

## 포락선 방법을 이용한 흡수가 작은 박막의 광학 상수 및 두께 결정\*

황보창권 · 진권희 · 박대윤 · 이민희

인하대학교 이과대학 물리학과

(1991년 11월 1일 받음)

분광 광도계에서 측정한 1/4 파장과 1/2 파장 광학 두께에서의 투과율을 곡선 맞춤한 두 포락선으로부터 흡수가 작은 박막의 광학 상수(굴절률과 소멸 계수)와 두께를 결정하는 포락선 방법의 간단한 식을 유도하였다. 기판의 뒷면 효과를 고려한 포락선 방법을 전공 중착한 ZnS와 SiO<sub>x</sub> 박막에 적용하여 중착 조건에 대한 광학 상수의 변화를 결정하였으며, SiO<sub>x</sub> 박막의 경우 주입 산소 압력의 증가에 따른 굴절률의 감소와 원소 조성비의 증가가 일치하는 것을 확인하였다.

### I. 서 론

일반적으로 전공 중착법으로 제작된 광학 박막의 광학적 특성(투과율, 반사율, 흡수율 등), 기계적 특성(응력, 접착력 등)과 원소 조성비 같은 bulk의 특성과 다르다. 이것은 중착 조건(전공도, 중착율, 기판 온도, 반응 가스, 전공 중착기의 기하학적 구조, 중착 물질, 기판 등)에 따라 박막의 미세 구조가 변화하며, 미세 구조에 의해 결정되는 광학 상수가 변하기 때문이다.<sup>[1]</sup> 특히 간섭 필터와 같은 다층 박막의 경우 설계시 가정하였던 균일하고 동방성인 박막과 실제 제작한 박막과의 미세한 차이가 누적되어, 설계와는 다른 특성을 갖는 간섭 필터가 제작되기도 한다.

따라서 정확한 광학 상수의 결정<sup>[2,3]</sup> 및 중착 조건에 따른 광학 상수의 변화는 고품질의 박막과 다층 박막 제작시 알아야 할 중요한 정보이다. 한편 같은 조건에서 중착된 광학 박막이라도 각 실험실마다 광학 상수 결정 방법이 다르기 때문에 광학 상수의 값에 미세한 차이가 있다.<sup>[4,5]</sup>

분광 광도계를 이용한 광학 박막의 광학 상수 결정 방법은 크게 반복 방법(iteration method)과 포락선 방법(envelope method)으로 나눌 수 있다. 반복 방법은 수직 입사의 반사율과 투과율을 측정하고 필요하다면 따로 두께를 측정하여, 측정치와 계산한 반사율과 투과율이 일치하도록 수치 해석과 반복 방법을 이용하여 한 파장

혹은 여러 파장에서 광학 상수를 결정하는 방법이다. 한 파장마다 광학 상수와 두께를 결정하는 반복 방법은 측정치와 같은 값을 갖는 여러 개의 해를 얻게 되므로 수직 입사 반사율과 투과율 이외에 독립적으로 두께 혹은 경사 입사의 반사율을 측정한다.<sup>[6-8]</sup> 여러 파장에서 광학 상수와 두께를 결정하는 반복 방법은 굴절률의 분산식을 이용하여 계산치와 측정치를 전파장 영역에서 곡선 맞춤하여, 정확도가 높으며 비균일 박막의 광학 상수 분포와 전혀 정보가 없는 박막의 광학 상수도 결정할 수 있다.<sup>[9-12]</sup>

한편 포락선 방법은 흡수가 작은 적당한 두께의 유전체 박막에 적용되며 수직 입사의 투과율만 측정하여도 박막의 광학 상수와 두께를 결정할 수 있다.<sup>[13-18]</sup> 기판의 굴절률이 박막보다 작은 경우, 흡수가 작고 굴절률의 분산이 크지 않은 유전체 박막의 최소 투과율과 최대 투과율은 박막의 광학 두께가 각각 1/4 파장의 흡수의 정수배와 짹수의 정수배에서 나타난다. Manifacier et al<sup>[13]</sup>는 이를 이용하여 박막의 최대 투과율을 이어준 포락선과 최소 투과율을 이어준 포락선으로부터 반복 방법을 사용하지 않고 굴절률과 소멸 계수 및 두께를 결정할 수 있는 포락선 방법을 제안하였다. 균일한 박막에 적용되는 포락선 방법은 수직 입사의 반사율을 추가하고 소멸 계수가 균일하다고 가정하면 선형의 비균일 굴절률 분포를 결정할 수 있다.<sup>[4]</sup> 또한 두께와 굴절률이 균일하지 않은 박막의 광학 상수를 결정할 수 있으며,<sup>[14,15]</sup>

\*본 연구는 1991년도 교육부 기초과학 육성 연구 지원으로 수행된 과제임.

흡수가 작은 영역에서는 포락선 방법을 사용하고 흡수가 큰 영역에서는 측정한 반사율과 반복 방법을 이용하여 전파장 영역에서 광학 상수를 결정하기도 한다.<sup>[16]</sup>

본 연구에서는 흡수에 의한 광학 박막의 어드미턴스와 투과율의 변화를 보다 간단한 수식으로 표현하였으며, 1/4 파장과 1/2 파장의 두 포락선으로부터 굴절률과 소멸 계수를 결정하는 식을 유도하였고, 포락선 방법을 전산 시동하여 정확도와 한계를 조사하였다. 기판의 뒷면에 의한 투과율 감소를 고려한 포락선 방법을 이용하여 열저항법으로 진공 증착기에서 증착한 ZnS 박막과 SiO<sub>x</sub> 박막의 광학 상수를 증착 조건의 변화에 따라 결정하였으며, SiO<sub>x</sub> 박막의 원소 조성비의 근사치를 Fourier 변환 적외선 분광법으로 측정하여 주입 산소 압력에 따른 굴절률의 변화와 일치하는지를 조사하였다.

## II. 이 론

굴절률  $n_s$ 인 기판 위에 증착된 복소 굴절률이  $N = n - ik$  인 균일하고 등방성인 단층 박막은 다음과 같은  $2 \times 2$  특성 행렬  $[M]$ 으로 표현된다.<sup>[19]</sup> 즉,

$$[M] = \begin{bmatrix} \cos \delta & i \sin \delta / N \\ iN \sin \delta & \cos \delta \end{bmatrix} \quad (1)$$

과 같이 표현되며, 수직 입사시 박막의 광학 위상 두께  $\delta$ 는

$$\delta = \frac{2\pi(n - ik)d}{\lambda} \quad (2)$$

이다. 여기서  $\lambda$ 는 파장이며  $d$ 는 박막의 두께이다.

