアップモード中に測定したが、一部ストレージモードにおいても測定した(Photon Factory の運転モードについては2.1.1 節で述べた)。2012年4月ビームタイムは、偏向磁石ビームラインBL20A に行った。測定には、1軸装置を使用した。このビームタイムにおける角度相関関数の測定結果は、本研究室の向後により報告されている[Kou13]。向後は、偽の同時計数の影響を受けない角度相関関数を対向配置において測定した。向後は、reference 測定により装置のドリフトの影響を相殺し、角度幅 360° にわたり、ゆがみのない角度相関関数を得た。本論文では、装置の違いが角度相関関数へ与える影響を調べるために、向後による角度相関関数も紹介する。2012年10月ビームタイムは、2012年4月と同じBL20A で行った。このビームタイムにおいて初めて2軸装置により、角度相関関数を得ることに成功した。2軸装置による角度相関関数が、1軸装置のそれを再現することを確認した。また、2軸装置を用いて対向配置($\Theta_d = \Theta_c + \pi$) および非対向配置($\Theta_d = -\Theta_c$ および $\Theta_d = -\Theta_c + \pi$) における角度相関を初めて測定した。2013年1月ビームタイムは、アンジュレータビームラインBL28B で行った。そこでは、直線偏光度 98 % [Kim94] の入射放射光を用いた角度相関関数を対向配置および非対向配置において測定した(BL20A における放射光の直線偏光度は $\sim 80\%$ [Hik03, Aot04] である)。

表 4.1-1 : Lyman- α 光子ペアの角度相関関数測定の概要

期間	2012 年 4 月 04.12-04.27		2012 年 10 月 10.11-11.14	2013 年 1 月 01.15-01.23
ビームライン	20A (グレーティング 2400 lines mm ⁻¹)		20A (グレーティング 2400 lines mm ⁻¹)	28B
装置	1 軸		2 軸	2 軸
入射光子エネルギー	33.66 eV			
内容	対向 (▽)	対向 (△)	対向, 非対向 (□)	対向, 非対向 (○)
水素ガス圧力	1.2 Pa	0.14 Pa	0.64 - 1.2 Pa	0.95 - 1.5 Pa
運転モード	MB (Storage & Top-up)	MB (Top-up)	MB (Top-up)	MB (Top-up)
入射光の偏光ベクトル $\hat{\epsilon}$ の向き λ	20 deg ^a		$\lambda^e = 16.8$ deg ^b $\lambda^d = 18.9$ deg ^b	$\lambda^c = 2.5$ deg ^c
備考	reference 測定の初導入 [Kou13]		1) 2 軸装置初導入 2) 入射光の直線偏光度~80% [Hik03, Aot04]	入射光の直線偏光度 98%[Kim94]

^a From[Kou13]

^b 2012 年 11 月 3 日測定 H₂ 光電子角度分布

^c 2013 年 1 月 19 日測定 H₂ 光電子角度分布(光電子検出器 *c* のみ使用)

4.2 Lyman- α 光子ペアの角度相関関数の測定結果

4.2.1 2軸装置の評価

ここでは、2軸装置により得られたLyman- α 光子ペアの角度相関関数が1軸装置によるそれを再現することを確認する。対向配置($\Theta_d = \Theta_c + \pi$)において、2軸装置 (\square : 0.64 - 1.2 Pa) および1軸装置 (∇ : 1.2 Pa) [Kou13] によって得られた角度相関関数を図4.2-1 に示す。入射光子エネルギーはともに33.66 eV であり、BL20A にて行った。横軸は入射光の偏光ベクトル $\hat{\mathbf{e}}$ から測った検出器 c の角度 Θ_c (deg)であり、縦軸は2光子放出の確率密度 (sr^2)である。2.4 節で述べたように、測定で得られる角度相関関数は、角度2重微分断面積 $\langle q_2 \rangle(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ の相対値、つまり(2.4-13) 式で定義される $R'''_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Theta_d)$ である。 $R'''_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Theta_d)$ を図4.2-1 の絶対値スケールの縦軸にのせるため、そのコントラストが小さいことを利用した。具体的には、reference 角度(Θ_c, Θ_d) = $(-\frac{\pi}{2}, \frac{\pi}{2})$ または $(\frac{\pi}{2}, -\frac{\pi}{2})$ における $R'''_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Theta_d)$ の値を $\frac{1}{4\pi^2} \text{sr}^2$ に規格化した(角度相関関数が等方的な場合、その値は角度によらず定数 $\frac{1}{4\pi^2} \text{sr}^2$ になることが(1.5-17) 式から分かる)。また、エラーバーは(2.4-14b) 式の統計誤差 $\Sigma_{R'''_{cd}}$ を表す(ただし上記の $R'''_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Theta_d)$ の規格化に伴い、 $\Sigma_{R'''_{cd}}$ の値も $\frac{1}{4\pi^2}$ 倍した)。

1軸装置では、水素ガス圧力は角度(Θ_c, Θ_d) によらず1.2 Pa であった。一方、2軸装置では、水素ガス圧力が(Θ_c, Θ_d) に大きく依存し、0.64 から1.2 Pa まで変動した。その原因は、図2.2-2 に示した2軸装置のガスセルの構造にある。2軸装置のガスセルは3層の円筒から成り、内側と外側の円筒の隙間からの単位時間あたりのガス漏れ量が検出器の角度(Θ_c, Θ_d) に依存する。ただし、角度(Θ_c, Θ_d) を固定している間のガスセル圧力はほぼ一定であった。図2.3-6 の比例関係に基づき、2光子同時計数率 \dot{N}_{cd} を水素ガス圧力で規格化するため(2.4-6) 式参照)、角度を変化させることによる圧力の変動は問題にならない。一方、1軸装置では図2.2-1 に示した直方体のガスセルの側面に検出器が取り付けられているため、このような問題は生じない。

図 4.2-1 より、対向配置($\Theta_d = \Theta_c + \pi$)において、2軸装置による角度相関関数(\square) と1軸装置による角度相関関数(∇) [Kou13] はよく一致した。

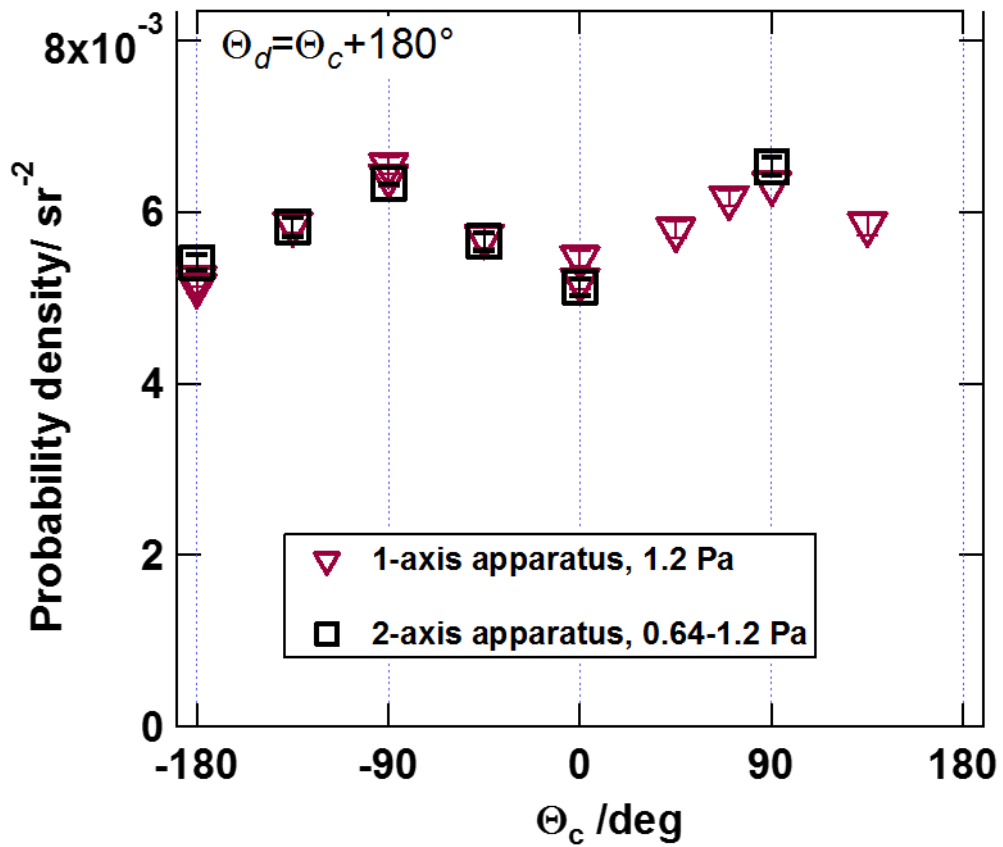


図 4.2-1 : 2 軸装置(□) および 1 軸装置(▽) [Kou13] によって測定された対向配置($\Theta_d = \Theta_c + \pi$) における Lyman- α 光子ペアの角度相関関数。入射光子エネルギーは 33.66 eV であり、BL20A にて測定された。水素ガス圧力は図中に示した。エラーバーは統計誤差を表す。別々の装置により測定された角度相関関数はよく一致した。

4.2.2 入射光の偏光度の効果

本節では、入射光の偏光度の効果について議論する。偏向磁石ビームラインBL20A (▽, △, □) とアンジュレータービームライン(○) BL28B にて測定されたLyman- α 光子ペアの角度相関関数を図4.2-2 に示す[Nak14(転載許可済み)]。下向き三角(▽) および上向き三角(△) は1軸装置による結果であり[Kou13]、四角(□) および丸(○) は2軸装置による結果である。入射光子エネルギーは33.66 eV であり、水素ガス圧力は図中に示した。(a), (b), および(c) はそれぞれ対向配置($\Theta_d = \Theta_c + \pi$)、非対向配置($\Theta_d = -\Theta_c$) および非対向配置($\Theta_d = -\Theta_c + \pi$) である。測定結果は3配置を通して共通の縦軸にのせた。図4.2-2 の上部には、各々の配置における光子検出器 c, d と入射光の偏光ベクトル $\hat{\epsilon}$ の関係を示した。(b) の非対向配置 $\Theta_d = -\Theta_c$ とは、検出器 c と d が空間固定 Z 軸に対して対称な配置である。一方、(c) の非対向配置 $\Theta_d = -\Theta_c + \pi$ とは、検出器 c と d が空間固定 Y 軸に対して対称な配置である。

