

Transfer Matrix를 사용하여 예측한 $\text{TiO}_2/\text{Ag}/\text{TiO}_2$ 박막의 광학적 성질 및 스퍼터 증착된 박막과의 특성 비교

김진일, 김진현, 김영환, 오태성
홍익대학교 공과대학 금속·재료공학과

Prediction of the Optical Properties of $\text{TiO}_2/\text{Ag}/\text{TiO}_2$ Films Using Transfer Matrix
and Comparisons with Real Transmittance Measured on the Sputter-Deposited Films

Jinil Kim, Jin Hyun Kim, Young Hwan Kim, and Tae Sung Oh
Dept. of Metallurgy and Materials Science, Hong Ik University, Seoul

초 록 Transfer matrix를 사용하여 TiO_2 및 Ag 단일 박막과 $\text{TiO}_2/\text{Ag}/\text{TiO}_2$ 다층 박막의 두께에 따른 투과도 특성을 예측하였으며, 이를 실제 스퍼터 증착하여 제조한 박막의 광학 특성과 비교하였다. TiO_2 및 Ag 박막에서는 복소굴절률을 사용하므로써 실제 증착박막에서 측정된 특성과 근접한 투과도 곡선의 예측이 가능하였다. $\text{TiO}_2/\text{Ag}/\text{TiO}_2$ 3층 박막의 광학 특성은 Ag의 TiO_2 층으로의 확산 및 응집에 의해 transfer matrix로 예측한 투과도 특성과 전혀 다른 거동을 나타내었다. 그러나 4nm 및 6nm 두께의 Ti 박막을 확산방지층으로 증착한 $\text{TiO}_2/\text{Ti}/\text{Ag}/\text{Ti}/\text{TiO}_2$ 구조의 5층 박막에서는 transfer matrix를 사용하여 예측한 $\text{TiO}_2/\text{Ag}/\text{TiO}_2$ 3층 박막의 투과도 곡선과 유사한 광학 특성을 얻을 수 있었다.

Abstract Optical properties of TiO_2 , Ag films and $\text{TiO}_2/\text{Ag}/\text{TiO}_2$ multilayer films with different thickness were predicted using the transfer matrix, and these results were compared with real transmittance curves of the sputter-deposited films. With the complex refractive indices, it was possible to predict transmittance characteristics which were close to real data for TiO_2 and Ag films. Due to the diffusion and agglomeration of Ag during TiO_2 deposition, optical properties of the sputter-deposited $\text{TiO}_2/\text{Ag}/\text{TiO}_2$ films were found to be very different from the transmittance curves predicted using the transfer matrix. Using deposition of 4nm-thick or 6nm-thick Ti layers as a diffusion barrier, however, the transmittance curves of $\text{TiO}_2/\text{Ti}/\text{Ag}/\text{Ti}/\text{TiO}_2$ five-layer films became similar to ones predicted for $\text{TiO}_2/\text{Ag}/\text{TiO}_2$ three-layer films.

1. 서 론

가시광선은 투과시키며 적외선은 차단이 가능한 투명 열절연 박막은 외부 열이 창문을 통하여 실내로 유입되는 것을 방지할 수 있어 하절기 냉방 부하를 크게 경감시킬 수 있다.^{1~4)} 따라서 최근 에너지 절약의 관점에서 건물이나 자동차에 적용하기 위하여 투명 열절연 박막에 관한 연구가 활발히 진행되고 있다.

가시광선 영역에서의 높은 투과도 및 적외선 영역의 높은 반사도가 요구되는 투명 열절연 박막은 그 형태에 따라 유전체/금속/유전체 적층구조의 귀금속계 샌드위치형, 유전체/

금속/유전체 적층구조에서 귀금속을 TiN 등으로 대체한 천이금속 질화물계 샌드위치형 및 ITO 등의 bandgap이 큰 재료를 이용한 반도체 단일박막형으로 대별할 수 있다.^{1~3)} 이와 같은 여러 종류의 투명 열절연 박막중 귀금속계 샌드위치형 열절연 박막의 광학적 특성이 가장 우수한 것으로 보고되고 있다.^{5~7)} 천이금속 질화물계 샌드위치형 박막은 귀금속계 샌드위치형 박막에 비해 적외선 영역에서의 반사도가 떨어지며, 반도체 단일박막형 열절연 박막에서는 두께 증가에 의한 가시광선 영역에서의 간섭 현상이 문제점으로 지적되고 있다.^{5~7)}

유전체/금속/유전체 적층구조의 투명 열절연 박막의 유전체 층으로 사용 가능한 재료로는 TiO₂, ZnO, SnO₂ 및 Bi₂O₃ 등이 있으며, 금속 층으로는 가시광선 영역의 파장은 충분히 투과시키면서 적외선 영역의 파장에 대해 높은 반사도를 갖는 Ag, Au, Cu 등이 사용되고 있다.^{3), 8), 9)} 유전체/금속/유전체 구조의 투명 열절연 박막의 광학적 특성은 각 구성층의 조성, 두께, 미세구조 및 적층공정에 의하여 지배를 받기 때문에, 투명 열절연 박막에서 최적의 광학적 특성을 나타내는 공정변수를 규명하기 위해서는 각 구성층의 조성, 두께 및 미세구조를 독립적으로 변화시킨 방대한 실험이 요구되나, 이는 현실적으로 매우 어려운 실정이다. 따라서 유전체와 금속 단위박막의 광학적 성질을 이용하여 각 구성층의 조성, 두께 및 미세구조의 변화에 따른 유전체/금속/유전체 적층구조의 광학적 성질의 예측이 가능할 경우, 최적의 특성을 갖는 투명 열절연 박막의 개발에 크게 이바지할 수 있을 것이다.