기판과 박막의 경계면으로부터 박막을 통하여 전달된 입사 경계면에서의 규격화된 전기장  $B$ 와 자기장  $C$ 는

$$\begin{bmatrix} B \\ C \end{bmatrix} = [M] \begin{bmatrix} 1 \\ n_s \end{bmatrix} \quad (3)$$

으로 주어진다. 입사 경계면에서의 어드미턴스  $Y$ 는 경계면에 평행한 전기장  $B$ 와 자기장  $C$ 의 비이며, 식(1)과 (3)으로부터

$$\begin{aligned} Y &= \frac{C}{B} \\ &= \frac{n_s \cos \delta + iN \sin \delta}{\cos \delta + i(n_s/N) \sin \delta} \end{aligned}$$

이고, 투과율  $T$ 는

$$T = \frac{4n_s n_s}{(n_s B + C)(n_s B + C)^*} \quad (5)$$

으로 주어지며,  $n_s$ 는 입사 매질의 굴절률이다. 복소수인 광학 위상 두께  $\delta$ 를

$$\delta = \alpha - i\beta \quad (6)$$

라 정의하면, 즉

$$\alpha = \frac{2\pi n d}{\lambda} \quad (7)$$

$$\beta = \frac{2\pi k d}{\lambda} \quad (8)$$

이면, 특성 행렬  $[M]$ 은

$$[M] = \begin{bmatrix} \cos \alpha \cosh \beta + i \sin \alpha \sinh \beta \\ iN(\sin \alpha \cosh \beta - i \cos \alpha \sinh \beta) \end{bmatrix}$$

$$\begin{bmatrix} i(\sin \alpha \cosh \beta - i \cos \alpha \sinh \beta)/N \\ \cos \alpha \cosh \beta + i \cos \alpha \sinh \beta \end{bmatrix} \quad (9)$$

으로 표현된다.

흡수가 작은 유전체 박막은  $n >> k$  이므로, 포락선 방법에서는

$$\cosh \beta \approx 1, \sinh \beta \approx \beta \quad (10)$$

의 근사식을 사용한다.

### I. 광학 두께가 $\lambda/4$ 일 경우

광학 두께가  $\lambda/4$ 의 흡수배, 즉

$$nd = m \frac{\lambda}{4} \quad (m = 1, 3, 5, \dots) \quad (11)$$

이면, 특성 행렬  $[M]$ 은

$$[M] = \pm i \begin{bmatrix} \beta & 1/N \\ N & \beta \end{bmatrix} \quad (12)$$

의 간단한 형태가 되며, 식(3)과 (4)로부터  $\lambda/4$  에서의 어드미턴스  $Y_4$ 는

$$Y_4 = Y_0(1 - h\beta) - i \left( \frac{2n}{n_s} \right) k \quad (13)$$

으로 표현된다. 여기서  $Y_0$ 는 흡수가 없는 박막의  $\lambda/4$ 에서의 어드미턴스로

$$Y_4 = \frac{n^2}{n_s} \quad (14)$$

인 실수이며,

$$h = \frac{n}{n_s} - \frac{n_s}{n} \quad (15)$$

이다.

식(13)으로부터 흡수가 있는 박막의  $\lambda/4$ 에서의 어드미턴스는 흡수가 없는 박막보다 안 쪽으로 나선을 그리며 음의 허수값을 갖는다는 것을 알 수 있다. 그럼 1은 굴절률 1.52인 기판 위에 자라는 굴절률이 2.35인 박막의 어드미턴스를 소멸 계수  $k$ 가 증가함에 따라 나타낸 것으로, ●는  $1/4$  파장에서의 어드미턴스이며 식(13)에 관한 설명과 일치하고 있다.

$\lambda/4$ 에서의 투과율  $T_4$ 는 식(3), (5), (12)로부터

$$T_4 = \frac{T_4^0}{(1 + p\beta)^2} \quad (16)$$

의 간략한 형태로 표현되며, 여기서

$$T_4^0 = \frac{4n_o n_s}{(n + n_o n_s/n)^2} \quad (17)$$

로 흡수가 없는 박막의  $\lambda/4$ 에서의 투과율이고, 상수  $p$ 는

$$p = \frac{n_o + n_s}{n + n_o n_s/n} \quad (18)$$

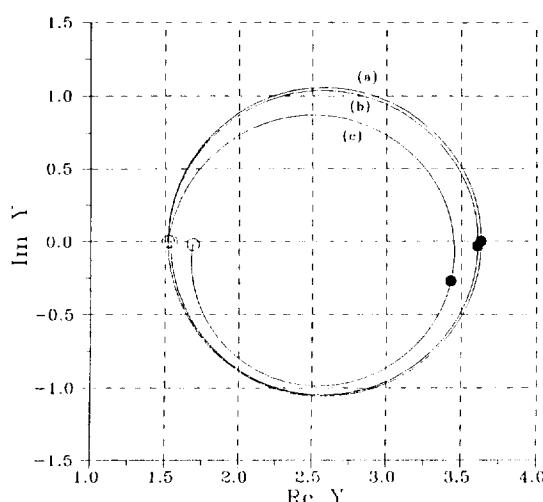


그림 1. [공기/광학박막( $n=2.35$ )/유리( $n=1.52$ )]의 어드미턴스  
(a)  $k=0$  (b)  $k=0.01$  (c)  $k=0.1$

이다. 식(16)으로부터  $1/4$  파장의 포락선  $T_4$ 는 흡수가 크고 파장이 짧을 수록 많이 감소하는 것을 알 수 있다.

## 2. 광학 두께가 $\lambda/2$ 일 경우

광학 두께가  $\lambda/4$ 의 짹수배, 즉

$$nd = m \frac{\lambda}{4} \quad (m = 2, 4, 6, \dots) \quad (19)$$

이면, 특성 행렬  $[M]$ 은

$$[M] = \pm \begin{bmatrix} 1 & \beta/N \\ N\beta & 1 \end{bmatrix} \quad (20)$$

이 되며,  $\lambda/2$ 에서의 어드미턴스  $Y_2$ 는

$$Y_2 = Y_2^0 (1 + h\beta) \quad (21)$$

으로 표현된다. 여기서  $Y_2^0$ 는

$$Y_2^0 = n_s \quad (22)$$

로 박막이 없는 기판의 어드미턴스 즉 기판의 굴절률이다.  $1/2$  파장에서의 어드미턴스는 그림 1에 ○로 나타내었으며, 흡수가 있는 박막의 어드미턴스가 흡수가 없는 박막보다 안 쪽으로 나선을 그리며 허수항은 무시할 수 있다.

