[논 문] 한국재료학회지
Kor. J. Mater. Res.
Vol. 19, No. 12 (2009)

DOI: 10.3740/MRSK.2009.19.12.637

실리콘 산화질화물 기지상 적용에 따른 Au 나노입자 분산 복합체 박막의 광학적 특성

조성훈 · 이경석†

한국과학기술연구원 박막재료연구센터

Effect of Silicon Oxynitride Matrix on the Optical Properties of Au Nanoparticles Dispersed Composite Film

Sunghun Cho and Kyeong-Seok Lee†

Thin Film Materials Research Center, Korea Institute of Science and Technology, Seoul 136-791 Korea

(2009년 10월 5일 접수 : 2009년 11월 16일 최종수정 : 2009년 11월 16일 채택)

Abstract In this study, we analyzed the effect of silicon oxynitride matrix on the optical properties of Au nanoparticles dispersed on composite film and explored the effectiveness of the silicon in fine tuning the refractive index of the composite film for applications in optical waveguide devices. The atomic fraction of nitrogen in SiO_xN_y films was controlled by varying the relative flow ratio of nitrogen gas in reactive sputtering and was evaluated optically using an effective medium theory with Bruggeman geometry consisting of a random mixture between SiO_2 and Si_3N_4. The Au nanoparticles were embedded in the SiO_xN_y matrix by employing the alternating deposition technique and clearly showed an absorption peak due to the excitation of surface plasmon. With increasing nitrogen atomic fraction in the matrix, the surface plasmon resonance wavelength shifted to a longer wavelength (a red-shift) with an enhanced resonance absorption. These characteristics were interpreted using the Maxwell-Garnett effective medium theory. The formation of a guided mode in a slab waveguide consisting of 3 μm thick Au:SiO_xN_y nanocomposite film was confirmed at the telecommunication wavelength of 1550 nm by prism coupler method and compared with the case of using SiO_2 matrix. The use of SiO_xN_y matrix provides an effective way of controlling the mode confinement while maintaining or even enhancing the surface plasmon resonance properties.

Key words surface plasmon resonance, metal-dielectric nanocomposite, effective medium theory, silicon oxynitride matrix.

1. 서 론

초고속, 대용량 정보처리가 요구되는 미래의 통신환경에서는 신호의 변조 및 분배 과정에서 광-전기-광의 신호 변환에 따르는 병목현상을 해소하기 위해 빛에 의해서만 동작하는 전광 스위치 소자(all-optical switching device)의 개발이 필수적으로 요구된다.[1,2] 이를 구현하기 위한 핵심소재로서 빛의 세기에 의존해서 재료의 굴절율이 크게 변화하는 물질을 3차 비선형 광학재료라 한다. 유전체 기지상에 금속 나노입자가 분산된 형태의 복합체 재료는 금속 입자내 자유전자의 운동이 유전구속(dielectric confinement)됨으로써 발생하는 표면 플라즈몬 공진(surface plasmon resonance; SPR)현상에 의하여 10^{-9}~10^{-6} esu 정도의 거대 3차 비선형 광학계수를 가지며, 응답속도 또한 피코초 이하의 순간반응 특성을 나타내어 잠재력 있는 신재료로 크게 주목받고 있다.[3,4]

전광 스위치 소자 구조는 광 도파로(optical waveguide) 기반의 마하젠더 간섭계(Mach-Zehnder interferometry)[2] 및 감쇠전반사(attenuated total reflection)[5,6] 방식이 대표적이다. 금속 나노입자가 분산된 복합체 재료도 집적형 전광 소자로의 응용을 위해서는 복합체를 이용한 도파로 형성, 도파모드 분석 및 제어 연구가 필수적으로 요구된다. 그러나, 현재까지 대부분의 연구는 주로 표면 플라즈몬 공진 파장에서의 선형 광흡수[7-9] 및 비선형 광학특성[10,11]에 집중되어 왔으며 도파특성에 관해서는 극히 제한적인 연구결과[12]만이 보고되고 있다.

실리카 기반 광소자 기술에 대응하기 위한 유전체 물질로는 SiO_2와 실리콘 산화질화물(SiO_xN_y)이 일반적으로 사용된다. 광 도파로의 코어부(core)를 구성하는 나노복합체의 굴절율은 통신파장인 근적외선 영역에서 주변 클래딩부(cladding)에 비해 커야 하며, 원하는 도파모드를 얻

†Corresponding author
E-Mail : kslee21@kist.re.kr (K. -S. Lee)

기 위해 그 굴절율이 미세하게 제어될 필요가 있다. 유전체 기지상내에 분산되는 금속 나노입자는 복합체 박막의 굴절율을 증가시키는 역할을 하지만, 표면플라즈몬 공진파장에서 멀리 떨어진 근적외선 통신파장영역에서는 그 효과가 급격히 감소한다. 특히, SiO_2를 기지상으로 하여 저온 증착할 경우, 기지상 자체의 치밀도가 저하되어 나노복합체의 유효 굴절율이 코어부를 형성하기에 부적합해지는 경우도 발생한다.