본 연구에서는 박막의 두께를 변수로 하여 TiO₂ 및 Ag 단일 박막과 TiO₂/Ag/TiO₂ 3층 박막의 가시광선 영역과 적외선 영역에서의 투과도를 transfer matrix를 사용하여 예측하였으며, 이를 스퍼터 증착하여 제조한 박막의 광학적 특성과 비교하였다.

2. 실험방법

2.1 투과도 특성의 예측 방법

Fig. 1과 같이 빛이 두께 ℓ 의 매질을 통과

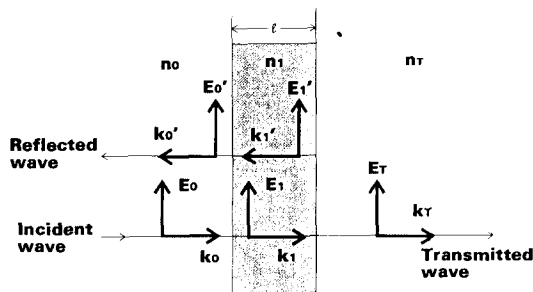


Fig. 1 Schematic illustration showing the transmission and reflection of the light.

할 때 빛의 전기장과 자기장이 매질의 계면에서 연속적이어야 하는 경계 조건을 고려시 아

래와 같은 식 (1)을 얻을 수 있다.¹⁰⁾ 식 (1)에서 E₀는 입사되는 빛의 전기장의 크기, E₀'과 E₁'는 각기 반사 및 투과되는 전기장의 크기, k는 $2\pi n_1/\lambda$ 이며, n₀, n₁ 및 n_T는 매질에서 빛의 굴절률을 의미한다.

$$1 + \frac{E_0'}{E_0} = \left(\cos kl - i \frac{n_T}{n_1} \right) \frac{E_1}{E_0} \quad (1)$$

$$n_0 - n_0' \frac{E_0'}{E_0} = (-in_1 \sin kl + n_T \cos kl) \frac{E_0}{E_0}$$

식 (1)을 matrix 형태로 나타내면 식 (2)와 같이 표현할 수 있다.

$$\begin{bmatrix} 1 \\ n_0 \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} 1 \\ -n_0 \end{bmatrix} r = M \begin{bmatrix} 1 \\ n_T \end{bmatrix} t \quad (2)$$

여기서 M은 transfer matrix로 식 (3)과 같이 표현되며, 투과도 계수 t 및 반사도 계수 r은 각기 $t = E_1'/E_0$, $r = E_0'/E_0$ 로 정의된다.

$$M = \begin{bmatrix} \cos kl & -i \frac{\sin kl}{n_1} \\ -in_1 \sin kl & \cos kl \end{bmatrix} \quad (3)$$

빛이 N개의 매질로 구성되어 있는 다층 박막을 통과시 다층 박막의 투과도 계수 t와 반사도 계수 r은 단일막의 경우에서와 같이 식 (4)로 표현할 수 있다.

$$\begin{bmatrix} 1 \\ n_0 \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} 1 \\ -n_0 \end{bmatrix} r = M_1 M_2 M_3 \cdots M_N \begin{bmatrix} 1 \\ n_T \end{bmatrix} t = M \begin{bmatrix} 1 \\ n_T \end{bmatrix} t \quad (4)$$

Transfer matrix M은 식 (5)와 같이 표현된다.

$$M_1 M_2 M_3 \cdots M_N = M = \begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} \quad (5)$$

각 매질에서의 굴절률을 식 (3)에 대입하여 식 (5)에서의 A, B, C, D를 구하면 다층 박막의 투과도 계수 t와 반사도 계수 r은 식 (6)과 같이 나타낼 수 있다.

$$r = \frac{An_0 + Bn_T n_0 - C - Dn_T}{An_0 + Bn_T n_0 + C + Dn_T} \quad (6)$$

$$t = \frac{2n_0}{An_0 + Bn_T n_0 + C + Dn_T}$$

이와 같이 구한 투과도 계수 t와 반사도 계

수 r 에서 다층 박막의 투과도 T 와 반사도 R 은 식 (7)과 같이 정의되며, 투과도와 반사도의 합은 항상 1이 된다.

$$R = |r|^2, T = |t|^2 \quad (7)$$

본 연구에서는 transfer matrix를 사용하여 귀금속계 샌드위치형 투명 열절연 박막의 단위박막인 TiO_2 및 Ag 박막과 이들을 적층하여 구성한 $\text{TiO}_2/\text{Ag}/\text{TiO}_2$ 다층 박막의 두께 변화에 따른 투과도 곡선을 구하였으며, 이를 실제 스퍼터 증착하여 제조한 박막의 투과도 특성과 비교하였다. Transfer matrix를 이용한 단일 박막 또는 다층 박막의 두께 및 적층 방법에 따른 투과도의 예측에는 각 매질에서의 파장에 따른 굴절률의 값이 요구된다. $\text{TiO}_2/\text{Ag}/\text{TiO}_2$ 계 투명 열절연 박막의 단위박막인 TiO_2 및 Ag 박막의 각 파장에서의 굴절률의 값으로는 논문에서 보고된 자료중 실제 스퍼터 증착 박막에서 측정된 특성과 비교하여 신뢰성이 크다고 생각되는 값들을 사용하였으며, TiO_2 의 굴절률은 100nm 두께의 박막에서 보고된 값이며 Ag의 굴절률은 30nm 두께에서 보고된 값이다.^{11~15)} 스퍼터 증착하여 박막 제조시 1nm 이하의 정밀한 두께 조절이 어렵기 때문에 실제 스퍼터 증착된 박막의 두께를 측정 후, 이와 동일 두께에 대하여 투과도 특성을 예측하였다.

