Nicht-Lineare Optik

- SHG in Antiferromagneten: Cr_2O_3
- SHG in Ferroelektromagneten: $YMnO_3$

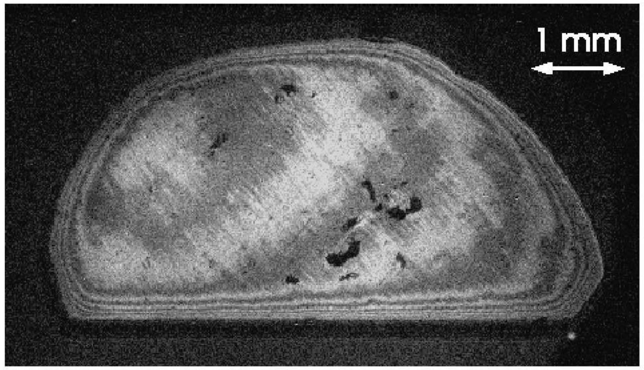
Motivation: Untersuchung nicht-reziproker (nicht-Zeit-invariant) Effekte an magnetischen Systemen.

: Entwicklung einer allgemeinen Landau-Ginzburg-Theorie für SHG.

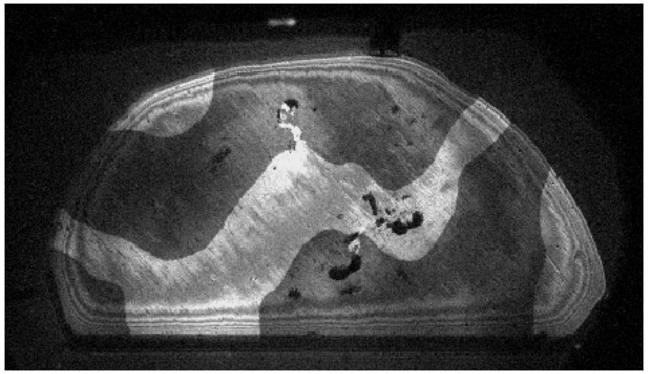
Zwei-Photonen Summen-Frequenz-Erzeugung (SHG)

$$\textbf{LASER} \quad \underset{\omega}{\overset{\longrightarrow}{\longrightarrow}} \quad \boxed{\mathrm{Cr_2O_3}} \quad \underset{2\omega}{\longrightarrow} \quad \boxed{\text{DETECTOR}}$$

Cr_2O_3



$T \geq T_N = 307$ K *Paramagnet*



$T \leq T_N$ *Antiferromagnet*

Photo AFM Domäne!

(Fiebig *et al.*, APL '95, '98)

Mikroskopische Theorie

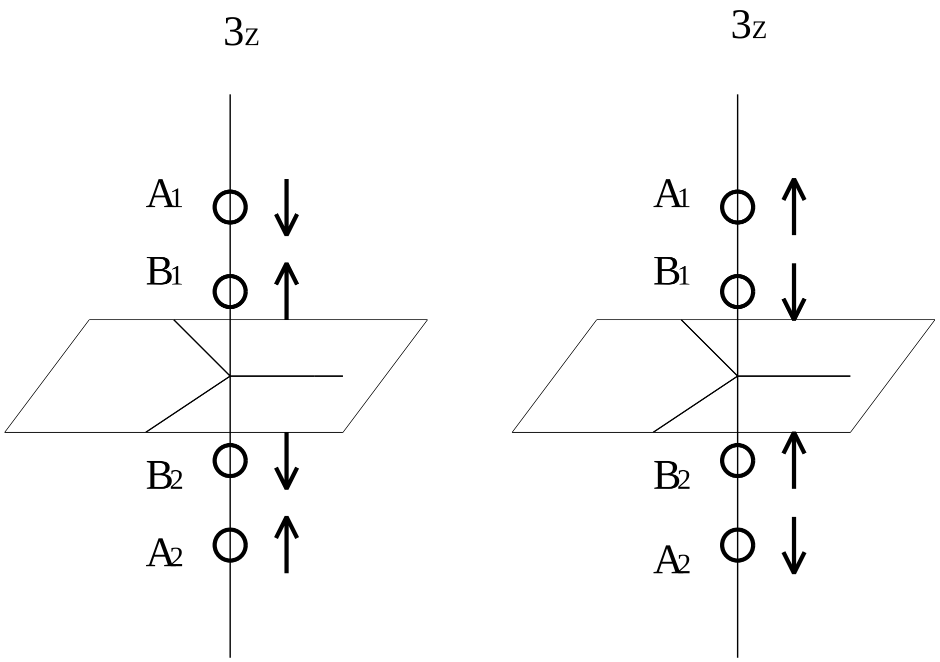
- Wechselwirkung Licht $\Leftrightarrow$ Δ_{AF}:
  $q = 0$ Ordnung
- Wechselwirkung Licht $\Leftrightarrow$ Spin:
  Spin-Bahn-Kopplung λ_{LS}