$\lambda/2$ 에서의 투과율  $T_2$ 는 식(3), (5), (20)으로부터

$$T_2 = \frac{T_2^0}{(1 + \beta/p)^2} \quad (23)$$

이 되며, 여기서

$$T_2^0 = \frac{4n_o n_s}{(n_o + n_s/n)^2} \quad (24)$$

으로 박막이 없는 기판의 투과율이다.

식(23)은  $\beta$ 가 매우 작을 경우

$$T_2 \approx T_2^0 (1 - 2\beta/p) \quad (25)$$

가 되므로, 기판의 투과율( $T_2^0$ )로부터 박막의 투과율인  $T_2$ 의 감소량을 측정함으로써 박막의 흡수를 쉽게 알 수 있다.

## 3. 굴절률, 소멸 계수 및 두께의 결정

식(16)과 (23)으로부터

$$\frac{T_2}{T_4} = \left( \frac{1 + p\beta}{p + \beta} \right)^2 \quad (26)$$

이므로,

$$c = n_o + n_s \quad (27)$$

$$y = n + n_o n_s / n \quad (28)$$

으로 정의하면, 식(26)으로부터  $\beta$ 는

$$\beta = \frac{c(T_2/T_4)^{1/2} - y}{c - y(T_2/T_4)^{1/2}} \quad (29)$$

이 된다.

식(29)를 식(16)에 대입하면

$$y^2 - 2\left(\frac{n_o n_s}{T_4}\right)^{1/2} y + 2c\left(\frac{n_o n_s}{T_2}\right)^{1/2} - c^2 = 0 \quad (30)$$

이므로,  $y$ 는

$$y = \left(\frac{n_o n_s}{T_4}\right)^{1/2} \pm \left(\frac{n_o n_s}{T_4} - 2c\left(\frac{n_o n_s}{T_2}\right)^{1/2} - c^2\right)^{1/2} \quad (31)$$

이 되며, 박막의 굴절률을 얻기 위해  $n_o + n_s$  + 균을 취한다.  
따라서 굴절률  $n$ 은 식(28)로부터

$$n = \frac{1}{2}(y \pm (y^2 - 4n_o n_s)^{1/2}) \quad (32)$$

이며, 박막의 굴절률을 주는 + 균을 취한다.

박막의 두께  $d$ 는 광학 두께가  $\lambda/4$ 와  $\lambda/2$  되는 곳에서

$$d = m \frac{\lambda}{4n} \quad (m = 1, 2, 3, \dots) \quad (33)$$

이므로, 측정한 파장으로부터 차수  $m$ 을 계산하여  $d$ 를 결정한다.

소멸 계수  $k$ 는 식(8)로부터

$$k = \frac{\beta \lambda}{2\pi d} \quad (34)$$

이므로, 식(29)의  $\beta$ 와 식(33)의  $d$ 로부터 결정한다.

#### 4. 광학 상수의 오차

식(30)은  $n$ 에 관하여 정리하면

$$(n^2 + n_o n_s)^2 - 2\left(\frac{n_o n_s}{T_4}\right)^{1/2}(n^2 + n_o n_s)n +$$

$$2\left(\frac{n_o n_s}{T_2}\right)^{1/2}(n_o + n_s)n^2 - (n_o + n_s)^2 n^2 = 0 \quad (35)$$

이다.  $\Delta T_2$ 과  $\Delta T_4$  이므로  $\Delta n$ 은

$$\Delta n = \left| \frac{S}{R} \right| \left( \frac{\Delta T_2}{(T_2)^{3/2}} \right) + \left| \frac{U}{R} \right| \left( \frac{\Delta T_4}{(T_4)^{3/2}} \right) \quad (36)$$

이 되며, 여기서

$$R = 2(2n^2 - n_o^2 - n_s^2) - 2(3n + n_o n_s/n) \left( \frac{n_o n_s}{T_4} \right)^{1/2} + 4(n_o + n_s) \left( \frac{n_o n_s}{T_2} \right)^{1/2}, \quad (37)$$

$$S = n(n_o + n_s)(n_o n_s)^{1/2}, \quad (38)$$

$$U = (n^2 + n_o n_s)(n_o n_s)^{1/2} \quad (39)$$

이다.  $\Delta T_2$ 과  $\Delta T_4$ 는 분광 광도계의 투과율을 읽을 때의 오차이며 본 실험에서는  $\pm 0.003$ 이다.  $\Delta k$ 는 식(34)로부터

$$\Delta k = k \left( \left| \frac{\Delta \beta}{\beta} \right| + \left| \frac{\Delta \lambda}{\lambda} \right| + \left| \frac{\Delta d}{d} \right| \right) \quad (40)$$

이다.  $\Delta \beta$ 는 식(23)으로부터

$$\Delta \beta = \left( \frac{n_o + n_s}{n + n_o n_s / n} \right) \left[ \left( \frac{1 - n_o n_s / n^2}{n + n_o n_s / n} \right) \left( \left( \frac{T_2}{T_4} \right)^{1/2} - 1 \right) \Delta n + \left( \frac{T_2}{2(T_2)^{3/2}} \right) \Delta T_2 \right] \quad (41)$$

이고, 이를  $\Delta T_4$ 와  $\Delta T_2$ 로 표현하면

$$\Delta \beta = \left| \frac{VS}{R} + \frac{(n_o n_s)^{1/2}}{n + n_o n_s / n} \right| \left( \frac{\Delta T_2}{(T_2)^{3/2}} \right) + \left| \frac{VU}{R} \right| \left( \frac{\Delta T_4}{(T_4)^{3/2}} \right) \quad (42)$$

이 되며, 여기서

$$V = \frac{(n_o + n_s)(n^2 - n_o n_s)}{(n^2 + n_o n_s)^2} \left( \left( \frac{T_2}{T_4} \right)^{1/2} - 1 \right) \quad (43)$$

이다. 두께의 오차  $\Delta d$ 는

$$\Delta d = d \left( \left| \frac{\Delta n}{n} \right| + \left| \frac{\Delta \lambda}{\lambda} \right| \right) \quad (44)$$

이며,  $\Delta \lambda$ 는 파장을 읽을 때의 오차로 본 실험에서는  $\pm 1$  nm 이다.

