

Diss. ETH No. 18453

# Applications of GHz Ultrasound: Material Characterization and Wave Propagation in Microstructures

A dissertation submitted to

ETH ZURICH

for the degree of  
Doctor of Sciences

presented by

JÜRIG BRYNER

Dipl. Masch-Ing. ETH  
born April 19, 1976  
citizen of Kloten (ZH)

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. J. Dual, examiner  
Prof. Dr. Th. Dekorsy, co-examiner

2009

# Abstract

Short pulse laser acoustics is a powerful method for measurements and the characterization of thin films and microstructures. With the pump probe technique laser pulses with a duration of about 100 fs excite mechanical waves in the specimen of interest. These laser pulses are called pump pulses. The waves propagate into the specimen and at the interfaces and boundaries of the specimen the waves are scattered. The waves propagating back to the surface can be detected by laser pulses with a variable time delay with respect to the excitation, the probe pulses. The presence of mechanical strain influences the optical reflectivity at the surface of the specimen. This is called the photoelastic effect. So by the measurement of the intensity of the probe pulses reflected at the surface of the specimen it is possible to determine the times of arrival of mechanical waves.

For the full interpretation of the pump probe measurements and for the extraction of as much as possible information from the measurements it is essential to have a numerical simulation tool. In this work a complete one dimensional numerical simulation tool based on finite differences is presented. The excitation of the mechanical waves by the pump laser pulse is modeled with a two temperature model. Two temperature models take into account that during very fast heating processes in metals the temperature of the electrons and the lattice are not in equilibrium. The wave propagation is modeled with a viscoelastic material model, the standard linear solid. The viscoelastic model incorporates the attenuation of the mechanical waves. The detection of the mechanical waves is modeled with a photoelastic model. With the simulation tool it is possible to interpret and quantitatively evaluate pump probe measurements of multilayered specimens with interfering wave patterns. The thickness and attenuation of buried layers can be determined with the help of this tool. Additionally, for microstructures with lateral boundaries the wave propagation is simulated using a 3-dimensional model.

In this work the laser acoustic pump probe technique using ultrasound in the GHz regime is applied to specimens with thicknesses of some nanometers up to some microns. The lower limit of detectable thicknesses is determined by the wavelength of the mechanical waves. The wavelength of the mechanical waves must be smaller or in the order of the object to be detected. The upper limit is theoretically determined by the attenuation of the mechanical waves only. In the application the maximum time window of the experimental setup must be large enough to capture the reflected mechanical waves. The experimental setup is explained and some important features are discussed in detail. A collinear beam guidance is applied to the pump and probe beams in order to use a microscope objective for an enhanced focusing with spot dimensions of 3-5  $\mu\text{m}$ . The delay line enabling the temporal shift between pump and probe beam is equipped with two retroreflectors. This configuration

allows multiple reflections and thus is increasing the maximum time window of the measurements. At the same time the use of retroreflectors instead of single mirrors decreases measurement errors caused by beam walking.

Two differently deposited aluminum thin films are investigated regarding their attenuation. It turns out that there is a significant attenuation in the GHz regime and that the attenuation in the sputtered film is about 3 times higher than in the film deposited by electron-beam evaporation. For the analysis of the attenuation in buried layers, the attenuation in the aluminum top layer must be considered.

The analysis of polymers used for nanoimprinting lithography reveals that there is a significant attenuation in the range of 50 GHz, but it is still on a similar level as in sputtered aluminum. So pump probe measurements on polymer specimens with thicknesses in the range of some hundred nanometers are possible without difficulties. Moreover, for PMMA specimens thinner than 80 nm, an increase of the bulk wave velocity is found. Additionally, an influence of the surface material on bulk wave velocity is found for very thin PMMA layers with thicknesses in the range of 10-30 nm. With measurements on different structured polymer specimens the capabilities of the pump probe setup regarding lateral characterization is shown. For structured specimens with feature sizes between 10 and 100 $\mu$ m laterally resolved measurements are done. Like this in a scanning setup 2-dimensional thickness maps can be generated. Specimens with submicron structures are analyzed by measuring their mechanical resonance frequencies. This procedure is successfully shown for specimens with imprinted holes.