全ての配置において、BL20A における角度相関関数(▽, △, □) とBL28B における角度相関関数(○) はよく一致した。2.1.2 節で述べたように、BL20A の直線偏光度は ~ 0.8 [Hik03, Aot04] であり、BL28B の直線偏光度は0.98 [Kim94] である。したがって、BL20A からの放射光には、蓄積リングの電子軌道面に水平な偏光成分と垂直な偏光成分がおおよそ9:1 の割合で含まれている。したがって、BL20A にて得られる角度相関関数は、放射光の水平成分由来の角度相関関数と、垂直成分由来の角度相関関数が9:1 の割合で重ね合わせたものになる[Kou13]。放射光の垂直成分由来の角度相関関数は、図4.2-2 において水平成分由来の角度相関関を Θ_c 軸に沿って 90° 平行移動させたものである。したがって、BL20A で測定された角度相関関数のコントラストは、BL28B のそれよりも低下すると推測される。しかし、図4.2-2 を見る限り、その低下の程度は非常に小さいようである。その理由として、角度相関関数の異方性が弱いことが挙げられる。

さらに、2つのビームラインにおける測定結果から、測定中の装置のアライメントの状態を読み取ることもできる。BL20A のスポットサイズは $2 \text{ mm} \times 2 \text{ mm}$ [Hik03, Aot04] であり、BL28B のそれよりもずっと大きい。そのため、光軸と検出器の回転軸が良く一致しない限り、放射光ビームがガスセル前方の $\phi 2$ アパーチャーを通り抜ける割合が検出器の角度(Θ_c, Θ_d) に大きく依存する。したがって、(2.4-3) 式の領域 V_{cd} の形状により決まる幾何学的因子 $G_{cd}(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ 、および入射光ビームの断面積 $A_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ が角度(Θ_c, Θ_d) に大きく依存しうる。これは、角度相関関数にゆがみが生じる原因となる。一方BL28B ではスポットサイズが小さいため、このような問題はほとんど生じない。さて、2つのビームラインにおける測定結果がよく一致したことは、BL20A

の測定における $G_{cd}(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ および $A_{cd}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ が角度 (Θ_c, Θ_d) に対してBL28B と同程度に一定であったことを示す。

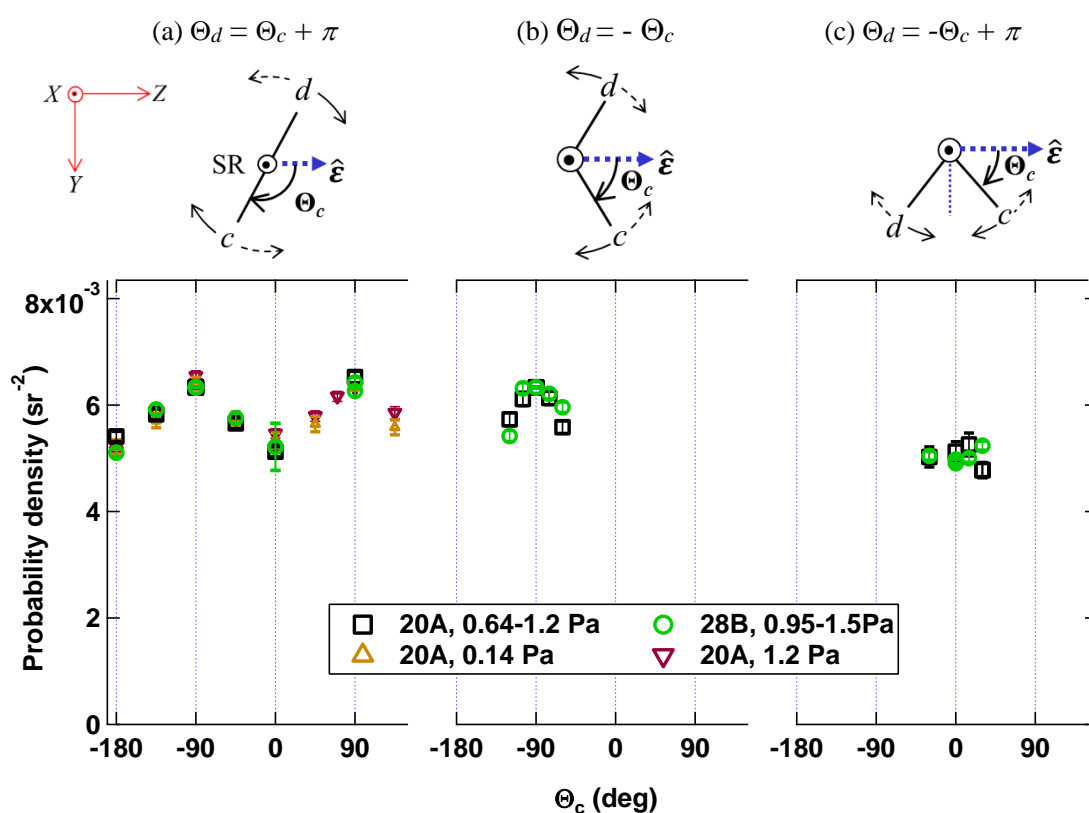
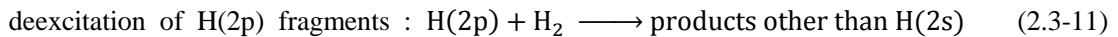
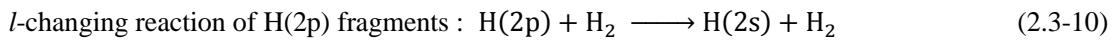
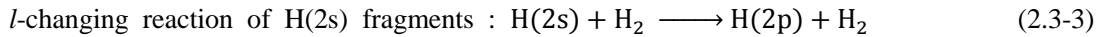


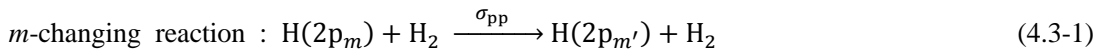
図4.2-2: 偏向磁石ビームラインBL20A (▽, △, □) とアンジュレータービームライン(○) BL28B にて測定されたLyman- α 光子ペアの角度相関関数[Nak14(転載許可済み)]。下向き三角(▽) および上向き三角(△) は1軸装置による結果であり[Kou13]、四角(□) および丸(○) は2軸装置による結果である。入射光子エネルギーは33.66 eV であり、水素ガス圧力は図中に示した。(a), (b), および(c) はそれぞれ対向配置($\Theta_d = \Theta_c + \pi$)、非対向配置($\Theta_d = -\Theta_c$) および非対向配置($\Theta_d = -\Theta_c + \pi$) における結果である。

4.3 量子もつれを破壊しうる反応の寄与

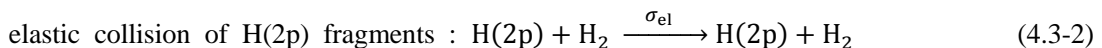
2.3 節でのべたように、本実験では、 $H(n=2)$ 原子と H_2 分子の反応、および $H(n\geq 3)$ 原子から $H(2p)$ 原子へのカスケードの影響を含まない Lyman- α 光子ペアの角度相関関数を測定した。これは、(i) (2.3-4) 式のフィッティングによりコインシデンスタイムスペクトルから遅い成分の寄与を除いたこと、(ii) 入射光量で規格化された真の同時計数率 \dot{N}_{cd} ((2.3-9) 式参照) が水素ガス圧力 1.2 Pa までの範囲において水素ガス圧力と比例関係にあったこと (図 2.3-6 参照)、および (iii) (2.3-4) 式の減衰時定数 τ が水素ガス圧力 0.14 – 1.5 Pa の範囲において、圧力にも (Θ_c, Θ_d) にも依存せず、 $H(2p)$ 原子の寿命 1.6 ns [Bet97] によく一致したことを以って判断した。したがって、測定された角度相関関数は、過程(1.4-1)' により生成する primary $H(2p)$ 原子ペアから放出された Lyman- α 光子ペアの角度相関関数である。しかし、図 2.3-6 の実験データ点数が少ないことを考慮し、ここでは断面積の観点からも $H(n=2)$ 原子と H_2 分子の反応の寄与がないことを確かめる。その上で、次節から角度相関関数の測定結果と理論予測を比較することにしよう。2.3 節では、以下の反応の寄与を調べた。



(2.3-3) 式の $H(2s)$ 原子の l -changing reaction の寄与は、(2.3-4) 式のフィッティングにより除いたことから、ここでは考える必要がない。(2.3-10) 式の $H(2p)$ 原子の l -changing reaction および(2.3-11) 式の $H(2p)$ 原子の deexcitation は、Lyman- α 光子ペアの角度相関関数には影響しない。そこで、ここでは以下の



および



の寄与を考える。 m -changing reaction とは、 $H(2p)$ 原子の磁気量子数 m が変化する反応である。(4.3-1) 式の m は核間軸に関する磁気量子数であり、 $2p_{m'}$ は磁気量子数が確定しない

2p 状態も含むものとする。elastic collision (弾性衝突) では、H(2p) 原子の内部状態は変化しないが、運動方向が変化するので Lyman- α 光子ペアの角度相関関数に影響を与え得る [Jän_c]。過程(4.3-1) および過程(4.3-2) においてはパートナーH(2p) 原子は表記しなかった。また、 σ_{pp} , σ_{el} はそれぞれ過程(4.3-1) および過程(4.3-2) の断面積である。

反応の平均自由時間 τ は、その断面積 σ_r を用いて以下のように表される。

$$\tau_r = \frac{1}{\sigma_r v n} \quad (4.3-3)$$

v は入射粒子と標的粒子との相対速度 (cm s^{-1}) であり、 n は標的粒子の数密度 (cm^{-3}) を表す。過程(4.3-1) および過程(4.3-2) では、H(2p) 原子が入射粒子であり、H₂ 分子が標的粒子である。入射光子エネルギー 33.66 eV、および H₂ ($X^1\Sigma_g^+$) の基底振動回転準位からの H(2p) + H(2p) の解離極限、24.875 eV [Sha71] を考慮すると、2個のプロトンの重心から観測した H(2p) 原子の解離の速度は $2.9 \times 10^6 \text{ cm s}^{-1}$ である。一方、実験室系から観測した室温における H₂ 分子の速度 (thermal velocity, v_{H_2}) は

$$v_{\text{H}_2} = \sqrt{\frac{8kT}{\pi m}} \quad (4.3-4)$$

k : ボルツマン定数 $1.38 \times 10^{-23} \text{ m}^2 \text{ kg s}^{-2} \text{ K}^{-1}$

T : 気体の温度 (K)

m : H₂ 分子の質量 (kg)

と表され、室温 $T = 298 \text{ K}$ では $1.8 \times 10^5 \text{ cm s}^{-1}$ である。これは、2個のプロトンの重心から観測した H(2p) 原子の解離の速度よりもずっと遅い。したがって、解離生成する H(2p) 原子と H₂ 分子の相対速度は $v = 2.9 \times 10^6 \text{ cm s}^{-1}$ としてよい。

Fleming *et al.* [Fle95] は、H₂ 分子の光解離により発生する Lyman- α 光子の偏光度を、H(1s) + H(2p) 解離極限から、解離極限 + 0.496 eV の入射光子エネルギーの範囲において測定した。さらに、偏光度の圧力依存性から、(4.3-1) 式の m -changing reaction の断面積を $\sigma_{pp} = (1.0 \pm 0.2) \times 10^{-14} \text{ cm}^2$ と見積もった。Fleming *et al.* によれば、相対速度 $2 \times 10^5 \text{ cm s}^{-1}$ - $7 \times 10^5 \text{ cm s}^{-1}$ の範囲において、水素ガス温度 137 K における σ_{pp} は相対速度に依存しな