$\triangleright$ $\Delta_{AF} = \left(S^z_{A1} - S^z_{B1} + S^z_{B2} - S^z_{A2}\right)/4$

$\triangleright$ Inversions-Symmetrie $\bar{1}$:
$(\mathrm{A/B})_1 \;\Leftrightarrow\; (\mathrm{A/B})_2$

$\Rightarrow$ trigonales Kristallfeld η

$\Rightarrow$ $\boxed{\text{SGH-Beitrag} \;\sim\; \eta\,\lambda_{LS}\,\Delta_{AF}}$



$\Delta_{AF} = +1$ $\Delta_{AF} = -1$

(Muthukumar, Valenti, Gros, PRL '95)
(Tanabe, Muto, Hanamura, SSC '97)

Makroskopische Theorie

$$P_i(2\omega) = \chi^e_{ijk} E_j(\omega) E_k(\omega) \qquad \text{(elektrischer Dipol)}$$

$$M_i(2\omega) = \chi^m_{ijk} E_j(\omega) E_k(\omega) \qquad \text{(magnetischer Dipol)}$$

$\boxed{\mathrm{T} > \mathrm{T}_N}$ $\qquad \mathrm{D_{3d}} = \{1, \pm 3_\mathrm{z}, 3(2_\perp), \bar{1}, \pm\bar{3}_\mathrm{z}, 3(\bar{2}_\perp)\}$

Inversions-Symmetrie $\bar{1}$: $\quad \chi^e_{ijk} = 0, \qquad \chi^m_{ijk} \neq 0$

$\boxed{\mathrm{T} < \mathrm{T}_N}$ $\qquad \mathrm{D_{3d}}(\mathrm{D_3})$

Spin-Ordnung bricht $\bar{1}$: $\quad \chi^e_{ijk} \neq 0$

$\chi^e_{ijk} \sim \Delta_{AF}$: AF-Ordnungsparameter

$\Longrightarrow$ SHG Interferenz

$$\boxed{\text{SHG Signal:} \quad \sim |1 - \eta\, \lambda_{LS}\, \Delta_{AF}|^2}$$

Ginzburg-Landau Theorie für SHG

▷ Freie-Energie für SHG $\quad P = -\partial F^{(SHG)} / \partial E^*$

(Pershan, PR '63)

▷ Entwicklung der freien Energie $\quad F(\Delta) = F^{(0)}(\Delta) + F^{(SHG)}(\Delta)$
als Funktion des Ordnungsparameters Δ

▷ Ferroelektrikum: $\quad \Delta \;\Rightarrow\; \vec{P}^{(FE)} \quad$: Vektor

$$F^{(SHG)} \;=\; -\mathcal{R}\left[\, \chi_{ijkl}(T > T_c) E_i^* E_j E_k \,\right] P_l^{(FE)} \;+\; \ldots$$

$$\boxed{\boxed{\chi_{ijk}{}^{(SHG)}(T < T_c) \;=\; \chi_{ijkl}(T > T_c)\, P_l^{(FE)}}}$$

(Sa, Valenti, Gros, EPJB '00)

Diskussion

Nur der Ordnungsparameter $\Delta \Rightarrow P_z^{(FE)}$ bricht im Ginzburg-Landau Funktional die Symmetrien der hoch-T Phase.

