

늦은 용액증발법으로 제작한 유기단결정 para-toluene sulfonate의 비선형 광학상수 측정*

황보창권

인하대학교 물리학과

H. Shim, M. Liu and G. Stegeman

CREOL, University of Central Florida, Orlando, FL, USA

(1998년 2월 25일 받음, 1998년 4월 9일 수정본 받음)

서서히 용액을 증발시키는 늦은 용액증발법을 이용하여 유기단결정 p-toluene sulfonate(PTS) 덩어리와 박막을 제작하였다. 유기 단결정 PTS 덩어리는 Z-scan 방법을 이용하여 1600 nm, 95fs 레이저 광으로 3차와 5차 비선형 굴절률 n_2 와 n_3 를 측정하였으며, PTS 박막 도파관에서는 다중모드 출력을 관측하였다. 입력광의 세기가 2~5 GW/cm² 영역에서 PTS의 비선형 광학계수는 $n_2=6 \times 10^{-4}$ cm²/GW, $n_3=-7 \times 10^{-5}$ cm⁴/GW² 이고 2광자 흡수와 3광자 흡수는 없었다. 빛의 세기가 강한 5~16 GW/cm² 영역에서는 비선형 슈레딩거식과 빠른 푸리에변환 광전파방법을 이용하여 시료 내에서 전파광의 모양이 가우시안 광에서 왜곡되어 전파되는 것을 전산모의하였다.

I. 서 론

3차 비선형광학을 이용하여 총광학소자(all-optical device)를 구현시키기 위해서는 빛세기의 증가에 따라 굴절률이 변하여 비선형 위상을 증가시키는 비선형 물질이 필요하다. 이러한 비선형 물질의 조건으로는 3차 비선형 굴절률 n_2 가 커야 하고 선형 및 비선형 흡수가 작아야 하며 반응시간이 빨라야 한다. 이러한 비선형 광학 물질의 하나로 polydiacetylene para-toluene sulfonate(PTS) 즉 poly(2,4-hexadiyn-1,6-diol-bis(p-toluene-sulfonate)) 이 널리 알려져 있으며 이 물질의 비선형 광학 특성에 관한 연구가 많이 진행되어 오고 있다.^[1]

π -공액 물질인 polydiacetylene은 π 전자가 한곳에 모이지 않아 분자 분극이 큰 것으로 알려져 있다. 특히 PTS의 경우 단위체(monomer) 상태에서 열 혹은 빛 에너지를 받아 고분자(polymer) 상태로 바뀌면서 그림 1에서와 같이 이웃 단위체끼리 이중결합으로 연결되어 공액사슬(conjugated chain)의 길이가 길어지고 이 고분자 사슬 위에 전자-정공 짝이 분포되므로, 이 방향으로 분자 분극이 증가하고, 따라서 비선형 광학 효과가 커지게 된다. 거시적으로 PTS는 고분자들이 한 방향으로 조밀하게 정렬된 결정 구조를 갖고 있어 비선형 광학 효과가 매우 크다.^[2,3] 공액사슬 방향에 평행하게 편광된 빛은 비선형 광학 효과에 기여하고, 수직으로 편광된 빛은 거의 기여하지 못한다.

PTS의 비공명 비선형 감수율은 지금까지 알려진 물질 중 가장 큰 것으로 측정되었으며, 여러 파장 영역에서 3차 비선형 굴절률(n_2)과 2광자 흡수계수(α_2)에 관한 연구가 진행되어 왔다.^[4-7] 특히 PTS는 5차 비선형 굴절률(n_3)과 3광자 흡수계수(α_3)를 나타내어 최근 이에 관한 Z-scan을 이용한 비선형 분광학 연구와 응용 연구가 진행되고 있다.^[8-12] PTS의 비선형 분광학 연구에서는 700~1000 nm의 넓은 영역에서 2광자 흡수가 측정되었고, 920 nm에서 공명에 의한 매우 강한 2광자 흡수계수로 $\alpha_2=700$ cm/GW가 측정되었으며, 1200 nm와 1370 nm에서도 약한 공명 2광자 흡수가 측정되었다. 2광자 흡수가 크기 때문에 700~1000 nm에서 n_2 의 측정이 어려우나, 2광자 흡수가 작은 1000~1600 nm에서 n_2 는 -1.96×10^{-3} cm²/GW 부터 5×10^{-3} cm²/GW 까지 변하는 것으로 보고되었다. 또한 700~1600 nm영역에서 5차 비선형 효과인 3광자 흡수가 측정되었으며 5차 비선형 굴절률 n_3 도 측정되었다. 1064 nm에서는 n_2 가 빛의 세기가 클 때 양수에서 음수로 바뀌었으며, 1600 nm에서는 2광자 흡수와 3광자 흡수가 작으며 $n_2 > 0$, $n_3 < 0$ 인 것이 보고되었다.

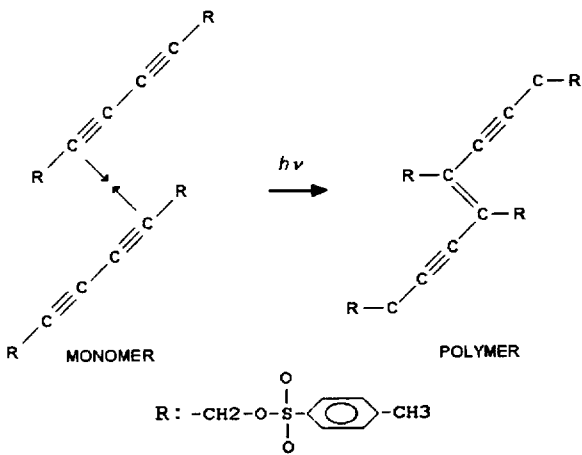


그림 1. Diacetylene 단위체(monomer)와 고분자(polymer).

*본 연구는 1996년도 대학교수해외파견연구의 지원으로 수행되었습니다.

PTS의 3차 비선형 굴절률이 크기 때문에 총광학소자로서 기대가 컸지만 광학적 특성이 뛰어난 PTS 결정을 성장시키는 것이 쉽지 않은 것으로 알려져 있다. PTS 내부에 결함이 없어야 빛의 산란이 적고 비선형 효과를 측정하기 쉬우나 결정성장시 이를 조절하는 것이 매우 어려워 여러 개의 시료 중 선별하여 사용하는 실정이다. 또한 성장이 잘되었더라도 원하는 모양으로 결정을 변형시키고, 빛의 입사면과 출사면을 연마하는 것도 쉽지가 않다. 이러한 성장 및 제작상의 어려움 때문에 비선형 효과에 대한 연구는 많이 진행되어 오고 있지만 총광학소자로서의 응용에 큰 걸림돌이 되어 오고 있다. 특히 PTS 도파로는 일부 연구실에서만 제작에 성공할 정도로 매우 어려워 널리 사용되지 못하고 있다.^[3,12]

한편 PTS는 가시광선과 근적외선 파장 영역에서 n_2 가 다른 비선형 물질들보다 매우 크지만 2광자 흡수가 있어 비선형 광학소자로 사용하기에 어려움이 있다고 판단하였으나, 최근 1600 nm에서 2광자 흡수와 3광자 흡수가 매우 작은 것으로 보고되었으며, $n_2 > 0$, $n_3 < 0$ 임으로 2차원 공간 솔리톤을 발진시키는 연구도 수행되었다.^[10,13]

본 연구에서는 PTS를 광학스위칭과 공간솔리톤의 비선형 광학소자로 이용하기 위하여 PTS를 덩어리와 박막의 형태로 성장시키고 이들의 비선형 광학적 특성을 조사하는 기초연구를 수행하였다. 기본이론 부분에서는 실험에 사용한 Z-scan, 비선형흡수 분석에 사용할 다광자 흡수와 비선형 슈레딩거 방정식을 간단히 기술하였다. PTS 덩어리와 박막의 성장 방법, Z-scan 실험 장치 및 결과, 레이저 광의 세기가 2~5 GW/cm² 일 때 비선형 광학상수 결정에 관하여 설명하였으며, 논의에서는 열린구멍 투과율을 분석하기 위한 다광자 흡수와 빠른 푸리에변환 광전파방법을 이용하여 가우시안 광의 전파 모양을 분석하였다.