표 1. 포락선 방법의 전산 시늉

Wavelength (nm)	True values		Results from the envelope method	
	n	k	n	k
350	2.693	0.1610		
400	2.541	0.0100	2.691	0.0102
450	2.436	0.0080	2.443	0.0083
500	2.385	0.0060	2.389	0.0062
550	2.356	0.0040	2.352	0.0041
600	2.331	0.0020	2.326	0.0022
650	2.305	0.	2.306	0.0008
700	2.288	0.	2.288	0.0001
Thickness	825 nm		824 nm	

### 5. 포락선 방법의 전산 시늉

포락선 방법을 표 1과 같은 분산을 갖는 ZnS 박막에 적용하여 전산 시늉을 수행하였다. 박막의 분산과 1/4 파장과 1/2 파장의 두 포락선은 Cauchy 식인

$$T = S_0 + \frac{S_2}{\lambda^2} + \frac{S_4}{\lambda^4} + \frac{S_6}{\lambda^6} + \dots \quad (45)$$

을 이용하였다. 여기서 상수  $S_0, S_2, S_4, S_6 \dots$ 의 수는 1/4 파장과 1/2 파장의 갯수와 같다. 박막의 두께가 너무 얇으면 상수 S의 수가 적어 포락선의 정확도가 낮아지므로, 상수 S가 최소 3 개 이상되도록 박막의 두께를 증착하였다. 입사 매질은 공기( $n_s=1.0$ )이고, 유리 기판(BK-7)의 굴절률  $n_s$ 는

$$n_s^2 = A_0 + A_1 \lambda^2 + \frac{A_2}{\lambda^2} + \frac{A_3}{\lambda^4} + \frac{A_4}{\lambda^6} + \frac{A_5}{\lambda^8} \quad (46)$$

과 같은 분산식을 이용하였다.<sup>[20]</sup> 여기서

$$A_0 = 2.2718929 \times 10^0, A_1 = -1.010877 \times 10^{-2}$$

$$A_2 = 1.0592509 \times 10^{-2}, A_3 = 2.0816965 \times 10^{-4}$$

$$A_4 = -7.6472538 \times 10^{-6}, A_5 = 4.9240991 \times 10^{-7}$$

이며, 파장  $\lambda$ 의 단위는  $\mu\text{m}$ 이다.

먼저 표 1의 참값항에 있는 굴절률과 소멸 계수의 분산, 두께로부터 투과율을 300-800 nm의 파장 영역에서 식(1), (3), (5)를 이용하여 계산하였다. 1/4 파장에서의 투과율들을 Cauchy 분산식에 곡선 맞춤하여 포락선  $T_4$ 를 얻었으며, 같은 방법으로 1/2 파장에서의 투과율들을 Cauchy 분산식에 곡선 맞춤하여 포락선  $T_2$ 를 구하였다. 1/4 파장과 1/2 파장에서의 굴절률, 소멸 계수와 두께를 식(32), (33), (34)에 대입하여 결정하였으며, 이를 Cauchy

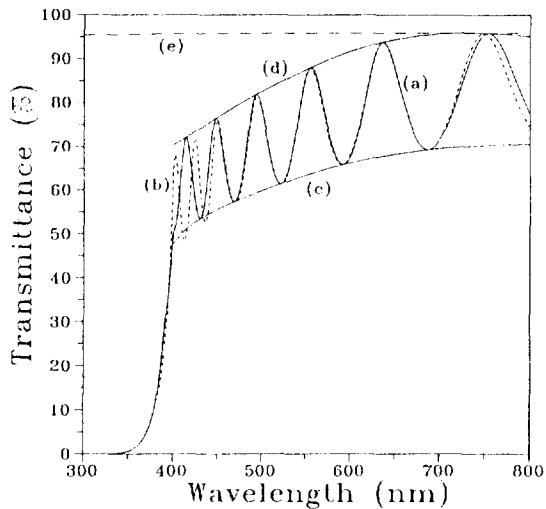


그림 2. 포락선 방법의 전산 시늉

- (a) 표 3의 참값의 분산과 두께를 갖는 박막의 투과율
- (b) 포락선 방법으로 결정한 광학 상수와 두께에 의한 투과율
- (c) 1/4 파장 투과율에 의한 포락선  $T_4$
- (d) 1/2 파장 투과율에 의한 포락선  $T_2$
- (e) 기판의 투과율  $T_2$

분산식을 이용하여 50 nm 간격으로 계산하여 표 1에 나타내었다.

표 1에서 소멸 계수가 0.01보다 큰 400 nm 미만에서는 박막의 흡수율이 급격히 증가하여 1/4 파장 혹은 1/2 파장의 투과율이 없으므로 포락선 방법으로는 광학 상수를 계산할 수 없었다. 분산이 큰 450 nm 이하에서 포락선 방법에 의한 광학 상수는 참값과 차이가 있으며, 특히 400 nm에서 소멸 계수는 참값과 비슷하나 굴절률은 약 6%의 차이가 있다. 이는 굴절률의 분산이 450 nm 이하에서 매우 크므로, 1/4 파장과 1/2 파장의 위치가 포락선 방법에서 가정한 분산이 없는 경우의 1/4 파장과 1/2 파장의 위치와 다르기 때문이다.<sup>[21,22]</sup> 분산과 소멸 계수가 작은 450 nm 이상에서는 포락선 방법에 의한 광학 상수는 참값과 1% 이내에서 일치한다. 또한 포락선 방법에 의해 각 1/4 파장과 1/2 파장에서 계산한 두께들의 평균인 824 nm는 참값인 825 nm와 1% 이내에서 일치하고 있다.

그림 2는 표 1의 참값으로부터 계산한 투과율과 포락선 방법을 이용하여 결정한 광학 상수와 두께로부터 계산한 투과율을 비교한 것이다. 1/4 파장에서의 투과율들로부터 Cauchy 식에 곡선 맞춤한 포락선  $T_4$ , 1/2 파장에서의 투과율들로부터 Cauchy 식에 곡선 맞춤한

포락선  $T_2$ , 기판의 투과율  $T_b$  도 함께 표시되어 있다. 식(25)에서와 같이  $T_2$ 와  $T_b$ 의 차이는 박막의 흡수 정도를 나타내며, 파장이 짧아질수록 증가한다. 분산과 소멸 계수가 작은 450 nm 이상에서는 차이가 적지만 특히 400 nm 근처에서는 1/4 파장과 1/2 파장의 투과율이 추가로 생성될 정도로 차이의 투과율과는 많은 차이가 있다.

따라서 포락선 방법은 투과율만 측정하여 광학 상수와 두께를 결정할 수 있는 간편한 방법이나, 소멸 계수가 0.01보다 작고, 굴절률의 분산이 크지 않으며, 1/4 파장과 1/2 파장의 투과율을 몇 개 볼 수 있을 정도의 두께를 갖는 박막에만 적용할 수 있다. 또한 박막의 굴절률이 기판과 거의 같은 경우  $T_4$ 와  $T_2$ 의 차이가 작아 Manufactier et al.<sup>[12]</sup>의 방법에 따르면  $\Delta n$ 이 급격히 증가하여 정확도가 떨어지나, 본 방법에서는 식(36)과 (37)에서와 같이 일정한 값을 갖는다.

