

4. Kohärente Anregungen

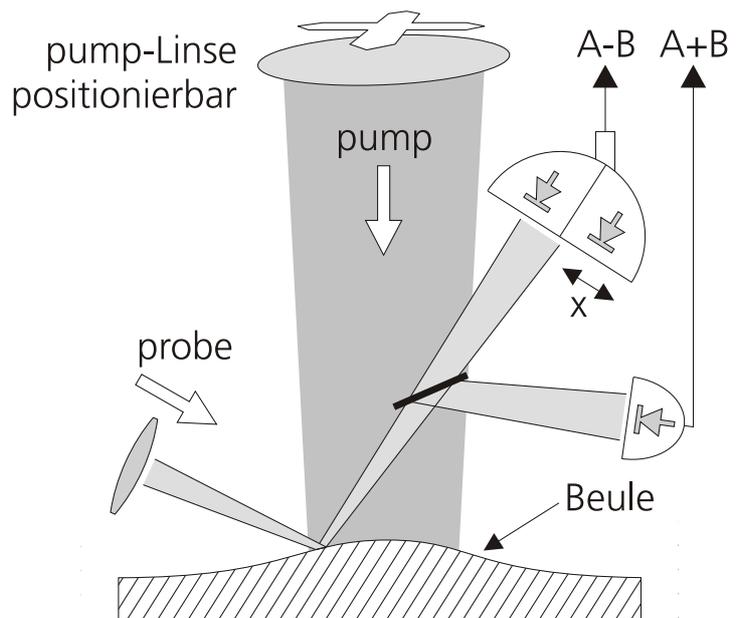
4.1. Einführung

Zu den transienten Reflektivitätsmessungen, die in [13, 34–36] vorgestellt wurden, sind über ein theoretisches Modell der optischen Konstanten Anpassungen des Zwei-Temperatur-Modells gemacht worden, aus denen die Parameter des *TTM* extrahiert werden konnten; in dieser Arbeit sind außerdem die *Dip*-Messungen, Kap.(3)₄₇, vorgestellt worden, noch gezeigt werden die Ablationsmessungen, Kap.(5)₈₇, die beide ebenfalls eine Beschreibung der Temperaturentwicklungen in den untersuchten Metallfilmen mit dem *TTM* zulassen und die Möglichkeit zur Anpassung von charakteristischen Größen und damit die Bestimmung von Parametern wie g , K_e , A_e , C_l bieten.

Die nach optischen Anregungen und der beschriebenen Dynamik in phononischen Zuständen gespeicherte Energie führt zu einer Ausdehnung des Gitters, die sich in einer Oberflächenverschiebung zeigt. Der Nachweis dieser Oberflächenausdehnung bietet daher einen vierten Zugang zu den genannten Parametern. Zur thermischen Charakterisierung von dünnen Filmen wurde diese Technik mit modulierten *cw*-Lasern von Reichling *et al.* [112, 113] und zur Auswertung von *Transient Thermal Gratings* von Käding *et al.* [114, 115] mit Hilfe von

Abbildung 4.1.:

Skizze des für die Messungen der Ablenksignale verwendeten Aufbaus. Mit der parallel zur Oberfläche verschiebbaren *pump*-Linse kann die relative Position von *probe*- und *pump*-Spot über Schrittmotoren gesteuert werden. Der reflektierte *probe*-Puls wird über einen Strahlteiler sowohl auf eine (normale) Diode als auch eine Quadrantendiode geleitet. Letztere befindet sich im Abstand von ca. 2 m von der Probe, um möglichst sensibel auf Strahlablenkungen zu sein. Die Signale werden mit LockIn-Technik ausgewertet.



Deflektions- und Thermoreflektivitätsmessungen ausgenutzt. Der Einfluss heißer Elektronen

auf die Dauer von Stressimpulsen wurde von Thomsen *et al.* [116] untersucht, die Ausdehnung in den Arbeiten von Wright *et al.* [27–31, 117–120] sowie Maznev *et al.* [7].

Im Zusammenhang mit den geometrischen Änderungen in Form einer Beule als Folge der Energiedeposition stehen lokale Stresswirkungen, die sich auf die Bandstruktur auswirken und sich damit auch in Änderungen der optischen Konstanten zeigen können. Während in Kap.(1)₅ ein Kriterium für die Wahl der Wellenlänge darin bestand, Gittertemperatureffekte zu vermeiden, können diese auch dafür benutzt werden, Stresswellen über eine Messung der Reflektivitätsänderung zu visualisieren. Solche Messungen werden in diesem Kapitel vorgestellt, wobei der Umfang im Vergleich zu den anderen Kapiteln relativ klein gehalten wird, da die Auswertung der Messungen, insbesondere die numerische Formulierung und die quantitative Beschreibung der expliziten Form der transienten Reflektivitätsänderungen noch nicht abgeschlossen ist.

4.2. Messungen von Strahldeflexionen

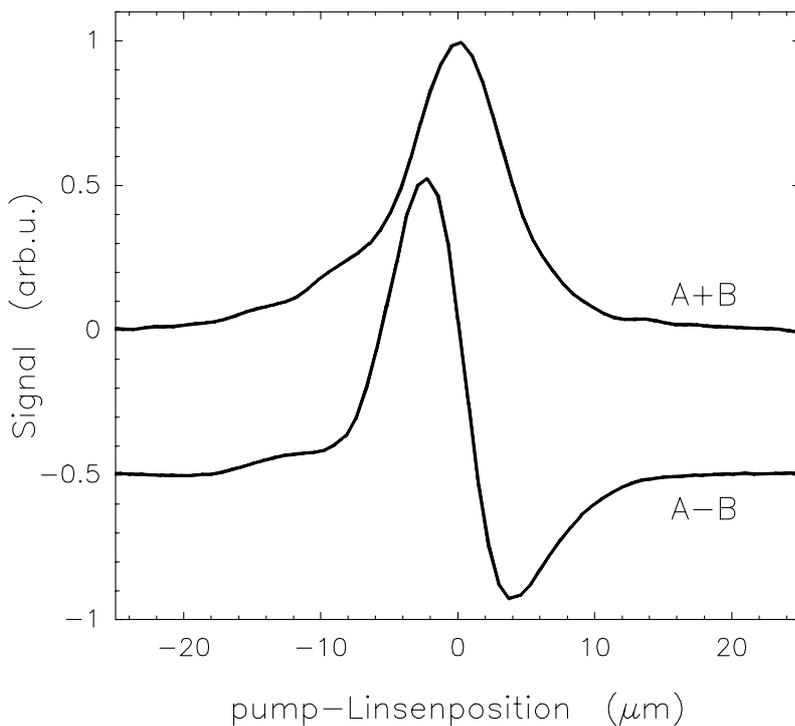


Abbildung 4.2.:

ΔR - und Deflexionssignal in Abhängigkeit der lateralen Verschiebung der *pump*-Linse an einem Au-Film ($d = 1.5 \mu\text{m}$) bei der *pump-probe*-Verzögerung $\Delta t = 100 \text{ ps}$, $\lambda_{\text{probe}} = 620 \text{ nm}$. Während das Reflexionssignal ($A + B$) über den geheizten Spot ein Gauß-ähnliches Profil zeigt, folgt das Ablenksignal ($A - B$) einem dispersionartigem Verlauf: an den "Hängen" der entstehenden geometrischen Beule ist das Deflexionssignal maximal, auf beiden Seiten mit unterschiedlichem Vorzeichen.

In Kap.(1.3.3)₂₂ wurde darauf hingewiesen, dass sich die Ablationsschwelle nicht durch die Berechnung einer kritischen Energiedichte innerhalb der optischen Eindringtiefe berechnen lässt, sondern dass das erhitzte Volumen durch die Diffusionslänge der Elektronen L_c bestimmt ist, vergleiche Gl.(1.34)₂₇. Eine ähnliche Erweiterung muss bei der Materialausdehnung berücksichtigt werden: [121] stellten die Frage nach der Limitierung der für die Ausdehnung benötigten Zeit. Als erster Ansatz kann λ_s/v_L angesehen werden, das Verhältnis von optischer Eindringtiefe und der Geschwindigkeit longitudinaler Phononen. In [7] wird gezeigt, dass dafür ebenso wie bei der Berechnung der Ablationsschwelle die Diffusionsprozesse berücksichtigt werden müssen und die Eindringtiefe der Energie L_c nach

Thermalisierung von Elektronen und Phononen $t \approx \tau_{ep}$ die Ausdehnung zeitlich begrenzt: L_c/v_L . Experimentell werden Zeiten $t > 100\text{ps}$ gefunden [28–30, 121, 122], die sich nicht mit dem Ansatz der optischen Eindringtiefe erklären lassen.

Wie von Maznev *et al.* [7] betont wurde, konzentrieren sich diese experimentellen Arbeiten auf das an der Filmrückseite reflektierte Echo und nicht auf die direktere Reaktion der Oberflächenausdehnung. Die Autoren beschreiben die Ausdehnung mit Hilfe der Integration der eindimensionalen Thermoelastizitätsgleichung, der Annahme einer Stufenfunktion für die Zeitentwicklung der Gittertemperatur, was aufgrund der unterschiedlichen Zeitskalen von Thermalisierungszeit und Oberflächenausdehnung gerechtfertigt ist, und kommen zu

$$u(z=0, t) \sim \int_0^{t \cdot v_L} T_l(z') dz' \quad . \quad (4.1)$$

Daraus ist zu erkennen, dass die Zeitentwicklung der Oberflächenverschiebung ein Maß der räumlichen Temperaturverteilung in der Probe ist. Hier bietet diese Methode den Ansatzpunkt zur Auswertung von experimentellen Daten im Sinne des *TTM*.

In Abb.(4.5)₇₉ ist eine typische Messung der Oberflächenausdehnung gezeigt, schwarz ist das Differenzsignal an einer Quadrantendiode des reflektierten Strahls gezeigt, weiß die integrale Änderung der Reflektivität. Die Kurven sind entsprechend durch “ $A - B$ ” und “ $A + B$ ” gekennzeichnet, als Symbol für die Verschaltung der Quadrantendiodensignale, auch wenn, wie aus Abb.(4.1)₇₅ zu erkennen ist, das ΔR -Signal, $A + B$, über einen halbdurchlässigen Spiegel und eine weitere Diode aufgenommen wurde. Zur Auswertung wurde wieder die LochIn-Technik benutzt und dementsprechend der *pump*-Strahl frequenzmoduliert, siehe Kap.(2.3)₄₂.

Zur Ablenkung des *probe*-Strahls sollte dieser möglichst am “Hang” der Beule mit maximaler Steigung positioniert werden, um eine effektive Ablenkung zu beobachten. Die typische Erhöhung im Zentrum einer solchen Beule liegt bei 0.5 nm, ist also sehr gering im Vergleich zur lateralen Spotausdehnung. In dem verwendeten Aufbau wurde die Linse, die den *pump*-Strahl auf die Probe fokussiert, mittels zweier Schrittmotoren parallel zur Probenoberfläche verschiebbar gehalten, wodurch sich das Ablenksignal optimieren ließ. In Abb.(4.2) sind das Reflexionssignal ΔR ($A + B$) und das Ablenksignal ($A - B$) in Abhängigkeit einer Koordinate der Linsenposition gezeigt. Entsprechend der Erwartung wechselt das Ablenksignal sein Vorzeichen auf beiden Seiten der Beule und ist maximal (minimal) an der Orten maximaler Steigung. Positioniert in einem solchen Maximum wurde die Zeitabhängigkeit von $A - B$ und $A + B$ aufgenommen und ist in Abb.(4.5)₇₉ gezeigt. Da sich auch aufgrund von lateralen Gradienten der optischen Konstanten auf der Probenoberfläche scheinbare Ablenksignal ergeben können [34], muss eine Änderung im Reflexionssignal durch die Wahl der Wellenlänge ausgeschlossen werden. Nur so kann das Deflexionssignal auch als solches identifiziert werden. Diese Bedingung ist in der in Abb.(4.5)₇₉ gezeigten Messung erfüllt. Die *Peaks* im Abzissenursprung sind auf eine solche angesprochene lateralen Änderung der optischen Konstanten zurückzuführen, wie in [34, 36] belegt wurde.