II. 기본 이론

2.1. Z-scan

3차 비선형 물질의 비선형 굴절률(n_2)과 2광자 흡수계수(α_2)를 측정할 수 있는 Z-scan 방법의 기본 이론을 간단히 유도하자.^[10,14,15] 복소 비선형 굴절률이 빛의 세기(I)에 의해 결정될 경우 굴절률과 흡수계수는

$$n(I) = n_0 + \Delta n(I) = n_0 + n_2 I \quad (1)$$

$$\alpha(I) = \alpha_0 + \Delta \alpha(I) = \alpha_0 + \alpha_2 I \quad (2)$$

과 같이 표현할 수 있으며, n_0 와 α_0 는 각각 선형 굴절률과 선형 흡수계수(1광자 흡수계수)이다.

비선형 시료의 두께가 매우 얇으면 빛의 회절을 무시할 수 있으며, 시료 내에서 빛의 세기와 위상은 각각

$$\frac{dI}{dz'} = -\alpha(I)I \quad (3)$$

$$\frac{d\Delta\phi}{dz'} = \frac{2\pi}{\lambda}\Delta(I) \quad (4)$$

으로 주어진다. 여기서 z' 은 시료의 좌표이고 $\Delta\phi$ 는 비선형 위상차이다.

입력 가우시안 광의 세기를

$$I(z, r, t) = I_0 \left(\frac{w_0}{w(z)} \right)^2 \exp \left(-2 \frac{r^2}{w^2(z)} - \frac{t^2}{\tau^2} \right) \quad (5)$$

라 가정하자. 여기서 I_0 는 광축상에서 빛의 최대세기, w_0 는 가우시안 광의 허리반경, $w(z) = w_0 \sqrt{1 + \frac{z^2}{z_0^2}}$ 는 위치 z 에서 가우시안 광의 반경이며, $z_0 = \pi \frac{w_0^2}{\lambda}$ 는 가우시안 광의 회절길이(Rayleigh 길이)이다. 비선형 방정식 (3), (4)는 시료 길이 $L \ll z_0$ 일 때 사용할 수 있다.

시료를 통과한 후 바깥쪽 면에서의 전기장은

$$E_{\text{exit}}(z, r, t) = \sqrt{\frac{2}{c \epsilon_0 n_0}} I_{\text{exit}}(z, r, t) \times \exp \left(i \Delta\phi_{\text{exit}} \left(z, r, t \right) - i \frac{\pi r^2}{\lambda R(z)} \right) \quad (6)$$

로 표현된다. 여기서 $I_{\text{exit}}(z, r, t)$ 와 $\Delta\phi_{\text{exit}}(z, r, t)$ 는 각각 시료 출사면에서 빛의 세기와 비선형 위상차이고 $R(z) = z(1 + z_0^2/z^2)$ 는 파면의 반경이다. 시료 출사면에서의 전기장은 자유공간을 회절하여 광검출기 구멍(aperture)에 도착하며, 구멍에서의 전기장은

$$E_{\text{ap}}(r, z_a, t) = \frac{2\pi}{i \lambda z_a} \exp \left(i \frac{2\pi z_a}{\lambda} \right) \exp \left(i \frac{\pi r^2}{\lambda z_a} \right) \times \int E_{\text{exit}}(r', t' - z_a/c) \exp \left(i \frac{\pi r'^2}{\lambda z_a} \right) J_0 \left(\frac{2\pi r r'}{\lambda z_a} \right) r' dr' \quad (7)$$

로 표현되며, J_0 는 제1종의 0차 Bessel함수이고, z_a 는 시료 출사면에서 구멍까지의 거리이다. 구멍을 통과한 광의 총일률(total power, P_T)은

$$P_T(z, t) = \pi c \epsilon_0 \int_0^{r_a} \left| E_{\text{ap}}(z_a, r, t) \right|^2 r dr \quad (8)$$

이며, r_a 는 구멍의 반경이고 ϵ_0 는 진공의 유전율이다. 비선형 투과율은 구멍의 투과에너지와 입력에너지의 비이므로

$$T(z) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} P_T(z, t) dt}{S \int_{-\infty}^{+\infty} P_i(t) dt} \quad (9)$$

로 표현된다. 여기서 $P_i(t) = \frac{1}{2} \pi w_0^2 I_0(t)$ 는 입력광의 일률이고, $S = 1 - e^{-\frac{r_a^2}{w_0^2}}$ 는 구멍의 투과율이다. 열린구멍(open aperture)은 $S=1$ 이다.

α_2 는 z 를 측정된 열린구멍 비선형 투과율 T 에 곡선맞춤하여 결정하고, n_2 는 닫힌구멍(closed aperture) 비선형 투과율에 곡선맞춤하여 결정하며 이 때 α_2 는 열린구멍으로부터 구한 값을 대입한다.

2.2. 다광자 흡수

비선형 시료의 위치를 고정시키고 입사광의 세기를 변화시키며 시료의 투과율(T)을 측정하면 다광자 흡수(multiphoton absorption)계수를 측정할 수 있다. 즉 열린구멍의 최소투과율(T_{min})은 비선형 시료의 다광자 흡수를 나타낸다. 입사광의 세기에 대한 4광자 흡수 비선형 물질의 투과율을 간단히 유도하자(2광자 흡수와 3광자 흡수는 보다 간단히 계산할 수 있다).^[14,16]

선형 흡수와 4광자 흡수가 있을 경우 광의 세기는

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha_0 I - \alpha_4 I^4 \tag{10}$$

과 같이 된다. 펄스 가우시안 입력광의 세기가

$$I_{inc}(t, r, 0) = I_0 e^{-\frac{t^2}{\tau^2}} e^{-\frac{2r^2}{w^2}} = I_0(t) e^{-\frac{2r^2}{w^2}} \tag{11}$$

일 때, 길이 L 인 시료를 통과한 후 출사면에서의 세기는

$$I_{exit}(t, r, L) = \frac{I_{inc}(t, r, 0)e^{-\alpha_0 L}}{\left[1 + 3\alpha_4 I_{inc}^3(t, r, 0)L_{eff4}\right]^{1/3}} \tag{12}$$

이고, $L_{eff4} = \frac{1 - e^{-3\alpha_4 L}}{3\alpha_4}$ 이다. 시료를 통과한 총에너지는

$$W_{exit}(t, L) = 2\pi \int_{-\infty}^{+\infty} dt \int_0^{\infty} r dr I_{exit}(t, r, L) \tag{13}$$

이 된다. t 와 r 에 대한 적분을 하기 위해

$$v = e^{-\frac{t^2}{\tau^2}} \tag{14}$$

$$u = e^{-\frac{2r^2}{w^2}} \tag{15}$$

로 치환하면,

$$W_{exit}(t, L) = \frac{\pi w^2 \tau I_0}{2b} \int_0^1 \frac{dv}{v\sqrt{-\ln v}} \times (v) \tag{16}$$

가 된다. 이 때 $b = (3\alpha_4 L_{eff4})^{1/3} I_0$ 이고

$$X(v) = \int_0^1 \frac{du}{\left[\frac{1}{(bv)^3} + u^3\right]^{1/3}} \text{ 이다.}$$

입력 에너지는 $W_{inc} = \frac{1}{2} \pi^{3/2} w^2 \tau I_0$ 이고 $\frac{1}{T} = \frac{W_{inc}}{W_{exit}}$ 이므로

$$\frac{1}{T^3} = \frac{3\pi^{3/2} \alpha_4^3 I_0^3 L_{eff4}^3 e^{3\alpha_0 L}}{\left[\int_0^1 \frac{dv}{v\sqrt{-\ln v}} \times (v)\right]^3} \tag{17}$$

가 된다. 식 (17)은 4광자 흡수에 관한 식으로서 $\frac{1}{T^3}$ 을 I_{inc}^3 에 대해 나타내었다.