## 6. 기판의 뒷면 효과

앞의 이론에서 투과율은 그림 3과 같이 박막을 통과한 후 기판 안에서의 투과율  $T_f$ 이고 분광 광도계에서 측정한 투과율은 박막과 기판을 통과한 총투과율  $T_i$ 이므로 기판의 두 번째 면에 의한 투과율 감소를 보정하여야 한다.<sup>[19]</sup> 기판의 두께(본 실험에서 기판의 두께는 약 2 mm)가 파장보다 매우 크기 때문에 기판 내에서의 다중 빔반사는 비간섭성 빔으로 다룰 수 있다. 그림 3에서

$T_i$ : 기판을 통과한 후 공기 중에서의 총투과율

$T_f$ : 기판의 뒷면이 없는 경우 박막의 투과율

$R_f$ : 기판의 뒷면이 없는 경우 박막의 반사율

$T_s$ : 박막이 없는 기판의 한 경계면(2 혹은 3)의 투과율

$R_s$ : 박막이 없는 기판의 한 경계면(2 혹은 3)의 반사율

$T_b$ : 박막이 없는 기판의 공기 중에서의 총투과율

이다.

기판의 흡수가 없는 경우 박막과 기판의 경계면 2를 통하여 한 경계면으로(투과율  $T_f$ , 반사율  $R_f$ )하고, 경계면 3을 또 다른 경계면(투과율  $T_s$ , 반사율  $R_s$ )으로 하면, 이 두 경계면으로 이루어진 slab의 총 투과율  $T_i$ 는

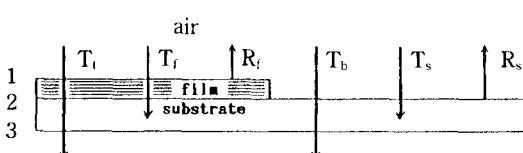


그림 3. 기판의 두 번째 경계면에 의한 뒷면 효과

$$T_i = \frac{T_f T_s}{1 - R_f R_s} \quad (47)$$

으로 주어진다. 한편 기판의 한 경계면의 투과율  $T_s$ 는 흡수가 없는 기판만의 투과율  $T_b$ 에 의하여

$$T_s = \frac{2T_b}{1 + T_b} \quad (48)$$

으로 표현된다. 박막의 흡수가 작으면  $R_f \approx 1 - T_f$ 이고  $R_s = 1 - T_s$  이므로, 식(47)과 (48)로부터 기판 내에서의 박막의 투과율  $T_i$ 는

$$T_i = \frac{2T_b T_f}{2T_b - T_f + T_b T_s} \quad (49)$$

이 된다. 그러므로, 박막이 없는 기판의 투과율을 따로 측정하고 식(49)를 이용하면 기판의 뒷면에 의한 투과율 감소를 보정할 수 있으며, 본 연구에서는 이를 포락선 방법에 이용하였다.

## III. 광학 박막 시료의 준비

### 1. ZnS 박막

굴절률이 약 2.35인 ZnS 박막은 가시 광선 영역에서는 고굴절률 박막으로 저굴절률 박막인 MgF<sub>2</sub>(굴절률 1.38) 혹은 Na<sub>3</sub>AlF<sub>6</sub>(굴절률 1.35)와 한 짹을 이루어, 적외선 영역에서는 저굴절률 박막으로 Ge(굴절률 4.0)과 한 짹을 이루어 다층 박막 코팅에 많이 사용된다.<sup>[23]</sup> 외부 환경에 약한 것이 단점이나, 최근에는 비선형 박막으로도 사용되고 있어, 포락선 방법을 이용한 광학 상수 결정의 시료로 선택하였다.

진공 증착기에서 열저항 가열법(W 보트)으로 유리 기판 위에 증착한 ZnS 박막의 증착 조건은 수정 두께 측정기(Edwards FTM 5)로 측정한 증착율은 2.0 nm/s 이었고, 기판의 온도는 실온, 100°C, 200°C로 변화시켰다. 박막의 투과율은 분광 광도계(Perkin-Elmer 552S)로 315~800 nm의 파장 영역에서 측정하였다.

### 2. SiO<sub>x</sub> 박막

가시 광선 영역에서 굴절률이 약 1.47인 SiO<sub>2</sub> 박막은 고굴절률인 TiO<sub>2</sub> 혹은 ZrO<sub>2</sub> 박막과 한 짹을 이루어 외부 환경에 강한 다층 박막의 코팅에 많이 사용된다.<sup>[23]</sup> 일 반적으로 산화 박막은 용융점이 높아 전자 빔으로 증착하여야 하나, 본 실험실에서는 열저항 가열식만 갖추고 있어 주입된 산소 분위기 속에서 SiO를 증착시켜 SiO<sub>2</sub>

박막 혹은 그에 가까운 산화 박막을 제작하고자 하였다. 열저항 가열식(W 보트)으로 유리와 Si 기판 위에 중착한 SiO<sub>x</sub> 박막의 중착 조건은 기판 온도는 200°C, 중착률은 0.5 nm/s 이었으며, 중착 전의 기본 진공은 6.5 × 10<sup>-6</sup> torr이고, 챔버 내의 압력이 각각 1 × 10<sup>-4</sup> torr, 3 × 10<sup>-4</sup> torr, 5 × 10<sup>-4</sup> torr가 되도록 주입 산소의 압력을 변화시켰다.

유리 기판 위의 박막은 가시 광선 영역에서의 투과율 측정에 의한 광학 상수 결정에, Si 기판 위의 박막은 FT-IR(Bruker IES66)에서 투과율을 측정하여 산소 압력 변화에 따른 원소 조성비의 결정에 사용하였다.

#### IV. 실험 결과 및 논의

##### 1. ZnS 박막

그림 4는 기판 온도에 따른 ZnS 박막의 굴절률을 포락선 방법을 이용하여  $\lambda/4$ 와  $\lambda/2$ 에서 결정한 값이다. 실온에서의 굴절률은 짧은 파장에서는 100°C 와 200°C인 경우보다 높으나 650 nm 이상에서는 작으며 분산의 변화(파장에 대한 굴절률의 변화)가 전파장 영역에서 100°C와 200°C인 경우보다 매우 크다. 100°C인 경우는 200°C인 경우보다 굴절률이 전파장 영역에서 크고 실온인 경우보다 분산의 변화가 작다.