2.2 박막 증착 및 특성 분석

Transfer matrix를 사용하여 예측한 박막의 투과도 특성을 실제 스퍼터 증착된 박막의 특성과 비교하기 위하여 TiO_2 및 Ag 단일 박막과 $\text{TiO}_2/\text{Ag}/\text{TiO}_2$ 계 다층 박막을 두께를 변화시키며 제조하여 광학 특성을 측정하였다. 기판으로는 Corning 7740 glass와 Si 웨이퍼를 사용하였으며, 알카리 용액, 아세톤, 알콜의 순서로 세정하여 완전 건조시킨 후 스퍼터 챔버내에 장입하였다. TiO_2 박막은 Ti 금속 타겟을 사용하여 Ar : O_2 의 비를 3 : 1로 고정하고 작업 압력 $2.5 \sim 3.5 \times 10^{-3}$ Torr에서 반응성 스퍼터링으로 증착하였으며, Ag 박막은 Ar 분위기에서 R.F. 스퍼터링으로 성막하였다. 스퍼터 증착한 각 박막의 두께는 TENCOR α -Step을 사용하여 측정하였다. 증착 박막의 투과도는 Spectrophotometer를 사용하여 분석

하였으며, TiO_2 박막의 굴절률은 Ellipsometry를 이용하여 633nm의 파장에서 구하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 TiO_2 박막

TiO_2 박막은 가시광선 영역에서 높은 투과율을 지니고 있으며 또한 내구성이 우수하기 때문에 $\text{TiO}_2/\text{Ag}/\text{TiO}_2$ 계 투명 열절연 박막에서 가시광의 반사 억제에 용도와 함께 적외선 반사용 Ag 금속층에 대한 보호막의 역할을 하게 된다.^{3), 8), 9)} TiO_2 박막의 굴절률은 파장에 따라 변하며, 같은 파장에서도 박막의 두께 및 성막조건에 따라 변화한다.^{12~14)} 가시광선과 근적외선 영역에서 TiO_2 의 굴절률에 대해서는 많은 보고가 되어 있으나,^{12~14)} TiO_2 의 흡수계수가 급격히 증가하는 400nm 이하 자외선 영역에서의 굴절률은 거의 보고되지 않은 실정이다. 따라서 본 연구에서는 400nm 이하 자외선 영역에서 TiO_2 박막의 굴절률로 2.7을 사용하였다.

스퍼터 증착된 박막과 같은 두께에 대하여 TiO_2 의 파장에 따른 굴절률을 식 (3)의 transfer matrix에 대입하여 구한 18nm, 67nm 및 127nm 두께의 TiO_2 박막의 투과도 곡선을 Fig. 2에 나타내었다. 박막의 두께가 감소함에

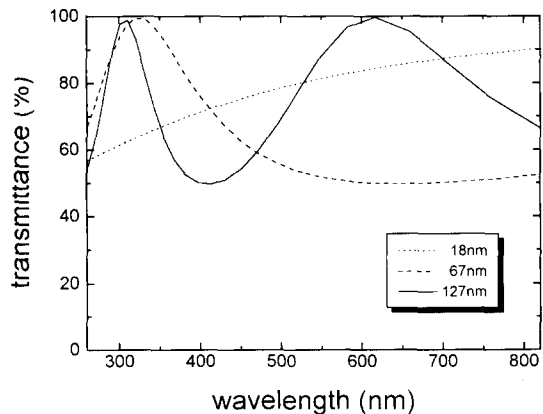


Fig. 2 Transmittance curves of TiO_2 films predicted using the transfer matrix with the real refractive indices.

따라 TiO_2 박막의 투과도 곡선에서 나타나는 최대 피크가 짧은 파장 영역으로 이동하는 것을 잘 나타내고 있다. 이와 같은 TiO_2 최대 투과도 피크의 이동은 박막 두께의 변화에 따

라 특정 파장이 박막 계면에서 선택적으로 반사되는 것에 기인한다.

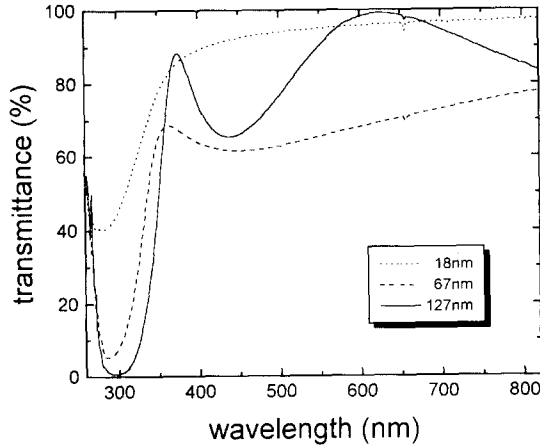


Fig. 3 Transmittance curves measured on the sputter-deposited TiO₂ films.