위와 같은 방법으로 2광자 흡수는

$$\frac{1}{T} = \frac{\sqrt{\pi} \alpha_2 I_0 L_{eff2} e^{\alpha_0 L}}{\int_0^1 \frac{dv}{v\sqrt{-\ln v}} \ln[1 + \alpha_2 I_0 L_{eff2} v]} \tag{18}$$

으로 표현되며, $L_{eff2} = \frac{1 - e^{-\alpha_0 L}}{\alpha_0}$ 이다. 3광자 흡수는

$$\frac{1}{T^2} = \frac{2\pi \alpha_3^2 I_0^2 L_{eff3}^2 e^{2\alpha_0 L}}{\left[\int_0^1 \frac{dv}{v\sqrt{-\ln v}} \ln(a v + \sqrt{1 + (a v)^2})\right]^2} \tag{19}$$

으로 표현되며, $a = \sqrt{2\alpha_3 L_{eff3}} I_0$, $L_{eff3} = \frac{1 - e^{-2\alpha_0 L}}{2\alpha_0}$ 이다. 2광

자 흡수는 $\frac{1}{T}$ 을 I_{inc} 대해서, 3광자 흡수는 $\frac{1}{T^2}$ 을 I_{inc}^2 에 대해 나타낼 수 있다.

2.3. 비선형 슈레딩거 방정식

시료의 길이가 $L \gg z_0$ 이거나 빛의 세기가 매우 커 비선형 위상이 크면 비선형 방정식 (3)(4)를 사용할 수가 없으며, 빔의 회절을 포함한 비선형 슈레딩거 방정식을 이용해야한다. 3차와 5차 비선형 물질에 대한 비선형 슈레딩거 방정식은

$$\begin{aligned} \nabla_T^2 E + 2ik \frac{\partial E}{\partial z} + 2kk_0 n_2 |E|^2 E + 2kk_0 n_3 |E|^4 E \\ + ik\alpha_4 E + ik\alpha_2 |E|^2 E + ik\alpha_3 |E|^4 E = 0 \end{aligned} \tag{20}$$

으로 주어진다.^[17] 여기서 ∇_T^2 는 광의 2차원 회절을 나타내고, $k = n_0 k_0 = n_0 \frac{\omega}{c}$ 이며, n_3 는 5차 비선형 굴절률이고, E 는 $E = \sqrt{\frac{n_0 \epsilon c}{2}} E'$ 를 만족하는 전기장으로, 광의 세기 I 는 $I = |E|^2$ 이다.

광세기가 매우 클 때 PTS 내에서의 레이저 광의 전파 모양을 조사하기 위하여 식 (20)을 이용하였다. 입력 전기장은 연속발전 가우시안 광으로

$$E(r, z=0) = E_0 e^{-\frac{r^2}{a^2}} \tag{21}$$

이며, E_0 는 최대 입력 전기장이고, a 는 가우시안 광의 반경이다. 전산모의 프로그램의 알고리즘은 분할 계단식 빠른 푸리에 변환 광전파법을 이용하였다.

III. PTS 제작과 Z-scan 실험장치

3.1. 낮은 용액증발법에 의한 PTS 단결정 성장

먼저 용매를 서서히 증발시켜 단위체 PTS 단결정을 성장시킨 후, 자외선을 쬐어주거나 혹은 열처리하여 고분자 단결정으로 만들며, 주로 경험에 의존하는 구체적 제작 방법은 다음과 같다.^[18,19]

(1) PTS 농도가 약 0.4 g/ml 되도록 단위체 PTS를 아세트론 혹은 메탄올 용매에 용해시킨다. 최적 PTS 농도는 실험마다 차이가 심하여 약 0.08~0.5 g/ml 사이가 적당하다. PTS의

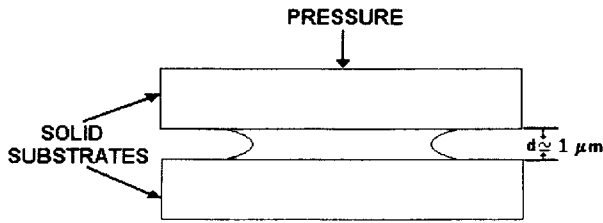


그림 2. (기판/PTS용액/기판)의 구조.

순도는 결정 성장에 매우 중요하다. PTS의 정제는 실온에서 PTS를 아세톤에 서서히 저으면서 녹인 후, 비커 위를 비닐 커버로 덮고 조그마한 구멍을 뚫어 놓는다. 불순물이 많으면 아세톤의 색깔이 탁해진다. 아세톤을 증발시켜 순수한 PTS 결정이 바닥에 남도록 한다. 아세톤의 색깔이 투명해질 때까지 이 과정을 반복한다. 메탄올을 용매로 사용할 경우에는 비커를 데우면서 PTS를 녹인다. 비커를 약 5°C 냉장고에 넣어 순수 PTS 결정이 바닥에 형성될 때까지 기다린다.

(2) PTS 단위체 단결정 박막은 그림 2와 같이 두 개의 유리 기판을 접촉시키고 그 사이에 PTS 용액이 모세관 현상에 의하여 스며들어가도록 한다. 두 기판의 압력으로 두께를 조절한다. 약 20°C 실온에서 기판/PTS용액/기판을 흐르는 질소 가스 분위기 속에 15~20일 정도 넣고 서서히 아세톤을 증발시킨다. 약 일주일정도 지나면 매우 작은 붉은 색의 단위체가 임의의 방향으로 성장한다. 현미경으로 단위체를 관측하여 PTS 결정 구조가 보일 때까지 계속 증발시킨다. 때로는 2~3개월 걸리는 경우도 있다. 고온에서 PTS 단위체는 쉽게 고분자로 바뀌며 원치 않는 결정의 씨알이 될 수 있으므로 조심해야 한다.

(3) PTS 단결정 덩어리는 PTS 용액이 들어 있는 비커에 커버를 덮고 조그마한 구멍을 내어 아세톤을 약 4주간 실온의 어두운 곳에서 증발시킨다. 약 일주일정도 지나면 작은 씨알이 바닥에서 성장하기 시작한다. 충분한 크기의 결정 성장에는 4주 이상이 걸리기도 한다. 단위체 성장에 많은 시간이 걸리므로 실험 조건을 다양하게 변화시키기가 어렵다. 결정이 제대로 성장한 것 같이 보이지 않더라도 버리지 말고 계속 증발시킨다. 일부라도 용액이 남아있으면 상당히 오랜 시간 지난 후 결정이 크게 성장할 수 있다. 시료가 많아지면 결정의 성장을 상세히 추적하기가 매우 어려우므로, 모든 초기조건 및 성장 과정을 상세히 기록해 두어야 한다.

(4) 형성된 단위체 단결정을 약 10일간 자외선에 노출시키거나 진공 열처리에서 약 50°C로 열처리하여 고분자 단결정으로 만든다. 단위체 PTS는 붉은 색이며, 고분자 결정 PTS는 금속 표면과 같이 반짝인다. 고분자화 과정에서 결정에 매우 쉽게 금이 발생한다. 이는 단위체 결정에서 고분자 결정으로 바뀔 때 결정의 크기가 약 5% 정도 감소하기 때문이다. 현미경에서 단위체 결정의 가장자리에서 결정의 크기가 줄어든 흔적을 볼 수 있다. 결정에 생기는 금을 줄이기 위해서 강한 자외선 빛과 급격한 온도 변화를 줄여야 한다. 고분자화율을 높이기 위해서는 충분히 길게 고분자화 과정을 거치도록 한다.

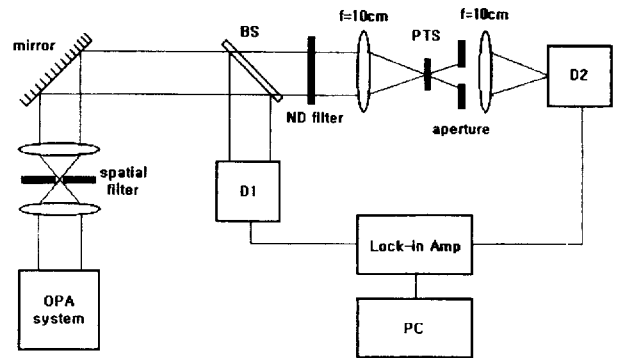


그림 3. Z-scan 실험 장치.