그림 5는 ZnS 박막의 소멸 계수  $k$ 의 분산이다. 소멸 계수는 세 경우 오차의 범위 내에서 거의 같으나, 400 nm 근처에서는 약 1 × 10<sup>-3</sup>이며 400 nm 이상에서는 대부분의 크기가 10<sup>-4</sup>으로 매우 작다. 굴절률과 소멸 계수를

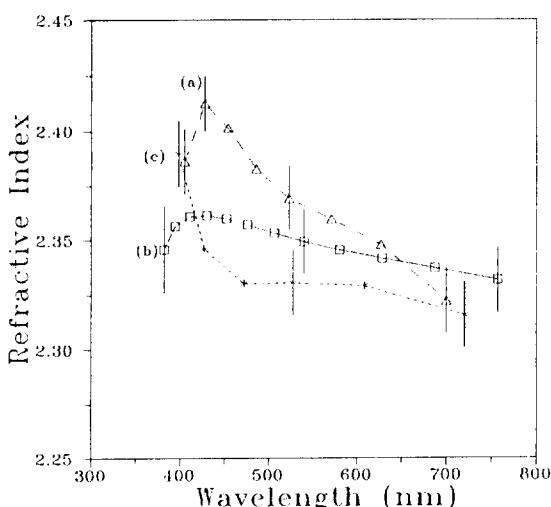


그림 4. 기판 온도에 따른 ZnS 박막의 굴절률  
(a) △: 실온 (b) □: 100°C (c) \* : 200°C

Cauchy 식에 곡선 맞춤하여 계산한 550 nm에서의 굴절률, 소멸 계수와 박막의 두께는 표 2와 같다. 550 nm에서의 굴절률은 실온일 때 가장 크나, 그럼 4에서와 같이 분산의 변화는 100°C 일 때가 가장 작다. 소멸 계수는 실온과 100°C 일 때가 200°C일 때보다 약간 작으나 오차의 범위 내에서 거의 같다.

##### 2. SiO<sub>x</sub> 박막

###### (1) 광학 상수의 결정

그림 6은 SiO<sub>x</sub> 박막의 주입 산소 압력 변화에 따른 굴절률의 분산이다. 산소를 주입하지 않은 기본 진공(6.5 × 10<sup>-6</sup> torr)에서 중착한 SiO 박막의 굴절률이 가장 크고, 주입 산소 압력이 1 × 10<sup>-4</sup> torr 부터 5 × 10<sup>-4</sup> torr 까지 증가함에 따라 Si와 O의 중합이 잘 이루어져 SiO<sub>x</sub> 박막의 굴절률이 작아지고 있으며 분산의 변화도 작다. 표 3에 Cauchy 분산식을 이용하여 결정한 550 nm에서의 굴절률과 소멸 계수 및 두께가 표시되어 있다. 굴절률은 기본 진공에서 1.841로 가장 높고 주입 산소 압력이 5 × 10<sup>-4</sup> torr 일 때 1.487로 가장 작았다.

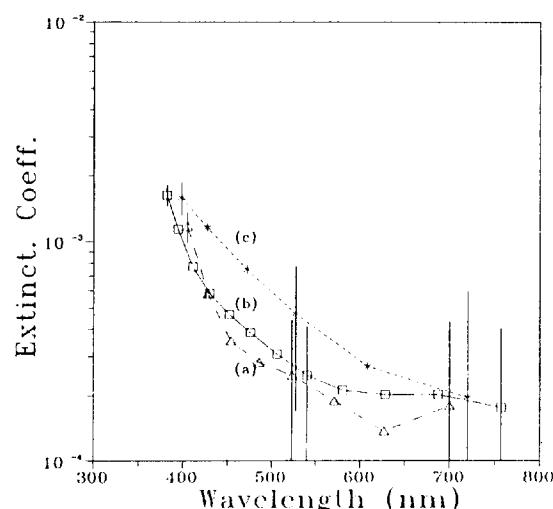


그림 5. 기판 온도에 따른 ZnS 박막의 소멸 계수  
(a) △: 실온 (b) □: 100°C (c) \* : 200°C

표 2. 550 nm에서의 ZnS 박막의 굴절률, 소멸 계수 및 두께

$T_{sub}$ (°C)	$n$	$k \times 10^{-4}$	$d$ (nm)
Ambient temp.	2.363	2	608
100	2.348	2	740
200	2.331	4	395

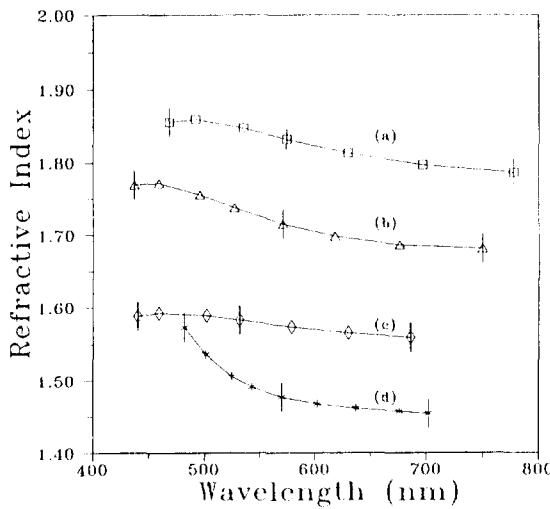


그림 6. 주입 산소 압력에 따른 SiOx 박막의 굴절률  
(a) Base vacuum =  $6.5 \times 10^{-6}$  torr  
(b)  $1 \times 10^{-4}$  torr (c)  $3 \times 10^{-4}$  torr (d)  $5 \times 10^{-4}$  torr

550 nm에서의 소멸 계수는 기본 진공인 경우가  $2 \times 10^{-4}$ 로 가장 크고, 주입 산소 압력이  $1 \times 10^{-4}$  torr 이상이면  $1 \times 10^{-4}$  이하로 흡수가 매우 작은 박막이 증착되었다. 기본 진공인 경우의 소멸 계수의 크기는 전파장 영역에서  $10^{-4}$  order이며 파장이 증가함에 따라 감소하였다. 주입 가스가  $1 \times 10^{-4}$  torr인 경우 짧은 파장에서 소멸 계수의 크기는  $10^{-4}$  order이고 장파장에서는  $10^{-5}$  order이었으며, 주입 가스가  $3 \times 10^{-4}$  torr인 경우는 전파장 영역에서  $10^{-5}$  order였다. 포락선 방법에서 소멸 계수의 오차  $\Delta k$ 가  $10^{-1}$  order이므로 이 두 경우의  $k$  값은 정확하지 않으나, 네 경우의 비교를 위하여 포락선 방법으로 계산한 값을 단순히 표 3에 표시하였다. 주입 가스가  $5 \times 10^{-4}$  torr인 때 소멸 계수의 크기는  $10^{-5}$  order 보다 작아 포락선 방법으로는 결정할 수 없으며, 이렇게 작은 값을 calorimeter method, photothermal method 혹은 waveguide method 등음<sup>[23,25]</sup> 이용해야 할 것이다.