A measurement series is done with thin films used in photovoltaics with special interest on the active area materials: Hydrogenated amorphous silicon and hydrogenated microcrystalline silicon. For both, amorphous and microcrystalline silicon films, the determined mechanical properties as bulk wave velocity, Young's modulus, and density significantly differ from the values for crystalline bulk material. E.g. the bulk wave velocity of the amorphous silicon films is found to be 8.4% smaller, and that of microcrystalline silicon films is found to be 3.7% smaller than the value for crystalline silicon [100]. For the microcrystalline silicon specimens a correlation between the crystalline volume fraction and the bulk wave velocity is found. Photovoltaic multilayer stacks with several layers are successfully analyzed with the pump probe setup. With a single pump probe measurement, the thickness of 4 layers is determined.

Silicon microstructures, i.e. modified atomic force microscopy (AFM) tips, are analyzed numerically and experimentally. By a 3-dimensional numerical orthotropic model the wave propagation is simulated in silicon tips regarding their applicability for the focusing and detection of mechanical waves. The simulations show that a compromise must be found between optimal focusing and optimal detection properties. Pump probe measurements of a series of 4 modified AFM tips show the feasibility of launching and detecting waves in the GHz regime in 3-dimensional micro structures.

# Zusammenfassung

Die Kurzpuls Laserakustik ist sehr gut geeignet für die Messung und die Charakterisierung von Dünnschichten und Mikrostrukturen. Die Pump Probe Technik verwendet ungefähr 100 fs lange Laserpulse, um in der zu untersuchenden Probe mechanische Wellen anzuregen. Diese Laserpulse werden Pumppulse genannt. Die Wellen breiten sich im Probenstück aus und werden an Materialübergängen und an Grenzflächen reflektiert. Die Wellenpakete, die an die Oberfläche des Probenstücks zurücklaufen, können mit zeitlich versetzten Laserpulsen, den Probepulsen, detektiert werden. Mechanische Dehnung verändert die optischen Reflexionseigenschaften an der Oberfläche eines Probenstücks. Diese Eigenschaft wird photoelastischer Effekt genannt. Mit der Messung der Intensität der an dem Probenstück reflektierten Probepulse können so Ankunftszeiten mechanischer Wellen bestimmt werden.

Für die vollständige Interpretation von Pump Probe Messungen und um möglichst viel Information aus den Messungen zu kriegen, ist es wichtig ein numerisches Simulationstool zu haben. In dieser Arbeit wird ein komplettes eindimensionales numerisches Tool präsentiert, das auf finiten Differenzen basiert. Die Anregung der mechanischen Wellen durch den Pump Laserpuls wird mit einem Zweitemperatur-Modell modelliert. Im Zweitemperatur-Modell wird berücksichtigt, dass bei sehr schneller Erwärmung in Metallen die Elektronen und das Gitter nicht im thermischen Gleichgewicht sind. Die Wellenausbreitung wird mit einem viskoelastischen Modell modelliert, dem sogenannten linearen Standardkörper. Das viskoelastische Modell berücksichtigt die Dämpfung von mechanischen Wellen. Die Detektion der mechanischen Wellen wird mit einem photoelastischen Modell simuliert. Mit dem Simulationstools ist es möglich, Pump Probe Messungen von mehrschichtigen Proben mit interferierenden Wellenmustern zu interpretieren und quantitativ auszuwerten. Selbst für verdeckte Schichten können die Dicke und die Dämpfung mit diesem Tool bestimmt werden. Für Mikrostrukturen mit seitlichen Grenzflächen wird die Wellenausbreitung mit einem dreidimensionalen Modell simuliert.

In dieser Arbeit wird die laserakustische Pump Probe Technik, die mit Ultraschall im GHz-Bereich arbeitet, angewendet auf Probenstücke mit Dicken im Bereich von einigen Nanometern bis hinauf zu einigen Mikrometern. Die untere Grenze von detektierbaren Schichtdicken ist bestimmt durch die Wellenlänge der mechanischen Wellen. Die Wellenlänge der mechanischen Wellen muss kleiner oder in der gleichen Größenordnung sein, wie die Dicke der zu untersuchenden Schicht. Die obere Grenze von detektierbaren Schichtdicken ist theoretisch nur durch die Dämpfung der mechanischen Wellen limitiert. In der Praxis muss zusätzlich das maximal mögliche Zeitfenster des Messaufbaus gross genug sein, um die reflektierten mechanischen Wellen zu detektieren. Der Messaufbau wird erklärt und die wichtigsten Komponenten werden detailliert diskutiert. Um für eine verbesserte Fokussierung ein

