

## 2차 비선형 광특성의 제어를 위한 실리카 유리의 전기분극 기구 전산모사

유용현 · 이승규 · 신동욱 · 정용재  
한양대학교 세라믹공학과

### Computer Simulation on the Poling Mechanism for the Control of 2nd Order Optical Nonlinearity in Silica Glass

Woong Hyun Ryu, Seung Kyu Lee, Dong Wook Shin and Yong-Chae Chung  
Dept. of Ceramic Engineering, Hanyang University, Seoul 133-791

(2001년 1월 6일 받음, 2001년 2월 10일 최종수정본 받음)

**초 록** 실리카 유리는 매우 우수한 광도와 소재이지만 비선형 광특성이 거의 없다. 그러나 이런 실리카 유리에 금속 전극과 같은 차단전극을 이용하여 강한 전기장을 장시간 가하게 되면 공간 전하 분극이 발생하게 되고 이에 의해 비선형 광특성이 나타나게 된다는 것은 실험적으로 알려져 왔다.

본 연구에서는 전기분극 시 실리카 유리에서 나타나는 비선형 광특성의 경시적인 변화를 공간적인 위치와 시간에 따라 정확히 예측할 수 있는 수치해석적인 모델을 제시하고자 하였다. 이를 위해서 지금까지 실험들에서 실리카 유리의 비선형 광특성 발생의 원인으로 밝혀진 공간전하분극을 전기분극 기구의 전산모사를 통하여 규명하였다. 비정질 실리카를 전해질 용액과 같은 특성을 지니는 매질로 가정하고 전하운반체가 단지  $\text{Na}^+$ 밖에 없다는 가정 하에 유한 차분법 (finite difference method)을 이용하였다. 원래의 복잡한 함수들을 표준화 변수들을 이용하여 간단한 식으로 변환하여  $\text{Na}^+$ 의 농도와 전기장의 분포를 표준화된 시편의 길이와 인가된 전압의 세기만으로 구할 수 있도록 하였다.

**Abstract** Silica glass is a core material for optical fiber in optical telecommunications, but its centrosymmetry eliminates the second order nonlinearity. But it is experimentally well known that the space charge polarization induces the Second Harmonic Generation (SHG) when a strong DC voltage is applied to silica glass for a long period of time with metal blocking electrodes.

In this report, the results of a theoretical calculation of the nonlinear optical property caused by the space charge polarization, and a model of a numerical analysis to predict the small change in nonlinear optical property as functions of time and space are provided. Assuming that amorphous silica is a solid state electrolyte and sodium ion is the only mobile charge carrier, 'Finite Difference Method' was employed for modeling of numerical analysis. The distributions of the concentration of sodium ion and electric field as functions of a normalized length of the specimen and a normalized applied voltage were simulated.

**Key words** : optical switch, silica, poling, SHG

### 1. 서 론

WDM 광통신이 초고속 광통신망 구축을 위한 기술에 있어서 주류를 형성한 것은 주지의 사실이다. WDM 혹은 좀 더 발전된 DWDM 기술은 광통신망을 구성하는 각종 광소자와 광도들이 좀 더 복합적인 기능을 가지고 있으며 소형화되고 대량생산이 가능한 새로운 형태의 광부품을 요구하게 되었고, 그 결과로 출현하게 된 것이 실리카 ( $\text{SiO}_2$ ) 또는 폴리머를 기초소재로 한 집적형 광소자라고 할 수 있다.

비정질 실리카를 바탕으로 한 수동형 집적광소자는 AWG MUX/DEMUX와 같은 WDM 광통신망의 핵심적인 부품을 구현해냄으로써 현재 광통신망에서는 없어서는 안될 필수 불가결한 소자로 자리잡았으며 이 실리카 광소자에 새로운 다양한 기능성을 불어넣기 위한 연구가 다양하게

진행되고 있다. 실리카는 이미 광섬유와 같은 수동형 광도와 소재로서 그 우수성이 잘 알려져 있고 집적형 광소자에 있어서도 극히 낮은 광도와 손실, 물리화학적으로 안정된 물성, 제조의 용이성, 기존 광섬유와의 접속손실이 매우 낮다는 점 등 장점이 매우 많아서 집적 광소자의 소재 중 가장 현실적인 소재로 인정되고 있다. 그러나 실리카는 매우 우수한 광도와 소재이지만 산화물 강유전체나 폴리머 소재 등과 비교할 때, 비선형 광특성이 거의 없으므로 광스위치나 변조기와 같은 핵심적인 부품을 제조할 수 없다는 단점이 있다.

그러나, 1991년에 미국 New Mexico 대학의 Myers 등<sup>1)</sup>이 전기분극된 실리카 유리에서의 비선형 광학 효과를 학계에 발표한 이후, 이러한 현상의 발생기구를 밝히거나 비선형성을 증대시키기 위하여 다수의 연구가 발표되어 왔다.<sup>2)</sup> 이

러한 비선형 실리카에 대하여 큰 관심을 가지는 이유는 실리카와 같은 우수한 광도와 소재에서 광스위치나 변조기를 구현해 낼 수 있는 가능성을 보았기 때문이라고 할 수 있다. 3차원적으로 등방성(isotropic)을 갖고 centrosymmetry가 있어 2차 비선형 광학효과가 없는<sup>3)</sup> 실리카 유리에서 2차 비선형 광학 현상이 발생하는 원인으로 가장 유력하게 대두된 기구는 강한 전기장에 의한 공간전하분극(space charge polarization)의 발생이다.<sup>4-7)</sup> 실리카 유리는 이온 전도성을 가진 재료이고, 상온에서는 약  $10^{-20}$  ( $\Omega \text{ cm}$ )<sup>-1</sup> 정도의 매우 낮은 전기전도도를 가지고 있어 일반적으로 매우 우수한 절연체로 알려져 있다.<sup>8-10)</sup>