Die Ausdehnung der Beule, beschrieben durch Gl.(4.1), spiegelt die Temperaturverteilung in der Probe wider. Wie im Zusammenhang mit Abb.(1.12)₂₅ besprochen, wird dieses

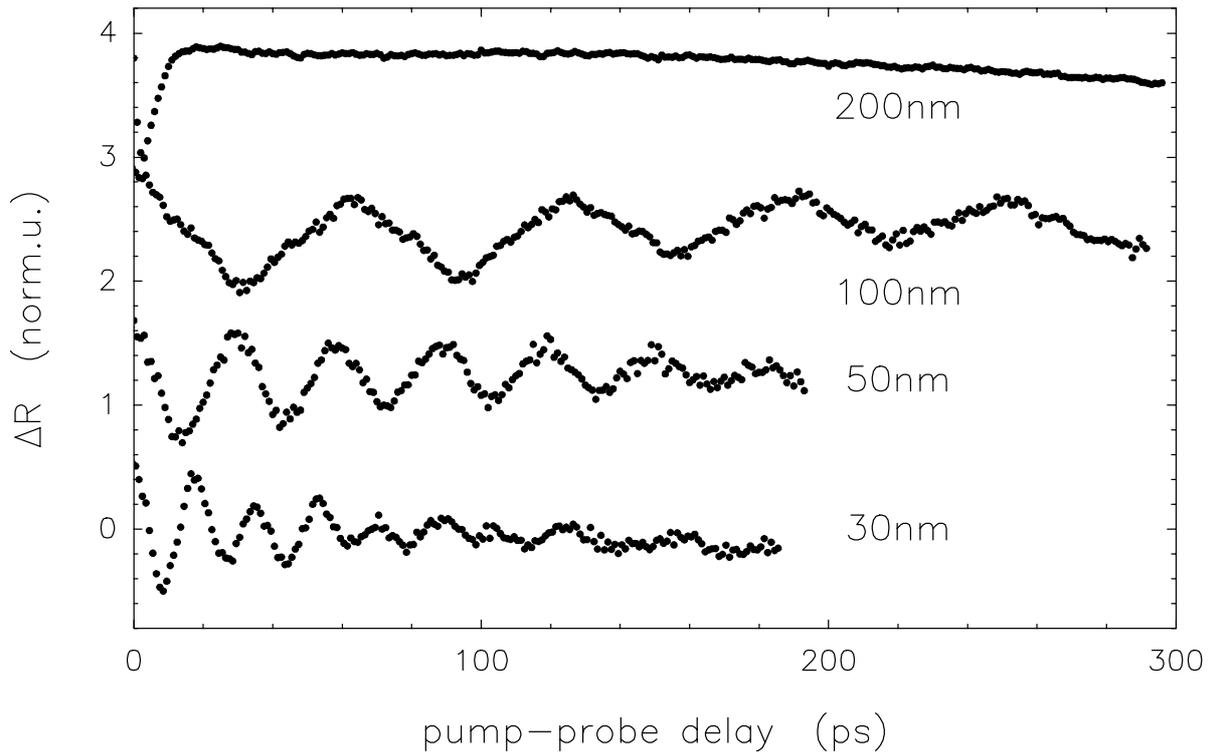


Abbildung 4.3.: ΔR -Signal an Au verschiedener Dicke (gekennzeichnet an den Daten) gemessen mit einem *probe*-Puls der Wellenlänge $\lambda = 508\text{nm}$. Deutlich zu erkennen ist die Ausbildung von Oszillationen im Film. Die Auftragung der Periodenlänge über die Filmdicke ist in Abb.(4.4) gezeigt.

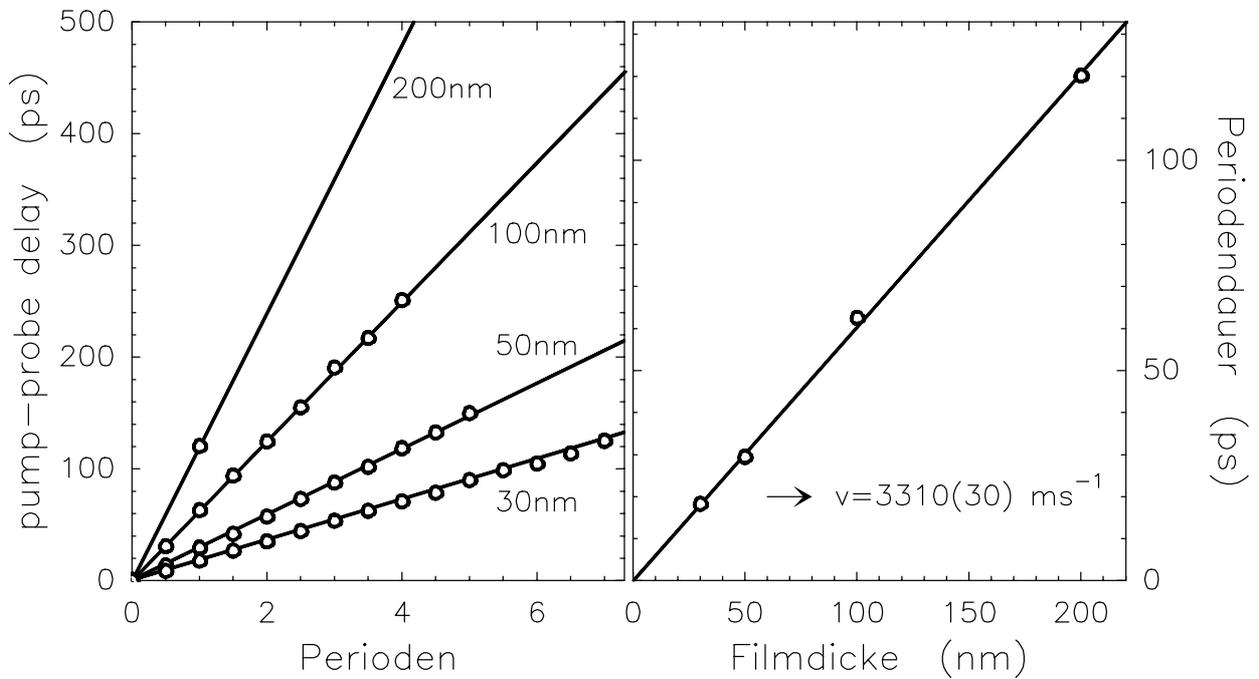


Abbildung 4.4.: Auftragung der Periodenlängen (links) der Oszillationen in Abb.(4.3) und deren Mittelwert über der Filmdicke (rechts). Der sich daraus ergebende Werte der Ausbreitungsgeschwindigkeit von $v = 3310(30)\text{ m s}^{-1}$ ist verträglich mit dem Literaturwert $v = 3240\text{ m s}^{-1}$ [105].