코어부의 상대적 굴절률을 증가시키는 방안으로 금속입자의 체적 분율을 높이는 방법이 있지만 이는 광 흡수도의 증가를 수반하여 도파손실을 증가시킴으로 바람직하지 못하다. 흡수손실의 증가없이 비굴절률 차를 높이는 효과적인 방법은 Ge-doped SiO_2나 SiO_xN_y과 같이 굴절율이 높은 기지상 재료를 사용하는 것이다. 이 중, SiO_xN_y은 Si_3N_4와 SiO_2의 혼합적 특성을 나타내며, 산소와 질소의 상대적 비율 조절에 의해 굴절율을 1.44에서 2.01까지 비교적 넓은 범위에서 연속적으로 변화시키는 것이 가능하여 유전체 도파로외에도 gradient-index optics와 같은 다양한 광학적 응용분야에 적용되고 있다.[13)]

본 연구에서는 광도파로의 코어부로 사용되는 나노복합체 박막의 굴절률을 제어하기 위한 방안으로 SiO_xN_y을 기지상 재료로 하여 Au 나노입자가 분산된 복합체 박막을 제조하고 그 광학적 특성에 미치는 영향을 분석하고자 한다. 박막의 제조는 RF 마그네트론 스퍼터링법을 이용하였으며 금속 나노입자의 형성을 위해 교번증착(alternating deposition) 공정[14,15)]을 적용하였다. SiO_xN_y 기지상 막은 SiO_2 타겟과 플라즈마 활성화 가스로 아르곤(Ar)과 질소(N_2)를 이용한 반응 스퍼터링(reactive sputtering) 방법으로 증착하였고 질소가스 유량비($N_2/(Ar+N_2)$)를 변화시켜가며 조성을 제어하였다. 제작된 SiO_xN_y 박막의 조성과 굴절율은 Bruggeman 기하구조를 갖는 유효매질이론 (effective medium theory)을 적용하여 광학적 방법으로 평가하였다. Au 나노입자가 SiO_xN_y 기지상에 분산된 복합체 박막의 광학적 특성은 Maxwell-Garnett 기하구조를 갖는 유효매질이론을 적용하여 기지상의 조성변화에 따른 영향을 이론계산하였으며, 실제 측정된 결과와 비교, 평가하였다. 광 도파특성은 3 μm 두께의 슬랩형 광도파로를 제작하여 프리즘 커플러 분석법을 이용하여 평가하고 SiO_2 기지상을 적용한 경우와 비교하였다.

2. 실험 방법

SiO_xN_y 기지상 및 Au : SiO_xN_y 나노복합박막의 제작은 RF 마그네트론 스퍼터링법을 사용하여 이루어졌다. SiO_xN_y 막을 형성하기 위해 반응 스퍼터링법을 적용하였고 질소가스의 유량을 20 sccm으로 고정한 상태에서 아르곤 가스의 유량을 0, 10, 20 sccm으로 변화시켜가며 막 내 질소함량을 제어하였다. 박막은 기판온도 300°C, 작업압력 5 mTorr에서 증착되었다. SiO_xN_y 기지상 내 Au 나노입자의 형성은 유전체층과 금속층을 교대로 증착하는 교번증착 공정[14,15)]을 도입하여 이루어졌다. Au 금속층은 두께를 충분히 얇게 증착하면 실리카 기반 하지층위에서 Volmer-Weber 형태의 island 성장거동을 나타낸다. 이 상태에서 기지상층을 그 위에 연속층 형태로 증착하게 되면 유전체층 사이에 Au 나노입자층이 분산된 복합체 박막을 구현할 수 있게 된다. 2인치 직경의 Au 타겟과 SiO_2 타겟에 인가된 RF 파워는 각각 20 W와 80 W 였다. 나노입자 형성을 위해 Au층의 공칭두께(nominal thickness)는 1 nm로 증착하였고 복합체내 Au 입자의 부피분율이 1%가 되게 Au층과 SiO_xN_y층의 두께비를 조정하였다. 스퍼터링 가스의 혼합비율에 따른 개별층의 증착속도를 먼저 구하고 이를 토대로 각각의 조건하에서 증착되는 박막의 두께가 일정하게 유지되도록 하였다. 질소 가스의 분율이 증가할수록 Au와 SiO_xN_y층 모두 증착속도가 감소하는 경향을 나타내었다. 스퍼터링 복합체 박막의 총 두께는 1550 nm 통신파장대역에서 광도파모드를 형성할 수 있도록 용융실리카 유리 기판위에 3 μm 두께로 증착하였다. TEM분석을 위한 시편은 카본 코팅된 Cu grid위에 SiO_xN_y (10 nm) - Au (1 nm) - SiO_xN_y (10 nm)의 샌드위치 구조로 제작하여 사용하였다.