い。そこで、*m*-changing reaction の平均自由時間 τ_{pp} を計算するにあたり、相対速度 $2.9 \times 10^6 \text{ cm s}^{-1}$ における σ_{pp} の値として、Fleming *et al.* らの断面積値 $\sigma_{pp} = 1.0 \times 10^{-14} \text{ cm}^2$ をそのまま用いた。角度相関関数測定を行った水素ガス圧力のうち最低圧力 0.14 Pa および最大圧力 1.5 Pa における *m*-changing reaction の平均自由時間 τ_{pp} の計算結果を以下の表4.3-1 に示す。

表4.3-1 : *m*-changing reaction の平均自由時間 τ_{pp}

水素ガス圧力	0.14 Pa	1.5 Pa
平均自由時間 τ_{pp}	1000 ns	93 ns

表4.3-1 より、測定を行った最大の水素ガス圧力 1.5 Pa においても、平均自由時間 τ_{pp} は、H(2p) 原子の寿命 1.6 ns [Bet97] の約58 倍長い。したがって、解離H(2p) 原子は、Lyman- α 光子を放出するまえに *m*-changing reaction をほとんど経験しないであろう。すなわち本実験の水素ガス圧力の領域では、Lyman- α 光子ペアの角度相関関数は *m*-changing reaction の影響を受けないであろう。

次に、(4.3-2) 式の弾性衝突について考えてみよう。しかし、H(2p) 原子と H_2 分子の弾性衝突の断面積はこれまでのところ報告されていない。そこで、H(1s) 原子と H_2 分子の弾性衝突の断面積をスケールリングすることにより、これを求めた。Krstić and Schultz [Krs99] は、H(1s) 原子と H_2 分子の弾性衝突の断面積を、相対速度 $5.4 \times 10^5 \text{ cm s}^{-1} - 1.7 \times 10^7 \text{ cm s}^{-1}$ の範囲において報告した。H(2p) 原子と H_2 分子の弾性衝突の断面積は、H(1s) 原子と H_2 分子の弾性衝突の断面積の $\left(\frac{r_p}{r_s}\right)^2$ 倍と近似できる。ただし、 r_s および r_p はそれぞれ H(1s) 原子と H(2p) 原子の半径であり、 $\left(\frac{r_p}{r_s}\right)^2 = 11$ である。そこで、Krstić and Schultz [Krs99] が報告した相対速度 $2.9 \times 10^6 \text{ cm s}^{-1}$ における H(1s) 原子と H_2 分子の弾性衝突の断面積値を11 倍することで、H(2p) 原子と H_2 分子の弾性衝突の断面積 $\sigma_{el} = 1 \times 10^{-13} \text{ cm}^2$ を得た。角度相関関数測定を行った水素ガス圧力のうち最低圧力 0.14 Pa および最大圧力 1.5 Pa における弾性衝突の平均自由時間 τ_{el} の計算結果を以下の表4.3-2 に示す。

表4.3-2：弾性衝突の平均自由時間 τ_{el}

水素ガス圧力	0.14 Pa	1.5 Pa
平均自由時間 τ_{el}	100 ns	9 ns

表 4.3-2 より、測定を行った最大の水素ガス圧力 1.5 Pa においても、弾性衝突の平均自由時間 τ_{el} は、H(2p) 原子の寿命 1.6 ns [Bet97] の約 6 倍に達する。したがって、解離 H(2p) 原子は Lyman- α 光子を放出するまえに弾性衝突をあまり経験しないであろう。以上より、測定された角度相関関数には、(4.3-2) 式の弾性衝突による影響はそれほど含まれないと言える。

実際、水素ガス圧力 0.14 - 1.2 Pa の範囲において Lyman- α 光子ペアの角度相関関数にほとんど圧力効果がないことが、本研究室の向後により報告されている[Kou13]。向後は、入射光子エネルギー33.66 eV、水素ガス圧力 1.2 Pa (▽)および 0.14 Pa (△) における Lyman- α 光子ペアの角度相関関数を対向配置($\Theta_d = \Theta_c + \pi$)にて測定した。結果を図 4.3-1 に示す[Kou13]。水素ガス圧力 0.14 Pa (△)と 1.2 Pa (▽)における角度相関関数はよく一致した(これは、図 2.3-6 に示した規格化された同時計数率 \dot{N}_{cd} と圧力の比例関係とも矛盾しない)。以上の議論は、本実験で得られた Lyman- α 光子ペアの角度相関関数は、過程(1.4-1)' により生成する primary H(2p) 原子ペア由来の角度相関関数であるとの結論を強く支持する。

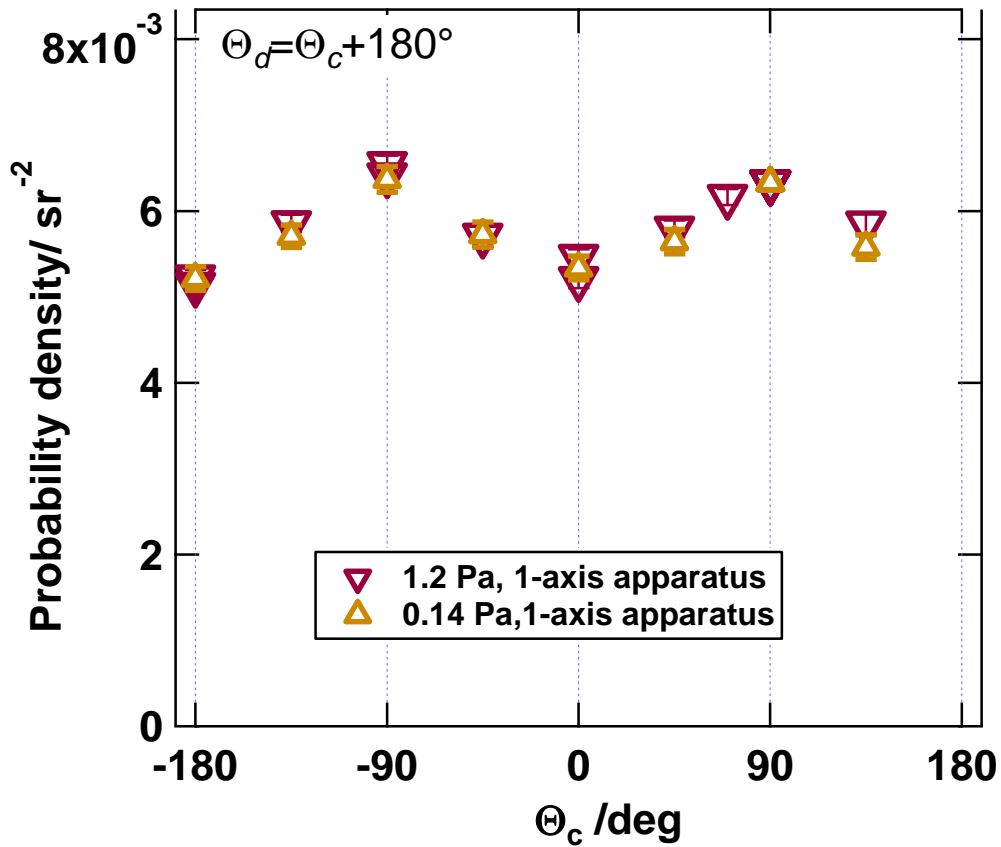


図 4.3-1：入射光子エネルギー33.66 eV，水素ガス圧力 1.2 Pa (▽) および 0.14 Pa (△) における Lyman- α 光子ペアの角度相関関数の測定結果 [Kou13]。どちらも BL20A にて測定し、1 軸装置を使用した。したがって対向配置($\Theta_d = \Theta_c + \pi$) である。水素ガス圧力 1.2 Pa における測定結果 (▽) と 0.14 Pa における測定結果(△) はよく一致した。

4.4 理論予測との比較

4.4.1 量子もつれH(2p) 原子ペアに対する予測との比較

入射光子エネルギー33.66eV, 水素ガス圧力 ~1 Pa (▽, □, ○) および 0.14 Pa (△) において得られた Lyman- α 光子ペアの角度相関関数を図 4.4-1 にまとめて示す[Nak14(転載許可済み)]. 装置の違い、およびビームラインの違いによらず同じ角度相関関数が得られることを4.2節で述べた。また、水素ガス圧力 0.14 - 1.2 Pa の範囲において、角度相関関数に圧力依存性がないことを4.3節に示した[Kou13]。 (a), (b), および(c) はそれぞれ対向配置($\Theta_d = \Theta_c + \pi$)、 および非対向配置($\Theta_d = -\Theta_c$) および非対向配置($\Theta_d = -\Theta_c + \pi$) である。4.2.1節で述べたように、3配置の測定結果を共通の絶対値スケールの縦軸に載せた。

宮城らは、過程(1.4-1)' により生成する量子もつれ H(2p) 原子ペア状態 $\left| {}^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty) \right\rangle$ ((1.5-4) 式) に対する角度相関関数を理論的に予測した。その結果が(1.5-16) 式の $f^M(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ である[Miy07]。それを青実線(—) で示す。また、Jänkälä らも量子もつれ H(2p) 原子ペアに対する角度相関関数を理論的に予測した。その結果が(1.6-1) 式の $f^J(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ である[Jän10]。ただし、1.6節で述べたように、Jänkälä らは過程(1.4-1)' により生成する量子もつれ H(2p) 原子ペアの状態を明示していない。また、Jänkälä らによる角度相関関数の計算手法は宮城らの手法とは異なる。Jänkälä らの予測を赤の破線(· · ·) で示す。量子もつれ H(2p) 原子ペア状態において、各々の水素原子は磁気量子数が定まらない重ね合わせ状態にある。量子もつれ H(2p) 原子から放出される Lyman- α 光子ペアの検出を、宮城らは量子光学的に扱ったのに対し、Jänkälä らは古典的に扱った。なお2つの理論予測は、検出器の角度分解能によりコンボリュートされている。(a)-(c) の3つの配置を通して、2つの理論予測は定性的には一致する。しかし、宮城らの理論予測(—) が示すコントラストは、Jänkälä らの理論予測(· · ·) よりも大きい。また、非対向配置(b) および(c) において、 $\Theta_c = 90^\circ, -90^\circ$ における挙動には小さな不一致が見られる。

次に角度相関関数の測定結果を理論予測(— [Miy07], · · · [Jän10]) と比較しよう。測定結果は、2つの理論予測と角度依存性において同じ傾向を示す。しかし、測定結果のコントラストは2つの理論予測よりもはるかに小さい。すなわち、Lyman- α 光子ペアの角度相関関数の測定結果は、量子もつれ H(2p) 原子ペア状態に対する2つの理論予測[Miy07, Jän10] に定性的には一致するものの、定量的には一致しないことがわかった。