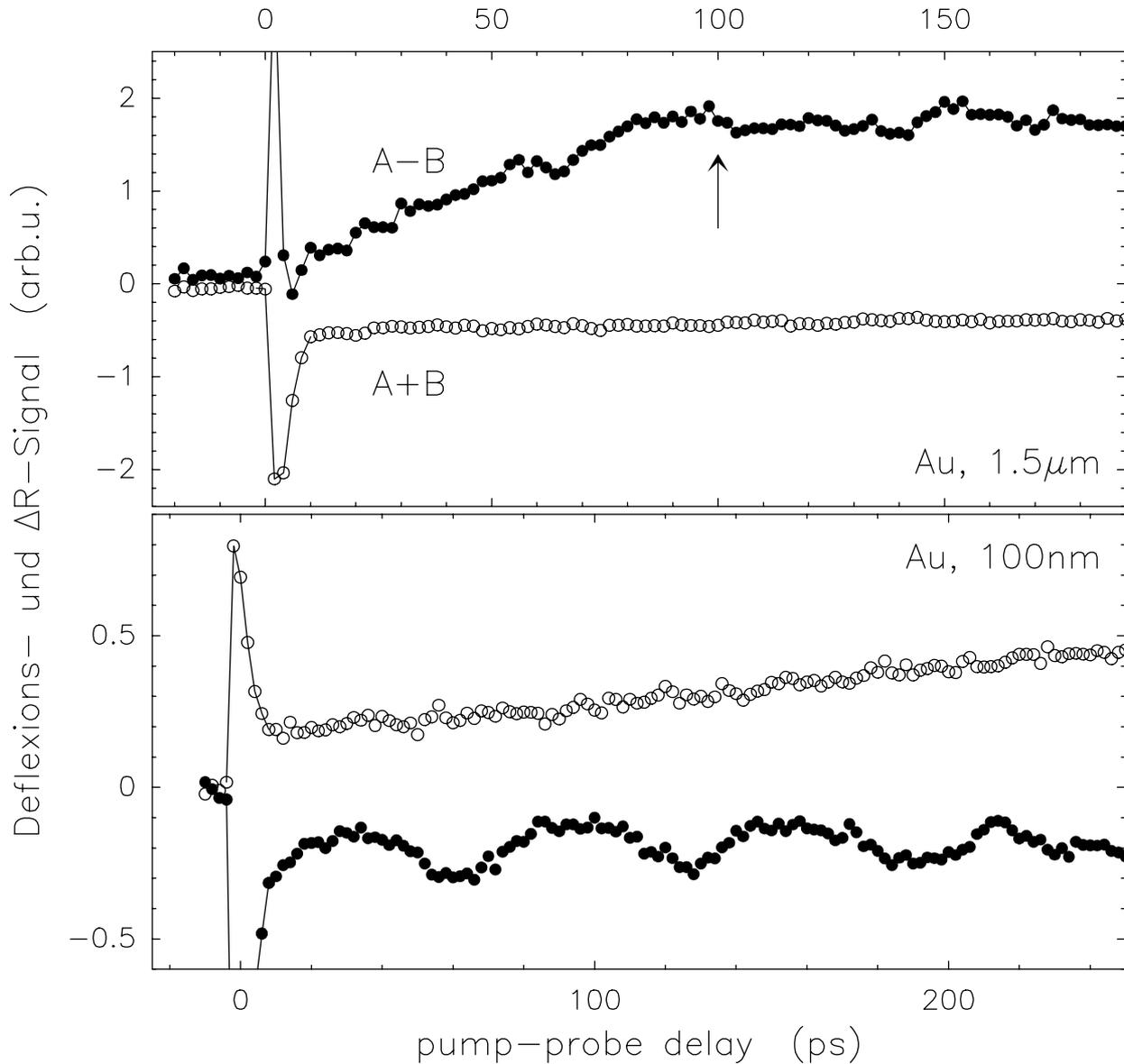


Abbildung 4.5.: Reflektivitätsänderung (Kreise) und Ablenssignal (schwarze Punkte) an Gold der Dicke $d = 1.5 \mu\text{m}$ (oben) und $d = 100 \text{nm}$ (unten) für $\lambda_{\text{probe}} = 620 \text{nm}$. Das Deflexionssignal zeigt einen langsamen Anstieg der dem Ausbilden einer Beule zugeordnet werden kann. Dieser sättigt bei 100 ps, woraus eine Diffusionslänge von ca. 320 nm folgt. Bei der Filmdicke von 100 nm (unten) ist das Probenmaterial homogen geheizt das Erreichen des maximalen Deflexionssignals entsprechend schneller. Außerdem sind Oszillationen aufgrund einer Stresswelle zu beobachten. Das in diesem Zeitbereich konstante ΔR garantiert die Messung eines reinen Deflexionssignals mit der Quadrantendiodeverschaltung $A - B$.

Profil bei dicken Filmen nach der Elektron–Phonon–Thermalisierungszeit durch die Diffusionslänge der Elektronen L_c beschrieben. Aus dem am $1.5\ \mu\text{m}$ –Au–Film gemessenen Anstieg im Ablenksignal in Abb.(4.5)₇₉ kann die charakteristische Zeit $\tau_{\text{exp}} = 100\text{ ps}$ als Ausdehnungszeit abgelesen werden (Pfeil), die daher mit der longitudinalen Schallausbreitungsgeschwindigkeit von $v_l = 3240\text{ m s}^{-1}$ [105] auf eine Diffusionslänge von $L_c \approx 320\text{ nm}$ schließen lässt: $L_c \approx v_l \cdot \tau_{\text{exp}}$. Dieser Wert ist in sehr guter Übereinstimmung mit [7] und auch mit den im nächsten Kapitel vorgestellten Ablationsmessungen.

Wird die Filmdicke reduziert und die Messung an einem 100 nm –Au–Film wiederholt (Abb.(4.5)₇₉, unten), so ist der Film schneller homogen geheizt und das Maximum der Ausdehnung schneller erreicht. Durch den Impedanz–Unterschied von Probenmaterial und Substrat bilden sich Oszillationen mit der Periode $2 \cdot d/v_L$ aus, die sich bei dem dünnen Film im Ablenksignal zeigen.