그러나 실제로 전류량이 작기는 하나 전기장이 가해졌을 때 전하의 움직임이 존재한다. 전류를 흘리는 전하운반체는  $\text{Na}^+$ 와 같은 알카리 이온이나,  $\text{H}^+$ ,  $\text{H}_3\text{O}^+$ 와 같은 이온들로 알려져 있다. 이러한 실리카 유리에 금속 전극과 같은 차단 전극(blocking electrode)을 이용하여 전기장을 가하면 양극 쪽의 실리카 유리 표면에 공간전하분극이 발생한다. 이러한 공간전하분극은 표면으로부터 수  $\mu\text{m}$ 의 매우 얇은 영역에서 발생하므로 이 영역에서 형성되는 전기장은 매우 크다. 이러한 큰 전계 하에서는 3차 비선형 광학 효과에 의한 주파수 2배수 성분이 발생하고 2차 비선형 광학 계수가 다음과 같은 식에 의해 유도된다.<sup>11,12)</sup>

$$P_{2\omega} = \epsilon_0 \chi^{(2)}_{\text{eff}} E_{\omega} E_{\omega} \quad (1)$$

$$\chi^{(2)}_{\text{eff}} = 3 \chi^{(3)} E_{dc} \quad (2)$$

여기서  $P_{2\omega}$ 는 주파수 2배수 성분의 분극 벡터이고,  $\chi^{(2)}_{\text{eff}}$ 는 유도 2차 비선형 광학 계수,  $\chi^{(3)}$ 는 3차 비선형 광학 계수,  $E_{\omega}$ ,  $E_{dc}$ 는 각각 입사파에 의해 인가된 전기장과 공간전하분극에 의해 발생된 전기장을 의미한다.

따라서 전기분극에 의해 발생하는 실리카 유리에서의 2차 비선형 광학 효과의 발생 기구를 이해하기 위해서도, 이러한 현상을 응용하여 소자를 제작할 때에도 고전압의 직류 전기장 하에서 발생하는 실리카 유리 내부의 전하 분포 또는 전기장의 분포를 밝혀내고 정확히 예측하는 것은 매우 중요한 일이며 정교한 연구를 위해서 가장 먼저 선행되어야 할 연구라고 사료된다.

본 연구에서는 비정질 실리카를 전해질 용액과 같은 특성을 지니는 매질로 가정하고 전하운반체를  $\text{Na}^+$ 로 가정하여 실리카 내부를 정해진 이동도에 따라 움직이는 단순화된 고체 전해질 모델을 설정하고 전하분포의 변화를 공간적인 위치와 시간에 따라 예측하는 방법을 제시하여 비선형 실리카에 대한 연구의 기초를 제공하고자 하였다.

실리카 유리 혹은 일반 규산염 유리에서의 발생하는 공간전하분극에 의한 전하분포는 이미 이론적, 실험적으로 여러 가지 경로를 거쳐 시도되어 왔다. 다수의 연구 결과 중 본 연구와 연관성이 높은 것은 다음과 같다. Beaumont과 Jacobs은 공간전하분극이 일어날 때 측정되는 전류, 유전상수의 변화를 이론적인 분석을 통해 예측하였고<sup>13)</sup>, Alley 등은 시간에 따른 흡수전류의 감소와 이차 비선형 광학효과

의 관계를 찾아냈는데, 비교적 긴 시간인 약 20분의 배양기(incubation period)가 지난 후에 전극분극에 의한 전류의 감소가 측정되고 동시에 SHG 신호가 나타나는 것을 보였다.<sup>15)</sup> 이 실험의 결과에서 매우 긴 시간이 지난 후에 이차 비선형 광학효과가 나타나는 것으로 보아 공간 전하 분극이 발생하며 이에 의해 이차 비선형 광학 효과가 나타난다고 추측할 수 있다. 또한 Proctor와 Sutton은 실험적으로 전하 분포 혹은 불균일한 전하 분포로 인해 발생하는 전기장의 분포를 측정하여 발표하였다.<sup>14)</sup>

특히 이 결과는 매우 흥미로운 것으로 장시간 동안 직류 전기장을 외부에서 인가하였을 때, 측정되는 유리 시편 내부의 전기장의 분포는 균일하지 않고 양극(Anode) 쪽의 전기장이 크게 나타나는 것으로 보고되었다. 이러한 결과는 전기분극된 실리카 유리에서 비선형 광특성, 즉 SHG가 양극(Anode) 쪽에서 더욱 강하게 관찰된다는 결과<sup>1)</sup>와 일치하는 것으로 공간전하분극이 비선형성의 원인이 된다는 강력한 증거 중의 하나이다. 그리고 Shin과 Tomozawa는 실리카 유리에서 발생하는 공간 전하 분극을 실험적, 이론적으로 분석하는 연구결과를 발표하였다.<sup>16)</sup> 전기적 분극을 거친 fused silica에서 비교적 크고 안정적인 이차 비선형 광학효과가 나타나게 되는 기본적인 구동기구는  $\text{Na}^+$ 의 이동에 따른 공간전하분극에 의한 것이라고 믿어진다. 물론 단순히 이런 구동 원리에 의한 것만으로는 설명되어질 수 없는 여러 가지 양상들이 나타나고 있기는 하지만 본 논문에서 주로 관심을 두고 규명하고자 하는 것은 강한 전기장을 걸어줌에 따라 발생하는 전기장의 분포와 전하 운반체의 농도분포이고 이에 따른 이차비선형 광학효과가 결국 공간전하분극에 의한 것임을 명확히 하는 것이다.

2차 비선형 광학 계수가 식 (1)과 식 (2)로부터  $E_{dc}$ (공간전하분극에 의해 발생된 전기장)에 비례함을 알 수 있고, 실리카 유리의 전기장의 분포가 공간 전하 분포, 즉 알카리 이온의 분포에 의존하며, 알카리 이온의 분포는 전기분극 기구에 의해 정해지므로, 전기분극 기구를 명확히 규명하는 것은 실리카 유리의 비선형 광학 특성을 응용하여 소자를 제작할 때, 제작의 효율성을 높일 수 있는 기초자료가 될 수 있다고 생각된다.

따라서 본 연구에서는 기존에 보고된 바 없는 전기분극 시 실리카 유리에서 나타나는 비선형 광학특성의 경시적인 변화를 공간적인 위치와 시간에 따라 정확히 예측할 수 있는 수치해석적인 모델의 제시를 위하여, 지금까지 실험들에서 실리카 유리의 비선형 광특성 발생의 원인으로 밝혀진 공간전하분극을 전기분극 기구의 전산모사를 통하여 규명하고자 하였다. 또 Proctor와 Sutton에 의해 실험적으로 측정된 비대칭적 전하분포가 전기장 하에서 발생하는 이온 확산과정의 결과임을 이론적으로 밝혀내고자 하였다.