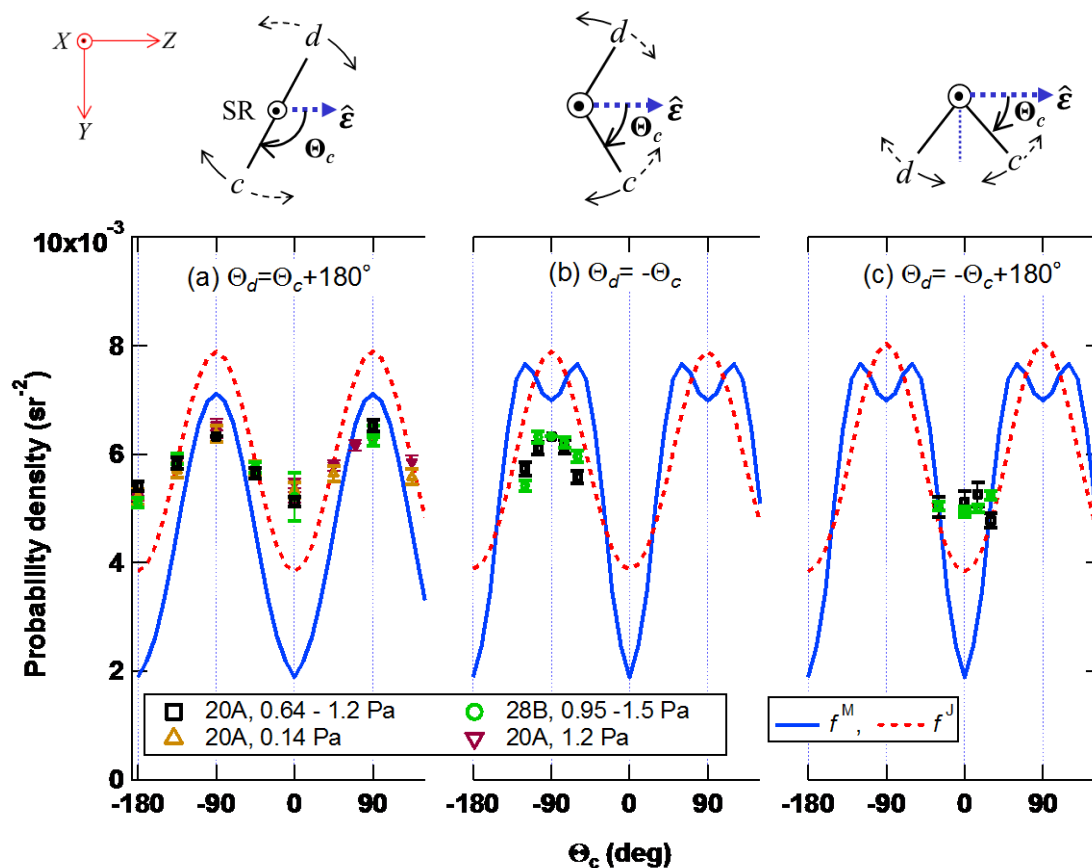


図 4.4-1: 入射光子エネルギー33.66eV において得られた Lyman- α 光子ペアの角度相関関数 [Nak14(転載許可済み)]。水素ガス圧力は図中に示した。 ∇ , \triangle , \square : BL20A における測定結果。 \circ : BL28B における測定結果。 $—$: 宮城らによる理論予測、(1.5-16) 式[Miy07]。 $-\cdot-\cdot-$: Jänkälä らによる理論予測、(1.6-1) 式[Jän10]。これらとともに量子もつれ H(2p) 原子ペア状態、つまり各々の水素原子の磁気量子数が定まらない重ね合わせ状態に対する理論予測である。

4.4.2 H(2p) 原子ペアの量子もつれが破れた場合の予測との比較

4.4.1 節で述べたように、過程(1.4-1)' により発生する Lyman- α 光子ペアの角度相関関数の測定結果は、量子もつれ H(2p) 原子ペア状態に対する 2 つの理論予測に定性的には一致した。一方、定量的には大きな隔たりがあった。測定結果と理論の不一致の原因として、解離の間に(1.5-4) 式の H(2p) 原子ペア状態 $\left| {}^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty) \right\rangle$ の量子もつれが破れ、放出される Lyman- α 光子ペアが(1.5-8) 式の量子もつれ状態 $|\psi\rangle$ ではなく、 $|\psi\rangle$ の各項 $|\gamma_a\phi_b\rangle$, $|\phi_a\gamma_b\rangle$, $|\rho_a\phi_b\rangle$, $|\phi_a\rho_b\rangle$ の混合アンサンブルとなることがあげられる。1.5.5 節で述べたように、これら 4 つの光子ペアは、それぞれ

$$\begin{aligned} (1.5-4) \text{ 式の最初の 2 項} &= |2p_1^a(1)2p_0^b(2)\rangle + |2p_1^a(2)2p_0^b(1)\rangle, \\ (1.5-4) \text{ 式の 2 番目の 2 項} &= -(|2p_0^a(1)2p_1^b(2)\rangle + |2p_0^a(2)2p_1^b(1)\rangle), \\ (1.5-4) \text{ 式の 3 番目の 2 項} &= -(|2p_{-1}^a(1)2p_0^b(2)\rangle + |2p_{-1}^a(2)2p_0^b(1)\rangle), \\ (1.5-4) \text{ 式の 4 番目の 2 項} &= |2p_0^a(1)2p_{-1}^b(2)\rangle + |2p_0^a(2)2p_{-1}^b(1)\rangle \end{aligned} \quad (1.5-18)$$

から放出される。2p の下つき添え字(1, 0, -1 が核間軸に関する磁気量子数を表す)に注目すると、(1.5-18) 式が表すどの H(2p) 原子ペア状態においても、各々の水素原子の磁気量子数が定まっている。一方、これら 4 つの状態を重ね合わせた(1.5-4) 式、つまり量子もつれ H(2p) 原子ペア $\left| {}^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty) \right\rangle$ においては、各々の水素原子の磁気量子数は定まらない。光子ペア状態 $|\gamma_a\phi_b\rangle$, $|\phi_a\gamma_b\rangle$, $|\rho_a\phi_b\rangle$, $|\phi_a\rho_b\rangle$ のそれぞれに対して(1.5-9) 式の 2 光子相関関数を計算したところ、すべて同じ角度相関関数を与えることがわかった(1.5.5 節参照)。そのため、光子ペアが 4 つの状態 $|\gamma_a\phi_b\rangle$, $|\phi_a\gamma_b\rangle$, $|\rho_a\phi_b\rangle$, $|\phi_a\rho_b\rangle$ にいかなる重みで分布するとしても、その混合アンサンブルに対する角度相関関数は(1.5-19) 式の $f_{\gamma\phi}^M(\Theta_c, \Phi_c=\frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d=\frac{3\pi}{2})$ となる。

入射光子エネルギー 33.66eV, 水素ガス圧力 ~ 1 Pa (∇ , \square , \circ) および 0.14 Pa (\triangle) において得られた Lyman- α 光子ペアの角度相関関数を図 4.4-2 に示す[Nak14(転載許可済み)]。測定結果は、図 4.4-1 と同じである。黒の一点鎖線(—•—) は、(1.5-18) 式の 4 つの状態に任意の重みで分布した H(2p) 原子ペアの混合アンサンブルに対する理論予測 $f_{\gamma\phi}^M(\Theta_c, \Phi_c=\frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d=\frac{3\pi}{2})$ ((1.5-19) 式) であり、青の実線(—) は、(1.5-4) 式の量子もつれ H(2p) 原子ペア状態 $\left| {}^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty) \right\rangle$ に対する理論予測 $f^M(\Theta_c, \Phi_c=\frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d=\frac{3\pi}{2})$ ((1.5-16) 式) である。これら

の理論予測は、検出器の角度分解能によりコンボリユートされている。測定結果は角度依存性において、黒の一点鎖線(—・—) と逆の傾向を示している。すなわち、定性的にすら一致しない。したがって、過程(1.4-1)' により生成するH(2p) 原子ペアは、(1.5-18) 式で表される各々の水素原子の磁気量子数が定まった状態にはなさそうである。つまり、(1.5-4) 式の量子もつれ状態 $\left| {}^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty) \right\rangle$ の各成分にはないと結論できる。

つぎに、解離の間に(1.5-4) 式の H(2p) 原子ペア状態 $\left| {}^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty) \right\rangle$ の量子もつれが部分的に破れることを考慮しよう。すなわち、H(2p) 原子ペアが(1.5-4) 式の量子もつれ状態 $\left| {}^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty) \right\rangle$ と(1.5-18) 式が表す 4 つの状態の混合アンサンブルである場合を考えた。この場合に得られる角度相関関数は、 $f^M(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ と $f_{\gamma\phi}^M(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ を、それぞれの状態の重みで足し合わせたものである((1.5-18) 式の 4 つの H(2p) 原子ペア状態は、全て同じ角度相関関数 $f_{\gamma\phi}^M(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ を与える)。そこで、図 4.4-2(a) の対向配置の実験データに対して以下の(4.4-1) 式をフィットした。

$$f(\Theta_c, \Theta_d; p_1, p_2) = p_1 f^M\left(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2}\right) + p_2 f_{\gamma\phi}^M\left(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2}\right) \quad (4.4-1)$$

フィッティングパラメーターは p_1 および p_2 である。灰色の実線(—) は(4.4-1) 式の best-fitted curve であり、定性的にも定量的にも対向配置における実験データによく一致した。best-fitted curve を与える p_1 と p_2 は $p_1 = 0.34$ および $p_2 = 0.69$ であり、 $p_1 + p_2$ の値はおおよそ 1 となった。 p_1 および p_2 が、それぞれ H(2p) 原子ペアが(1.5-4) 式の量子もつれ状態 $\left| {}^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty) \right\rangle$ に見出される確率と(1.5-18) 式が表す 4 つの状態のどれかに見出される確率であることを考えると、 $p_1 + p_2 \sim 1$ は理にかなった結果である。しかし、図 4.4-2 をみれば明らかのように、(a) の対向配置の実験結果によくフィットさせた p_1 および p_2 の組は、非対向配置(b), (c) には、形の点でも大きさの点でもうまくフィットさせることはできなかった。また、(a)-(c) 3 つの配置の実験結果に(4.4-1) 式をフィットしたところ、3 配置を通して実験結果を同時に再現する p_1 および p_2 の組は見つからなかった。したがって、過程(1.4-1)' により生成する H(2p) 原子ペアは、上記の混合アンサンブル((1.5-4) 式と(1.5-18) 式の混合アンサンブル)ではなさそうである。3 つの配置における角度相関関数が得られたこ