4.3. Kohärente Anregung von Stresswellen

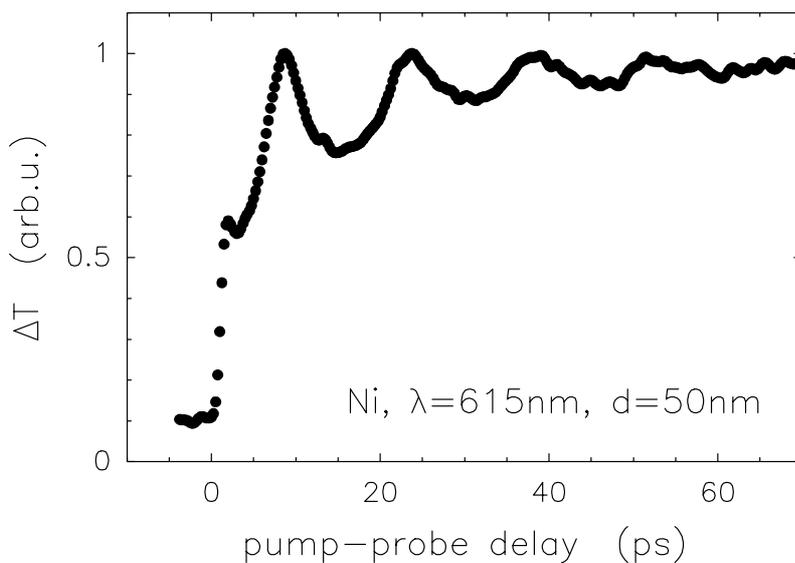


Abbildung 4.6.: Transmissionsänderung ΔT in Abhängigkeit der Zeit an einem 50 nm –Ni–Film. Die Auswertung der Perioden ergibt eine Schallausbreitungsgeschwindigkeit von $6600(100)\text{ m s}^{-1}$, der Literaturwert liegt bei $v_l = 6040\text{ m s}^{-1}$. Diese Abweichung ist gering in Bezug auf beeinflussende Faktoren wie Herstellungsverfahren und möglicherweise vorhandenen Stress in dem untersuchten 50 nm –Film.

Wie aus den in Abb.(4.5)₇₉ dargestellten Messungen hervorgeht, zeigt sich im ΔR –Signal keine Gittertemperaturabhängigkeit bei der Wellenlänge von $\lambda = 620\text{ nm}$. Anders verhält sich dieses Signal bei $\lambda = 508\text{ nm}$ aufgrund größer Sensibilität gegenüber der Bandstrukturverschiebung mit dieser Energiedifferenz. In Abb.(4.3)₇₈ sind die transienten Reflektivitätsänderungen an Au–Filmen mit verschiedenen Dicken gezeigt, die alle die Stressoszillationen widerspiegeln. Bei bekannter Dicke lässt sich aus diesen Oszillationen die Schallgeschwindigkeit berechnen. Dazu sind in Abb.(4.4)₇₈–links die Periodenlängen ausgewertet und rechts entsprechend über der Filmdicke aufgetragen, so dass aus der Steigung eine Schallgeschwindigkeit von $v_l = 3310(30)\text{ m s}^{-1}$ abzulesen ist. Dies ist verträglich mit dem Literaturwert von $v_l = 3240\text{ m s}^{-1}$ [105]. Umgekehrt lässt sich dieses Verfahren dazu benutzen, bei bekannter Schallgeschwindigkeit die Filmdicke zu bestimmen. Dies wurde

z.B. von *Rudolph Technologies* technologisch umgesetzt, um mit sowohl hoher Geschwindigkeit als auch großer Präzision Filmdickenmessungen insbesondere an Halbleiter-Wafern zerstörungsfrei durchzuführen. Siehe auch [123, 124].

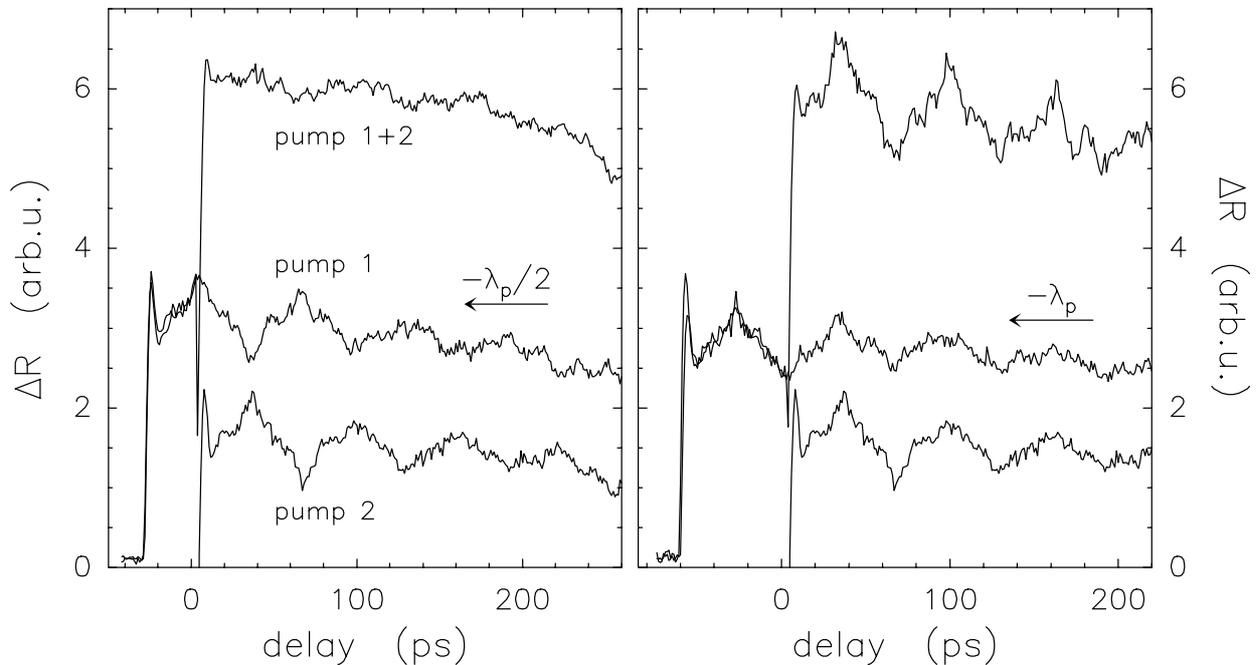


Abbildung 4.7.: Destruktive (links) und konstruktive (rechts) Überlagerung von Stresswellen an 100 nm–Au, beobachtet in der Reflektivitätsänderung der Probenoberfläche aufgrund von Bandstrukturverschiebungen. Durch die zeitliche Verschiebung von zwei *pump*-Pulsen kann die Überlagerung der den Anregungen folgenden Stresswellen gesteuert werden. Gezeigt sind sowohl die Einzel- als auch die Interferenzsignale.