증착된 박막의 광 투과, 반사 특성은 UV-VIS spectrometer (Lambda 35, Perkin-Elmer)를 사용하여 250 ~ 1100 nm 파장 범위에서 측정 하였다. 1550 nm 통신파장에서의 광학특성은 variable angle photometry (VAP)[16)]을 이용하여 p파와 s파 각각에 대한 입사각 대비 투과, 반사도를 측정하여 분석하였다. 나노복합체 박막의 광 도파 특성은 Fig. 1에 개략적으로 도시한 프리즘 커플러 장치를 이용하여 1550 nm 파장에서의 도파모드를 분석하여, 평가하였다. 선형 편광된 레이저 빔을 λ/2 plate를 사용하여 TE와 TM모드로 구분하여 분석하였고 신호빔은 lock-in-amplifier (LIA)를 이용하여 정규화 한 값으로 신호처리하였다. 입사각은 최대 각 해상도 0.00008°를 갖는 2축 회전 스테이지(KOHZU)를 사용하여 제어하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 실리콘 산화질화물 박막의 광학적 특성 및 조성 분석

Fig. 2(a)와 (b)는 증착챔버내 아르곤과 질소가스의 상대 유량비를 바꿔가며 300°C 기판온도에서 제작된 SiO_xN_y 박막의 광 투과 및 반사 곡선을 나타낸다. 질소가스의 분율이 증가할수록 광 투과도는 감소하고 반사도가 증가함을 알 수 있다. 이것은 질소 가스의 분율 증가에 따라 증착된 SiO_xN_y 박막내 질소함량도 함께 증가하여 박막의

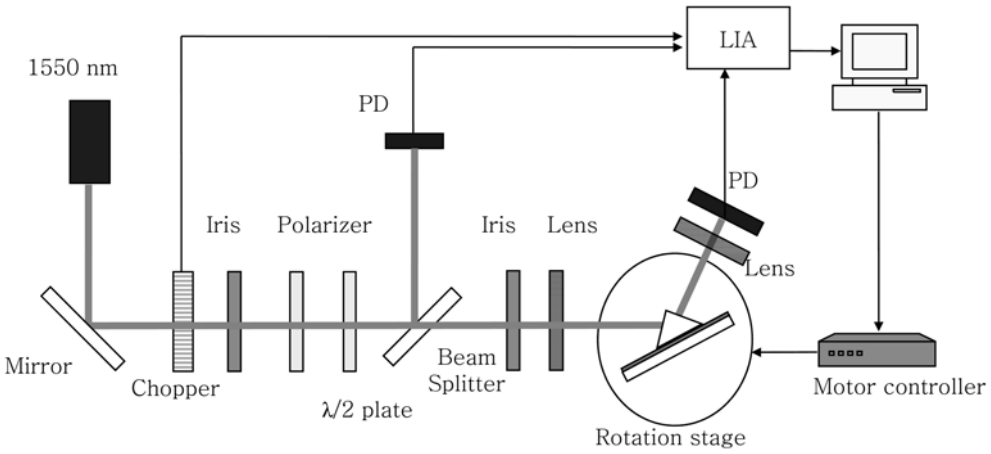

Fig. 1. Schematics of experimental setup for a prism coupler.

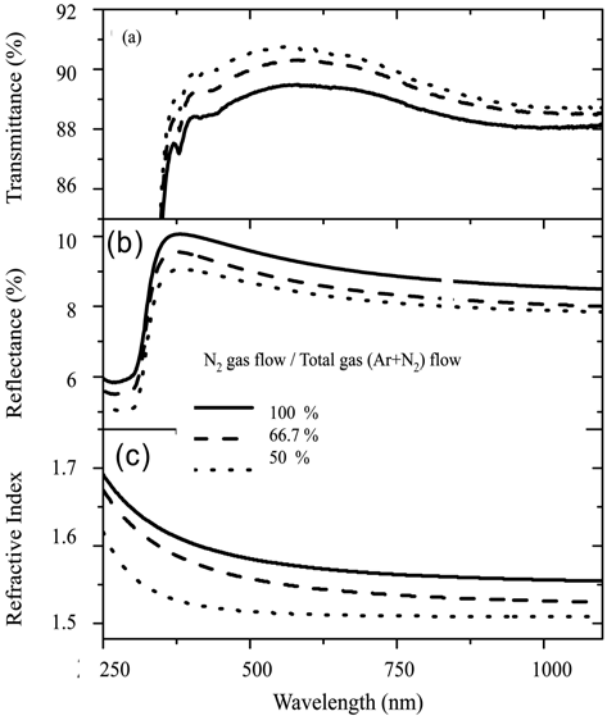

Fig. 2. (a) Optical transmittance and (b) reflectance spectra of SiO_xN_y films prepared by reactive sputtering and measured as a function of relative ratio of nitrogen gas flow rate in the sputtering gases, and (c) the extracted refractive indices from the theoretical fitting for the spectra using a Bruggeman effective medium theory.

굴절율이 높아졌기 때문으로 판단된다.

SiO_xN_y 박막의 특성은 SiO_2와 Si_3N_4의 중간적 성질을 나타내며 광학적 관점에서볼 때, 두 구성물질의 혼합체로 해석될 수 있다.[17] 이 경우, 두 구성물질의 분포가 인위적으로 특정 물질을 기지상이나 함유물로 구분할 수 없기 때문에 그 광학적 특성은 Bruggeman 기하구조를 갖는 유효매질이론[18]으로 해석하는 것이 타당하다. Bruggeman 유효매질이론(B-EMT)에 따르는 복합체의 유효 굴절율은 식 (1)로 표현된다.

$$P_{SiO_2}\frac{n^2_{SiO_2}-n^2_{SiO_xN_y}}{n^2_{SiO_2}+2n^2_{SiO_xN_y}}+P_{Si_3N_4}\frac{n^2_{Si_3N_4}-n^2_{SiO_xN_y}}{n^2_{Si_3N_4}+2n^2_{SiO_xN_y}}=0 \quad (1)$$

