

Second order nonlinearities of molecular complexes

Autor(en): **Kohler, D. / Staehelin, M. / Enderle, Th.**

Objektyp: **Article**

Zeitschrift: **Helvetica Physica Acta**

Band (Jahr): **62 (1989)**

Heft 6-7

PDF erstellt am: **24.09.2024**

Persistenter Link: <https://doi.org/10.5169/seals-116159>

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Inhalten der Zeitschriften. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern. Die auf der Plattform e-periodica veröffentlichten Dokumente stehen für nicht-kommerzielle Zwecke in Lehre und Forschung sowie für die private Nutzung frei zur Verfügung. Einzelne Dateien oder Ausdrucke aus diesem Angebot können zusammen mit diesen Nutzungsbedingungen und den korrekten Herkunftsbezeichnungen weitergegeben werden. Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Die systematische Speicherung von Teilen des elektronischen Angebots auf anderen Servern bedarf ebenfalls des schriftlichen Einverständnisses der Rechteinhaber.

Haftungsausschluss

Alle Angaben erfolgen ohne Gewähr für Vollständigkeit oder Richtigkeit. Es wird keine Haftung übernommen für Schäden durch die Verwendung von Informationen aus diesem Online-Angebot oder durch das Fehlen von Informationen. Dies gilt auch für Inhalte Dritter, die über dieses Angebot zugänglich sind.

Second Order Nonlinearities of Molecular Complexes

D.Kohler, M.Staehelin, Th.Enderle, J. Fünfschilling, I. Zschokke-Gränacher

Institut für Physik, Universität Basel, Klingelbergstrasse 82, CH-4056 Basel, Switzerland

Ch. Kröhnke

Ciba Geigy R-1060.3.40 Basel

Abstract: The electrooptic coefficients and second harmonic efficiencies of a group of little known molecular systems with high nonlinear optical properties will be presented. We refer to the group of the trihalogenomethanes, which are small organic molecules without π -bonds. By packing up those molecules with suitable complex partners, high nonlinearities can be achieved.

Introduction: In a nonlinear material, the dielectric polarisation P in an applied Field E is described with a Taylor series in E :

$$P = \epsilon_0 \chi^{(1)} E + \epsilon_{(0)} \chi^{(2)} E^2 + \dots$$

The second term describes a polarisation with sum- or difference frequencies :

$$P(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(2)} E(\omega_1) E(\omega_2); \quad \omega = \omega_1 \pm \omega_2$$

Electrooptic effect: $\omega_1 = 0$; $\chi_{el.opt.} = n_k^2 n_i^2 r$; r : electrooptic coefficient

SHG: $\omega_1 = \omega_2$; $\chi_{SHG} = 2d$; d : optical nonlinear coefficient

Electronic origin: When both nonlinear effects are of purely electronic origin, the following equation is valid (Ref 1):

$$d = \frac{n(\omega) + 2}{n(0) + 2} \cdot \frac{n_k^2 n_i^2}{2} \cdot r$$

Motivation: The search for nonlinear materials capable of doubling diode laser wavelengths into the deep blue generally collides with two requirements :

- Large second order nonlinear susceptibility and
- Short cut-off wavelength (near 400nm)

Powder SHG measurements were carried out to check these requirements (with MNA and urea for comparison, 6-amino-nicotinic acid as reference).

Tab.1a: Powder SHG results

- a) Powder yield (ungraded powders < 20 μ) at 930 nm
 b) Trimethylamoniumjodid.trijodmethan.

	adduct	crystal class	iodoform-density [$\frac{10^{21}}{\text{cm}^3}$]	$\lambda_{\text{cut-off}}$	SHG-yield vs urea ^{a)}
Iodoform- Quinoline	1:3	3	1.47	≈ 410 nm	1.1
Iodoform- Sulphur	1:3	3m	1.32	≈ 460 nm	3
Iodoform- Urotropin	1:1	mm2	3.17	≈ 400 nm	30
Iodoform- Ptma ^j ^{b)}	1:1	2	2.36	≈ 440 nm	12
Bromoform- Ptma ^j	-	-	-	-	5
Bromoform- Urotropin	1:1	-	-	≈ 400 nm	5.5
Urotropin	1	$\bar{4}3m$	-	< 350 nm	0.1

Tab.1b: Comparison between Electrooptic Effect and SHG

- a) measured with the Mach-Zehnder interferometer at 633 nm
 b) measured with induced birefringence at 633 nm (Ref 2)
 e) calculated with $d_{\text{el.opt.}} = \frac{n_x^2 n_i^2}{2} r$
 f) measured with the wedge - technique at 937 nm (no absorption correction),
 calculated with $d_{\text{SiO}_2} = 0.48 \frac{\text{pm}}{\text{V}}$

	tensor element	SHG	el.opt.effect	
		$d^f) [\frac{\text{pm}}{\text{V}}]$	$r [\frac{\text{pm}}{\text{V}}]$	$d_{\text{el.opt.}}^e) [\frac{\text{pm}}{\text{V}}]$
Iodoform- Quinoline- Complex	(33)	1.9 ± 0.5	$0.66 \pm 0.13^a)$	2.6 ± 0.5
	$\sqrt{(11)^2 + (22)^2}$	8.9 ± 3	$1.4 \pm 0.2^a)$	8.3 ± 1.2
	$\sqrt{(11)^2 + (22)^2}$	-	$2.0 \pm 0.5^b)$	12 ± 3
Iodoform- Sulphur- Complex	(33)	1.8 ± 0.5	$0.85 \pm 0.17^a)$	4.3 ± 0.9
	$\sqrt{(11)^2 + (22)^2}$	16 ± 5	$2.2 \pm 0.4^a)$	27 ± 5
	$\sqrt{(11)^2 + (22)^2}$	-	$4.4 \pm 2.4^b)$	55 ± 30

Main results

- The nonlinearity is of mainly **electronic origin** .

This is shown by the comparison of $d_{\text{el.opt.}}$ and d

- The nonlinearity of iodoform is markedly improved by the complex partner

- The largest nonlinearity lies in the plane of the iodine atoms, which is also the plane of the charge-transfer bonds

- The iodoform-urotropine complex is suitable for doubling laser diode wavelengths into the deep blue

Acknowledgement:

The support of the Swiss national Science Foundation (NFP 19) is gratefully acknowledged.

References:

- 1) J.Zyss and J.L.Oudar, Phys.Rev. A26 (1982) 2028
- 2) A.Samoc et al Material Science Vol.XIII, No.1-2 1987