Fig. 3에 스퍼터 증착된 TiO₂ 박막에서 측정

$$M = \begin{bmatrix} \frac{(A' + A)\cos k'l + i(A - A')\sin k'l}{2} & \frac{(A' - A)\cos k'l - i(A + A')\sin k'l}{2n_1} \\ \frac{n_1[i(A' - A)\cos k'l - i(A + A')\sin k'l]}{2} & \frac{(A + A')\cos k'l + i(A - A')\sin k'l}{2} \end{bmatrix} \quad (8)$$

여기서 $A = e^{-\frac{2\pi k l}{\lambda}}$, $A' = e^{\frac{2\pi k l}{\lambda}}$, $k' = \frac{2\pi n_0}{\lambda}$ 이다.

Fig. 4에 파장에 따른 굴절률에 대해 흡수

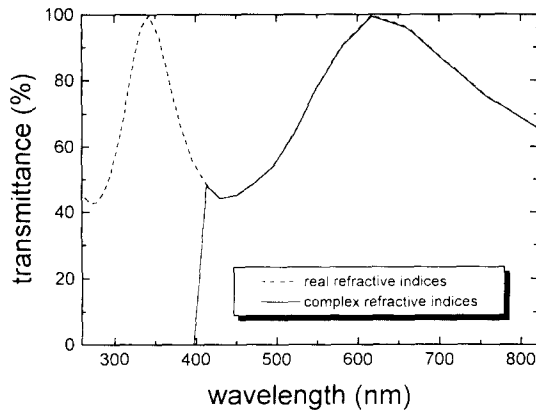


Fig. 4 Comparison of the transmittance curves of the 127nm-thick TiO₂ films predicted using the transfer matrix with and without the complex refractive indices.

계수를 고려한 경우와 고려하지 않은 경우 transfer matrix에 의해 예측된 127nm 두께

한 실제 투과도 곡선을 나타내었다. 가시광선과 적외선 영역에서는 transfer matrix로 예측한 TiO₂ 박막의 투과도 특성과 TiO₂ 증착박막의 투과도 곡선이 두께 변화에 따라 서로 유사한 변화 거동을 보이고 있었다. Fig. 3의 TiO₂ 증착 박막에서는 400nm 이하 파장의 자외선 영역에서 투과도가 급격히 저하되었으나, transfer matrix로 예측한 투과도 곡선에서는 이와 같은 특성이 나타나지 않았다. 가시광선 및 적외선 영역에서 TiO₂의 흡수계수는 10⁻³ 정도로 매우 작으나, 400nm 이하 자외선 영역에서는 급격히 증가하게 된다.¹²⁻¹⁴⁾ 따라서 자외선 영역에서 TiO₂ 박막의 정확한 투과도 예측을 위해 식 (3)의 transfer matrix에서 매질의 굴절률 n₁을 복소굴절률 n₁=n₀+ik의 형태로 바꾸어 주었다. 복소굴절률을 사용하여 구한 transfer matrix는 식 (8)과 같이 표현할 수 있다.

TiO₂ 박막의 투과도 곡선을 비교하였다. 복소굴절률을 사용하여 투과도 예측시 TiO₂의 흡수계수 k로는 가시광선과 적외선 파장 영역에서는 10⁻³, 400nm 이하 자외선 영역에서는 세라믹 유전체에서 일반적인 값인 3을 사용하였다. Fig. 4에서와 같이 TiO₂의 흡수계수 k가 매우 작은 가시광선 및 적외선 영역에서는 복소굴절률의 사용이 TiO₂ 박막의 투과도 특성의 예측에 전혀 영향을 미치지 않았으나, 흡수계수를 무시할 수 없는 자외선 영역에서는 복소굴절률을 사용한 예측에서 투과도가 급격히 감소하여 전 파장 범위에 걸쳐 Fig. 3에 나타낸 스퍼터 증착 박막과 유사한 특성을 나타내었다.

Fig. 2와 Fig. 3에서 박막의 두께가 감소할수록 transfer matrix로 예측한 투과도에 비해 실제 TiO₂ 박막에서 측정된 투과도가 증가하였다. TiO₂ 박막의 굴절률은 박막의 두께에 의존하나,^{12, 13)} 두께 변화에 따른 TiO₂ 박막의 각 파장 영역에서의 굴절률에 대한 체계적인

보고는 거의 이루어지지 않고 있는 실정이다. 본 연구에서는 투과도 예측시 TiO_2 의 굴절률로 박막의 두께와 무관하게 100nm 두께에서 보고된 값을 사용하였으며, 또한 박막의 균일성과 연속성이 박막의 두께와 무관하다고 가정되었다. 그러나 실제 TiO_2 박막에서는 증착 두께가 감소할수록 박막의 균일성과 연속성이 감소하여 기공의 형성이 용이하기 때문에 예측한 결과보다 투과도가 증가하는 것으로 판단된다. 따라서 transfer matrix를 사용한 투과도의 예측시 TiO_2 박막의 증착 두께를 변화시키며 측정된 복소굴절률을 적용하므로써 18nm 정도의 얇은 두께에 대해서도 실제 증착 박막의 특성과 더욱 근접한 예측이 가능할 것이다. 400nm 이하 영역에서의 파장은 TiO_2 에 의해 대부분 흡수되기 때문에 이 영역에서 TiO_2 박막의 투과도가 0에 접근하여야 하나,¹²⁾ 실제 스퍼터 증착박막에서는 두께가 감소할수록 기공의 형성이 용이하여 Fig. 3에서와 같이 자외선 영역에서의 투과도가 증가하였다.