## 2. 계 산 과 정

실리카 유리에 이온 차단 전극을 이용하여 직류 전압을 인가하였을 때, 실리카 유리 내에서는 오로지  $\text{Na}^+$ 만이 전하 운반체의 역할을 하고, 또한  $\text{Na}^+$ 는 실리카 유리 내의

Table 1. Glass type, selected composition (ppm by weight), and fictive temperature(°C) of samples used in the experiment. Type I glass is produced by electric fusion of quartz powder, type II glass by flame fusion of quartz powder; type III glass by hydrogen-oxygen flame hydrolysis of SiCl<sub>4</sub>, type IV by plasma fusion of SiCl<sub>4</sub>, Furukawa glass by the AVD method. Fictive temperatures shown in the table are for as-received samples and measured from the peak position of the 2260 cm<sup>-1</sup> fundamental structural bands in the FTIR<sup>14)</sup>

Glass	Glass type	Na	K	Li	Cl	Al	OH	T <sub>f</sub>
Infrasil	I	1	~0.8	1	-	<50	<8	1102
TO8	II	1	~0.8	1	-	<50	~180	1147
Suprasil2	III	0.04	<0.01	<0.05	-	0.1	1200	991
Suprasil W2	IV	0.04	<0.01	<0.05	~240	0.1	5	1052
Furukawa	-	0.04	0.001	-	~1000	<0.04	~0.1	1184

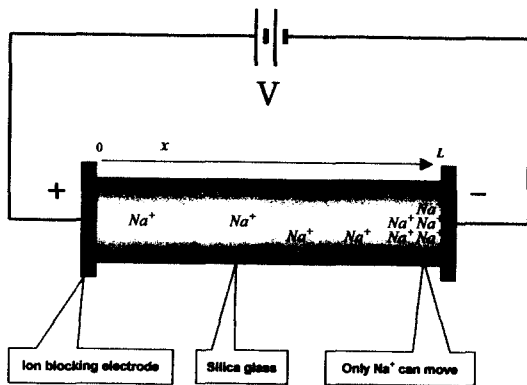


Fig. 1. Schematic illustration of the polarization of the Na<sup>+</sup> ion under the applied voltage.

어떠한 이온이나 결합과 반응(recombination)하지 않으며, 새로이 발생하지도 않는다고 가정한다. 실제로 실리카 유리내에 존재하는 H<sup>+</sup>, H<sub>3</sub>O<sup>+</sup>나 Na<sup>+</sup>를 제외한 알카리 이온과 알카리 토금속 계열의 이온들은 Na<sup>+</sup>에 비해 이동도(mobility)가 매우 낮으므로 이러한 모델이 현실성이 있는 것으로 사료된다. 실리카 유리에 전압이 인가되었을 때, 일정한 농도 분포를 띄는 Na<sup>+</sup>는 표동(Drift)하게 되고, 표동에 의해 Na<sup>+</sup>의 농도 구배(Concentration Gradient)가 전기장 방향의 반대 방향(-)극에서(+)방향)으로 발생한다. Na<sup>+</sup>는 이온차단전극에 의해 비정질 실리카와 전극판 사이의 유동이 불가능하므로, 음극(Cathode)에서는 Na<sup>+</sup>의 축적이, 양극(Anode)에서는 Na<sup>+</sup>의 공핍이 발생하게 된다(그림 1).

전압 인가시 발생하는 실리카 유리 내의 Na<sup>+</sup>의 거동은 아래와 같이 설명될 수 있다.<sup>13)</sup> 우선 Na<sup>+</sup>의 공간적 위치와 시간에 따른 농도 변화를 설명하는 연속방정식은 식 (3)과 같이 표현된다.

$$\left[ \frac{\partial C}{\partial t} \right] = D \frac{\partial^2 C(x,t)}{\partial x^2} - \frac{\partial \mu C(x,t) E(x,t)}{\partial x} \quad (3)$$

C(x,t)는 Na<sup>+</sup>의 농도이고, D와 μ는 각각 Na<sup>+</sup>의 확산계수와 이동도이며, x와 t는 실리카 유리의 공간적 위치와 시간을 나타낸다. 전기장 E(x,t)는 Poisson 방정식에 의하여

식 (4)와 같이 전하분포에 의존한다.

$$\frac{\partial E}{\partial x} = \beta (C(x,t) - C_0) \quad (4)$$

β = 4πε/ε<sub>0</sub>로서, e는 양전하의 전하량이 되고, ε는 실리카 유리의 유전율(permittivity)이 된다. 위 모델의 경계조건 중 하나는 식 (5)로 표현되며, 시편내에 존재하는 전기장의 크기를 적분하면 인가한 전압과 일치함을 보여준다.

$$\int_0^L E(x,t) dx = V \quad (5)$$

여기서 V는 실리카 유리에 인가한 전압이고, L은 실리카 유리의 두께이다. 또 다른 경계조건은 전압 인가에 사용된 이온차단전극에 의한 것이다. 전압 인가 시 실리카 유리 내의 Na<sup>+</sup>의 유량은 그림 1의 x방향에 대하여 식 (6)과 같이 표현된다.

$$J(x,t) = -D \frac{\partial C(x,t)}{\partial x} + \mu C(x,t) E(x,t) \quad (6)$$

가정에 의해서 전압인가에 사용된 전극판이 이온차단전극이므로, 실리카 유리의 양쪽 경계에서 Na<sup>+</sup>의 유량은 0이 된다.

$$J(0,t) = -D \frac{\partial C(0,t)}{\partial x} + \mu C(0,t) E(0,t) = 0 \quad (7)$$

$$J(L,t) = -D \frac{\partial C(L,t)}{\partial x} + \mu C(L,t) E(L,t) = 0 \quad (8)$$

설정된 초기조건은 시편 내에 Na<sup>+</sup>의 농도가 t=0일 때 모든 위치에서 일정함을 나타내는 C(x,0) = C<sub>0</sub>와 초기에 인가된 전기장이 t=0일 때 시편의 모든 위치에서 같은 값을 나타내는 E(x,0) = E<sub>0</sub>(= V/L)이다.