3.2. Z-scan 실험 장치

사용한 레이저는 optical parametric amplifier(OPA)로 파장은 약 1600nm이고 펄스 폭은 약 95fs이다. OPA는 1 kHz의 Ti:Sapphire regenerative amplifier로 펌핑하였으며, 2조화파 Nd:YLF 레이저와 모드락된 Ti:Sapphire 레이저로 Ti:Sapphire regenerative amplifier를 펌핑하였다. 그림 3에서와 같이 레이저 광은 2:1 시준기로 평행하게 만들고 초점거리 10 cm 렌즈를 사용하여 두께 190 μm의 PTS 결정에 집속시켰다. 가우시안 광은 편광을 이용하여 확인하였으며 광허리 반경은 약 24 μm 이었다. 레이저 펄스 에너지는 2.4~27 nJ을 중립밀도 필터를 이용하여 변화시켰다. 시료를 통과한 레이저 광은 Ge 검출기로 측정하고, lock-in 증폭기와 PC를 사용하여 실험 자료를 받았다. 단원구멍 투과율 측정시 구멍의 크기는 투과율이 40% 되도록 조절하였다.

IV. 실험결과

Z-scan 실험장치의 기준으로 두께 1 mm인 석영(fused-silica)의 n_2 와 α_2 를 측정하였다. 그림 4는 측정된 단원구멍과 열린구멍의 투과율이다. 그림 4(b)에서와 같이 열린구멍 투과율에서 비선형 흡수가 전혀 없으므로 2광자 흡수계수인 $\alpha_2=0$ 이고, 그림 4(a)의 단원구멍 투과율을 곡선맞춤하여 계산한 석영의 비선형 굴절률은 $n_2=2.7 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{GW}$ 이다. 이 값은 1550 nm에서 보고된 $n_2=2.79 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{GW}$ 과 일치하여 실험 장치의 측정 오차가 작은 것을 확인할 수 있었다.^[16,20] 또한 그림 4(a)에서 최대투과율(T_{peak})과 최소투과율(T_{valley})의 차이인 $\Delta T_{p-v} = T_{peak} - T_{valley}$ 를 이용하여 비선형 굴절률을 근사로 계산하면 $n_2 = 2.3 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{GW}$ 가 되며 약 15%의 오차가 있음을 알 수 있다.^[14] T_{peak} 의 위치(Z_{peak})와 T_{valley} 의 위치(Z_{valley})사이의 거리인 $\Delta Z_{p-v} = |Z_{peak} - Z_{valley}| \approx 1.7 z_0$ 을 이용하여 근사로 계산한 가우시안 광허리 값은 약 23.2 μm로 측정된 값에 근사하였다.^[14]

4.1. PTS 덩어리 Z-scan

PTS 덩어리의 경우 입사 광의 세기에 따라 Z-scan 측정 결과가 매우 크게 다르게 나타났다. 광의 세기가 2~5 GW/cm²에서는 열린구멍 투과율이 1로 비선형 흡수가 없었으며, 5~16 GW/cm²에서는 비선형 흡수가 크므로, 입사 광의 세기가

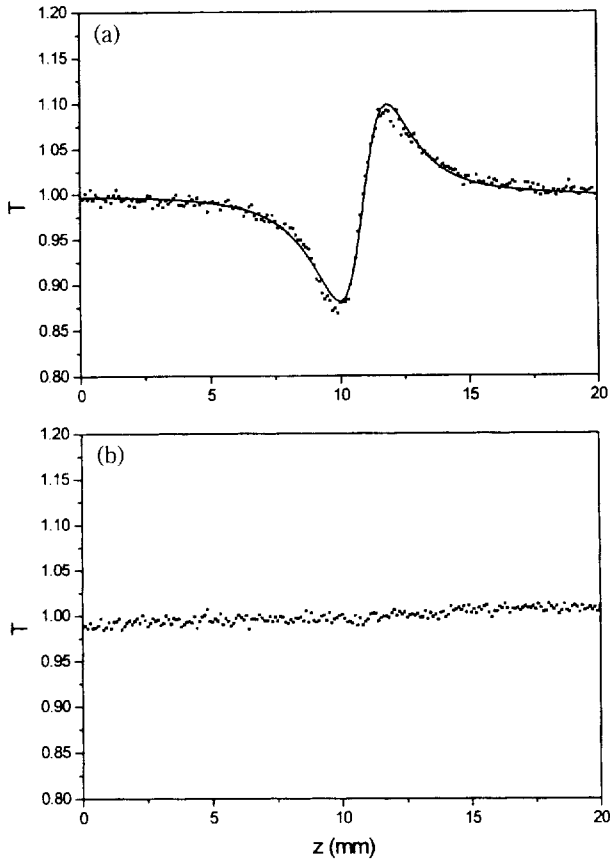


그림 4. 석영의 (a) 단힌구멍 투과율과 (b)열린구멍 투과율.

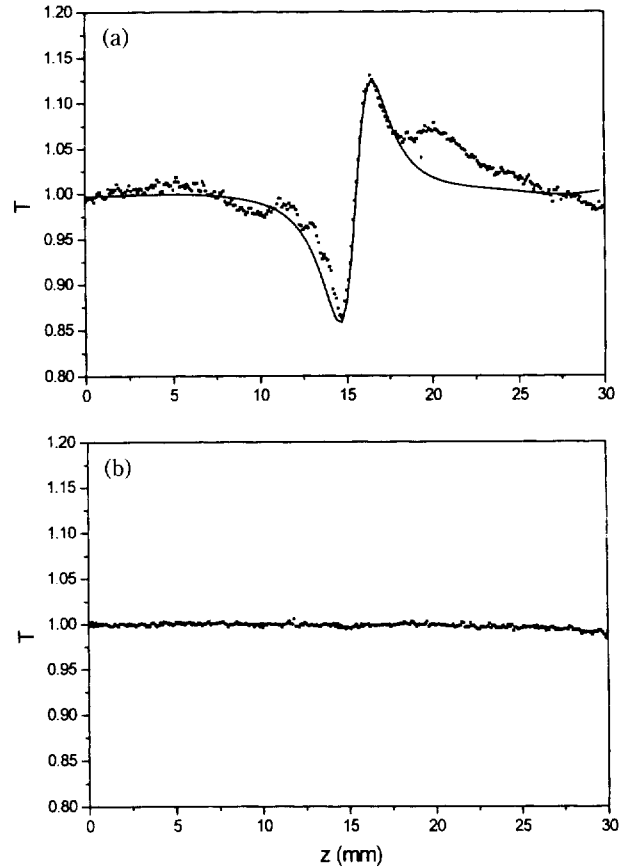


그림 5. $I_0=2.2 \text{ GW/cm}^2$ 일 때 PTS의 (a)단힌구멍과 (b)열린구멍의 투과율.

낮을 때와 높을 때로 나누어 설명하겠다.

(1) 입사 레이저 광의 세기가 낮을 때 ($2 < I_0 < 5 \text{ GW/cm}^2$)

PTS 결정의 방향은 사슬 축이 약한 레이저 광의 편광방향에 평행하도록 하였다. 이때 사슬축 방향 고분자가 최대의 빛을 흡수하므로 빛의 선형 투과율이 가장 낮다. $I_0=2.2 \text{ GW/cm}^2$ 일 때 측정된 PTS의 단힌구멍과 열린구멍의 투과율을 그림 5에 점으로 나타내었다. 열린구멍의 투과율이 시료 위치(z)에 따라 거의 변화가 없으므로, 2광자 흡수계수는 $\alpha_2=0$ 이다.