とにより、上記の混合アンサンブル説を否定できたことの意味は大きい(対向配置(a)のみの測定では上記の混合アンサンブル説を採用してしまったことであろう)。

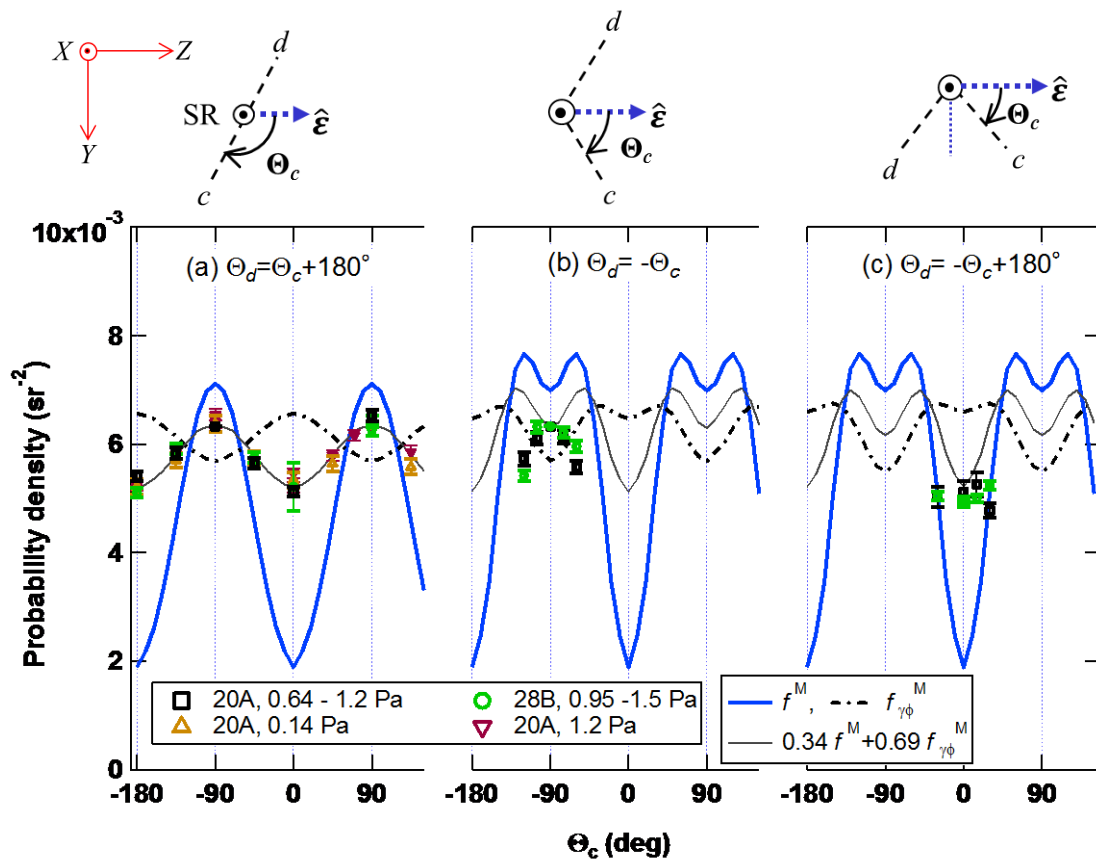
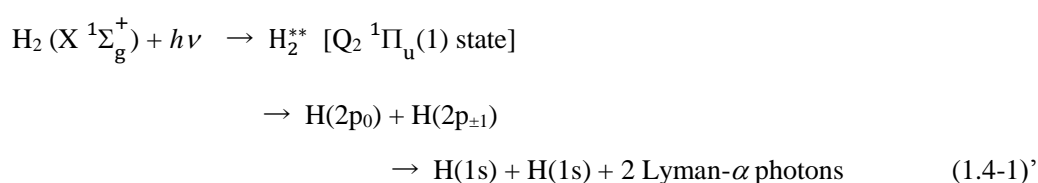


図 4.4-2 : 入射光子エネルギー33.66eV において得られた Lyman- α 光子ペアの角度相関関数[Nak14(転載許可済み)]。水素ガス圧力は図中に示した。 ∇ , Δ , \square :BL20A における結果。

\circ :BL28B における結果。—— : (1.5-4) 式の量子もつれ H(2p) 原子ペア状態 $|^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty)\rangle$ 、つまり各々の水素原子の磁気量子数が定まらない重ね合わせ状態に対する理論予測[Miy07]。- - - : 各々の水素原子の磁気量子数が定まった(1.5-18) 式の H(2p) 原子ペア状態に対する理論予測[Miy07]。—— : 対向配置の角度相関関数(実測) に対して(4.3-1) 式をフィットして得られた best-fitted curve.

第5章 結論

本研究では、水素分子の光解離過程(1.4-1)' [Oda04] により生成する H(2p) 原子ペアの状態を解明することを目的に、そのプローブとなる Lyman- α 光子ペアの角度相関関数を入射光子エネルギー33.66 eV、水素ガス圧力~0.1 Pa および~1 Pa において測定した。



本研究室によるこれまでの角度相関関数測定[Tan09, Tan10R, Nak12, Kou13] では、2個の光子検出器を独立に回転できなかつた。そのため、角度相関関数の測定は対向配置($\Theta_d = \pi + \Theta_c$)に限られていた。しかし、測定結果と理論予測との比較により解離生成する H(2p) 原子ペアの状態を診断するには、対向配置の測定のみでは不十分である。そこで、本研究では2個の光子検出器を独立に回転させる装置を製作した。この装置を用いて、これまでの対向配置($\Theta_d = \Theta_c + \pi$)だけでなく、2種類の非対向配置($\Theta_d = -\Theta_c$ および $\Theta_d = -\Theta_c + \pi$)における角度相関関数を測定した。

測定された角度相関関数は、H(2p) 原子およびH(2s) 原子とH₂ 分子の反応、およびH($n \geq 3$) 原子のカスケードを含まない。すなわち過程(1.4-1)' により生成するprimary H(2p) 原子ペアに由来するLyman- α 光子ペアの角度相関関数である。また、Lyman- α 光子に対する検出効率の高い光子検出器(CsI 塗布型miclochannel plate) を導入したことにより、全同時計数(真の同時計数 + 偽の同時計数) に対する偽の同時計数の寄与を、最低水素ガス圧力0.14 Pa においても1% 未満に抑えた。なお偽の同時計数の起源は宇宙線ミュオンである。

Lyman- α 光子ペアの角度相関関数の測定結果は、3種類の配置を通して共通の縦軸にのせ、さらにそのコントラストが小さいことを利用し、スケールを絶対値とした。対向配置($\Theta_d = \Theta_c + \pi$) における測定結果が本来持つべき180° の周期を持っていたことから、測定中の装置のアライメントは良い状態が保たれていたといえる。また、BL28B とBL20A における測定結果はよく一致した。したがって、BL20Aの測定における幾何学的因子 G_{cd}

$(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ および入射光ビームの断面積 $A_{cd}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ は、角度 (Θ_c, Θ_d) に対して BL28B と同程度に一定であったといえる。

Lyman- α 光子ペアの角度相関関数の測定結果を、i) 各々の水素原子の磁気量子数が定まらない量子もつれ H(2p) 原子ペア状態に対する2つの理論予測と比較した。つまり、宮城らによる(1.5-4) 式の量子もつれ状態 $\left| {}^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty) \right\rangle$ に対する理論予測 $f^M(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ [Miy07]、および Jänkälä らによる理論予測 $f^J(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ [Jän10] である。角度相関関数の測定結果は、これら2つの理論予測に定性的には一致したが、定量的には大きな隔たりがあった。

この隔たりの原因として、解離の間に(1.5-4) 式の H(2p) 原子ペア状態 $\left| {}^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty) \right\rangle$ の量子もつれが破れることを考慮し、測定結果を ii) 各々の水素原子の磁気量子数が定まった H(2p) 原子ペア状態に対する理論予測 $f_{\gamma\phi}^M(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ [Miy07] と比較した。しかし、測定結果の角度依存性は、理論予測 $f_{\gamma\phi}^M(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ とは全く逆の傾向を示し、定性的にすら一致しなかった。したがって、解離生成する H(2p) 原子ペアは、各々の水素原子の磁気量子数が定まった状態ではなさそうである。つまり、(1.5-4) 式の量子もつれ状態 $\left| {}^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty) \right\rangle$ の最初の2項、2番目の2項、3番目の2項、4番目の2項で表される4つの状態ではないといえる。

さらに、解離の間に(1.5-4) 式の H(2p) 原子ペア状態 $\left| {}^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty) \right\rangle$ の量子もつれが部分的に破れることを考慮した。すなわち、H(2p) 原子ペアが(1.5-4) 式の量子もつれ状態 $\left| {}^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty) \right\rangle$ と、その4つの成分(つまり(1.5-4) 式の最初の2項、2番目の2項、3番目の2項、4番目の2項) の混合アンサンブルである場合を考えた。そこで、(1.5-4) 式の量子もつれ状態 $\left| {}^1\Pi_u^+(r \rightarrow \infty) \right\rangle$ 由来の角度相関関数 $f^M(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ と、(1.5-4) 式の4つの成分由来の角度相関関数 $f_{\gamma\phi}^M(\Theta_c, \Phi_c = \frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d = \frac{3\pi}{2})$ を、それぞれの状態の重み p_1, p_2 をつけて足し合わせた(4.4-1) 式を対向配置の実験結果に対してフィットした。その結果、対向配置の実験結果をよく再現する p_1, p_2 の組が存在した。しかし、対向配置の実験結果によくフィットさせた p_1 および p_2 の組は、非対向配置には、形の点でも大きさの点でもうまくフィットさせることはできなかった。また、3つの配置の実験結果に(4.3-1) 式をフィットしたところ、3配置を通して実験結果を同時に再現する p_1 および p_2 の組は見つからな

った。したがって、過程(1.4-1)'により生成するH(2p) 原子ペアは、上記の混合アンサンブルではなさそうである。しかし、もし、非対向配置の測定結果がなければ、(4.4-1) 式をフィットした結果をまず間違いなく信用し、上記の混合アンサンブル説を採用していただろう。3種類の配置における角度相関関数を測定したことにより、これまでよりも厳しく理論の検証ができるようになり、H(2p) 原子ペア状態にこれまでよりも厳しい制約を課すことができた。

付録 A

2012 年 10 月 ビームタイムにおける 3 配置の角度相関関数を 共通の縦軸へのせる方法

2012 年 10 月 ビームタイムでは、対向配置と 2 種類の非対向配置における角度相関関数を測定した。対向配置($\Theta_d = \Theta_c + \pi$) と非対向配置($\Theta_d = -\Theta_c$) の reference 角度はともに垂直対向($\Theta_c^{ref}, \Theta_d^{ref} = (-90^\circ, 90^\circ)$) である。(2.4-13) 式より、これら 2 種類の配置における角度相関関数の測定値は

$$R_{cd}'''(\Theta_c, \Theta_d) = \frac{S_{cd}'''(\Theta_c, \Theta_d)}{\frac{1}{2}\{S_{cd}'''^{ref1}(\Theta_c^{ref1} = -\frac{\pi}{2}, \Theta_d^{ref1} = \frac{\pi}{2}) + S_{cd}'''^{ref2}(\Theta_c^{ref2} = -\frac{\pi}{2}, \Theta_d^{ref2} = \frac{\pi}{2})\}}$$

$$\Theta_d = \Theta_c + \pi \quad \text{または} \quad \Theta_d = -\Theta_c \quad (\text{A.1})$$