본 연구에서는 위의 설정된 모델로부터 공간적인 위치와 시간의 함수로 Na<sup>+</sup>의 농도 분포를 계산하기 앞서서, 모델

을 설명하는 연속방정식 및 초기·경계 조건들의 변수를 치환한 후 표 2와 같이 무단위 미분방정식으로 모델을 표현하였다. 모델의 무단위 미분방정식 표현이 주는 가장 큰 장점은 직류전압이 인가된 실리카 유리내의 공간적 위치와 시간에 따른 전하분포에 영향을 미치는 많은 인자들을  $L'$ ,  $V'$ 로 간소화한다는 것이다.  $L'$ 는 실리카 유리의 두께 ( $L$ )에 비례하고,  $V'$ 는 실리카 유리의 두께 ( $L$ )와 인가 전압 ( $V$ )에 비례하는 인자로서, 실리카 유리에 전압 인가하였을 때,  $Na^+$ 의 농도 분포에 미치는 실리카 유리의 두께와 인가 전압의 영향을 알려 준다. 이러한 모델의 무단위 미분방정식 표현을 통하여 얻는 또 다른 이점은, 수치해석방법을 적용하는데  $x$ 가  $x'$  ( $=x/L$ )로 치환됨으로써 실리카 유리의 공간적 위치가  $L$ 에 관계없이 0에서 1사이로 제한된다는 것이다. 이는 전압 인가 직후에 경계 부근의 좁은 영역에서 발생하는 급격한 농도 변화를 계산하는데 있어서, 격자 크기 (grid size)의 불안정성을 해결하는데 도움이 된다. 왜냐하면, 변수 치환이 되지 않았을 때, 실리카 유리의 두께가 증가하게 되면, 격자 수가 일정할 때는 격자 크기가 증가하게 되어 전압 인가 직후에 전극 부근의 좁은 영역에서 발생하는 급격한 농도 변화를 계산하는데 어려움이 따르고<sup>17)</sup>, 격자 크기를 조절했을 때는 격자 수의 증가로 계산 시간의 문제가 발생하기 때문이다.

본 연구에서는 시뮬레이션 기구로서 후진차분법 (Backward Difference Method)을 무단위 미분방정식 해석에 적용하였다. 후진차분법은 수치해석 방법 중의 하나로 그림 2에서 보는 바와 같이 시간이  $j$ 인 세 개의 값과 시간이  $j-1$ 인 하나의 값으로 시간적·공간적 위치 ( $i, j$ )에 대한 미분항을 근사식으로 표현하여 계산하는 방법으로서, 시간이  $j-1$ 인 세 개의 값과 시간이  $j$ 인 하나의 값으로 시간적·공간적 위치 ( $i, j-1$ )에 대한 미분항을 근사식으로 표현하여 계산하는 방법인 전진차분법 (Forward Difference Method)에서 나타나는 격자 크기와 시간 간격 크기 (time step size)의 안정성 (stability) 문제가 고려되지 않는 장점이 있다.<sup>18)</sup> 수치해석의 핵심은 미분방정식의 편미분항을 근사식으로 표현하는 것인데, 본 연구에서 선택한 후진차분법의 적용을 위한 각각의 편미분항의 근사식은 아래와 같이 표현할 수 있다. 식 (10)과 식 (11)는  $x$ 축에 대한 미분항의 근사식 표현으로서, 테일러 급수로부터 유도된다.<sup>17)</sup>

$$\left[ \frac{\partial C'}{\partial t'} \right]_{ij} = \frac{C'_{i,j} - C'_{i,j-1}}{\Delta t'} \quad (9)$$

$$\left[ \frac{\partial C'}{\partial x'} \right]_{ij} = \frac{h_{i-1}^2 C'_{i+1,j} - (h_i^2 + h_{i-1}^2) C'_{i,j} + h_i^2 C'_{i-1,j}}{h_i h_{i-1} (h_i + h_{i-1})} \quad (10)$$

$$\left[ \frac{\partial^2 C'}{\partial x'^2} \right]_{ij} = \frac{h_{i-1} C'_{i+1,j} - (h_i + h_{i-1}) C'_{i,j} + h_i C'_{i-1,j}}{0.5 h_i h_{i-1} (h_i + h_{i-1})} \quad (11)$$

후진차분법에서는 격자 크기와 시간 간격 크기의 안정성 문제가 고려되지 않지만, 수치해석 결과의 정확성을 높이기

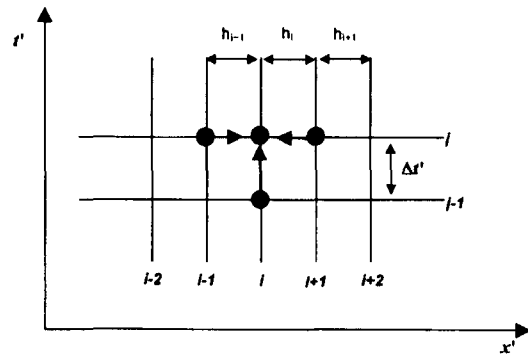


Fig. 2. Schematic illustration of the adaptation of the Backward Difference Method.

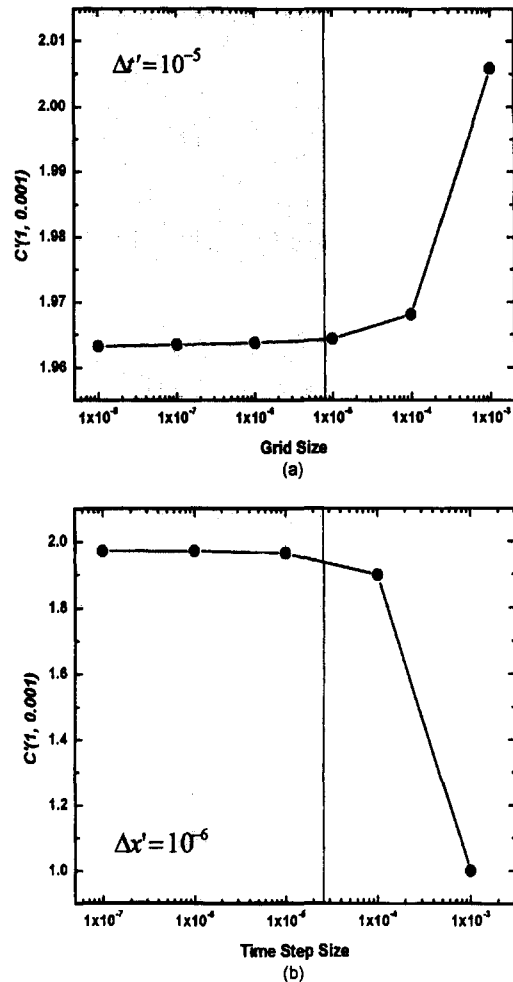


Fig. 3. Optimization of (a) Grid Size and (b) Time Step Size.