PTS의 비선형 굴절률을 $n(I) = n_0 + \Delta n(I) = n_0 + n_{2eff}I$ 로 가정하고, 빛의 세기에 따른 n_{2eff} 의 변화를 조사하였다. $\Delta T_{p-v} = T_{peak} - T_{valley}$ 이 비선형 위상변화에 비례하므로, n_{2eff} 는 비선형 위상변화가 크지 않을 경우

$$n_{2eff} \approx \frac{\Delta T_{p-v}}{0.406(1-S)^{0.25} I_0 L_{eff}} \quad (22)$$

로 근사할 수 있다.^[14] 여기서 I_0 는 광축상에서 광의 최대 세기이고 선형 흡수가 작을 경우 $L_{eff} \approx L$ 이다.

n_{2eff} 를 I_0 의 변화에 따라 그림 6에 나타내었다. 광의 세기가 $5 \sim 16 \text{ GW/cm}^2$ 경우는 단힌구멍 투과율을 열린구멍 투과율로 나누어주어 순수한 단힌구멍 투과율로 근사하였다. I_0 가 증가함에 따라 n_{2eff} 가 선형으로 감소하므로, $n_{2eff} = n_2 + n_3 I_0$ 로 가정하였다. 수직축 절편과 기울기로부터 $n_2 = 4.6 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{GW}$ 이고 $n_3 = -1.6 \times 10^{-5} \text{ cm}^4/\text{GW}^2$ 이다. 그러나 I_0 가 광축상에서 광

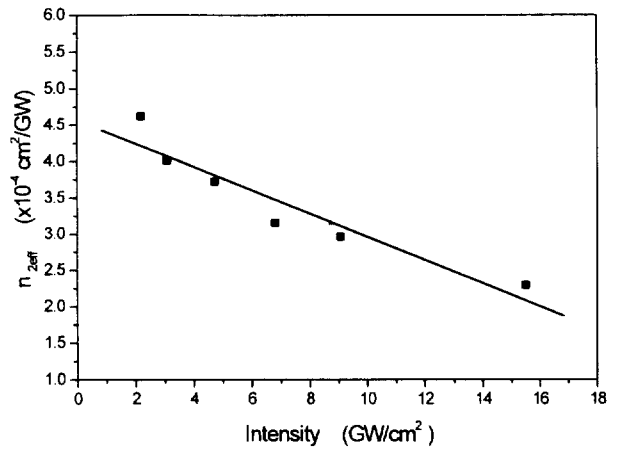


그림 6. 광의 세기에 따른 n_{2eff} 의 변화.

의 최대 세기이므로 이들은 정확한 값이 되지 못한다.

실제로 $n_{2eff}(r) = n_2 + n_3 I(r)$ 이므로 위에서 구한 n_2 와 n_3 를 초기 값으로 각 광의 세기에서 측정된 단힌구멍 투과율을 곡선맞춤하여 n_2 와 n_3 를 결정하였다.^[10,14] n_2 와 n_3 는 각각 $n_2 = 6 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{GW}$, $n_3 = -7 \times 10^{-5} \text{ cm}^4/\text{GW}^2$ 이고, 각 광의 세기에 따라 최대 30%까지 변화였다. 곡선맞춤으로부터 계산한 n_2 와 n_3 는 n_{2eff} 의 수직축 절편과 기울기로부터 구한 값보다 각각 약 1.4 배와 4.4배 크므로 n_{2eff} 의 오차가 큰 것을 알 수 있다.

그림 5(a)에 위의 값으로 곡선맞춤한 단힌구멍 투과율을 나타내었다. T_{peak} 와 T_{valley} 을 포함하여 전반적으로 실험치와 일치하나 $z=10, 13, 20$ mm 근처에서 실험치와 차이를 보이고 있다. 전산모의 값보다 $z=10$ mm 근처에서는 비선형 투과율이 감소하고 $z=13, 20$ mm 근처에서는 비선형 투과율이 증가하였다. 이러한 경향은 사용한 모든 광의 세기에서 유사하게 단힌구멍 투과율에서 나타나고 있다. 실제 실험에서는 시료의 표면 혹은 부피 산란의 효과를 줄이기 위하여, 레이저 광이 조사되는 시료의 위치를 변화시키며 산란이 최소가 되는 위치에서 측정하였다.

본 실험에서 제작한 PTS의 n_2 와 n_3 의 값은 Lawrence가^[10,11] 측정한 값($n_2=2.2 \times 10^{-3}$ cm²/GW, $n_3=-8 \times 10^{-4}$ cm⁴/GW²)에 비하여 각각 1/4과 1/9 정도 작다.^[10,11] 이렇게 작은 원인으로 Z-scan 측정 상의 오차를 생각할 수 있으나, 참고로 여러 번 측정한 석영의 비선형 굴절률이 문헌에 보고된 값과 일치하므로, 이는 배제하기로 하였다. 실험 장치의 오차보다는 PTS 유기단결정의 고분자화율이 낮거나 불순물이 포함되는 등의 물질적 결함 때문일 것으로 생각된다.

(2) 입사 레이저 광의 세기가 높을 때 ($5 < I_0 < 16$ GW/cm²)

일반적으로 비선형 흡수가 나타날 경우 먼저 2광자 흡수계수를 열린구멍 투과율로부터 구하고, 단힌구멍 투과율을 곡선맞춤할 때 2광자 흡수계수를 대입하여 비선형 굴절률을 계산하므로 먼저 열린구멍 투과율을 분석하자.

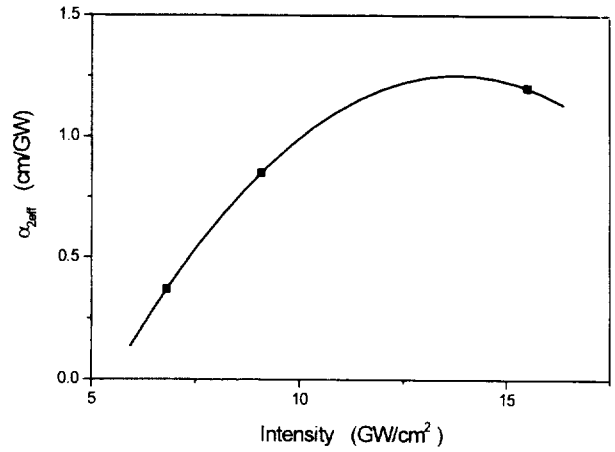


그림 8. 광의 세기에 따른 α_{2eff} 의 변화.

$I_0=9.1$ GW/cm² 일 때 단힌구멍과 열린구멍의 투과율을 그림 7에 나타내었다. 비선형 흡수의 경우 흡수폭이 순수한 2광자 흡수때보다 더 좁게 나타나 유효 2광자 흡수계수(α_{2eff})를 $\Delta\alpha(I)=\alpha_{2eff} I$ 와 같이 가정하였다. 최소투과율 T_{min} 은 식 (18)에 의해 표현되므로 측정된 T_{min} 으로부터 α_{2eff} 를 계산할 수 있다. 이 값을 초기값으로 $\Delta\alpha(I)=\alpha_2 I + \alpha_3 I^2$ 로 가정하고 광반경 $w_0=24$ μ m 일 때 열린구멍 투과율을 곡선맞춤하였으나, 열린구멍 투과율의 흡수폭을 맞출 수가 없었다.

한편 광반경을 $w_0=17$ μ m로 감소시키고 $\Delta\alpha(I)=\alpha_{2eff} I$ 로 가정할 경우 실험치에 가깝게 곡선맞춤을 할 수 있었으며 그림 7(b)에 이를 실선으로 나타내었다. 이와 같은 방법으로 계산한 α_{2eff} 를 I_0 의 변화에 따라 그림 8에 나타내었다. α_{2eff} 가 광의 세기에 따라 2차함수로 증가하므로, 3광자 흡수 혹은 4광자 흡수가 있는 것으로 보인다. $I_0=0$ 일 때 α_2 가 음수이므로 $\alpha_2=0$ 로 가정하였다. 광의 반경이 줄어든 것은 열린구멍 투과율의 흡수폭으로부터도 알 수 있다. 광의 비선형 흡수가 작아 순수 2광자 흡수만 있을 경우 흡수폭의 FWHM은 약 $2z_0$ 로 근사할 수 있고 2광자 흡수계수는 가우시안 광폭에 의해 결정할 수 있다. 본 실험의 경우 이 값이 약 2.3 mm이어야 하나, 측정된 값은 광의 세기에 따라 약 1.0~1.4 mm로 매우 작았으며 이는 가우시안 광반경 16~19 μ m에 해당된다.

단힌구멍 투과율의 곡선맞춤에는 감소한 광반경($w_0=17$ μ m)과 광의 세기가 약할 때 구한 비선형 굴절률($n_2=6 \times 10^{-4}$ cm²/GW, $n_3=-7 \times 10^{-5}$ cm⁴/GW²)을 이용하였으며 그림 7(a)에 실선으로 나타내었다.