Mikroskopobjektiv gebrauchen zu können, wird eine kollineare Strahlführung für den Pump und den Probe Laser verwendet. Das verwendete Mikroskopobjektiv fokussiert die Laserstrahlen auf einen Durchmesser im Bereich von 3-5  $\mu\text{m}$ . Die Delay-Line, die den Zeitversatz zwischen Pump und Probe Laser steuert, ist mit zwei Retroreflektoren ausgestattet. Das ermöglicht Mehrfachreflexionen, die das maximal mögliche Zeitfenster des Messaufbaus vergrössern. Gleichzeitig verkleinern die Retroreflektoren Messfehler durch Beam Walking im Vergleich zu Einzelspiegeln.

Zwei unterschiedlich aufgebrachte Aluminiumschichten werden hinsichtlich ihrer Dämpfung untersucht. Es stellt sich heraus, dass die Dämpfung im GHz Bereich beträchtlich ist und sie in der gesputterten Schicht etwa 3 Mal grösser ist als in der aufgedampften Schicht. Die Dämpfung in Aluminiumschichten muss berücksichtigt werden bei der Untersuchung der Dämpfung von darunterliegenden Schichten.

Die Analyse von Polymerschichten, die in der Nanoimprinting Lithographie verwendet werden, zeigt, dass die Dämpfung im Bereich von 50 GHz in Polymerschichten zwar beträchtlich ist, aber nicht signifikant grösser als in gesputterten Aluminiumschichten. Deshalb sind Pump Probe Messungen in Polymerschichten mit Dicken von einigen hundert Nanometern kein Problem. Für Polymerschichten dünner als 80 nm werden erhöhte P-Wellengeschwindigkeiten gemessen. Zusätzlich wird für sehr dünne Polymerschichten mit Dicken im Bereich von 10-30 nm ein Einfluss vom Trägermaterial auf die P-Wellengeschwindigkeit festgestellt. Messungen auf strukturierten Polymerproben zeigen das Potential der Pump Probe Technik hinsichtlich örtlich aufgelösten Messungen. Polymerproben mit Strukturgrössen zwischen 10 und 100  $\mu\text{m}$  werden örtlich aufgelöst gemessen. So können in einem Scanprozess zweidimensionale Dickenkarten erstellt werden. Proben mit Strukturgrössen im Submikrometerbereich werden mit der Messung von Resonanzfrequenzen charakterisiert. Dies wird an Proben mit Lochstrukturen erfolgreich gezeigt.

Für Dünnschichten, die in der Photovoltaik eingesetzt werden, wird eine Messreihe durchgeführt. Der Fokus dieser Messungen liegt auf den amorphen und mikrokristallinen Siliziumschichten. Für beide Typen von Siliziumschichten weichen die gemessenen mechanischen Eigenschaften wie P-Wellengeschwindigkeit, E-Modul und Dichte erheblich von den Werten von kristallinen Proben ab. Zum Beispiel ist die gemessene P-Wellengeschwindigkeit in den amorphen Siliziumfilmen um 8.4% kleiner und in den mikrokristallinen Filmen um 3.7% kleiner als in kristallinem Silizium [100]. Für die mikrokristallinen Proben wird ein Zusammenhang zwischen dem Kristallinitätsgrad und der P-Wellengeschwindigkeit festgestellt. Mehrschichtige Proben aus der Photovoltaik werden erfolgreich mit Pump Probe Messungen untersucht. Mit einer einzelnen Pump Probe Messung können die Dicken von 4 verschiedenen Schichten bestimmt werden.

Modifizierte Siliziumspitzen aus der Atomkraftmikroskopie (AFM Spitzen) werden numerisch und experimentell untersucht. Mit einem dreidimensionalen numerischen orthotropen Modell wird die Wellenausbreitung in den Spitzen analysiert. Das Ziel ist eine optimale Fokussierung und Detektion von mechanischen Wellen. Die Simulationen zeigen, dass ein Kompromiss zwischen guter Fokussierung und guten Detektionseigenschaften gefunden werden muss. Eine Messreihe mit 4 modifizierten AFM Spitzen belegt, dass mechanische Wellen im GHz Bereich in dreidimensionalen Mikrostrukturen angeregt und wieder gemessen werden können.