위해서는 최적화된 격자 크기와 시간 간격 크기가 필요하다. 일반적으로 격자 크기와 시간 간격 크기가 작아질수록 수치해석적 해의 해석적 해에 대한 오차는 줄어든다.<sup>18)</sup> 그림 3은  $L' = 10$ ,  $V' = 20$ 인 경우에, 각각 격자 크기와 시간 간격 크기를 변화시키며 계산한 결과로서,  $C'$  (1, 0.001)이 격자 크기와 시간 간격 크기가 작아질수록 일정한 값으로 수렴하게 되는 것을 볼 수 있다. 본 연구에서는 격자 크기와 시간 간격 크기를 그림 3에서 각각 수렴영역으로 판단

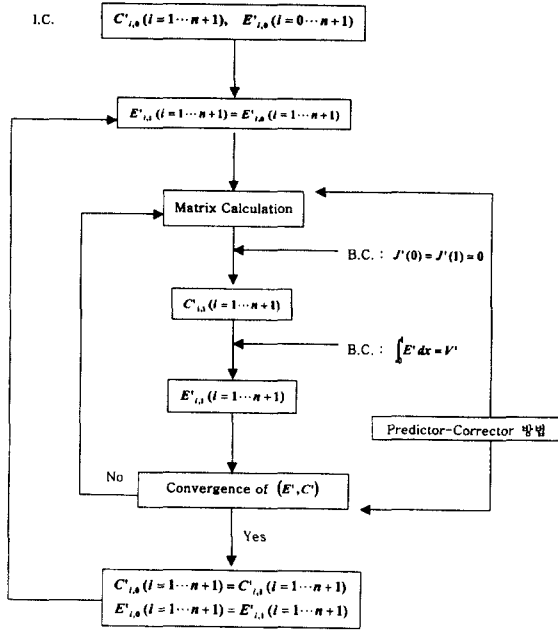


Fig. 4. Flow chart of the calculation procedure employed.

되는  $10^{-6}$ 과  $10^{-5}$ 으로 선택하였다.

농도와 전기장의 미분항들을 근사식으로 표현하고 행렬 계산을 통하여 시간이  $t'$  일 때의 농도 및 전기장의 분포를 계산하는 과정은 그림 4에 나타나 있다. 여기서  $n$ 은 0에서 1(실리카 유리의 두께가 치환된 값)까지의 격자수를 나타낸다. 후진차분법을 적용하는 데 있어서, 알려지지 않은  $\Delta t'$  후의 전기장의 값  $E'_{i,j}$ 을 구하고, 경계조건  $J'(0) = J'(1) = 0$ 을 만족시킴, 수치적 해의 정확성을 높이고 계산 시간을 줄이기 위하여 Predictor-Corrector 방법과 격자 크기를 변화시키는 방법을 사용하였다.<sup>17,19</sup> Predictor-Corrector 방법은  $\Delta t'$  후의 전기장의 값  $E'_{i,j}$ 을  $E'_{i,j-1}$ 이라고 가정하고 반복 계산을 통하여  $E'_{i,j}$ 를 찾아가는 방법으로  $C', E'$ 의 수렴여부로  $E'_{i,j}$ 을 결정하게 된다. 이 때 수렴된  $C', E'$ 가  $\Delta t'$  후의  $C', E'$ 가 된다. 계산과정에서 전압 인가 후 초기에는 전극판 근처의 좁은 영역에서 농도 변화율이 크고, 실리카 유리의 가운데 부분은 농도 변화율이 작은 것으로 알려져, 격자 크기 (grid size)를 변화시키는 방법을 적용하였다. 즉, 전극판 근처에서는 앞서 결정한  $10^{-6}$ 을 취하고 실리카 유리의 가운데 부분은  $10^{-2}$ 을 취하여 계산 시간의 문제 및 초기에 전극판 부근에서만 발생하는 급격한 농도 변화 문제를 해결하였다. 격자의 수는 300으로 고정하였다.

### 3. 결과 및 고찰

앞서 결정된 격자 크기와 시간 간격 크기를 이용하여 실리카 유리 내의  $Na^+$ 의 농도 ( $C'$ )와 전기장 ( $E'$ )을 시간의 함수로서 계산하였다(그림 5, 6).  $Na^+$ 의 공핍영역과 축적 영역은 시간에 따라 점진적으로 증가하였는데, 변수값 ( $L', V'$ )에 따라 농도 분포의 양상이 다르게 나타났다. ( $L', V'$ )가 (10,1)인 경우와 (1,1)인 경우의 초기에는 농도의 분포

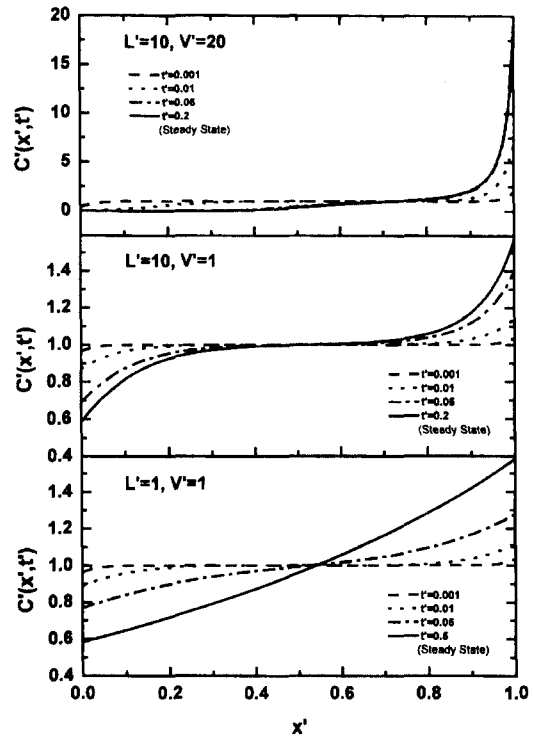


Fig. 5. Concentration distribution as a function of the time at ( $L' = 10, V' = 20$ ), ( $L' = 10, V' = 1$ ) and ( $L' = 1, V' = 1$ ).

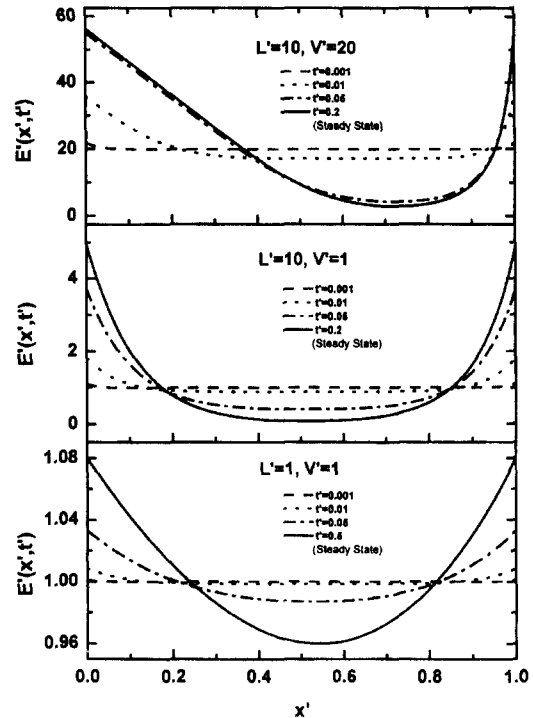


Fig. 6. Electric Field distribution as a function of the time at ( $L' = 10, V' = 20$ ), ( $L' = 10, V' = 1$ ) and ( $L' = 1, V' = 1$ ).