표 3. 주입 산소 압력에 따른 SiOx 박막의 550 nm에서의 굴절률과 소멸 계수, Si-O-Si stretching 모드의 흡수 위치 및 원소 조성비 x

Backfilled Oxygen (torr)	$n$	$k$ ( $\times 10^{-4}$ )	$d$ (nm)	Si-O-Si stretch mode ( $\text{cm}^{-1}$ )	Stoichiometry x
Base vacuum	1.841	2	874	1020	1.3
$1 \times 10^{-4}$	1.725	0.7	993	1036	1.5
$3 \times 10^{-4}$	1.579	0.1	1100	1063	1.8
$5 \times 10^{-4}$	1.487	<0.1	1235	1072	1.9

것이다.

## (2) 원소 조성비(x)의 결정

포락선 방법으로 SiOx 박막의 굴절률이 주입 산소 압력을 증가시킴에 따라  $\text{SiO}_2$  박막의 굴절률에 접근하므로, 원소 조성비 x도 2.0에 접근하고 있는가를 확인하기 위해 FT-IR에서 투과율을 측정하였다.

$\text{SiO}_2$ 의 적외선 흡수는 Si-O-Si의 rocking, bending, stretching 모드에서 나타난다.<sup>[23]</sup> rocking 모드는 O 원자가 약  $150^\circ$ 의 결합각으로 삼각형을 이루는 Si-O-Si 본드 평면으로부터 나오는 방향으로 진동하며 약  $450 \text{ cm}^{-1}$ 에서 나타난다. 약  $800 \text{ cm}^{-1}$ 의 중간 파수에서 흡수가 가장 작은 bending 모드에서는 O 원자가 Si-O-Si 본드의 밀변에 수직한 방향으로 진동한다. 흡수가 가장 큰 stretching 모드는 약  $1075 \text{ cm}^{-1}$  근처에 있으며, O 원자가 두 Si 원자가 이루는 밀변에 평행하게 Si과는 반대 방향으로 진동한다. 특히 Si 웨이퍼의 불순물인 산소의 양을 측정에 이용되고 있는 Si-O-Si stretching 모드에 의한 흡수는  $\text{SiO}_x$ 의 원소 조성비 x가 2.0부터 감소할 수록 낮은 파수로 이동하므로, 원소 조성비 x의 근사치 결정에 사용된다.<sup>[25-27]</sup>

Allen<sup>[25]</sup>은 열저항 가열법으로  $\text{SiO}$ 를 증착하는 동안 산소 이온 빔으로  $\text{SiO}$  박막을 때려 주어  $\text{SiO}_2$ 를 증착하였으며, 산소 이온 전류에 따른 원소 조성비의 변화를 Si-O-Si stretching 모드의 이동을 측정하여 결정하였다. Allen의 실험 결과를 선형으로 곡선 맞춤하면

$$x = \frac{\text{흡수띠의 위치} [\text{cm}^{-1}] - 912}{84} \quad (50)$$

의 관계를 갖는다.

그림 7은 기본 진공( $6.5 \times 10^{-6}$  torr)과 산소 압력을  $1 \times 10^{-5}$  torr 부터  $5 \times 10^{-4}$  torr 까지 변화시키며 증착한  $\text{SiO}_x$  박막의 Si-O-Si stretching 모드 근처에서의 투과율이다. 기본 진공에서의 stretching mode의 흡수 위치는  $1020 \text{ cm}^{-1}$ 이며 산소 압력이 증가함에 따라  $\text{SiO}_2$ 의 위치에 가까운  $1072 \text{ cm}^{-1}$ 까지 이동하였다.

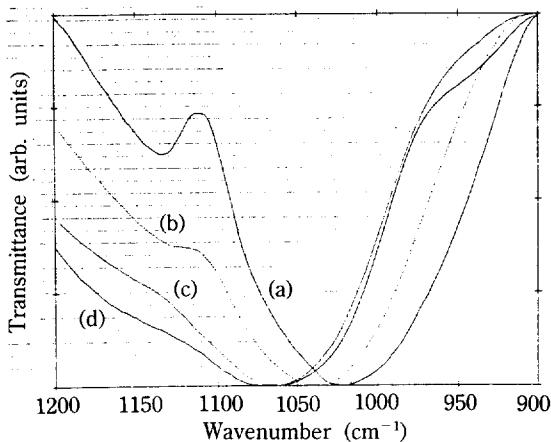


그림 7. 주입 산소 압력에 따른 Si-O-Si stretching 모드  
 (a) Base vacuum =  $6.5 \times 10^{-6}$  torr  
 (b)  $1 \times 10^{-4}$  torr (c)  $3 \times 10^{-4}$  torr (d)  $5 \times 10^{-4}$  torr

표 3의 원소 조성비  $x$ 는 본 실험의 결과를 Allen의 SiO<sub>x</sub> 원소 조성비 분포 식(50)을 이용하여 계산한 것으로, 기본 진공으로부터 산소 압력을 증가시킴에 따라 원소 조성비  $x$ 는 약 1.3부터 1.9까지 증가하였다. 이 때 550 nm에서의 굴절률은 1.841로부터 1.487로 감소하였으므로, 포락선 방법을 이용하여 결정한 SiO<sub>x</sub> 박막의 굴절률이 SiO<sub>2</sub>의 굴절률에 접근하고 있는 것과 원소 조성비의 증가는 서로 일치한다.

## V. 결 론

흡수가 작은 유전체 박막의 1/4 파장과 1/2 파장 광학 두께에서 빛의 흡수에 의한 어드미턴스 및 투과율의 변화를 간단한 형태로 나타내었고, 1/4 파장에서의 투과율을 곡선 맞춤한 포락선과 1/2 파장에서의 투과율을 곡선 맞춤한 포락선으로부터 굴절률, 소멸 계수 및 두께를 결정할 수 있는 간단한 식을 유도하였으며, 포락선 방법을 전신 시늉하여 포락선 방법의 정확도와 한계에 관하여 논의하였다. 기판의 뒷면을 고려한 포락선 방법을 ZnS와 SiO<sub>x</sub> 광학 박막에 적용하여 중착 조건에 따른 광학 상수의 변화를 결정하였으며, SiO<sub>x</sub> 박막의 원소 조성비의 변화를 조사하여 광학 상수의 변화와 일치하는 것을 확인하였다.