3. 2 Ag 박막

파장에 따른 Ag의 굴절률 n 을 식 (3)의 transfer matrix에 대입하여 구한 18nm 및 100nm 두께의 Ag 박막의 투과도 곡선을 Fig. 5에 나타내었으며, 같은 두께로 스퍼터 증착하여 측정된 실제 Ag 박막의 투과도 곡선을 Fig. 6에 나타내었다.

가시광선과 적외선 영역에서 transfer matrix로 예측한 투과도와 실제 박막에서 측

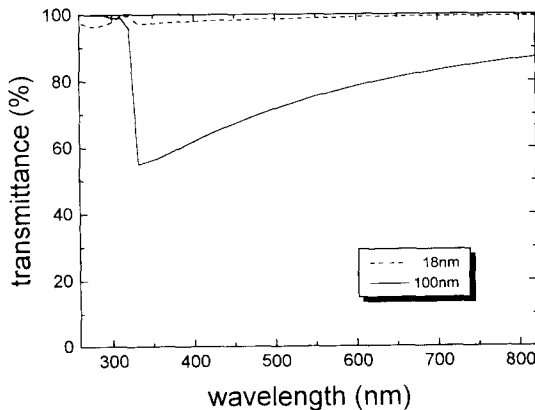


Fig. 5 Transmittance curves of Ag films predicted using the transfer matrix with the real refractive indices.

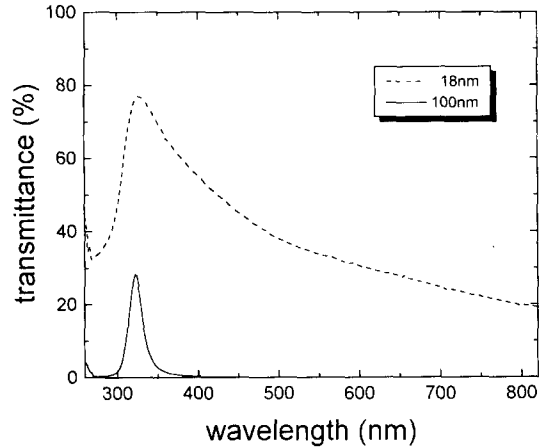


Fig. 6 Transmittance curves measured on the sputter-deposited Ag films.

정한 투과도가 TiO_2 박막에서는 거의 유사한 양상을 나타내었으나, 흡수계수가 0.4-14의 범위이며 또한 파장에 따른 변화를 무시할 수 없는 Ag 박막에서는 전혀 다른 거동을 나타내었다.^{11, 15)} 따라서 Ag 박막의 정확한 투과도 예측을 위해 transfer matrix에서 매질의 굴절률 n_1 을 흡수계수 k 를 포함한 복소굴절률 $n_1 = n_0 + ik$ 의 형태로 바꾸어 주었다. Fig. 7에 복소 굴절률을 사용하여 예측한 두께 18nm 및 100nm Ag 박막의 파장에 따른 투과도 곡선을 나타내었다. 같은 두께의 실제 Ag 박막의 광학 특성인 Fig. 6와의 비교에서 알 수 있듯이 흡수계수를 고려했을 경우 transfer matrix를 사용하여 Ag의 투과도 특성에 대해 매우 정확한 예측이 가능하였다.

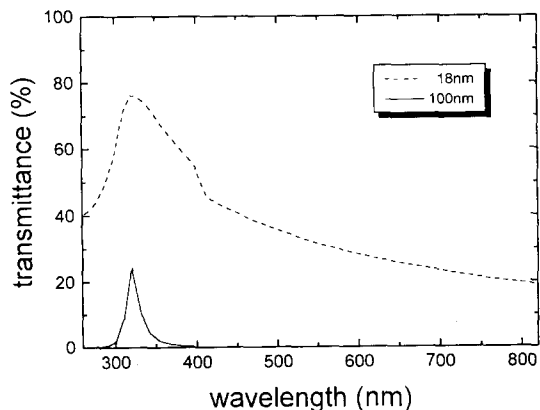


Fig. 7 Transmittance curves of Ag films predicted using the transfer matrix with the complex refractive indices.

TiO₂ 박막에 비하여 Ag 박막에서 실제 스퍼터 증착된 박막의 특성과 더욱 근접한 투과도의 예측이 가능하였으며, 이는 TiO₂ 박막의 투과도 예측에는 100nm 두께에서 보고된 굴절률을 사용한 반면 Ag 박막의 경우에는 30nm 두께에 대한 굴절률을 사용하였기 때문으로 판단된다.

3. 3 TiO₂/Ag/TiO₂계 다층 박막

TiO₂/Ag/TiO₂계 투명 열절연 박막의 단위 박막인 TiO₂ 및 Ag 단일 박막에 대한 연구에서 transfer matrix를 사용하여 예측한 투과도 곡선이 실제 증착 박막의 광학 특성과 매우 유사함을 알 수 있었다. 다층 박막의 경우 각각의 단위 박막에 대한 transfer matrix를 이용하여 식 (4)와 같은 transfer matrix를 얻을 수 있으며, 이를 이용하여 다층 박막의 조성 및 두께 변화에 따른 투과도를 예측할 수 있다.