Wie bereits in der Einleitung erwähnt, konzentrieren sich die Messungen in diesem Kapitel auf die transienten Reflektivitätsänderungen der Probe. Am Beispiel von Nickel ist gezeigt, dass sich diese Änderung der optischen Konstanten auch im Transmissionssignal äußert, das in Abb.(4.6) gezeigt ist. Die daraus zu ermittelnde Schallgeschwindigkeit von $6600(100) \text{ m s}^{-1}$ liegt zwar 10 % über dem Literaturwert, was aber aufgrund von möglicherweise auftretenden Spannungen in diesem 50 nm–Film eine akzeptable Abweichung ist. Eine systematische Untersuchung der Filmdickenabhängigkeit dieses Signals sollte sich anschließen und könnte Aufschluss über die Abweichung geben.

In Abb.(4.7) und Abb.(4.8)₈₂ wird gezeigt, dass sich die beobachteten Stresswellen kohärent überlagern lassen. Für die Messungen wurde wieder eine *pump-pump-probe*-Anordnung wie in den *Dip*-Messungen, siehe Abb.(3.11)₆₀, verwendet. Die zeitliche Verzögerung zwischen den beiden *pump*-Pulsen wurde über eine *Delayline* gesteuert und in Abb.(4.7) links gleich der halben und rechts einer ganzen Periodenlänge der Oszillation λ_p gewählt. Die Einzelsignale wurden dabei nacheinander aufgenommen, während der andere *pump*-Strahl abgedeckt war. Bei Überlagerung beider Pulse zeigt sich bei destruktiver Überlagerung, also einer Verschiebung um $\Delta t = \lambda_p/2$ eine vollständige Auslöschung der

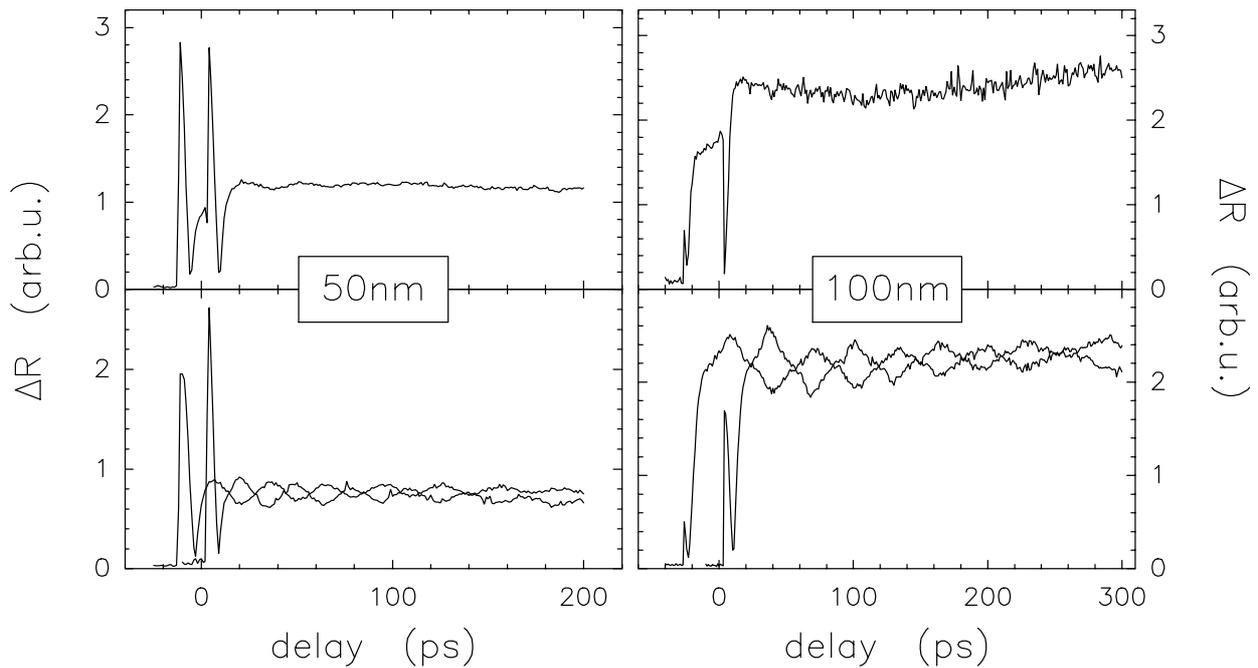


Abbildung 4.8.: ΔR -Oszillationen an 50 nm (links) und 100 nm-Gold (rechts). Die Überlagerung der Einzelsignale (unten) führt zur destruktiven Interferenz der Stresswellen.

Oszillation, während die konstruktive Interferenz bei $\Delta t = \lambda_p$ zu einer Verstärkung der Oszillationsamplitude führt. Exemplarisch sind dazu die Auslöschung an einem 50 nm und einem 100 nm-Au-Film im Vergleich in Abb.(4.8) gezeigt.