가우시안 광반경을 감소시켜야 단힌구멍과 열린구멍 투과율이 곡선맞춤되므로 시료 내에서 광이 가우시안 분포로 전파하는 것이 아니라는 것을 알 수 있다. 또한 광반경이 줄어들었으므로 얇은 시료에 적용할 수 있는 식 (3)과 (4)를 사용할 수 없다. 열린구멍 투과율의 흡수폭이 순수 2광자 흡수폭보다 좁은 것은 다광자 흡수가 있거나 혹은 2광자 흡수 후에 여기상태 흡수(excited state absorption)에 의한 것일 수 있다. 사용한 레이저 빔의 반복율이 1 kHz로 비교적 작아 펄스의 도착시간이 2광자 흡수 여기상태 수명보다 길 것으로 예측되므로 여기상태 흡수에 의한 영향은 작을 것으로 판단된다. 가

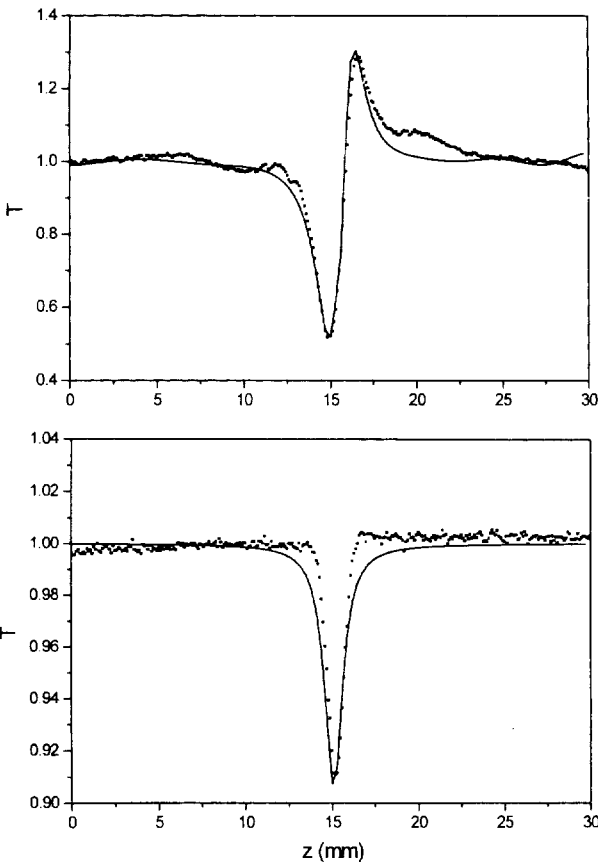


그림 7. $I_0=9.1$ GW/cm² 일 때 (a)단힌구멍과 (b)열린구멍의 투과율.

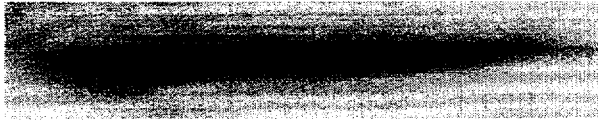


그림 9. 3 mm 평판형 도파관 PTS의 다중모드 출력.

우시안 광의 반경을 줄이거나 4광자 흡수만을 이용하여 근사적으로 닫힌구멍과 열린구멍 투과율을 곡선맞춤을 할 수 있으나 이는 정확한 방법이 아니다. 시료내 광의 전파를 보다 정확히 분석하기 위해서는 3차와 5차 비선형 굴절률과 다광자 흡수계수를 포함하고 있는 비선형 슈레딩거 방정식을 사용해야 한다.

4.2. PTS 도파관

PTS 박막은 제작 조건에 따라 박막의 크기가 임의로 변화하여 체계적 조사가 어려웠으며, 도파관으로 사용할 수 있을 정도인 수 mm의 길이, 수 μm 두께의 박막은 매우 얻기 힘들었다. 면적이 15-20 mm^2 로 비교적 넓은 단위체 단결정 박막을 성장시킬 수 있었으나, 자외선 혹은 열처리 고분자화 과정에서 결정의 크기가 사슬축 방향으로 약 5%정도 감소하기 때문에 박막에 많은 선(crack)이 생기므로 도파관으로 사용하기에 산란과 흡수가 매우 컸다. 여러 개의 시료 중 비교적 광학적 특성이 좋은 박막의 경우, 두 기관의 간격을 조정하여 약 4~6 μm 까지 얇게 할 수 있었으며, 길이는 약 1~3 mm이고, 폭은 약 1 mm이다. 박막 표면의 결정 방향은 (100)이고 비선형 효과가 가장 큰 고분자의 사슬축은 기관에 평행하고 박막의 길이 방향에 수직이다. 박막의 단면은 결정의 갈라지는 면을 이용하였으며, 1350 nm 레이저 빛을 입사시켜 박막을 통하여 빛이 도파되어 나온 다중모드 출력을 그림 9와 같이 확인하였다.

V. 논 의

5.1. 다광자 흡수 분석

광의 세기가 5~16 GW/cm^2 영역에서 열린구멍 비선형 흡수의 최소투과율을 다광자 흡수로 나타내는 식 (17)-(19)를 이용하여 분석하였다. 선형 흡수에 대해 규격화하여 수직축 절편 값이 1이 되도록 하였다. 먼저 식 (18)을 이용하여 본 실험의 $\frac{1}{T}$ 를 I_{inc} 에 대해 나타내고, 펄스 가우시안 광에 대해 비교적 가까운 α_2 를 변화시키며 곡선맞춤하였으나 어느 값도 실험치에 근사하지 않았다. 실험치를 선형맞춤하면 수직 절편이 음수이어서 $\alpha_2 \approx 0$ 으로 근사하였다. 같은 방법으로 $\frac{1}{T^2}$ 를 I_{inc}^2 에 대해 표시하고 $\alpha_3 = 0.5 \sim 1.0 \text{ cm}^5/\text{GW}^2$ 으로 변화시키며 곡선맞춤하였다. 2광자 흡수보다는 실험치에 가까이 가는 경향을 보여주고 있으나, 실험치를 선형맞춤하면 수직 절편이 음수이어서 $\alpha_3 \approx 0$ 으로 근사하였다. 그림 10은 펄스 가우시안 광에 대해 $\frac{1}{T^3}$ 를 I_{inc}^3 에 대해 표시하고 $\alpha_4 = 0.08 \text{ cm}^5/\text{GW}^3$ 로 곡선맞춤한 것으로 비교적 실험치와 잘 일치하고 있다. 따라서 본

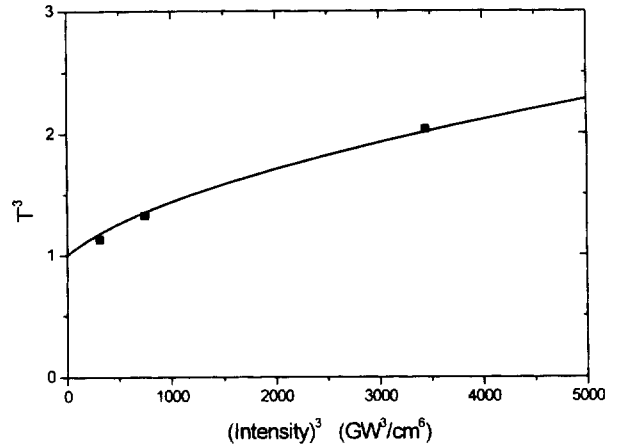


그림 10. $\alpha_4 = 0.08 \text{ cm}^5/\text{GW}^3$ 일 때 I_{inc}^3 에 대해 곡선맞춤한 $\frac{1}{T^3}$.