TiO₂ 박막의 두께를 18nm로 고정하고 Ag 박막의 두께를 각기 10nm, 18nm 및 25nm로 변화시킨 TiO₂/Ag/TiO₂ 3층 박막의 투과도 특성을 transfer matrix를 사용하여 예측한 결과를 Fig. 8에 나타내었다. TiO₂/Ag/TiO₂ 3층

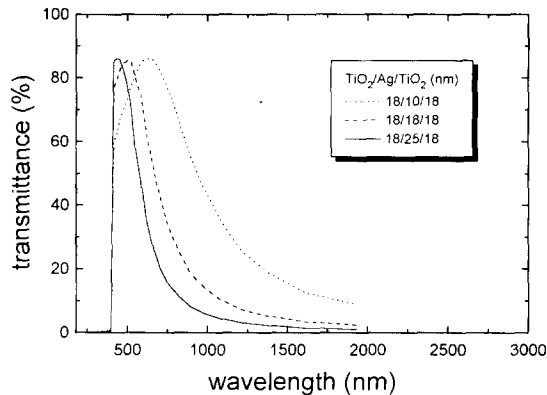


Fig. 8 Transmittance curves predicted using the transfer matrix for TiO₂(18nm)/Ag(10nm)/TiO₂(18nm), TiO₂(18nm)/Ag(18nm)/TiO₂(18nm), and TiO₂(18nm)/Ag(25nm)/TiO₂(18nm) three-layer films.

박막에서 적외선 반사의 용도로 증착하는 Ag 박막의 두께가 10nm일 경우 가시광의 투과도 특성이 가장 우수하였으나, 근적외선 영역인 800nm에서의 투과도가 60% 이상으로 열절

연 특성을 기대할 수 없었다. Ag 박막의 두께를 25nm로 증가시킴에 따라 우수한 열절연 특성을 얻을 수 있으나 가시광의 투과도 특성이 현저히 저하되었다. 따라서 Ag 박막의 두께가 18nm인 TiO₂/Ag/TiO₂ 3층 박막에서 최적의 광학 특성이 예측되었다.

Fig. 9에 각기 18nm 두께의 TiO₂ 및 Ag를 스퍼터 증착하여 제조한 TiO₂/Ag/TiO₂ 3층 박막에서 측정된 실제 투과도 곡선을 나타내었다. TiO₂ 및 Ag 단일 박막에서와는 달리 TiO₂/Ag/TiO₂ 3층 박막에서는 transfer matrix로 예측된 투과도 곡선과 실제 3층 박막의 광학 특성이 전혀 일치하지 않았다. 즉, transfer matrix를 사용한 예측에서는 800nm 이상의 근적외선 영역에서 투과도가 급격히 저하하는 열절연 특성이 예상되었으나, 실제 3층 박막에서는 적외선 영역에서도 70% 이상의 투과도를 나타내어 heat mirror로서의 특성을 전혀 관찰할 수 없었다.

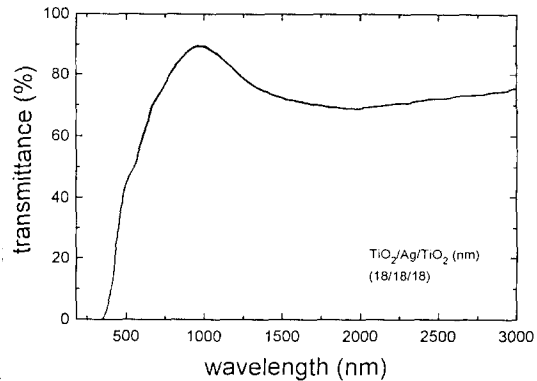


Fig. 9 Transmittance curves measured on the sputter-deposited TiO₂(18nm)/Ag(18nm)/TiO₂(18nm) three-layer films.

유전체/금속/유전체 형태의 3층 박막에서는 이와 같은 적외선 반사 특성의 저하가 일반적으로 보고되고 있으며, 이와 같은 열절연 특성의 열화는 적외선 반사의 용도로 유전체 박막 사이에 증착한 Ag의 TiO₂ 유전체 층으로의 확산 및 응집에 의해 발생하는 것으로 알려져 있다.^{3) 6) 17~21)} Ag의 확산계수는 분위기에 크게 영향을 받아 산소 분위기 하에서는 Ar 분위기와 비교하여 약 100배 정도 증가하는 것으로 보고되었다.^{3) 9) 19)} TiO₂/Ag/TiO₂ 다층구조를 형성하기 위하여 Ag 박막위에 TiO₂

유전체 박막을 산소 분위기 하에서 반응성 스퍼터링으로 증착시 Ag의 TiO_2 표면층으로의 확산이 가속된다.^{3), 20)} 이와 같이 TiO_2 유전체 층으로 확산된 Ag는 유전체 층의 가시광선 투과도를 저하시키며, 또한 Ag 층에서는 표면으로의 확산, 응집 및 산화에 의해 적외선 반사특성을 잃게 되어 대부분의 적외선이 투과하게 된다. Fig. 10에 Si를 기판으로 사용하여 TiO_2 와 Ag 단위 박막을 각기 18nm 두께로 스퍼터 증착한 $TiO_2/Ag/TiO_2$ 3층 박막을 Auger spectroscopy로 분석한 depth profile 결과를 나타내었다. 이 결과에서 적외선 차단막으로 증착한 Ag가 TiO_2 층으로 확산되었으며, 또한 Ag의 산화가 일어났음을 확인할 수 있었다.