가 대칭적으로 보인다. 그러나  $C'(0, t')$ 과  $C'(1, t')$ 의 값을 비교해 보면 ( $C'(1, t') - C'(0, t')$ ) > 1인 것을 알 수 있는데, 이것은 실리카 유리에 적용 전압을 인가하였을 때,  $Na^+$ 의 농도 분포가 정확하게 대칭되지 않는다는 것을 의미

Table 2. Description of the model and dimensionless equation.

Differential Equation, B.C. and I.C.	Dimensionless
$J(x,t) = -D \frac{\partial C(x,t)}{\partial x} + \mu C(x,t) E(x,t)$ $\left[ \frac{\partial C}{\partial t} \right] = D \frac{\partial^2 C(x,t)}{\partial x^2} - \mu \frac{\partial C(x,t) E(x,t)}{\partial x}$ $\frac{\partial E(x,t)}{\partial x} = \beta (C(x,t) - C_0)$ <p style="text-align: center;">: Poisson equation (<math>\beta = 4\pi e / \epsilon</math>)</p> <p>Boundary Condition :</p> $\int_0^L E(x,t) dx = V \quad J(0,t) = J(L,t) = 0$ <p>Initial Condition :</p> $C(x,0) = C_0 \quad E(x,0) = V/L$	$J'(x',t') = -\frac{\partial C'(x',t')}{\partial x'} + C'(x',t') E'(x',t')$ $\left[ \frac{\partial C'}{\partial t'} \right] = \frac{\partial^2 C'(x',t')}{\partial x'^2} - \frac{\partial C'(x',t') E'(x',t')}{\partial x'}$ $\frac{\partial E'(x',t')}{\partial x'} = L'^{-2} (C'(x',t') - 1)$ <p>Boundary Condition :</p> $\int_0^1 E'(x',t') dx' = V' \quad J'(0,t') = J'(1,t') = 0$ <p>Initial Condition :</p> $C'(x',0) = 1 \quad E'(x',0) = V'$
<p><math>J</math>: Flux (# cm · s)</p> <p><math>C</math>: Concentration (# / cm<sup>3</sup>)</p> <p><math>E</math>: Electric Field (V/cm)</p> <p><math>L</math>: Thickness of Fused Silica (cm)</p> <p><math>D</math>: Diffusion Coefficient (cm/s)</p> <p><math>\mu</math>: Mobility of Na<sup>+</sup> (cm/V · s)</p> <p><math>e</math>: Charge of Positive Ion (C)</p> <p><math>\epsilon</math>: Permittivity (F/cm)</p>	$x' = \frac{x}{L} \quad t' = \frac{D}{L^2} t \quad V' = \frac{\mu L}{D} V$ $C'(x',t') = \frac{C(x,t)}{C_0} \quad E'(x',t') = \frac{\mu L}{D} E(x,t)$ $L' = \sqrt{\frac{\mu \beta C_0}{D}} L \quad J'(x',t') = \frac{L}{D C_0} J(x,t)$

한다.  $V' = 20$ 인 경우  $Na^+$ 의 농도 분포의 비대칭성을 뚜렷하게 보여 주는데, 이는  $L' = 10$ ,  $V' = 1$ 인 경우와의 비교로부터 농도분포의 비대칭성이 인가전압에 비례함을 나타낸다.  $\frac{\partial E'}{\partial x'}$ 가  $L'^2$ 에 비례하기 때문에,  $L' = 1$ ,  $V' = 1$ 인 경우의 정상 상태에서 농도 분포의 특징은  $L' = 10$ 인 경우에 비해 시편 중앙의 전기장과 시편 경계의 전기장 차이가 상대적으로 매우 작은 값을 가지므로, 시편 전체에 걸쳐 비슷한 농도 기울기를 갖는다.

그림 6은 전기장의 분포로서, 농도 분포와 유사한 경향을 보여 준다. ( $L', V'$ )가 (10,1)인 경우와 (1,1)인 경우에는 전기장의 분포가 대칭적으로 보이는 반면에 (10,20)인 경우에는 농도 분포에서와 마찬가지로 비대칭적인 분포를 뚜렷이 보여 준다. 특히, 비대칭적인 전기장의 분포에서  $x'$ 에 따른 전기장의 변화율  $\frac{\partial E'}{\partial x'}$ 은 Poisson 방정식에 의해 양극쪽보다는 음극쪽에서 크게 나타난다. 전기장의 분포에서 특이한 점은 모든 경우에서 양쪽 경계의 전기장 세기가 시간에 관계없이 항상 같다는 것이다 ( $E'(0,t') = E'(1,t')$ ). 이는 Poisson 방정식(식 (4))과 경계조건(식 (7)과 식 (8))에 의한 것으로 다음과 같이 정리할 수 있다.

$$E'(0,t') = \int_a^0 L'^{-2} (C'(x',t') - 1) dx' + E'(a) \quad (12)$$

$$E'(1,t') = \int_a^1 L'^{-2} (C'(x',t') - 1) dx' + E'(a) \quad (13)$$

$a$ 는  $C'$ 이 1인 지점으로, 식 (12)와 식 (13)은 실리카 유리와 전극판의 계면에서 전기장을 나타낸다. 따라서 양쪽 계면의 전기장 차를 구하면 다음과 같다.

$$E(1,t) - E(0,t) = \int_a^1 L'^{-2} (C'(x',t') - 1) dx' - \int_a^0 L'^{-2} (C'(x',t') - 1) dx' \quad (14)$$

우변의 적분식들은 공핍량과 축적량에 각각 비례하는 항들로, 경계조건에 의하여 공핍량과 축적량이 같기 때문에  $E(1,t) - E(0,t) = 0$ 이 된다. 따라서 양쪽 경계의 전기장의 세기는 시간에 관계없이 항상 같은 값을 가지게 되는 것이다.