여기서, P_{SiO_2}와 $P_{Si_3N_4}$는 SiO_2와 Si_3N_4의 부피 분율을, n_{SiO_2}, $n_{Si_3N_4}$, 그리고 $n_{SiO_xN_y}$은 각각 SiO_2, Si_3N_4, SiO_xN_y의 굴절률을 나타낸다. 두 구성물질의 문헌에 보고된 광학계수 값[19]을 대입하고 각각의 부피분율을 fitting 변수로 하여 Fig. 2(a)와 (b)에 나타낸 광 투과, 반사 곡선을 식 (1)의 분산관계식으로 이론 fitting하면 SiO_xN_y 박막의 굴절율을 얻을 수 있다. 그 결과를 Fig. 2(c)에 나타내었다. Fig. 2(c)에서 보듯이 SiO_xN_y 박막의 굴절률은 스퍼터 가스의 질소 분율이 높을 수록 증가함을 알 수 있다.

주목할 점은 fitting 변수로 사용하여 얻어진 두 구성물질, SiO_2와 Si_3N_4의 부피 분율을 이용하면, SiO_xN_y 박막내에서의 산소와 질소의 원자조성비(atomic fraction)를 유추해 낼 수 있다는 사실이다. 이렇게 광학적인 방법으로 구해진 질소 분율{y/(x+y)}을 스퍼터 가스내 질소의 상대유량비의 함수로 Fig. 3에 나타내었다. 광학적 분석의 신뢰도를 검증하기 위해 동일한 조건으로 증착된 일부 시편들에 대해 오제전자 분광법 (Auger electron spectroscopy, AES)을 수행하였고 그 결과를 Fig. 3에 함께 표시하였다. 절대값에서는 다소 차이가 발생하지만 전체적인 경향은 대체로 잘 일치하는 결과를 보여준다고 판단된다. 두 가지 분석 결과 모두 스퍼터 가스중의 질소유량비가 증가할수록 SiO_xN_y 박막내의 질소분율 역시 비례해서 증가함을 보여주는데, 이는 질소가스를 이용한 반응 스퍼터링 방법이 SiO_xN_y 박막 형성에 유효하게 작용하고 있음을 입증한다.

1550 nm 광통신 파장에서의 광학적 특성은 VAP법을

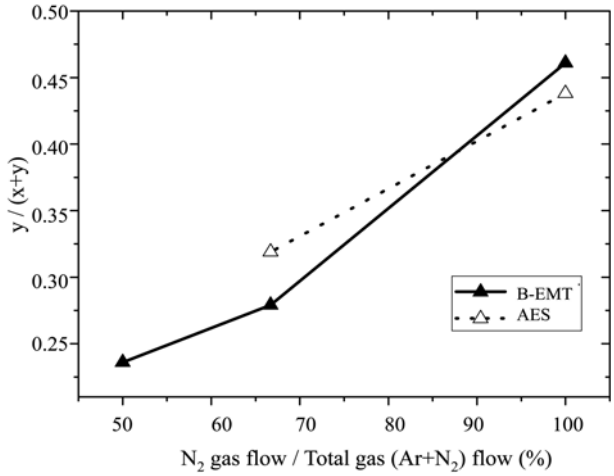

Fig. 3. Comparison between the nitrogen atomic fractions in SiO_xN_y films determined optically from the Bruggeman effective medium theory (B-EMT) and analyzed by Auger electron spectroscopy (AES).

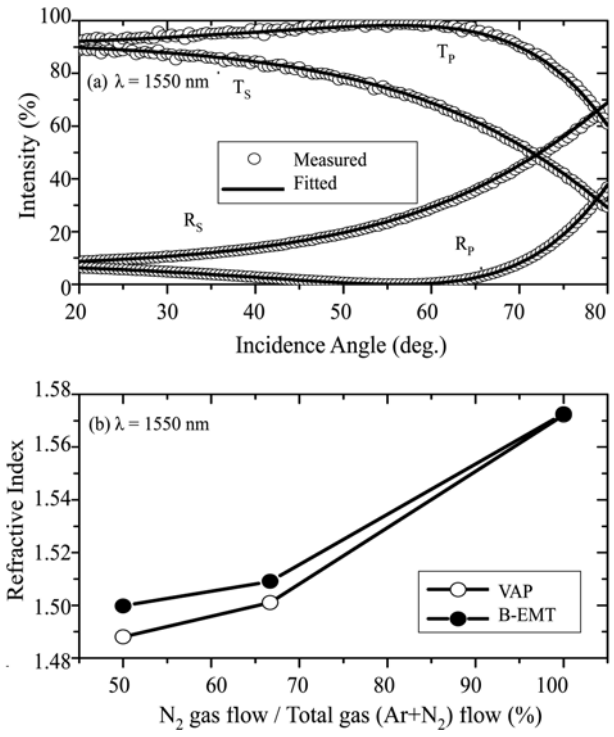

Fig. 4. (a) Variable angle photometry data measured for the SiO_xN_y film fabricated at the relative ratio of N_2 gas flow rate to the total of 66.7% using the laser light of 1550 nm. Solid line indicates fitted value. (b) The refractive indices determined by fitting the VAP data and their comparison with the values estimated using the Bruggeman effective medium theory extended to the wavelength of 1550 nm.