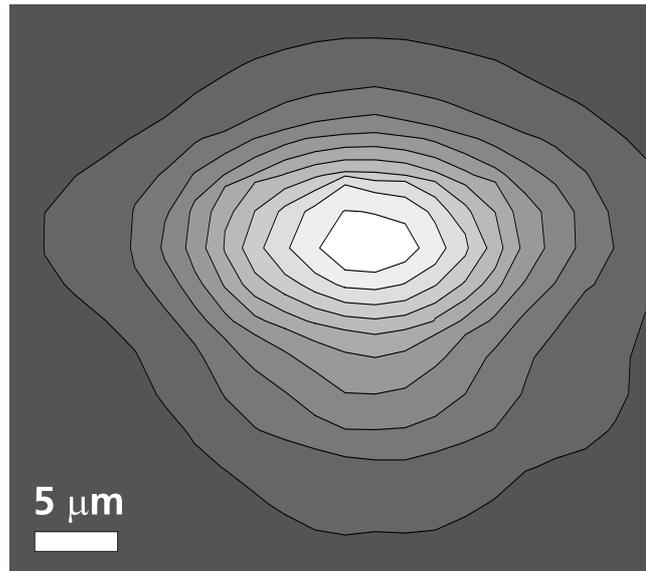
Mit der Ausrüstung der fokussierenden *pump*-Linse mit einer Verschiebetischhalterung kann das laterale ΔR -Profil auf der Probenoberfläche vermessen werden. Das Ergebnis einer solchen Messung ist für einen Gold-Film der Dicke $d = 1.5 \mu\text{m}$ in Abb.(4.9) gezeigt. Wird dieses Profil zeitabhängig aufgenommen, kann daraus auf den lateralen Energietransport geschlossen werden.

Diese Größe wurde bei den bisherigen Messungen und bei den Berechnungen mit dem Zwei-Temperatur-Modell vernachlässigt, die Transportphänomene sowie auch die Ausdehnung nach [7] mit Gl.(4.1)₇₇ beziehen sich auf eine eindimensionale Betrachtung parallel zur Oberflächennormalen. Die Berechtigung dafür liegt in der Tatsache, dass die Dickenbereiche, in denen Filmdickenabhängigkeiten untersucht wurden, deutlich kleiner als die lateralen Pulsprofilausdehnungen von mindestens $15 \mu\text{m}$ sind. Damit konnte der laterale Temperaturgradient in der Nähe des *pump*-Pulszentrums vernachlässigt werden. Zu großen Zeiten und insbesondere bei den dickeren Filmen lässt sich dieser Energietransport nicht mehr ohne weiteres vernachlässigen. In den in Kap.(3)₄₇ und Kap.(5)₈₇ vorgestellten Messungen braucht dieser Effekt aber im Rahmen der Fehlergrenzen nicht zu berücksichtigt werden.

Die Abb.(4.10)₈₄ zeigt links die Reflektivitätsänderung $\Delta R(x)$ an einem $1.5 \mu\text{m}$ -Gold-Film zu verschiedenen zeitlichen Verzögerungen von *pump*- und *probe*-Puls. Während das ΔR -Maximum mit t abnimmt, verbreitert sich die Verteilung. Um ein Maß für die laterale Diffusion zu definieren, wurde der radiale Schwerpunkt bestimmt (die beiden Flanken der Verteilung wurden dazu gemittelt) und rechts in Abb.(4.10)₈₄ über der Zeit

Abbildung 4.9.:

Laterales ΔR -Profil der Au-Probenoberfläche. Während mit dem *probe*-Puls die Reflektivitätsänderung gemessen wird, wurde mit einem Positioniertisch die Linse, mit der der *pump*-Puls auf die Probenoberfläche fokussiert wird, verschoben. Siehe auch Abb.(4.1)₇₅.



aufgetragen. Die Steigung gibt die Geschwindigkeit des Transports an und stimmt innerhalb der Fehlergrenzen mit der Schallgeschwindigkeit überein. Diese Messung zeigt deutlich, dass ein Wärmetransport in lateraler Richtung stattfindet. Während hiermit keine präzisen Ausbreitungsgeschwindigkeitsmessungen durchgeführt werden können, zeigt dies doch, dass die Geschwindigkeit des Wärmetransports in der Größenordnung der Schallgeschwindigkeit liegt – Struktureffekte, die zu signifikant unterschiedlichen Ausbreitungsgeschwindigkeiten lateral und senkrecht zur Oberfläche führen, können ausgeschlossen werden. Interessant wäre in Bezug auf diese Betrachtung die Untersuchung dieser polykristallinen Film auf Korngrenzen und Strukturdomänenwände.

Eine mögliche Fehlerquelle in dieser Untersuchung könnte in einer *pump*-Profilbreitenabhängigkeit von der zeitlichen Verzögerung liegen. Um dies auszuschließen, wurden die *pump*-Strahldurchmesser mit Hilfe der in Kap.(2.3)₄₂ besprochenen Rasierklingenmethode an verschiedenen Positionen entlang des Strahlengangs vermessen. Die Werte sind in Abb.(4.11)₈₅ in Form von Punkten gezeigt. Eingetragen sind dabei auch der Ort der Probe sowie der fokussierenden Linse. Wird der Strahlenverlauf mit Hilfe der Gaußschen Strahlenoptik beschrieben, konvergiert der Strahldurchmesser w gegen eine Gerade:

$$w(z) = w_0 \cdot \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2}, \quad (4.2)$$

wobei w_0 und z_0 Breite und Länge der Strahltaile im Fokus sind. Auf der Bildseite einer Linse folgt für den Durchmesser w'_0 :

$$w'_0 = \frac{w_0 \cdot f}{\sqrt{(S-f)^2 + (\pi\lambda^{-1}w_0^2)^2}} \quad (4.3)$$

mit der Linsenbrennweite f und der Gegenstandsweite S , siehe z.B. [40]. Der sich entlang der Strahlrichtung damit berechnete Radius ist in Abb.(4.11)₈₅ eingetragen. Während