( $L', V'$ )가 (10,20), (10,1), (1,1)인 경우에서, 각각  $t'$ 가 0.2, 0.2, 0.5일 때  $C'$ 와  $E'$ 가  $t'$ 의 변화에 대해 더 이상 변화하지 않았다. 이것은 전압 인가에 따른  $Na^+$ 의 반응이 정상 상태에 도달하였음을 나타낸다.  $Na^+$ 의 유량을  $C'$ 과  $E'$ 로부터 각각의 시간에 대하여 계산한 결과도 이를 확인해 주는데, 각각의 변수값에 따른 유량의 경시적 분포가 그림 7에 나타나 있다. 세 경우 모두 경계 조건,  $J'(0,t') = J'(1,t') = 0$ 을 만족하면서  $t'$ 가 증가함에 따라 점진적으로 감소하여  $t'$ 가 각각 0.2, 0.2, 0.5에 도달하였을 때, 0에 가까워졌다. 정상상태에서는 유량이 전구간에 걸쳐 0이 되어야 하므로, 계산 결과의 오차는 최대 ~2.5%를 넘지 않는 것으로 나타났다. 공간과 시간에 따른  $Na^+$ 의 유량 분포는 표 2의  $J'$ 으로 계산되므로, 농도분포나 전기장의 분포와 같은 경향을 보인다. 특히, (10,20)인 경우의 비대칭적인 유량분포에서 음극 쪽보다 양극 쪽의 유량이 0에 빨리 도달하는데, 그 이유는 양극쪽의 이온 농도가 0에 가까워졌기 때문이다. 따라서 고전압이 인가될 때, 시편내에서 이온의 공핍에는 한계 ( $C' \frac{C}{C_0} \geq 0$ )가 있기 때문에, 이온의 농도와 전기장은 항상 비대칭적이 분포를 뚜렷하게 보여 주는 것이다.

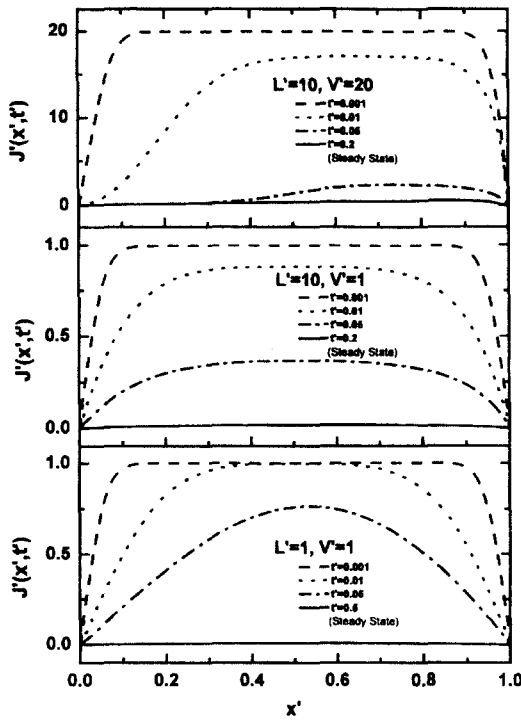


Fig. 7. Flux distribution as a function of the time at ( $L' = 10, V' = 20$ ), ( $L' = 10, V' = 1$ ) and ( $L' = 1, V' = 1$ ).

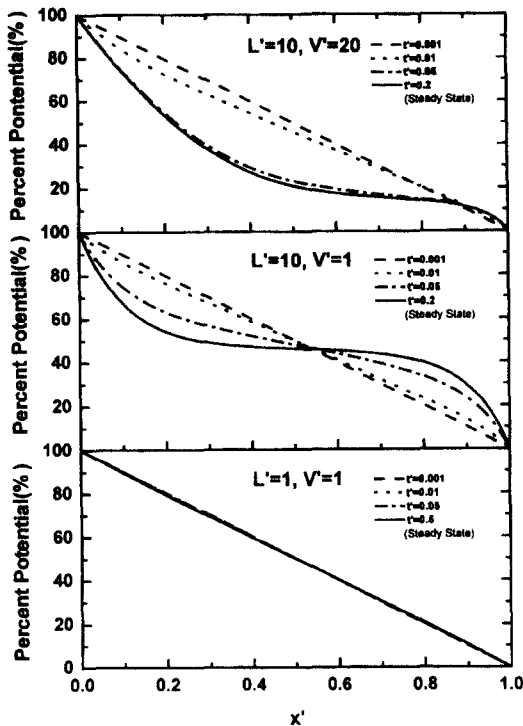


Fig. 8. Potential distribution as a function of the time at ( $L' = 10, V' = 20$ ), ( $L' = 10, V' = 1$ ) and ( $L' = 1, V' = 1$ ).

그림 8은 퍼센트 포텐셜(percent potential)의 분포를 보여 준다. 퍼센트 포텐셜은  $E'(x', t')$ 을 0에서부터  $x'$ 까지 적분한 후,  $V'$ 로 나눈 값, 즉 인가전압에 대한 공간적 위치의 상대적인 포텐셜을 나타내는데, 농도, 전기장,

유량의 분포에서와 같이 고전압이 인가되었을 때 비대칭적인 분포를 뚜렷이 보여 준다. ( $L', V'$ )가 (1,1) 일 때의 퍼센트 포텐셜 분포는  $x'$ 에 따라서 균일하게 감소하는데, 이는 앞서 언급한 바와 같이  $\frac{\partial E'}{\partial x}$ 가  $L'^2$ 에 비례하기 때문이다. (10,1)인 경우에는 퍼센트 포텐셜 분포의 균일성은 없지만, 대칭성을 보여주며, (10,20)인 경우에는 퍼센트 포텐셜 분포의 균일성 및 대칭성이 없다. 따라서, 실리카 유리에 직류 전압을 인가하였을 때, 실리카 유리의 퍼센트 포텐셜 분포는  $L'$ 가 증가함에 따라 균일성이 감소하고,  $V'$ 의 증가에 따라서는 퍼센트 포텐셜 분포의 비대칭성이 증가함을 알 수 있다. 여기서 주목할 점은  $V'$ 가 높을 때, 즉 높은 전압이 인가될 때 퍼센트 포텐셜 변화가 양극쪽에서 크게 나타난다는 것이다. 그림 8에서 ( $L', V'$ )가 (10, 20)일 때의 퍼센트 포텐셜 분포를 보면,  $x'$ 가 0에서 0.2로 변화할 때 퍼센트 포텐셜은 ~45% 감소한 반면,  $x'$ 가 0.8에서 1로 변화할 때는 퍼센트 포텐셜이 ~15% 감소한 것으로 이를 확인할 수 있다.