이용하여 p파와 s파 각각에 대한 입사각 대비 박막의 투과, 반사도를 측정하여 분석하였다. Fig. 4(a)는 스퍼터 가스의 질소 유량비가 66.7%인 경우에 얻어진 SiO_xN_y 박막의 VAP 스펙트럼을 예시로 보여준다. 이론 fitting을 통해 굴절율을 구하였고 그 결과를 Fig. 4(b)에 질소가스 유량비에 따른 1550 nm 파장에서의 굴절률 값(open circle)으로 정리하였다. Fig. 2(c)의 결과와 마찬가지로 질소가스의 상대적 유량비가 증가할수록 박막의 굴절율도 증가하였다. Fig. 4(b)에는 Fig. 2의 분석에서 사용된 B-EMA 모델을 1550 nm 파장까지 확장하여 SiO_xN_y 박막의 굴절율을 결정한 데이터(close circle)도 함께 표시하였다. 낮은 질소 가스 분율에서 보여지는 약간의 차이를 제외하고는 대체로 잘 일치함을 알 수 있다.

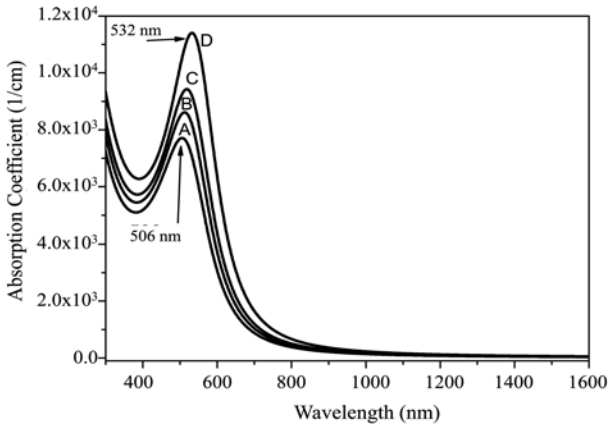

Fig. 5. Simulated SPR absorption spectra of the Au(p_{Au} = 1%, a = 3 nm) : SiO_xN_y nanocomposite films. The volume fractions of Si_3N_4 constituting SiO_xN_y matrix in B-EMT were varied to have 0 (A), 10.9 (B), 20 (C), and 40% (D), respectively.

3.2 Au : SiO_xN_y 나노복합체 박막의 미세구조 및 광학적 특성

일반적으로 유전체 기지상과의 용해도(solubility)가 거의 없는 Au 나노입자는 유전체 기지상내에 구형입자의 형태로 균일하게 분산되는 특징을 갖는다. 이러한 복합체 구조에서의 광학적 특성은 Maxwell-Garnett 기하구조의 유효매질이론(MG-EMT)[20]으로 잘 설명된다. Fig. 5는 Au 나노입자가 SiO_xN_y 기지상에 분산된 복합체 박막의 광학특성을 MG-EMT로부터 유도되는 식 (2)의 광 흡수도[20]로 계산한 결과를 보여준다.

$$\alpha = \frac{18\pi n^3_{SiO_xN_y}}{\lambda} \frac{P_{Au}\varepsilon''_{Au}}{(\varepsilon'_{Au} + 2n^2_{SiO_xN_y})^2 + \varepsilon''^2_{Au}} \quad (2)$$

여기서, P_{Au}는 Au 입자의 부피분율을 나타내며 계산에서는 1%로 고정된 값을 사용하였다. ε'_{Au}, ε''_{Au}는 Au 나노입자의 유전상수 값의 실수부와 허수부를 나타낸다. 벌크 금속과 달리, Au 나노입자의 크기가 금속의 평균 자유행로보다 작게 되면 자유전자의 운동이 입경에 의해 산란됨으로써 입자의 유전상수값 중, 특히 허수부 값이 식 (3)[21]과 같이 수정받게 된다.

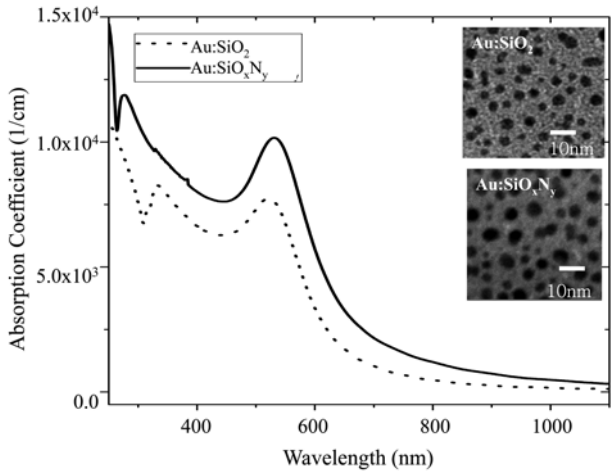

Fig. 6. Optical absorption spectra measured for the Au : SiO_2 (dashed line) and Au:SiO_xN_y (solid line) nanocomposite films. Insets are the high-resolution plan-view TEM images for the Au-nanoparticles layers sandwiched between two adjacent SiO_2(10 nm) layers and SiO_xN_y(10 nm) layers, respectively.

$$\varepsilon''_{Au} = \varepsilon''_{bulk_Au} + \frac{3\omega_P^2 \nu_F}{4\omega^3 r} \tag{3}$$

여기서 ω_P와 ν_F는 벌크 금속 Au의 플라즈마 각 주파수 (1.1×10^{16}Hz)와 자유전자의 페르미 속도(1.39×10^8 cm/s)를 나타낸다. r는 나노입자의 반경으로 입자의 크기가 작을수록 유전상수의 허수부 값이 증가할 것으로 예상할 수 있다.