실험의 비선형 흡수에는 4광자 흡수가 크게 기여한 것으로 여겨진다. 그러나 실험에서 펄스 가우시안 광의 세기(I_{inc})를 미세하게 조절할 수 없어 실험치의 갯수가 작으므로 4광자 흡수

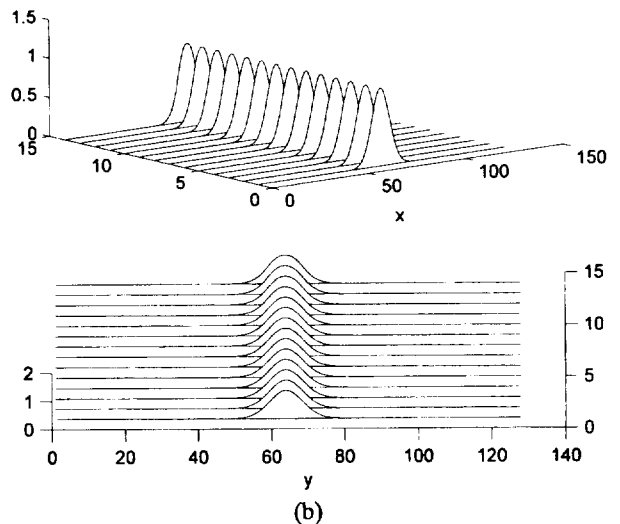
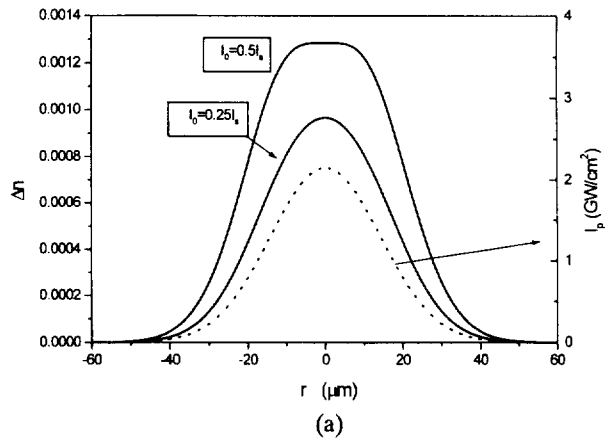


그림 11. $I_0 = 0.25I_s, 0.5I_s$ 일 때 (a) $\Delta n(r)$ 와 입력 가우시안 광의 세기 (b) 광전파도.

외에 다른 원인도 작용하였을 것으로 생각된다.

5.2. 비선형 슈레딩거 방정식

빛의 세기가 5~16 GW/cm² 영역에서 가우시안 광의 반경이 줄어드는 것은 광의 세기가 매우 커서 광의 횡방향 변화가 크게 나타난 것으로 볼 수 있으므로, 식 (20)의 비선형 슈레딩거 방정식을 분할 계단 빠른 푸리에변환 광전파방법을 이용하여 전산모의 하였다. PTS의 경우 1600 nm에서 $n_2=6 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{GW}$, $n_3=-7 \times 10^{-5} \text{ cm}^4/\text{GW}^2$, $\alpha_0=0$, $\alpha_2=0$, $\alpha_3=0$ 를 사용하였다. PTS에서 가우시안 광의 모양이 변하지 않으며 전파하는 2차원 공간 솔리톤을 발전시키기 위한 연속 광의 세기 I 는 근축 광선 근사식을 이용하면 $0.5I_s$ ($I_s = \frac{n_2}{|n_3|}$) 보다 작아야 하며, 본 실험의 경우 $I_s=8.6 \text{ GW/cm}^2$ 이다.^[17]

그림 11(a)에 $\Delta n(r)$ 의 분포를 입력 광의 세기에 따라 나타내었다. $I_0=0.25I_s$ 일 때 Δn 의 분포는 입력 가우시안 광의 모양과 유사하다. 한편 $I_0=0.5I_s$ 일 때 Δn 의 분포는 중앙부분이 평평하다. 그림 11(b)는 $I_0=0.5I_s$ 일 때 입력 가우시안 광이 200 μm 전파하는 것을 보여주고 있다. 굴절률의 중심이 평평하다

라도 시료가 얇기 때문에 가우시안 광으로 전파하고 있는 것을 보여주고 있다. 즉 광의 회절효과가 매우 작은 것을 알 수 있으며, Z-scan 방정식 (3),(4)를 사용할 수 있다.

비선형 굴절률이 중심에서 0이 되는 $I_0=I_s$ 일 경우 $\Delta n(r)$ 과 가우시안 광의 세기를 그림 12(a)에 나타내었다. $\Delta n(0)=0$ 이고 양쪽으로 Δn 이 큰 폭이 두 개 있다. 따라서 가우시안 입력 광의 가운데 부분으로 자체집속되지 않고 두 폭으로 모이게 된다. 그림 12(b)는 $I_0=I_s$ 일 때 입력 가우시안 광이 200 μm 전파하는 것을 보여주고 있다. 시료가 얇더라도 시료의 끝부분에 가서는 빔의 중심부분이 평평해지는 것을 알 수 있다. 또한 $I_0=2I_s$ 가 되면 $\Delta n(r)$ 은 중심부분이 그림 13(a)에서와 같이 음수이고, 양쪽에서는 양수가 된다. 즉 가운데 부분에서 자체발산된 광은 양쪽 폭에 자체집속된다. 그림 13(b)에 광전파를 나타내었다. 2차원 가우시안 광의 가운데 부분이 점점 옆으로 밀려나면서 평평해지다가 오목하게 되는 것을 알 수 있다.

위의 연속발전 가우시안 광에 대한 분석으로부터 빛의 세기가 5~16 GW/cm² 영역에서는 광의 회절을 포함한 비선형 슈레딩거 방정식을 이용하여 열린구멍 투과율과 닫힌구멍 투과율을 분석해야 한다는 것을 알 수 있다. 또한 PTS와 같이 5차 비선형 굴절률이 음수인 물질을 광도파로, 광스위칭 같은

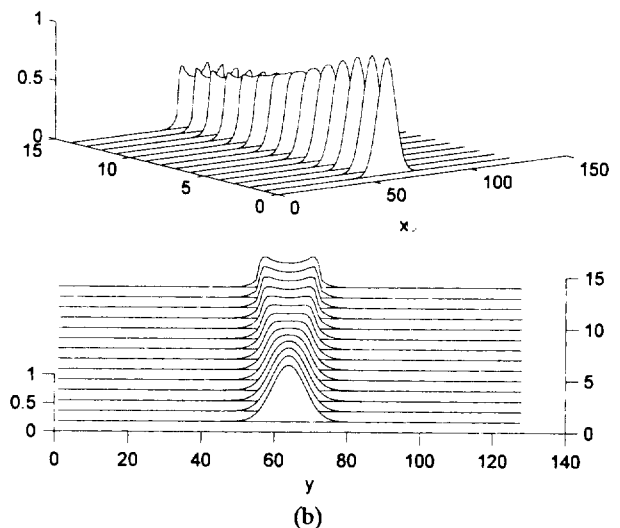
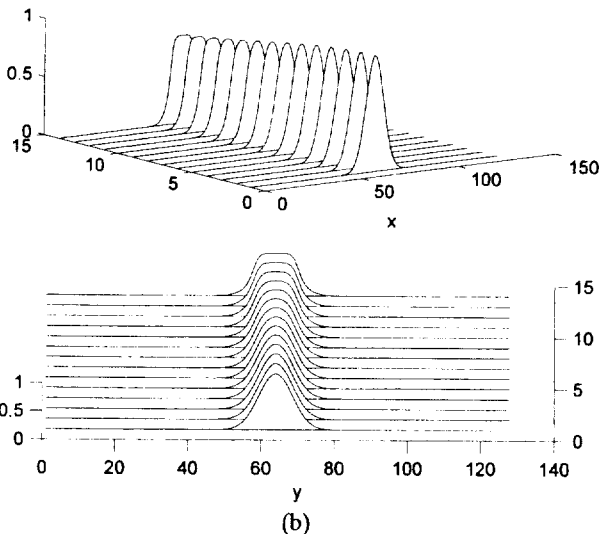
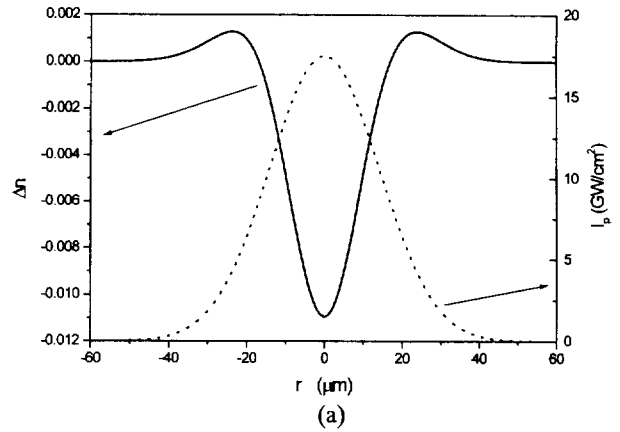
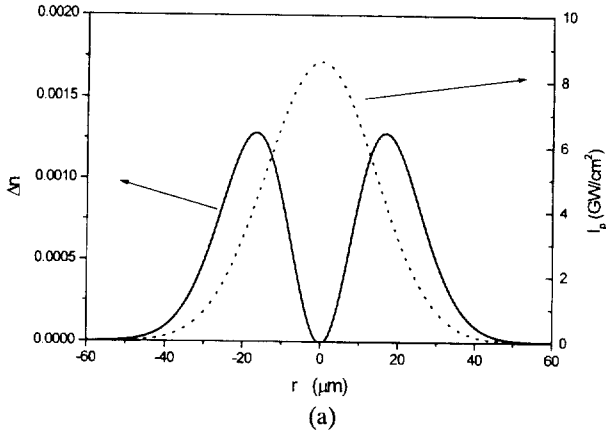


그림 12. $I_0=I_s$ 일 때 (a) $\Delta n(r)$ 와 입력 가우시안 광의 세기 (b) 광전파도.

