19p-C2-2

強誘電体フォノンポラリトン波束の量子制御と 2 次元ラマン相関分光 II：シミュレーション

Quantum Control and Two-Dimensional Raman Correlation Spectroscopy of Ferroelectric Phonon-Polariton Wavepackets II: Simulation

横浜国大院工　塩沢 優，栗林知憲，南 康夫，片山郁文，°武田 淳

Yokohama National Univ., Y. Shiozawa, T. Kuribayashi, Y. Minami, I. Katayama, °J. Takeda

E-mail: jun@ynu.ac.jp

我々は、ダブルパルス励起とシングルショット時間・周波数 2 次元実時間イメージング分光法を組み合わせることにより、様々な物性のコヒーレント制御を実時間で可視化できる分光手法を開発している[1,2]。また、この手法は、ポンプ・プローブ光間およびダブル励起パルス光間の 2 つの時間相関に対する 2 次元フーリエ変換を行うことで、励起状態間の相関を評価可能な **2 次元ラマン相関分光法**と見なすことも可能である。我々はこの分光手法の最初のデモンストレーションとして、誘導ラマン過程により励振した 2 つの位相整合を満たす強誘電体フォノンポラリトン（前進及び後退する非対称 E モードフォノンポラリトン）波束間の量子相関について研究している[3]。実験では、（直前の講演で見たように）高密度励起時に、2 つのフォノンポラリトン波束間の相関（非対角項）が 2 次元ラマンスペクトル上に明確に現れる。本講演では、量子 3 準位を仮定した密度行列シミュレーションにより実験結果を良く再現できることを示し、この分光手法の有用性を議論したい。

量子 3 準位として、フォノンポラリトンが 0 の状態（基底状態）、前進・後退するフォノンポラリトンが各々1 の状態（励起状態 1, 2）を考える。フォノンポラリトンは誘導ラマン過程により励振されていること、低密度励起ではフォノンポラリトン間に相関が現れないことを考慮し、基底状態と励起状態間に電場の 2 乗に比例するカップリングを導入した。図 1 に励起密度を変えたときの 2 次元ラマンスペクトルのシミュレーション結果を示す。図より、対角項（自己相関）が飽和する程度の励起密度の時、お互いの量子相関が現れることを見出した。詳細は当日報告する。

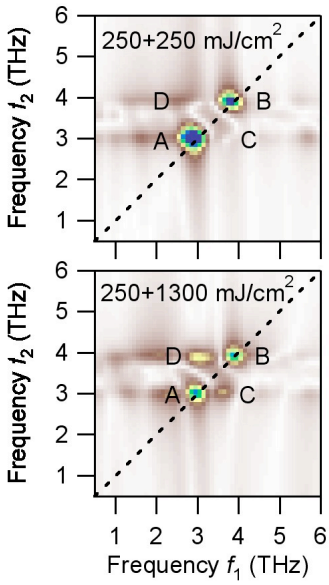

Fig. 1: 2D-Raman spectra with different pump fluences obtained from a density-matrix calculation with three quantum levels. The off-diagonal quantum correlation signals (C and D) appear above the pump fluence where the diagonal signals (A and B) are saturated.

[1] H. Sakaibara, Y. Ikegaya, I. Katayama, and J. Takeda, *Opt. Lett.*, **37**, 1118 (2012).

[2] Y. Minami, H. Yamaki, I. Katayama, and J. Takeda, *Appl. Phys. Exp.* **7**, 022402 (2014).

[3] 塩沢優ほか、日本物理学会第 69 回年次大会 29pPSA-71（東海大学、2014 年 3 月 29 日）.

© 2014 年　応用物理学会