금속입자내 자유전자의 운동이 유전구속됨에 의해 야기되는 표면플라즈몬 공진현상은 식 (2)의 분모항이 최소가 되는 조건에서 발생한다. 따라서, Au 나노입자의 유전상수중 허수부의 값이 0에 가까울수록 표면플라즈몬 공진이 강하게 나타나며, 허수부 값이 커지게 되면 표면플라즈몬의 감쇄가 발생하게 된다.

Fig. 5의 계산에서는 Au 입자의 크기를 3 nm로 가정하였다. SiO_xN_y 유전체 기지상의 광학상수는 B-EMT의 식 (1)을 이용하여 Si_3N_4의 부피분율이 0(A), 10.9(B), 20(C), 40%(D) 인 경우에 대한 값을 계산하여 사용하였다. 여기서, 부피분율 10.9% 는 스퍼터 가스중 질소유량비를 66.7%로 하여 증착한 SiO_xN_y 박막의 경우에 해당한다. 식 (2)의 분자항에서 알 수 있듯이 기지상 재료의 굴절율 증가는 표면 플라즈몬 공진 현상에 의한 특성 광 흡수를 강화시키는 역할을 한다. 또한, 분모항이 최소화 되는 파장대역을 장파장 영역으로 이동시키는 적색편이 효과도 기대된다. Fig. 5에 보여준 계산 결과도 이를 뒷받침한다. SiO_xN_y 박막내 Si_3N_4의 부피분율 증가는 SiO_xN_y 기지상의 굴절율 증가를 수반한다. 이로 인해, SiO_xN_y 기지상내에 분산된 Au 나노입자로 인한 표면 플라즈몬 공진 특성도 강화되어 특성 광 흡수 피크의 크기가 커지고, 공진파장 역시 순수 SiO_2 기지상인 경우의 506 nm에서 Si_3N_4의 부피분율이 40%인 경우 532 nm까지 연속적으로 이동함을 알 수 있다. 즉, SiO_xN_y 기지상을 사용하면, 막 내 질소함량의 제어에 의해 표면플라즈몬 공진파장을 미세 조정하고 공진세기를 강화하는 것이 가능함을 알 수 있다.

실제 제작된 시편에 대해 측정된 광 흡수곡선은 Fig. 6에 나타내었다. Fig. 6에서는 시편과 SiO_2 기지상을 적용한 경우와 스퍼터 가스 중 질소 유량비를 66.7%로 하여 증착한 경우를 비교한다. Au : SiO_2 나노복합체박막의 표면 플라즈몬 공진 파장이 521 nm에서 관찰되는 반면, SiO_xN_y 기지상을 적용한 경우에는 Fig. 5의 이론계산에서 예측한대로 적색편이하여 530 nm에서 흡수피크가 나타남을 확인 할 수 있었다. 교번 증착법에 의해 각각의 기지상내에 분산된 Au 입자의 형상은 투과전자현미경(TEM) 분석을 통해 관찰하였다. Fig. 6에 삽입된 이미지는 그 결과를 보여준다. 두 경우 모두 구형의 입자형상을 나타내며 평균 입도가 대략 3-4 nm 정도로 균일하게 분포되어 있으며 SiO_xN_y 기지상의 경우에 관찰면에 대해서 입자의 크기가 다소 증대된 경향을 보여준다. Au 입자크기의 증가 또한 공진흡수피크의 적색편이를 유발한다. 그러나, 본 실험의 경우와 같이 Au내 자유전자의 평균자유행로(~12.9 nm) 보다 작고 양자구속효과를 나타내는 sub-nm 크기보다 큰 수 나노미터 범위에서는 입자의 크기에 따른 적색편이 정도가 매우 미미하게 나타난다. 실제로 식(2)와 (3)을 이용한 계산결과, Au입자의 직경이 3 nm에서 10 nm까지 증가한다고 가정하였을 때에도 공진파장의 증가는 3 nm보다 작음을 확인할 수 있었다. 따라서, 관찰된 적색편이는 기지상의 굴절율 변화에 지배적으로 의존한다고 판단할 수 있다.

3.3 Au(t = 1 nm, 1%) : SiO_xN_y 나노복합체 박막의 광도파 특성

Fig. 6에서 알 수 있듯이 Au : SiO_xN_y 나노복합체 박막은 표면 플라즈몬 공진현상에 의해 가시광 영역에서의 광 흡수도가 매우 큰 반면, 비 공진 파장인 근 적외선 영역에서는 그 크기가 급격히 감소하는 경향을 나타낸다. 이는 광통신 파장인 근적외선 영역에서의 광 흡수도를 충분히 낮춰 광 도파로로 사용될 수 있는 기반을 제공한다. Fig. 7은 두께 3 μm로 용융 실리카 유리기판위에 증착한 Au : SiO_2와 Au : SiO_xN_y (스퍼터가스 질소유량비 66.7%에서 증착된 시편) 복합체 슬랩 도파로(slab waveguide)에 대해, 프리즘 커플러법[22]을 이용하여 1550 nm 파장에서 측정한 입사각 대비 도파모드 반사도 곡선을 보여준다. 굴절율 1.936인 gadolinium gallium garnet (GGG) 프리즘을 사용하고 TE 모드에서 관찰하였다. 여기서, 입사각은 대기중에서 전파하는 레이저 빛이 프리즘의 어느 한 입사면과 이루는 각으로 파벡터와 수직인 상태가 0°