と表される。ただし、測定条件から $E_{ex} = 33.66$ eV, $\Phi_c = \frac{3\pi}{2}$, $\Phi_d = \frac{3\pi}{2}$ であり、(2.4-9) 式の $S_{cd}'''(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ からこれらの変数を省略した。同様に(2.4-12) 式の $R_{cd}'''(E_{ex}, \Theta_c, \Theta_d)$ から E_{ex} を省略した。一方、非対向配置($\Theta_d = -\Theta_c + \pi$) の測定のみ($\Theta_c^{ref}, \Theta_d^{ref} = (30^\circ, -30^\circ)$) を reference 角度に用いた。したがって角度相関関数の測定値は

$$R_{cd}'''(\Theta_c, \Theta_d = -\Theta_c + \pi) = \frac{S_{cd}'''(\Theta_c, \Theta_d = -\Theta_c + \pi)}{\frac{1}{2}\{S_{cd}'''^{ref1}(\Theta_c^{ref1} = \frac{\pi}{6}, \Theta_d^{ref1} = -\frac{\pi}{6}) + S_{cd}'''^{ref2}(\Theta_c^{ref2} = \frac{\pi}{6}, \Theta_d^{ref2} = -\frac{\pi}{6})\}}$$

$$(\text{A.2})$$

となる。したがって、(A.2) 式の測定値を(A.1) 式の他の 2 種類の配置における測定値と共通の縦軸に乗せることはできない。そこで、対向配置($\Theta_d = \Theta_c + \pi$) と非対向配置($\Theta_d = -\Theta_c + \pi$) ではともに水平対向($\Theta_c, \Theta_d = (0, 180^\circ)$) を測定していることを利用し、以下の $T_{cd}'''(\Theta_c, \Theta_d)$ を定義した。

$$T_{cd}'''(\Theta_c, \Theta_d) = \alpha R_{cd}'''(\Theta_c, \Theta_d = -\Theta_c + \pi) \quad (\text{A.3a})$$

$$\alpha = \frac{[R'''_{cd}(\Theta_c=0, \Theta_d=\pi)]_{\text{opp}}}{[R'''_{cd}(\Theta_c=0, \Theta_d=\pi)]_{\text{non}}} \quad (\text{A.3b})$$

ただし、 $[R'''_{cd}(\Theta_c=0, \Theta_d=\pi)]_{\text{opp}}$ および $[R'''_{cd}(\Theta_c=0, \Theta_d=\pi)]_{\text{non}}$ はそれぞれ対向配置($\Theta_d = \Theta_c + \pi$) と非対向配置($\Theta_d = -\Theta_c + \pi$) の測定値であることを示す。 $T'''_{cd}(\Theta_c, \Theta_d)$ は、非対向配置($\Theta_d = -\Theta_c + \pi$) で測定された

$$R'''_{cd}(\Theta_c, \Theta_d = -\Theta_c + \pi) = \frac{S'''_{cd}(\Theta_c, \Theta_d = -\Theta_c + \pi)}{\frac{1}{2}\{S'''_{cd}{}^{\text{ref}1}(\Theta_c^{\text{ref}1} = -\frac{\pi}{2}, \Theta_d^{\text{ref}1} = \frac{\pi}{2}) + S'''_{cd}{}^{\text{ref}2}(\Theta_c^{\text{ref}2} = -\frac{\pi}{2}, \Theta_d^{\text{ref}2} = \frac{\pi}{2})\}} \quad (\text{A.4})$$

であり、他の 2 種類の配置と共通の縦軸にのせることができる。本測定においては、 $[R'''_{cd}(\Theta_c=0, \Theta_d=\pi)]_{\text{opp}} = 0.808924$, $[R'''_{cd}(\Theta_c=0, \Theta_d=\pi)]_{\text{non}} = 1.07198$ より、 $\alpha = 0.7546$ であった。

次に $T'''_{cd}(\Theta_c, \Theta_d)$ の統計誤差 $\Sigma_{T'''_{cd}}$ を求める。誤差伝播の法則により、物理量 Q が測定量 x, y, z, \dots の関数 $Q = f(x, y, z, \dots)$ であるとき、 Q の分散 Σ_Q^2 は

$$\Sigma_Q^2 = \left(\frac{\partial f}{\partial x}\right)_0^2 \Sigma_x^2 + \left(\frac{\partial f}{\partial y}\right)_0^2 \Sigma_y^2 + \left(\frac{\partial f}{\partial z}\right)_0^2 \Sigma_z^2 + \dots \quad (\text{A.5})$$

と表される。ただし、 $\left(\frac{\partial f}{\partial x}\right)_0, \left(\frac{\partial f}{\partial y}\right)_0, \left(\frac{\partial f}{\partial z}\right)_0 \dots$ などは、測定量 x, y, z, \dots の平均値における微分係数を表す。 $\Sigma_x^2, \Sigma_y^2, \Sigma_z^2, \dots$ は測定量 x, y, z, \dots の分散である。(2.4-10) 式 $S'''_{cd}(\Theta_c, \Theta_d)$ の定義より、(2.4-13) 式の $R'''_{cd}(\Theta_c, \Theta_d)$ は以下のように表される。

$$R'''_{cd}(\Theta_c, \Theta_d) = \frac{\frac{\dot{N}_{cd}(\Theta_c, \Theta_d)}{P i_{\text{Au}}(\Theta_c, \Theta_d)}}{\frac{1}{2} \left\{ \frac{\dot{N}_{cd}^{\text{ref}1}(\Theta_c^{\text{ref}1}, \Theta_d^{\text{ref}1})}{P i_{\text{Au}}^{\text{ref}1}(\Theta_c^{\text{ref}1}, \Theta_d^{\text{ref}1})} + \frac{\dot{N}_{cd}^{\text{ref}2}(\Theta_c^{\text{ref}2}, \Theta_d^{\text{ref}2})}{P i_{\text{Au}}^{\text{ref}2}(\Theta_c^{\text{ref}2}, \Theta_d^{\text{ref}2})} \right\}} \quad (\text{A.6})$$

添え字 ref1, ref2 は 2 回の reference 測定における測定量であることを表す。 $\dot{N}_{cd}(\Theta_c, \Theta_d)$ は (2.3-9) 式より

$$\dot{N}_{cd}(\Theta_c, \Theta_d) = \frac{N_{\text{tot}}(\Theta_c, \Theta_d) - \frac{1}{2}\{N_{\text{acc}1} + N_{\text{acc}2}\}}{t} \quad (\text{A.7})$$

と表される。ただし(2.3-9) 式の N_{sec} は無視した。したがって、 $R'''_{cd}(\Theta_c, \Theta_d)$ は本測定と 2 回

のreference測定(ref1, ref2) の3回の測定から成り、それぞれの測定について6種類の測定量、つまり $N_{tot}(\Theta_c, \Theta_d), N_{acci1}, N_{acci2}, t, P, i_{Au}(\Theta_c, \Theta_d)$ を含む。ただし $t, P, i_{Au}(\Theta_c, \Theta_d)$ の誤差の起源は系統誤差であり、一方、 $N_{tot}(\Theta_c, \Theta_d), N_{acci1}, N_{acci2}$ の誤差の起源は統計誤差である。現在は統計誤差が主であるため、前者の測定量もつ誤差は無視する。したがって、

$R'''_{cd}(\Theta_c, \Theta_d)$ の統計誤差を生み出す測定量は、9個($N_{tot}(\Theta_c, \Theta_d), N_{acci1}, N_{acci2}, N_{tot}^{ref1}(\Theta_c, \Theta_d), N_{acci1}^{ref1}, N_{acci2}^{ref1}, N_{tot}^{ref2}(\Theta_c, \Theta_d), N_{acci1}^{ref2}, N_{acci2}^{ref2}$)である。(A.3) 式より、 $T'''_{cd}(\Theta_c, \Theta_d)$ の統計誤差を求めるには、27個の測定量に対して分散 $\Sigma_{X_i}^2$ と偏微分 $\left(\frac{\partial T'''_{cd}}{\partial X_i}\right)_0$ を考える。各々の測定量 X_i ($i = 1, 2, \dots, 27$) はポアソン分布に従うと仮定すると、その分散 $\Sigma_{X_i}^2$ は平均値 X_i^m に等しい。したがって統計誤差 $\Sigma_{T'''_{cd}}$ は

$$\Sigma_{T'''_{cd}} = \sqrt{\sum_{i=1}^{27} \left(\frac{\partial T'''_{cd}}{\partial X_i}\right)_0^2 \Sigma_{X_i}^2} = \sqrt{\sum_{i=1}^{27} \left(\frac{\partial T'''_{cd}}{\partial X_i}\right)_0^2 X_i^m} = \sqrt{A + B + C} \quad (\text{A.8})$$

と表される。ただし、

$$A = \alpha^2 \left(\Sigma_{R'''_{cd}}\right)^2 \quad (\text{A.9a})$$

$$B = \left(\frac{R'''_{cd}(\Theta_c, \Theta_d = -\Theta_c + \pi)}{[R'''_{cd}(\Theta_c = 0, \Theta_d = \pi)]_{\text{non}}}\right)^2 \left([\Sigma_{R'''_{cd}}]_{\text{opp}}\right)^2 \quad (\text{A.9b})$$

$$C = \alpha^2 \left(\frac{R'''_{cd}(\Theta_c, \Theta_d = -\Theta_c + \pi)}{[R'''_{cd}(\Theta_c = 0, \Theta_d = \pi)]_{\text{non}}}\right)^2 \left([\Sigma_{R'''_{cd}}]_{\text{non}}\right)^2 \quad (\text{A.9c})$$

である。 $\Sigma_{R'''_{cd}}$ は $R'''_{cd}(\Theta_c, \Theta_d = -\Theta_c + \pi)$ の統計誤差である。 $[\Sigma_{R'''_{cd}}]_{\text{opp}}$ および $[\Sigma_{R'''_{cd}}]_{\text{non}}$ はそれぞれ $[R'''_{cd}(\Theta_c = 0, \Theta_d = \pi)]_{\text{opp}}$ および $[R'''_{cd}(\Theta_c = 0, \Theta_d = \pi)]_{\text{non}}$ の統計誤差である。 $R'''_{cd}(\Theta_c, \Theta_d)$ の統計誤差は(2.4-14b) 式で与えられる。