$$\boxed{\chi_{ijk}{}^{(SHG)}(T < T_c) = \chi_{ijkl}(T > T_c)\, P_l^{(FE)}}$$

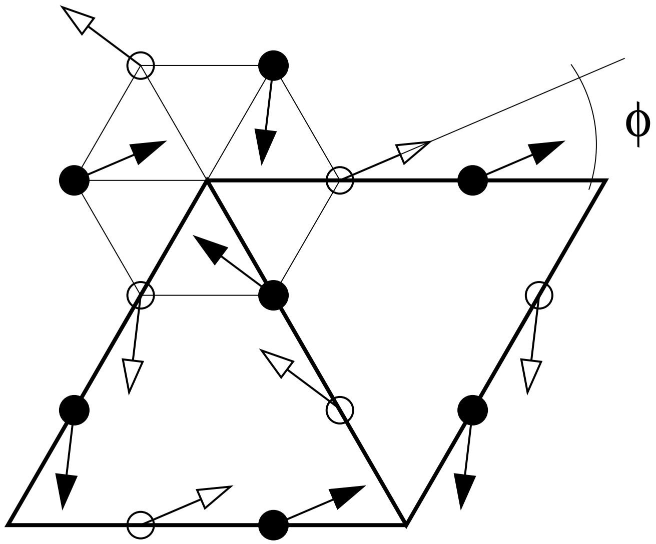
Es folgt: Allgemeiner Zusammenhang zwischen Tensoren der tief-T Phase $\chi_{ijk}(T < T_c)$ und der hoch-T Phase $\chi_{ijkl}(T > T_c)$.

Bemerkung: Der Ordnungsparameter $\Delta \Rightarrow P_z^{(FE)}$ entspricht

- der Basisfunktion einer irreduziblen Darstellung der hoch-T Punktgruppe,
- einem Tensor der tief-T Punktgruppe.

Eigenschaften von $YMnO_3$

$\boxed{T>T_c}$	*paraelektrisch*	$T_c = 600\,K$	D_{6h}	
$\boxed{T_N < T < T_c}$	*ferroelektrisch*	$T_N = 90\,K$	C_{6v}	$P_l^{(FE)}$
$\boxed{T<T_N}$	*antiferromagnetisch und ferroelektrisch*		$C_{6v}(C_{3v})$	$R_{lmn}^{(AF)}$



▷ Spins: $\vec{\sigma} = \vec{S}_1 - \omega^* \vec{S}_2 - \omega \vec{S}_3 + \vec{S}_4 - \omega^* \vec{S}_5 - \omega \vec{S}_6$

$\omega = \exp[i\pi/3]$

▷ AF-Ordnungs-Parameter: $\psi_3^{(AF)} = \sigma_- + \sigma_+$

▷ AF-Ordnungs-Parameter: c-axialer Tensor

$\Rightarrow$ niedrigste Stufe in $C_{6v}(C_{3v})$: $\boxed{R_{yyy} = -R_{xxy}(3) \equiv \psi_3^{(AF)}}$

SHG in $YMnO_3$: Theory

$$F = F^{(0)}(\vec{P}^{(FE)}, \psi_3^{(AF)}) + F^{(SHG)}(\vec{P}^{(FE)}) + \\ + F^{(SHG)}(\psi_3^{(AF)}) + F^{(SHG)}(\vec{P}^{(FE)}, \psi_3^{(AF)})$$

Vorhersage

$$\boxed{\chi(T < T_N)_{ijk} = \chi(T > T_N)_{ijklmn} R_{lmn}}$$

▷ axial $\chi(T > T_C)_{ijklmn} = 0$ in D_{6h} $\Longrightarrow$ $\boxed{F^{(SHG)}(\psi_3^{(AF)}) = 0}$

$\Longrightarrow$ *bilineare* SHG-Kopplung

$$\boxed{{\chi_{ijk}}^{(SHG)}(T < T_N) = \chi_{ijklmno}(T > T_c) R_{lmn} P_o^{(FE)}}$$

$\Longrightarrow$ Experiment!

Nicht-Lineare Optik
korrelierter Elektron-Systeme

Beispiele

- SHG: Supraleitende Domänen in Sr_2RuO_4

Fiebig, Gros, Maeno, Sigrist, Valenti (Projekt)

$$\text{p-Welle:} \quad \mathbf{d}(\mathbf{k}) \;\sim\; \mathbf{z}\,(k_x + i k_y)$$

$$\text{Domänen:} \quad \mathbf{d}(\mathbf{k}) \;\text{ und }\; \mathbf{d}^*(\mathbf{k}) \quad : \text{orbitale Momente}$$

- Pumb-Probe: Kohärente Magnonen in NaV_2O_5

(Kamioka it et al., PRL '02)