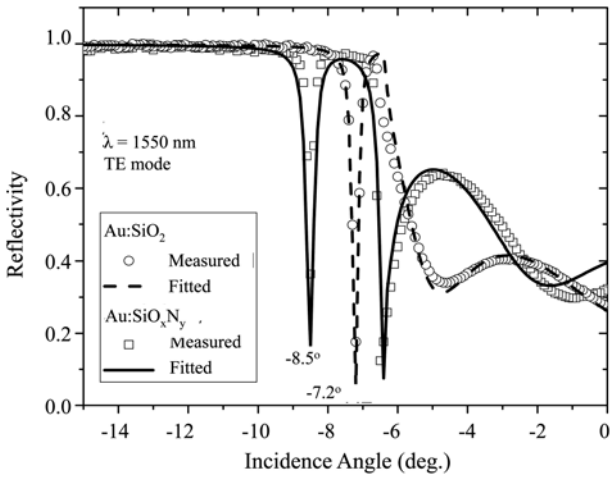

Fig. 7. The TE waveguide mode profiles measured for the slab waveguide consisting of 3 μm thick Au : SiO_2 (open circle) and Au : SiO_xN_y (open square) nanocomposite films. The dashed and solid lines represent the respective theoretical fits.

이고 도파로면과 접촉하고 있는 프리즘 밑면에 평행한 방향이 음의 회전각도 방향으로 정의된다. 슬랩 도파로는 유리기판면 쪽에서 압력을 가하여 공기 간극(air gap)층을 사이에 두고 프리즘 밑면과 접촉한다. 입사각이 큰 경우에는 빛이 프리즘과 도파로를 지나 반대편 대기중으로 진행하게 되지만, 어느 특정 입사각 이하에서는 프리즘과 도파로 사이 계면에서 전반사 거동을 나타낸다.

전반사 조건이 만족되는 입사각 이하에서 형성되는 날카로운 반사도 dip은 계면에 존재하는 에바네슨트장(evanescent field)이 위상정합조건(phase matching condition)이 만족하는 특정 각도에서 슬랩 도파로의 도파모드로 에너지 전이되어 발생하는 것으로 두 가지 기지상 모두 도파모드가 형성되었음을 확인할 수 있다. Fig. 7의 도파모드 반사도 곡선에서 전반사 조건이 만족되는 입사각 이상에서 보이는 다소 폭이 넓게 진동하는 피크들은 박막과 기판의 계면 사이에서 발생하는 다중반사로 인한 일종의 간섭패턴이다.[23] 도파모드는 Au : SiO_2 나노복합체 도파로의 경우 -7.2°, Au : SiO_xN_y의 경우 -8.5° 에서 관찰 되었다. Au : SiO_2 나노복합체 도파로의 경우 클래드 역할을 하는 기판과의 굴절율 차가 작아 도파모드가 전반사 각도에 인접해 있는 반면, Au : SiO_xN_y의 경우에는 충분한 각도 차이만큼 벗어나 있음을 알 수 있다. 도파모드가 전반사 각도에 근접하는 경우 모드 구속효과가 약화되어 leaky한 도파로가 되기 쉽고 반대로 기지상 재료의 굴절율이 지나치게 높으면 단일 모드를 벗어나 다중모드를 형성시키게 된다. 따라서, 광도파 소자로의 응용을 위해서는 광손실과 모드 접합성을 최적화 하는 방향으로 기지상 재료의 굴절율을 용이하게 조절하는 기술이 실용적인 중요성을 갖는다.

Fig. 7에는 측정된 도파모드 반사도 데이터를 프리즘, 공기 간극, 나노복합체 도파로, 그리고 유리 기판으로 구성된 다층형 광학구조에 대한 Fresnel 방정식[22]으로 이론 fitting한 결과를 함께 나타내었다. 이론 fitting은 나노복합체의 굴절율과 두께, 그리고 공기 간극층의 두께를 변수로 하여 이루어졌다. 분석 결과, 1550 nm 파장에서 Au : SiO_2 나노복합체 도파로의 굴절률은 1.4625, 두께는 3.12 μm 이고, Au : SiO_xN_y 도파로의 경우에는 굴절률 1.5026, 두께 3.21 μm의 값이 구해졌다. 비교적 공정제어가 용이한 SiO_xN_y 기지상내 질소함량 제어만으로 통신파장 대역에서 나노복합체의 굴절율이 실제로 미세 제어되었음을 확인시켜 준다.