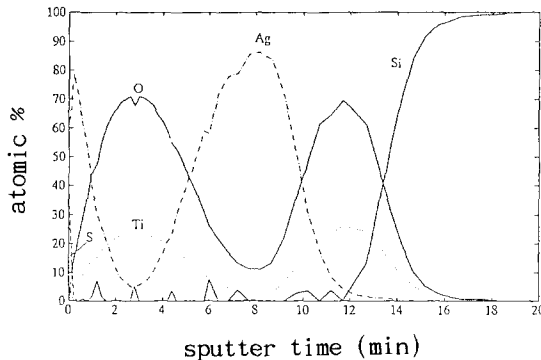


Fig. 10 Auger depth profile of the sputter-deposited $TiO_2(18nm)/Ag(18nm)/TiO_2(18nm)$ three-layer films.

유전체/금속/유전체 구조의 투명 열절연 박막에서는 TiO_2 유전체 층 형성시 Ag의 확산 및 응집을 방지하므로써 Ag 박막의 적외선 반사특성을 유지하기 위해서 TiO_2 와 Ag 박막 사이에 Cr, Ti, Cu 등의 금속 박막 M을 확산 방지층으로 삽입한 $TiO_2/M/Ag/M/TiO_2$ 형태의 5층 박막구조를 사용하고 있다^{16), 21)} 4nm 및 6nm 두께의 Ti 박막을 확산 방지층으로 사용한 $TiO_2/Ti/Ag/Ti/TiO_2$ 구조의 5층 박막을 스퍼터 증착하여 파장에 따른 투과도를 측정하였으며 그 결과를 Fig. 11에 나타내었다. 이때 $TiO_2/Ti/Ag/Ti/TiO_2$ 5층 박막에서 TiO_2 및 Ag 박막의 두께는 각기 18nm로 유지하였다. Fig. 11에 나타난 5층 박막의 실제 투과도 곡선은 Fig. 8(a)의 transfer matrix를 사용하여

예측한 3층 박막의 투과도 곡선과 매우 유사하였다. 4nm 두께의 Ti 박막을 확산방지층으로 사용하여 Si 기판상에 스퍼터 증착하여 형성한 $TiO_2/Ti/Ag/Ti/TiO_2$ 5층 박막의 Auger depth profile 결과인 Fig. 12와 같이, Ti 확산 방지층의 삽입에 의해 Ag의 산화 및 TiO_2 층으로의 확산이 방지되었으며 이에 의해 적외선 반사특성이 유지되었다.

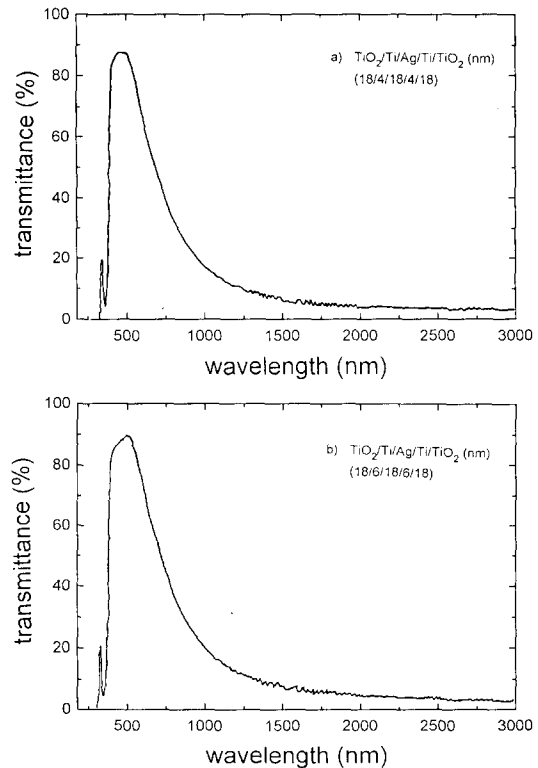


Fig. 11 Transmittance curves measured on a) the sputter-deposited $TiO_2(18nm)/Ti(4nm)/Ag(18nm)/Ti(4nm)/TiO_2(18nm)$ and b) $TiO_2(18nm)/Ti(6nm)/Ag(18nm)/Ti(6nm)/TiO_2(18nm)$ five-layer films.

TiO_2 와 Ag 박막의 두께 및 제조공정이 동일한 경우에도 $TiO_2/M/Ag/M/TiO_2$ 5층 박막의 정밀한 광학특성은 확산방지막으로 삽입한 금속 박막의 조성 및 두께에 따라 변하게 된다. 그러나 일반적으로 확산방지막은 5nm 이하의 얇은 두께로 증착하기 때문에 Ag의 확산 및 응집 방지 이외에 확산방지막이 다층 박막의 투과도 특성에 미치는 영향이 크지 않다면 transfer matrix를 사용하여 예측한 $TiO_2/Ag/TiO_2$ 3층 박막의 투과도 곡선에서 실제

증착된 TiO₂/M/Ag/M/TiO₂ 5층 박막의 투과도 특성에 대한 정성적인 예측이 가능할 것으로 판단된다. Fig. 11의 결과에서와 같이 실제 스퍼터 증착한 TiO₂/Ti/Ag/Ti/TiO₂ 5층 박막에서 확산방지막 Ti의 두께가 4nm에서 6nm로 변화하여도 투과도 특성의 큰 차이는 발견할 수 없었다.