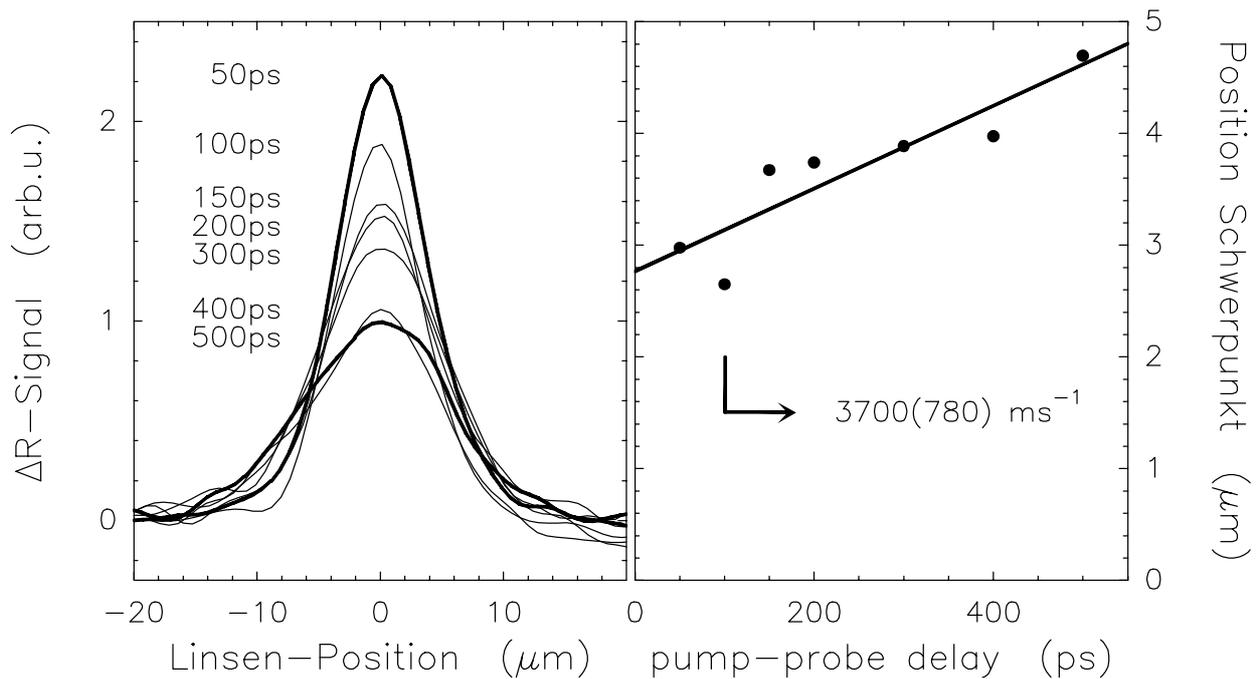


Abbildung 4.10.: Laterale Reflektivitätsänderung zu verschiedenen Zeiten an Au (links). Es zeigt sich eine Abnahme der Maximalreflektivitätsänderung und ein Ausschmieren der Verteilung, was auf eine laterale Energiediffusion hindeutet. Die Auftragung des radialen Schwerpunkts der Verteilung in Abhängigkeit der Zeit (rechts) ergibt eine Diffusionsgeschwindigkeit, die sich nicht von der Schallgeschwindigkeit unterscheidet.

diese Theorie nur als Näherung für das reale Laserprofil betrachtet werden kann und die berechneten theoretischen Strahltaillen deutlich zu klein sind, zeigt sich eine gute Übereinstimmung in der Strahlaufweitung aufgrund der Veränderung der Strahlengänglänge aufgrund der Verschiebung der *Delayline*. Die Messung der Profilbreite für zwei *Delays* im Abstand von $\Delta t = 500 \text{ ps}$, was einer Verschiebung der Spiegel auf der *Delayline* von 7.5 cm entspricht (und damit einer Weglängenänderung von 15 cm , siehe Abb.(3.11)₆₀), zeigt eine Strahlaufweitung von $18.7 \mu\text{m}$ auf $20 \mu\text{m}$. Diese 7%-Aufweitung ist in Übereinstimmung mit einer 10%-Aufweitung nach der theoretischen Berechnung. Eine 7%-Aufweitung des *pump*-Profils entspricht eine 3.5%-Verlagerung des radialen Schwerpunktes und ist damit im Rahmen der Messgenauigkeit im Vergleich zu der 40%-Schwerpunktsverschiebung, siehe Abb.(4.10), zu vernachlässigen.

Damit werden diese Betrachtungen hier abgeschlossen. Wie eingangs ausgeführt, sind die quantitativen Beschreibungen der Stresswellen noch Gegenstand der Diskussion und können hier noch nicht vorgestellt werden. Vielversprechende Ansätze zeigen die Verbesserung der Randbedingungen und die Berücksichtigung von weiteren Einflüssen bei der Herleitung der Gl.(4.1)₇₇.

Im folgenden Kapitel wird gezeigt, dass die Anregung mit höheren Fluenzen zu Gittertemperaturen im Bereich der Schmelztemperatur und damit zur Zerstörung des Materials führt. Da diese Zerstörung experimentell leicht nachweisbar ist, bietet sich über die Messung

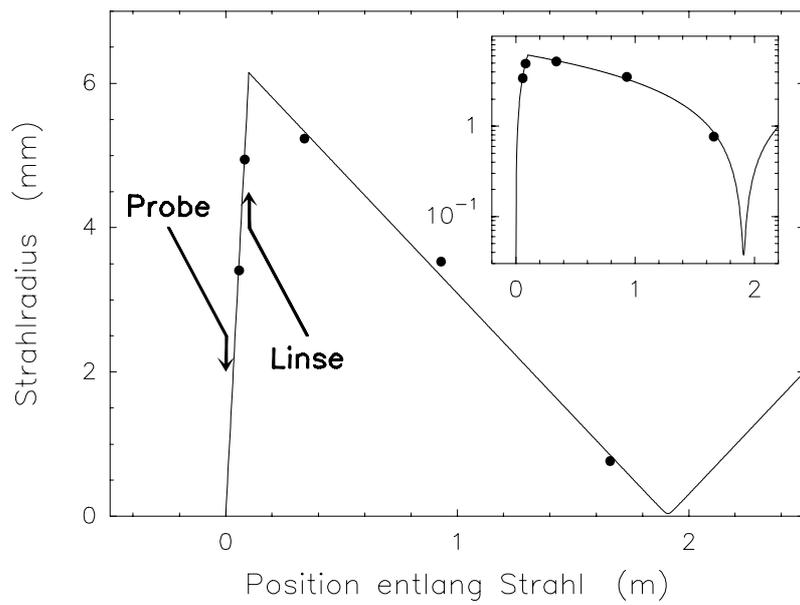


Abbildung 4.11.: Profilbreite des *pump*-Strahlenganges, gemessene Werte sind durch Punkte gekennzeichnet, die Linien sind entsprechend der Gaußschen Strahlenoptik berechnet. Das *Inset* zeigt die gleichen Werte mit logarithmischer Ordinate und verdeutlicht die Strahlaufweitung nach Gl.(4.2)₈₃.

der Ablationsfluenz die Möglichkeit der Bestimmung der in das *TTM* eingehenden Größen.