그림 13. $I_0=2I_s$ 일 때 (a) $\Delta n(r)$ 와 입력 가우시안 광의 세기 (b) 광전파도.

비선형 광학소자로 이용할 경우 빛의 세기가 $0.25I_1$ 보다 작아야 가우시안 광의 왜곡이 크게 일어나지 않으며 비선형 흡수가 작은 것을 알 수 있다.

VI. 결 론

서서히 PTS 용액을 증발시키는 늦은 용액증발법을 이용하여 PTS 단결정 박막과 덩어리를 제작하였다. 두 유리 기판 사이에 성장시킨 길이 3 mm, 두께 4 μm 의 PTS 박막은 다중모드 도파관으로 빛을 전파시키는 것을 확인하였다. 1600 nm, 95fs 레이저 광의 세기가 2~5 GW/cm^2 일 때 Z-scan 방법으로 측정한 PTS의 3차와 5차 비선형 굴절률은 각각 $n_2=6 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{GW}$, $n_3=-7 \times 10^{-5} \text{ cm}^4/\text{GW}^2$ 이었으며 2광자 흡수계수와 3광자 흡수계수는 $\alpha_2 \approx 0$, $\alpha_3 \approx 0$ 이다. 레이저 광의 세기가 5~16 GW/cm^2 일 때는 열린구멍 투과율에서 비선형 흡수가 매우 크게 나타났다. 이 경우 광의 세기가 매우 커서 얇은 시료로 근사할 수 없어, 회절까지 포함하는 비선형 슈레딩거 식과 분할 계단식 빠른 푸리에변환 광전파방법을 이용하여, 비선형 굴절률 분포에 의하여 연속 가우시안 광의 모양이 변하면서 전파되는 것을 확인하였다.

참고문헌

- [1] M. Thakar and S. Meyler, "Growth of large-area thin-film single crystals of poly(diacetylenes)," *Macromolecules* **18**, 2341-2344 (1985).
- [2] M. Thakar, B. Verbeck, G.C. Chi, and K. O'Brian, "Some fundamental aspects of thin film organization and device-structure fabrication of polydiacetylene," *MRS Proc.* **109**, 40-51 (1989).
- [3] M. Thakar and D.M. Krol, "Demonstration of all-optical phase modulation in polydiacetylene waveguides," *Appl. Phys. Lett.* **56**, 1213-1215 (1990).
- [4] D.M. Krol and M. Thakar, "Measurement of the nonlinear refractive index of single crystal polydiacetylene channel waveguides," *Appl. Phys. Lett.* **56**, 1406-1408 (1990).
- [5] R. Quintero-Torres and M. Thakar, "Correlation between photoinduced absorption and large off-resonant nonlinear refractive index of polydiacetylene," *Appl. Phys. Lett.* **61**, 3086-3088 (1992).
- [6] M. Thakar, R.C. Frye, and B.I. Greene, "Nonresonant absorption coefficient of single-crystal films of polydiacetylene measured by photothermal deflection spectroscopy," *Appl. Phys. Lett.* **56**, 1187-1188 (1990).
- [7] J. Bolger, T.G. Harvey, W. Ji, A.K. Kar, S. Molyneux, and B.S. Wherrett, "Near-resonant third-order optical nonlinearities in p-toluene sulfonate polydiacetylene," *J. Opt. Soc. Am.* **B9**, 1552-1557 (1992).
- [8] B.L. Lawrence, M. Cha, J.U. Kang, W. Toruellas, G. Stegeman, S. Etemed and G. Baker, "Z-scan measurement of third and fifth order nonlinearities in single crystal PTS at 1064 nm," *Nonlin. Opt.* **10**, 193-205 (1995).
- [9] D.Y. Kim, B.L. Lawrence, M. Cha, W. Toruellas, G. Stegeman, G. Baker, and J. Meth, "Assessment of single crystal p-toluene sulfonate as an all-optical switching material at 1.3 μm ," *Appl. Phys. Lett.* **65**, 1742-1744 (1994).
- [10] B.L. Lawrence, M. Cha, J.U. Kang, W. Toruellas, G. Stegeman, G. Baker, J. Meth, and S. Etend, "Single crystal p-toluene sulphonate (PTS) at 1600 nm," *Electron. Lett.* **30**, 447-448 (1994).
- [11] B.L. Lawrence, W.E. Toruellas, M. Cha, M.L. Sundheimer, and G. Stegeman, "Identification and role of two-photon excited states in a π conjugated polymer," *Phys. Rev. Lett.*, **73**, 597-600 (1994).
- [12] W. Krug, E. Miao, and M. Derstine, "Optical absorption and scattering losses of PTS and poly(4-BCMU) thin-film waveguides in the near infrared," *J. Opt. Soc. Am.* **B6**, 726-732 (1989).
- [13] E.M. Wright, B.L. Lawrence, W. Toruellas, and G. Stegeman, "Stable self-trapping and ring formation in polydiacetylene para-toluene sulfonate," *Opt. Lett.* **20**, 2482-2484 (1995).
- [14] A.A. Said, M. Sheik-Bahae, T.H. Wei, D.J. Hagan, and E.W. Van Stryland, "Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam," *IEEE J. Quant. Electron.* **26**, 760-769 (1990).
- [15] M. Sheik-Bahae, A.A. Said, M. Sheik-Bahae, and E.W. Van Stryland, "High-sensitivity, single-beam n_2 measurements," *Opt. Lett.* **14**, 955-957 (1989).
- [16] R.L. Sutherland, *Handbook of Nonlinear Optics*, (Marcel Dekker, New York, 1996).
- [17] W.G. Wagner, H.A. Haus, and J.H. Marburger, "Large-scale self-trapping of optical beams in the paraxial ray approximation," *Phys. Rev.* **175**, 256-266 (1963).
- [18] P.A. Albouy, P. Keller, and J.P. Pouget, "Structural and optical studies of the topochemical polymerization mechanism of the bis(p-toluenesulfonate) of 2,4-Hexadiyne-1,6-diol," *J. Am. Chem. Soc.* **104**, 6556-6561 (1982).
- [19] D. Bloor, D.K. Bowen, S.T. Davies, K.J. Roberts, and J. N. Sherwood, "The perfection of polybis(p-toluene sulfonate) diacetylene crystals," *J. Mat. Sci. Lett.* **1**, 150-152 (1982).
- [20] D. Milam, "Review and assessment of measured values of the nonlinear refractive-index coefficient of fused silica," *Appl. Opt.* **37**, 546-550 (1998).

Measurement of nonlinear optical constant of organic single crystal para-toluene sulfonate prepared by slow solution evaporation method

C.K. Hwangbo

Department of Physics, Inha University, Incheon 402-751, Korea

H. Shim, M. Liu and G. Stegeman

CREOL, University of Central Florida, Orlando, FL, USA

(Received February 25, 1998, Revised manuscript received April 9, 1998)

Organic single crystal of p-toluene sulfonate(PTS) bulks and thin films were fabricated using a slow solution evaporation method. Third and fifth order nonlinear refractive indices, n_2 and n_3 , of PTS crystals at 1600 nm were determined by the Z-scan method and the multimode output of the PTS thin film waveguide was observed at 1350 nm. When the beam intensity is in 2~5 GW/cm², the nonlinear refractive indices are $n_2=6 \times 10^{-4}$ cm²/GW and $n_3=-7 \times 10^{-5}$ cm⁴/GW² and the two and three photon absorption coefficients are zero. When the beam intensity is in 5~16 GW/cm², the split-step fast Fourier transform beam propagation method simulation shows that the beam propagation in the PTS is distorted from the gaussian shape.