付録 B

コインシデンス測定結果の数値データ表

本研究で報告した Lyman- α 光子ペアの角度相関関数の測定は、2012 年 4 月、2012 年 10 月および 2013 年 1 月の計 3 回のビームタイムで行った。以下では、これらのビームタイムにおけるコインシデンス測定の数値データを示す。ただし、2012 年 4 月ビームタイムの測定結果は向後により報告されているため[Kou13]、リストから除いた。なお、2012 年 10 月ビームタイムと 2013 年 1 月ビームタイムにおいて求めた $S'''_{cd}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c=\frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d=\frac{3\pi}{2})$ は、(2.4-10) 式の定義のとおりではないため、注意が必要である(本実験では $\Phi_c = \Phi_d = \frac{3\pi}{2}$ であることに留意のこと)。以下に詳細を記す。

(i) 2012 年 10 月ビームタイムにおける $S'''_{cd}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c=\frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d=\frac{3\pi}{2})$

2012 年 10 月ビームタイムでは、

$$\frac{\dot{N}_{cd}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c=\frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d=\frac{3\pi}{2})}{PK(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c=\frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d=\frac{3\pi}{2})i_{Au}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c=\frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d=\frac{3\pi}{2})} \quad (\text{B.1})$$

を $S'''_{cd}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c=\frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d=\frac{3\pi}{2})$ とした。 $K(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c=\frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d=\frac{3\pi}{2})$ は、金プレートの感度曲線である (単位は C^{-1})[Tan10]。 $K(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c=\frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d=\frac{3\pi}{2})$ と金プレート電流値 $i_{Au}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c=\frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d=\frac{3\pi}{2})$ の積、

$$K(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c=\frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d=\frac{3\pi}{2})i_{Au}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c=\frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d=\frac{3\pi}{2}) \quad (\text{B.2})$$

は、入射光の photo flux(s^{-1}) に比例する量を表す[Tan10]。 $K(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c=\frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d=\frac{3\pi}{2})$ は角度 $(\Theta_c, \Phi_c, \Theta_d, \Phi_d)$ に依存するが、装置のアライメントがよれば、つまり入射光軸と検出器の回転軸が良く一致していれば、 Θ_c と Θ_d にほとんど依存しない。したがって、実際はある角度 $(\Theta_c=\Theta_{c0}, \Theta_d=\Theta_{d0})$ における $K(E_{ex}, \Theta_{c0}, \Phi_c=\frac{3\pi}{2}, \Theta_{d0}, \Phi_d=\frac{3\pi}{2})$ を用いて(B.2) 式の $S'''_{cd}(E_{ex}, \Theta_c, \Phi_c=\frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d=\frac{3\pi}{2})$ を計算した。また、測定は全て $E_{ex}=33.66\text{eV}$ で行った。したがって、

$K(E_{\text{ex}}, \Theta_{c0}, \Phi_{c0}=\frac{3\pi}{2}, \Theta_{d0}, \Phi_{d0}=\frac{3\pi}{2})$ の値は全ての $S'''_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c=\frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d=\frac{3\pi}{2})$ 測定において共通である。

(ii) 2013年1月ビームタイムにおける $S'''_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c=\frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d=\frac{3\pi}{2})$

2013年1月ビームタイムにおいては、コインシデンス測定中の光量が一定であったので、同時計数率 $\dot{N}_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c=\frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d=\frac{3\pi}{2})$ を水素ガス圧力で規格化した量

$$\frac{\dot{N}_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c=\frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d=\frac{3\pi}{2})}{P} \quad (\text{B.3})$$

を $S'''_{cd}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c=\frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d=\frac{3\pi}{2})$ とした。つまり、(2.4-10) 式のように $i_{Au}(E_{\text{ex}}, \Theta_c, \Phi_c=\frac{3\pi}{2}, \Theta_d, \Phi_d=\frac{3\pi}{2})$ では規格化しなかった。

表 B1-1 : 2012 年 10 月 ビームタイム 対向配置($\Theta_d = \Theta_c + \pi$) における角度相関関数の測定結果

No	File name	Θ'_s	Θ_c	Pressure	Pressure	Time	i_{Au}	N_{cd}	S'''_{cd}	R'''_{cd}
		(deg)	(deg)	(mTorr)	(Pa)	(s)	(nA)	(cts)	(10^3 Torr^{-1})	(-)
1	Nov12_09	90	-90	8.28	1.10	9147	3.1968	6409.5	4.85E-13	1
2	Nov13_01	0	0	7.63	1.02	10567	3.1276	5380	3.91E-13	0.808924
3	Nov13_02	90	-90	8.31	1.11	10480	3.1807	7278.5	4.82E-13	1
4	Nov13_03	180	-180	8.72	1.16	10115	3.1571	6226.5	4.10E-13	0.854293
5	Nov13_04	-90	90	8.12	1.08	11329	3.0851	7657.5	4.95E-13	1.03088
6	Nov13_05	90	-90	8.14	1.09	10419	3.1206	6900	4.78E-13	1
7	Nov13_06	45	-45	7.89	1.05	10648	3.0591	6010	4.29E-13	0.893008
8	Nov13_07	135	-135	8.48	1.13	8829	3.0851	5566.5	4.42E-13	0.920292
9	Nov13_08	90	-90	8.15	1.09	8489	3.0717	5589.5	4.82E-13	1

表 B1-2 : 2012 年 10 月 ビームタイム 非対向配置($\Theta_d = -\Theta_c$) における角度相関関数の測定結果

No	File name	Θ'_s	Θ_c	Pressure	Pressure	Time	i_{Au}	N_{cd}	S'''_{cd}	R'''_{cd}
		(deg)	(deg)	(mTorr)	(Pa)	(s)	(nA)	(cts)	(10^3 Torr^{-1})	(-)
1	Nov09_05	90	-90	6.73	0.90	10703	3.0479	6271	5.24E-13	1
2	Nov09_06	60	-60	6.61	0.88	9561	3.0916	4934.5	4.63E-13	0.881884
3	Nov09_07	90	-90	6.04	0.81	11268	3.0088	5879.5	5.27E-13	1
4	Nov09_08	120	-120	5.26	0.70	10363	2.8536	4092	4.82E-13	0.905281
5	Nov09_09	90	-90	6.4	0.85	10609	2.9261	5842.5	5.39E-13	1
6	Nov09_10	105	-105	6.42	0.86	10357	2.8873	5327.5	5.09E-13	0.965355
7	Nov09_11	90	-90	6.34	0.85	10066	2.8861	5173	5.15E-13	1
8	Nov09_12	75	-75	6.72	0.90	10537	2.9141	5639.5	5.01E-13	0.968641
9	Nov09_13	90	-90	6.66	0.89	10404	2.9121	5719.5	5.20E-13	1

表 B1-3 : 2012 年 10 月 ビームタイム 非対向配置($\Theta_d = \pi - \Theta_c$) における角度相関関数の測定結果

No	File name	Θ'_s	Θ_c	Pressure	Pressure	Time	i_{Au}	N_{cd}	S'''_{cd}	R'''_{cd}	T'''_{cd}
		(deg)	(deg)	(mTorr)	(Pa)	(s)	(nA)	(cts)	(10^3Torr^{-1})	(-)	(-)
1	Nov10_01	-30	30	5.89	0.79	10337	2.8225	3751	4.00E-13	1	0.75461
2	Nov10_02	0	0	6.52	0.87	10547	2.8075	4590.5	4.36E-13	1.07198	0.80892
3	Nov10_03	-30	30	5.85	0.78	10653	2.7949	3925	4.13E-13	1	0.75461
4	Nov10_04	30	-30	4.78	0.64	10405	2.8178	3241	4.24E-13	1.05201	0.79385
5	Nov10_05	-30	30	5.31	0.71	10936	2.7886	3470.5	3.93E-13	1	0.75461
6	Nov10_06	-15	15	6.3	0.84	5882	2.7249	2381.5	4.33E-13	1.10048	0.83043

表 B2-1 : 2013 年 1 月ビームタイム 対向配置($\Theta_d = \Theta_c + \pi$) における角度相関関数の測定結果

No	File name	Θ'_s	Θ_c	Pressure	Pressure	Time	i_{Au}	N_{cd}	S'''_{cd}	R'''_{cd}
		(deg)	(deg)	(mTorr)	(Pa)	(s)	(nA)	(cts)	($10^3 \text{ s}^{-1} \text{ Torr}^{-1}$)	(-)
1	TS_Jan20_03	-90	90	10.8	1.44	10140	2.205	7867	7.18E-02	1.01608
2	Jan20_04	90	-90	10.89	1.45	10140	2.117	7807	7.07E-02	1
3	Jan20_05	0	0	10.38	1.38	10140	2.114	6751	6.41E-02	0.892987
4	Jan20_06	90	-90	10.85	1.45	9458	2.147	7486.5	7.30E-02	1
5	Jan20_07	180	-180	11.38	1.52	11014	2.181	7387.5	5.89E-02	0.806136
6	Jan20_08	-90	90	10.6	1.41	10807	2.182	8285.5	7.23E-02	0.98925
7	Jan20_09	90	-90	10.75	1.43	10405	2.193	8196	7.33E-02	1
8	Jan20_10	45	-45	10.3	1.37	10555	2.2	7151.5	6.58E-02	0.908665
9	Jan20_11	135	-135	11.46	1.53	10836	2.198	8401.5	6.77E-02	0.934556
10	Jan20_12	0	0	10.2	1.36	10581	2.185	5889.5	5.46E-02	0.753796
11	Jan20_13	90	-90	10.79	1.44	10559	2.186	8147.5	7.15E-02	1

表 B2-2 : 2013 年 1 月ビームタイム 非対向配置($\Theta_d = -\Theta_c$) における角度相関関数の測定結果

No	File name	Θ'_s	Θ_c	Pressure	Pressure	Time	i_{Au}	N_{cd}	S'''_{cd}	R'''_{cd}
		(deg)	(deg)	(mTorr)	(Pa)	(s)	(nA)	(cts)	($10^3 \text{ s}^{-1} \text{ Torr}^{-1}$)	(-)
1	Jan20_13	90	-90	10.79	1.44	10559	2.186	8147.5	7.15E-02	1
2	Jan21_01	60	-60	10.47	1.40	10247	2.196	7254	6.76E-02	0.940981
3	Jan21_02	120	-120	7.138	0.95	10090	2.198	4428.5	6.15E-02	0.855728
4	Jan21_03	90	-90	10.26	1.37	10445	2.198	7737	7.22E-02	1
5	Jan21_04	105	-105	10.08	1.34	10961	2.199	7884	7.14E-02	0.996923
6	Jan21_05	75	-75	11.2	1.49	10351	2.196	8143	7.02E-02	0.981318
7	Jan21_06	90	-90	11.12	1.48	10922	2.196	8618	7.10E-02	1