포락선 방법으로 측정한 ZnS 박막의 굴절률은 550 nm에서 실온의 2.363부터 200°C의 2.331까지 변화하였으며, 소멸 계수는 크기가 모두 약  $10^{-4}$  영역이다. SiO<sub>x</sub> 박막은 200°C의 기판 온도에서 기본 진공( $6.5 \times 10^{-6}$  torr)

으로부터 주입된 산소의 압력을  $5.0 \times 10^{-4}$  torr까지 변화시킬 경우, 550 nm에서 굴절률은 1.841에서 1.487로 감소하고 소멸 계수는 대부분  $1 \times 10^{-4}$  이하이었으며, 원소 조성비  $x$ 는 약 1.3에서 1.9 까지 증가하여 포락선 방법에서 결정한 굴절률의 감소와 일치하였다.

## 참 고 문 헌

- [1] H.A. Macleod, "Microstructure of optical thin films," Proc. SPIE **325**, 21 (1987).
- [2] O.S. Heavens, "Measurements of optical constants of thin films," in *Physics of Thin Films 2*, G. Hass and R.E. Thun, Eds. (Academic, New York, 1964) p. 193.
- [3] H.M. Liddel, *Computer-aided Techniques for the Design of Multilayer Filters*, (Adam Hilger, Bristol, 1981).
- [4] D.P. Arndt et al., "Multiple determination of the optical constants of thin-film coating materials," Appl. Opt. **23**, 3571 (1984).
- [5] D.E. Aspnes and H.G. Craighead, "Multiple determination of the optical constants of thin-film coating materials: a Rh sequel," Appl. Opt. **25**, 1299 (1986).
- [6] J.E. Nestell, J. Gasior, and J.P. Fillard, "Derivation of optical constants of metals from thin-film measurements at oblique incidence," Appl. Opt. **11**, 643 (1972).
- [7] W.E. Case, "Algebraic method for extracting thin-film optical parameters from spectrophotometer measurements," Appl. Opt. **22**, 1832 (1983).
- [8] T.C. Paulick, "Inversion of normal-incidence (R, T) measurements to obtain  $n + ik$  for thin films," Appl. Opt. **25**, 562 (1986).
- [9] J.P. Borgogno, B. Lazarides, and E. Pelletier, "Automatic determination of optical constants of inhomogeneous thin films," Appl. Opt. **21**, 4020 (1982).
- [10] J.A. Dobrowski, F.C. Ho, and A. Waldorf, "Determination of optical constants of thin film coating materials based on inverse synthesis," Appl. Opt. **22**, 3191 (1983).
- [11] R.C. McPhedran, L.C. Botten, D.R. McKenzie, and R.P. Netterfield, "Unambiguous determination of optical constants of absorbing films by reflectance and transmittance measurements," Appl. Opt. **23**, 1197 (1984).
- [12] 이건준, 권용기, 김근배, 임동건, "Tomlin 및 Subt-

- reactive Kramers-Kronig 변환의 복합적 적용에 의한 진도성 고분자 박막의 복소수 굴절률 스펙트럼 측정 방법," 새물리 **31**, 555 (1991).
- [13] J.C. Manifacier, J. Gasiot and J.P. Fillard, "A simple method for the determination of the optical constants  $n, k$  and the thickness of weakly absorbing thin film," J. of Phys. E. **5**, 1002 (1976).
- [14] R. Swaneopoel, "Determination of the thickness and optical constants of amorphous silicon," J. Phys. E. **16**, 1214 (1983).
- [15] R. Swaneopoel, "Determination of surface roughness and optical constants of inhomogeneous amorphous silicon films," J. Phys. E. **17**, 896 (1984).
- [16] K.A. Epstein, D.K. Misemer, and G.D. Vernstrom, "Optical parameters of absorbing semiconductors from transmission and reflection," Appl. Opt. **26**, 294 (1987).
- [17] J. Mouchart, G. Lagier and B. Pointu, "Determination des constantes optiques  $n$  et  $k$  de matériaux faiblement absorbants," Appl. Opt. **24**, 1808 (1985).
- [18] M. McClain, A. Feldman, D. Kahaner, and X. Yang, "An algorithm and computer program for the calculation of envelope curves," Computers in Physics, Jan/Feb, 45 (1991).
- [19] H.A. Macleod, *Thin-films Optical Filters*, 2nd Ed., (Adam-Hilger, Bristol, 1986).
- [20] S. Musikant, *Optical Materials*, (Marcel Dekker, New York, 1985).
- [21] J.W. Seeser, "Effect of dispersion on the reflection and transmission extrema from a monolayer," Appl. Opt. **14**, 640 (1975).
- [22] C.M. Horwitz, "Refractive index determination using reflectance extrema," Appl. Opt. **17**, 1771 (1978).
- [23] H.K. Pulker, *Coatings on Glass*, 3rd Ed., (Elsevier, Amsterdam, 1984).
- [24] G. Lucovsky, M.J. Manitini, J.K. Srivastava and E.A. Irene, "Low-temperature growth of silicon dioxide films: A study of chemical bonding by ellipsometry and infrared spectroscopy," J. Vac. Sci. Technol. **B5**, 530 (1987).
- [25] T.H. Allen, "Properties of ion assisted deposited silica and titania films," Proc. SPIE **325**, 93 (1982).
- [26] P.G. Pai, "Infrared spectroscopic study of SiO<sub>x</sub> films produced by plasma enhanced chemical vapor deposition," J. Vac. Sci. Technol. **A4**, 689 (1986).
- [27] M.W. McBride, "New coaters employing DC sputtering of SiO<sub>2</sub> for the production of optical components," Paper presented at the Society of Vacuum Coatings, 33rd Annual Technical Conference, New Orleans, Louisiana, (1990).

### Determination of Optical Constants and Thickness of Weakly Absorbing Thin Films Using An Envelope Method

Chang Kwon Hwangbo, Kwon-Hui Jin, Dae-Yoon Park and Min-Hee Lee  
*Department of Physics, College of Science, Inha University*

(Received: November 1, 1991)

A simple formula of the envelope method, which uses two envelopes fitted to the transmittance at quarter- and half-wave optical thicknesses, is derived to determine the optical constants (refractive index and extinction coefficient) and the thickness of weakly absorbing thin films. We applied the envelope method to ZnS and SiO<sub>x</sub> films deposited in a vacuum chamber and determined the optical constants at different deposition conditions. For SiO<sub>x</sub> films, the decrease in refractive index is consistent with the increase in stoichiometry as the backfilled oxygen pressure increases.