4. 결 론

본 연구에서는 SiO_xN_y을 기지상으로 적용한 Au : SiO_xN_y 나노복합체 박막의 광학적 특성과 광통신 소자용 도파로 소재로서의 효용성을 평가하고자 하였다. 반응 RF 마그네트론 스퍼터링 방법을 이용하고 스퍼터 가스내 아르곤대 질소가스 유량비를 조절함으로써 기지상내 질소함량을 제어하였다. 증착된 SiO_xN_y 기지상 막의 광학적 특성은 SiO_2와 Si_3N_4의 혼합체로 구성된 Bruggemann 유효매질 이론으로 해석되었으며, 이를 통해 굴절률 뿐만 아니라 기지상내에 혼입된 질소분율이 유효한 범위내에서 광학적으로 결정될 수 있음이 확인되었다. Au 나노입자는 교번증착법을 통해 SiO_xN_y 기지상에 분산되었으며, Au 층의 공칭두께가 1 nm인 경우에 실리카 기지상과 마찬가지로 서로 뭉침 없이 구형의 형상을 갖고 균일하게 분산되어 있음을 확인할 수 있었다. Au : SiO_xN_y 나노복합체 박막의 광학적 특성은 Maxwell-Garnett 유효매질이론을 적용하여 해석하였으며 기지상내 질소함량이 증가할수록 표면플라즈몬 공진파장이 적색편이하고 공진 광흡수 피크가 증가하는 경향을 나타내었다. 나노복합체로 구성된 광 도파로에서의 도파모드 형성은 1550 nm 통신파장대역에서 프리즘 커플러 방법으로 확인하였다. SiO_xN_y 기지상은 기존 실리카 기반 광 소자 기술과의 접합성이 매우 우수할 뿐만 아니라, Au 입자의 성장거동에 별다른 교란을 야기하지 않고 굴절율의 미세 조정과 도파 모드 구속조건의 제어를 용이하게 하는 유효한 수단을 제공한다고 판단되며 나노복합체 박막을 이용한 광 도파로 소자 응용에 있어서 큰 잇점을 제공할 것으로 기대된다.

감사의 글

본 연구는 교육과학기술부 21세기 프론티어 연구개발사업인 '나노소재기술개발사업단'의 지원(과제번호:2009K000459)으로 수행 되었습니다.

참 고 문 헌

1. A. Miller, K. R. Welford, and B. Diano, Nolinear optical materials and devices for applications in information technology, Nato ASI ser. vol. 289, p. 104, Kluwer Academic Publisher, Netherlands, (1993).
2. O. Wada, New J. Phys., **6**, 183 (2004).
3. P. Chakraborty, J. Mat. Sci., **33**, 2235 (1998).
4. F. Gonella and P. Mazzoldi, Handbook of nanostructured materials and nanotechnology, vol. 4, chap. 2., p. 81, ed. H. S. Nalwa, Academic Press, San Diego, (2000).
5. T. Okamoto, M. Haraguchi, and M. Fukui, Jpn. J. Appl. Phys., **39**, 3977 (2000).
6. K. S. Lee, T. S. Lee, W. M. Kim, S. Cho, and S. Lee, Appl. Phys. Lett., **91**, 141905 (2007).
7. D. Dalacu and L. Martinu, J. Opt. Soc. Am. B, **18**, 85 (2001).
8. J. Wang, W. M. Lau, and Q. Li, J. Appl. Phys., **97**, 114303 (2005).
9. J. S. Lee, K. -H. Koo, and H.-H. Park, Kor. J. Mater. Res., **19**(10), 527 (in Korean) (2009).
10. H. Hache, D. Ricard, and C. Flytzanis, J. Opt. Soc. Am. B, **3**, 1647 (1986).
11. H. S. Jun, K. S. Lee, S. H. Yoon, T. S. Lee, I. H. Kim, J. H. Jeong, B. Cheong, D. S. Kim, K. M. Cho, and W. M. Kim, Phys. Stat. Sol. (a), **203**, 1211 (2006).
12. S. Cho, S. Lee, T. S. Lee, B. Cheong, W. M. Kim, and K. S. Lee, J. Appl. Phys., **102**, 123501 (2007).
13. X. Tan, J. Wojcik and P. Mascher, J. Vac. Sci. Technol. A, **22**, 1115 (2004).
14. I. Tanahashi, Y. Manabe, T. Tohda, S. Sasaki, A. Nakamura, J. Appl. Phys., **79**, 1244 (1996).
15. S. H. Cho, S. Lee, D. Y. Ku, T. S. Lee, B. Cheong, W. M. Kim, and K. S. Lee, Thin Solid Films, **447-448**, 68 (2004).
16. H. Wang, J. Opt. Soc. Am. A, **11**, 2331 (1994).
17. L. Pinard and J. M. Mackowski, Appl. Opt., **36**, 5451 (1997).
18. M. Modreanu, N. Tomozeiu, P. Cosmin and M. Gartner, Thin Solid Films, **337**, 82 (1999).
19. H. R. Philipp, Handbook of optical constants of solids, vol. 1, p.759, p.774, ed. E. D. Palik, Academic press, New York, (1985).
20. D. Ricard, P. Roussognal and C. Flytzanis, Opt. Lett., **10**, 511 (1985).
21. U. Kreibig and M. Vollmer, Optical properties of metal clusters, p.80, Springer, Berin, (1995).
22. T. Liu and R. Samuels, J. Polym. Sci. B, **39**, 2481 (2001).
23. S.-L. Li, K. M. Wang, F. Chen, X.-L. Wang, and G. Fu, Opt. Exp., **12**, 747 (2004).