表 B2-3 : 2013 年 1 月ビームタイム 非対向配置($\Theta_d = \pi - \Theta_c$) における角度相関関数の測定結果

No	File name	Θ'_s	Θ_c	Pressure	Pressure	Time	i_{Au}	N_{cd}	S'''_{cd}	R'''_{cd}
		(deg)	(deg)	(mTorr)	(Pa)	(s)	(nA)	(cts)	($10^3 \text{ s}^{-1} \text{ Torr}^{-1}$)	(-)
1	Jan22_01	0	0	9.803	1.31	10393	2.186	5691	5.59E-02	0.774789
2	Jan22_02	-30	30	8.662	1.15	10244	2.18	5292.5	5.96E-02	0.827309
3	Jan22_03	30	-30	8.081	1.08	11056	2.18	5131	5.74E-02	0.796588
4	Jan22_04	-15	15	10.75	1.43	10264	2.176	6286.5	5.70E-02	0.790276
5	Jan22_05	0	0	10.92	1.46	11374	2.176	7035	5.66E-02	0.785639
6	Jan22_06	90	-90	11.31	1.51	10104	2.178	8368	7.32E-02	1.01569

謝辞

河内・北島研究室に所属して以来熱心にご指導くださった河内宣之教授に深く感謝いたします。研究だけでなく、生活面や進路など、さまざまな面から親身になってご指導をいただいたきました。本論文を執筆するにあたって、お忙しい中何度も原稿を添削していただき、なんとか書き上げることができました。5年間の研究の成果が本論文という形で結実したことを非常にうれしく思います。本当にありがとうございました。

また、雑誌会や中間報告会、学会発表練習などの際、多くの有益な御助言をいただいた北島昌史准教授に深く感謝いたします。さらに、PF やラボでの実験を見学させていただく中で、さまざまな知識を教えていただきました。

また、短いビームタイムの間に成果を出すため、入念に実験計画を立て、それを実行すること、また実験のデータ解析や報告の仕方など、研究の現場で必要な技術を一からご指導して頂いた穂坂綱一博士に感謝いたします。

上智大学小田切丈准教授には、修士課程時代に研究や実験技術の基礎を教わりました。2012年に上智大学に移動された後も、以前と変わらず親身になってくださり、さまざまな場面でご指導を頂きました。深く感謝いたします。

また、お忙しい中ビームタイムに参加して頂いただけでなく、毎週雑誌会にも足を運んでいただくなど、さまざまな面からご指導、ご助言をいただいた産業技術総合研究所鈴木功博士に深く感謝申し上げます。

本研究の遂行において多くの御指導と御協力いただいた中野元善博士、熊谷嘉晃博士に深く感謝いたします。また、同じ研究グループとして共に実験し、議論してくださった向後陵子氏、椎野健一氏に感謝いたします。お二人のおかげで、体力的には厳しいビームタイムにおいても、楽しく実験ができました。また、ピンチヒッターとして何度も我々の実験の協力に来てくださった重村圭亮氏に感謝いたします。最後に、充実した5年間の研究生生活をともに送ってくださった、河内・北島研究室の学生の皆様に感謝いたします。ありがとうございました。

2014年2月

引用文献

- [Aot04] T. Aoto, Y. Hikosaka, R. I. Hall, K. Ito, J. Fern´andez, and F. Mart´in, Chem. Phys. Lett. **389**, 145 (2004).
- [Ara05] 荒木慎也, 宮本紀之, 室井章: “宇宙線ミュオン測定”, 卒業論文, 大阪大学理学研究科(2005).
- [Bet97] H. A. Bethe et al., Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms, Plenum, New York, 1977, p. 266.
- [Bla08] R. Blatt and D. Wineland, Nature (London) **453**, 1008 (2008).
- [Blo08] I. Bloch, Nature (London) **453**, 1016 (2008).
- [Bru68] R. J. Van Brunt and R. N. Zare, “Polarization of Atomic Fluorescence Excited by Molecular Dissociation”, J. Chem. Phys. **48**, 4304 (1968).
- [Cod67] K. Codling, R. P. Madden, and D. L. Ederer, “Resonances in the photo-ionization continuum of Ne I (20-150 eV),” Phys. Rev. **155**, 26 (1967).
- [Eda07] Keiichi Edamatsu, “Entangled Photons: Generation, Observation, and Characterization”, Jpn. J. Appl. Phys. **46**, 7175 (2007).
- [Fer01] J. Fern´andez and F. Mart´in, “Autoionizing $^1\Sigma_u^+$ and $^1\Pi_u$ states of H₂ above the third and fourth ionization thresholds”, J. Phys. B **34**, 4141 (2001).
- [Fle95] E. Flemming, O. Wilhelmi, H. Schmoranzler, and M. Glass-Maujean, “Coherence effects in the polarization of Lyman- α fluorescence following photodissociation of H₂ and D₂,” J. Chem. Phys. **103**, 4090 (1995).
- [Hik03] Y. Hikosaka, T. Aoto, R. I. Hall, and K. Ito, J. Phys. B **36**, 1423 (2003).
- [Hon12] 本田融, 帯名崇, “PF リングのトップアップ運転”, 放射光学会誌, **25**, 12 (2012).
- [Ito95] K. Ito, Y. Morioka, M. Ukai, N. Kouchi, Y. Hatano, and T. Hayaishi, “A high-flux 3-M normal incidence monochromator at beamline 20A of the Photon Factory,” Rev. Sci. Instrum. **66**, 2119 (1995).
- [Jän10] K. Jänkälä, Ph. V. Demekhin, S. Heinäsmäki, I. Haar, R. Hentges, and A. Ehreshmann, “Theoretical description of dissociative $\gamma \rightarrow 2\gamma'$ scattering in diatomic molecules”, J. Phys. B **43**, 065104 (2010).
- [Jän_c] K. Jänkälä, and A. Ehresmann (private communication).
- [Kam05] 上坪宏道, 太田俊明: 『シンクロトロン放射光』, 岩波書店, 東京 (2005).
- [Kim94] H. Kimura, T. Kinoshita, S. Suzuki, T. Miyahara, and M. Yamamoto, Proc. SPIE **2010**, 37 (1994).

- [Kou13] 向後 陵子: 『水素分子の光解離により生成する Lyman- α 光子対の角度相関関数測定』, 修士論文, 東京工業大学大学院理工学研究科, (2013).
- [Kou07] Noriyuki Kouchi. “Lyman- α けい光放出の角度分布と偏光度について” ,Private communication (unpublished), (2007).
- [Krs99] P. S. Krstić and D. R. Schultz, Phys. Rev. A **60**, 2118 (1999).
- [Lau98] S. Lauer et al., J. Phys. B. **31**, 3049 (1998).
- [Mar82] Martin, C. and S. Bowyer: “Quantum efficiency of opaque CsI photocathodes with channel electron multiplier arrays in the extreme and far ultraviolet”, Appl. Opt., Vol. 21, pp. 4206–4207, 1982.
- [Miy07] Haruhide Miyagi, Atsushi Ichimura, and Noriyuki Kouchi, “Theoretical study on the angular correlation of two Lyman- α photons generated by single-photon absorption of a hydrogen molecule”, J. Phys. B **40**, 617(2007).
- [Mur06] 村田 誠, “ $(\gamma; 2\gamma)$ 法で探る多電子励起 H_2 、 N_2 分子”, 博士論文, 東京工業大学大学院理工学研究科(2006).
- [Nak95] 中村宏樹, 高木秀一: 『分子の超励起状態; その動的過程と量子欠損理論』, 日本物理学会誌 **45**, 87 (1990).
- [Nak12] 仲西祐子: “量子もつれ $H(2p)$ 原子ペアの崩壊ダイナミクス”, 修士論文, 東京工業大学大学院理工学研究科, (2012).
- [Nak14] Yuko Nakanishi, Kouichi Hosaka, Ryoko Kougo, Takeshi Odagiri, Motoyoshi Nakano, Yoshiaki Kumagai, Kennichi Shiino, Masashi Kitajima and Noriyuki Kouch, “Angular correlation of a pair of Lyman- α photons produced in the photodissociation of H_2 ”, Phys. Rev. A **90**, 043405 (2014).
- [Oda04] Takeshi Odagiri, Makoto Murata, Masahiro Kato, and Noriyuki Kouchi, “ $(\gamma; 2\gamma)$ studies on doubly excited states of molecular hydrogen”, J. Phys. B **37**, 3909 (2004).
- [Ono15] 小野寛太, Private communication (unpublished), (2015).
- [Par12] Particle data group, <http://pdg.lbl.gov/2013/reviews/rpp2012-rev-cosmic-rays.pdf>.
- [Sam63] Samson, J. A. R., Observed and Predicted New Autoionized Energy Levels in Krypton, Argon, and Xenon, Phys. Rev., **132**, 2122-2124 (1963).
- [Sán97] I. Sánchez and F. Martín, “The doubly excited states of the H_2 molecule”, J. Chem. Phys. **106**, 7720 (1997).
- [Sán99] I. Sánchez and F. Martín, “Doubly excited autoionizing states of H_2 above the second ionization thresholds: the Q_2 resonance series”, J. Chem. Phys. **110**, 6702 (1999).
- [Scu97] Maran O. Scully and M. Suhail Zubairy, “*Quantum Optics*”, Cambridge University Press, Cambridge, (1997).
- [Sch97] Volker Schmidt, “Electron Spectrometry of Atoms using Synchrotron Radiation”, pp.41-45,

- 273-277. Cambridge University Press, Cambridge, (1997).
- [Sha71] T. E. Sharp, "Potential-energy curves for molecular hydrogen and its ions", *At.Data.* **2**, 119 (1971).
- [Tan09] T. Tanabe, T. Odagiri, M. Nakano, I. H. Suzuki, and N. Kouchi, "Large pressure effect on the angular distribution of two Lyman- α photons emitted by an entangled pair of H(2p) atoms in the photodissociation of H₂", *Phys. Rev. Lett.* **103**, 173002 (2009).
- [Tan10] 田邊健彦, "水素分子の光解離による量子もつれ H(2p)原子対の生成とその特異なダイナミクス", 博士論文, 東京工業大学大学院理工学研究科(2010).
- [Tan10R] T. Tanabe, T. Odagiri, M. Nakano, Y. Kumagai, I. H. Suzuki, M. Kitazima, and N. Kouchi, "Effect of entanglement on the decay dynamics of a pair of H(2p) atoms due to spontaneous emission", *Phys. Rev. A*, **82**, 040101(R) (2010).
- [Vig81] J. Vigué, P. Grangier, G. Roger G and A. Aspect, "Polarization of calcium atomic fluorescence due to a coherence effect in the photodissociation of Ca₂ molecules (*)", *J. Physique Lett.* **42** L531 (1981).
- [Vig83] J. Vigué, J. A. Beswick, M. Broyer, "Coherence effect in the polarization of of the light emitted by photofragments", *J. Physique* **44** 1225 (1983).
- [Zar72] R. N. Zare, "Photoejection Dynamics," *Mol. Photochem.* **4**, 1-3 (1972).