지금까지 전기분극 기구의 수치해석 결과로부터 실리카 유리의 두께와 인가 전압에 따른 경시적인 공간전하분포의 특징을 알아보았다. 앞서 밝힌 바와 같이, 실리카 유리의 poling은 비선형 광학 특성을 발생시키는 요인이 되므로, 본 연구 결과는 실리카 유리의 비선형 광학 특성을 응용한 소자를 제작할 때, 경제적인 전기분극 공정을 위한 기초 자료가 되겠다. 다시 말하면, 본 연구 결과가 전기분극 공정의 경제성을 좌우하는 전기분극 온도 및 시간 등을 제어할 수 있는 기초 자료로 제공된다고 하겠다.

#### 4. 결 론

열적 전기분극에 의해 유도되는 실리카 유리의 2차 비선형 광특성은 광스위치로서의 응용성이 매우 높아 많은 관심을 끌고 있고, 이러한 비선형 광특성을 증대시키기 위한 노력이 여러모로 시행되고 있다. 비선형 광특성을 증대시키기 위해서는 궁극적으로 이런 현상이 발생하게 되는 기본적인 매커니즘을 이해하는 것이 우선되어야 한다고 생각된다.

본 연구에서의 수치 해석적인 모델에서 우리가 알고 있었던 실험의 결과에 대한 정확한 매커니즘에 대한 예측이 가능함을 볼 수 있었다. 이전의 실험치들에서 강한 전기장을 실리카 유리에 가해 주었을 때 상대적으로 긴 시간이 흐른 후에 비선형 광특성이 나타나는 것으로 보아  $Na^+$ 가 이동하면서 음극쪽에 축적되게 되고 양극쪽에 공핍층이 생기게 되어 공간 전하 분극이 발생하게 되고 그로 인해 비선형 광특성이 나타나게 된다고 생각해왔다. 앞에서 살펴본 바와 같이 그림 6에서 강한 전기장을 가해주었을 때 비대칭적인 농도분포를 나타내게 되고, 특히 그림 8에서는 고전압이 인가되었을 경우, 포텐셜의 분포가 확실한 비대칭성을 보인다. 또한 더욱 우리가 주목해야 할 점은 강한 전기장을 걸어주었을 때 양극쪽에서 포텐셜의 감소가 매우 크게 나타난다는 것이다. 시편의 양극쪽 전극에서부터 0.2가 변화할 때 포텐셜의 감소는 거의 50%나 일어남을 볼 수 있고 이런 점에서 공간 전하 분극에 의해 발생하는 비선형 광특성이

음극쪽보다는 양극쪽의 공핍층에 주로 지배된다는 것을 알 수 있다. 한편, 더욱더 정확한 수치해석 데이터를 얻기 위해서는 본 연구에서의 많은 가정들을 좀 더 실제와 가까운 값들로 보정하고  $\text{Na}^+$  이외의 다른 이온들에 대해서도 고려한 연구가 필요하다고 사료된다.

#### 감사의 글

본 연구는 한양대학교 세라믹공정연구센터를 통한 한국 과학재단 우수연구센터 지원금에 의한 것이므로, 이에 감사드립니다.

#### 참 고 문 헌

1. R.A. Myers, N. Mukherjee, and S.R.J. Brueck, "Large second order nonlinearities in poled fused silica." *Opt. Lett.*, **16**, 1732-1734 (1991).
2. P.G. Kazansky, P.St.J. Russell, and H. Takebe, "Glass fiber poling and applications," *J. Lightwave Technol.*, **15** (8), 1484-1493 (1997).
3. J.F. Nye, *Physical Properties of Crystals*, Oxford University Press, 241 (1967).
4. P.G. Kazansky, A.R. Smith, P. St. J. Russell, G.M. Yang, and G.M. Sessler, "Thermally poled silica glass: Laser induced pressure pulse probe of charge distribution," *Appl. Phys. Lett.*, **68**, 269-271. (1996).
5. H. Takebe, P.G. Kazansky, P.St.J. Russell, and K. Morinaga, "Effect of poling conditions on second harmonic generation in fused silica," *Opt. Lett.*, **20**, 468-470 (1996).
6. 신동욱, "실리카 유리의 전기이완 특성과 비선형적 전기 전도도", *한국요업학회지*, Vol. **36**, No. 9 (1999).
7. N. Mukherjee R.A. Myers, and S.R.J. Brueck, "Dynamics of second harmonic generation in fused silica," *J. Opt. Soc. Amer. B*, vol. **11**, pp. 665-669, (1994).
8. A.E. Owen and R.W. Douglas, "The Electrical Properties of Vitreous Silica", *J. Soc. Glass Tech.*, **43**, 159-183 (1959).
9. D.W. Shin and M. Tomozawa, "The Electrical Resistivity of Silica Glasses," *J. Non-Cryst. Solids*, **163**, 203-210 (1993).
10. R.H. Doremus, "Glass Science", 2nd ed., John Wiley & Sons Inc., (1994).
11. R.A. Myers, X. Long and S.R.J. Brueck, "Recent advances in the second-order nonlinear optical properties of amorphous silica materials," *SPIE Vol. 2289 Doped Fiber Devices and Systems* (1994).
12. T.G. Alley, S.R.J. Brueck, R.A. Myers, "Space charge dynamics in thermally poled fused silica", *J. Non-Cryst. Solids*, **242**, 165-176 (1998).
13. J.H. Beaumont and P.W. Jacobs, "Polarization in Potassium Chloride crystals," *J. Phys. Chem. Solids*, **28**, 657-684 (1967).
14. T.M. Proctor and P.M. Sutton, "Space Charge Development in Glass," *J. Amer. Ceram. Soc.*, **43** (4), 173-179 (1960).
15. Thomas G. Alley, S.R.J. Brueck, and Richard A. Myers, "Space charge dynamics in thermally poled fused silica," *J. Non-Cryst. Solides*, **242**, 165-176 (1998).
16. D.W. Shin, Minoru Tomozawa, "Electrical and dielectric relaxation in silica glasses at low temperature," *J. Non-Cryst. Solides*, **211**, 237-249 (1997).
17. Y.-C. Chung, "Toward the Measurement of Reliable Grain-Boundary Diffusion Coefficients in Oxides", Ph.D. Thesis, M.I.T., USA, 1995.
18. R.L. Burden and J.D. Faires, "Numerical Analysis", 5<sup>th</sup> Ed., p. 635-646, PWS PUBLISHING COMPANY, Boston, 1993.
19. D. Raabe, "Computational Materials Science", p. 38, Wiley-VCH, Weinheim, 1998.