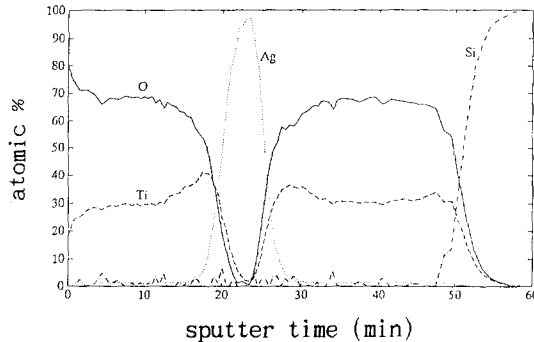


Fig.12 Auger depth profile of the sputter-deposited TiO₂ (18nm) / Ti(4nm) / Ag(18nm) / Ti(4nm) / TiO₂ (18nm) five-layer film.

4. 결 론

(1) Transfer matrix를 사용하여 TiO₂ 및 Ag 단일 박막의 투과도 특성의 예측이 가능하였다. Ag 박막에서는 전 파장 영역에서 흡수계수가 크며 파장에 따른 변화 또한 무시할 수 없기 때문에 투과도 특성의 예측에 흡수계수 k를 고려한 복소굴절률의 사용이 필수적이었다. TiO₂ 박막의 경우 가시광선과 적외선 영역에서는 흡수계수의 크기가 10⁻³ 정도로 작기 때문에 투과도 특성의 예측에 영향을 미치지 않았으나, 400nm 이하 파장의 자외선 영역에서는 투과도의 예측에 복소굴절률의 사용이 필수적이었다.

(2) Transfer matrix를 사용하여 예측한 TiO₂/Ag/TiO₂ 3층 박막의 투과도 곡선은 스퍼터 증착된 3층 박막의 광학 특성과 전혀 일치하지 않았다. Transfer matrix로 예측한 TiO₂/Ag/TiO₂ 3층 박막의 투과도 곡선에서는 적외선 영역 파장에서 투과도가 급격히 저하하는 열절연 특성이 예측되었으나, 스퍼터 증착한 3층 박막에서는 Ag의 TiO₂층으로의 확산 및 응집에 의해 적외선 영역에서도 70% 이상의 투과도를 나타내어 hest mirror로서의 특성을

관찰할 수 없었다.

(3) 4nm 및 6nm 두께의 Ti 박막을 확산방지층으로 증착한 TiO₂/Ti/Ag/Ti/TiO₂ 구조의 5층 박막에서 측정된 투과도 곡선은 transfer matrix를 사용하여 예측한 3층 박막의 투과도 곡선과 유사하였다. 5nm 이하의 얇은 두께로 증착하는 확산방지막이 Ag의 확산 및 응집 방지 이외에 다층 박막의 투과도 특성에 미치는 영향이 크지 않으므로, transfer matrix를 사용하여 예측한 TiO₂/Ag/TiO₂ 3층 박막의 투과도 곡선에서 실제 증착한 TiO₂/M/Ag/M/TiO₂ 5층 박막의 투과도 특성에 대한 예측이 가능할 것이다.

감사의 글

본 연구는 성문전자(주)의 상공자원부 에너지 절약기술 개발 위탁사업 및 1994년 교육부 기초기술연구소 지원(과제번호 : BSRI-94-2428)에 의해 수행되었으므로 이에 감사드립니다.

참 고 문 헌

1. A. Thelen, J. Vac. Sci. Technol., 20(3), 310 (1982)
2. H.K. Pulker, Appl. Opt., 18, 1969 (1979).
3. J.C.C. Fan, F.J. Bachner, G.H. Foley, and P.M. Zavracky, Appl. Phys. Lett., 25(12), 693 (1974)
4. T.B. Reed, Solid State Research Report, No. 1969 : 1, MIT Lincoln Lab., Lexington, p. 21 (1969).
5. J.C.C. Fan and F.J. Bachner, Appl. Opt., 15(4), 1012 (1976).
6. Y. Claesson, M. Georgson, and C.G. Ribbing, Solar Energy Mater., 20, 455(1990)
7. I. Hamberg, A. Hjortsberg, and C.G. Granqvist, SPIE, 324, 31 (1982).
8. H.J. Glaser, Glass Technology, 21(5), 254 (1980).
9. G.E. Rhead, Acta Metall., 13, 223 (1965).
10. G.R. Fowles, Introduction to Modern Optics, McGraw-Hill, New York, p. 96 (1975)
11. L.M. Andritschky and M.P. dos Santos, Thin Solid Films, 223, 242 (1993)
12. H.K. Pulker, G. Paesold, and E. Ritter,

- Appl. Opt., 15(12), 2986 (1976)
13. M.H. Suhail, G. Mohan Raom, and S. Mohan, J. Appl. Phys., 71(3), 1421 (1992)
 14. K. Narashimha Rao and S. Mohan, J. Vac. Sci. Technol., A8(4), 3260 (1990)
 15. P.B. Johnson and R.W. Christy, Phys. Review, 6(12), 4370 (1972)
 16. F.H. Har, S.H. Enland, United States Patent # 4,462,883 (1984)
 17. R.C. Ross, R. Sherman, and R.A. Buner, Solar Energy Mater., 19, 55 (1989)
 18. R.C. Ross, Solar Energy Mater., 21, 25 (1990)
 19. C.A. Bishop and R.P. Howson, Solar Energy Mater., 13, 175 (1986)
 20. S.J. Nadel, J. Vac. Sci. Technol., A5(4), 36 (1987)
 21. F.H. Gillery, A. Park, R.C. Criss, J.J. Finley, United States Patent # 4,716,086 (1987)