

Untersuchungen zur Bestrahlung von Goldschichten mit Doppelpulsen von ultrakurz gepulster Laserstrahlung

Markus Olbrich, Theo Pflug, Nick Börnert, Philipp Lungwitz, Andy Engel,
Peter Lickschat, Steffen Weißmantel, und Alexander Horn
Laserinstitut Hochschule Mittweida, Mittweida, Deutschland

Die Bestrahlung einer dünnen Goldschicht (Schichtdicke $d_z = 150$ nm, 25 nm Haftvermittlerschicht aus Chrom, Substrat: Quarzglas) mit Einzel- und Doppelpulsen von ultrakurz gepulster Laserstrahlung (Pulsdauer $\tau_H = 40$ fs, Wellenlänge $\lambda = 800$ nm, zeitlicher Pulsabstand $\Delta t = 400$ ps, Spitzenfluenz pro Puls $H_0 = 1,5 H_{thr}$, H_{thr} – Ablationsschwelle) ergibt signifikante Unterschiede zwischen der Topologie der Ablationsstrukturen des Einzel- und des Doppelpulses. Durch Simulationen mit Hilfe des Zwei-Temperatur-Modells in Kombination mit der Hydrodynamik (TTM-HD) können diese unterschiedlichen Topologien erklärt werden. Die Ursache stellt dabei die Wechselwirkung des zweiten Pulses mit der durch den ersten Puls erzeugten Ablationswolke, deren Erhitzung durch die Absorption des zweiten Pulses und die anschließende allseitige Expansion des entstehenden Gas-Flüssigkeits-Gemisches dar. Die berechneten Ergebnisse werden durch ultraschnelle abbildende Reflektometrie bestätigt und validiert.

1. Einleitung

Ultrakurz gepulste Laserstrahlung mit Pulsdauern im Femto- bis Pikosekundenbereich ermöglicht die präzise und effiziente Strukturierung von Festkörperoberflächen aufgrund der geringen wärmebeeinflussten Zone, wodurch sich in industriellen Verfahren, wie der Mikrostrukturierung von Oberflächen [1] oder dem Scriben für die Solarindustrie [2, 3] der Einsatz von ultrakurz gepulsten Lasersystemen etablieren konnte. Durch eine kontinuierliche Weiterentwicklung der Laser- und Verfahrenstechnik konnte die Bearbeitungseffizienz und Bearbeitungsqualität weiter gesteigert werden, was insbesondere durch den Einsatz hochrepetierender Lasersysteme [4, 5] sowie der Verwendung von Lasersystemen mit schnellen Pulsfolgen (sogenannten Bursts, d. h. Gruppen von Einzelpulsen in einer hochfrequenten periodischen Abfolge) gelang. Dabei sind derzeit Pulswiederholungsfrequenzen innerhalb der Pulsfolgen sowohl im MHz- als auch im GHz-Bereich möglich [6–8]. Die erzeugten Abtragsstrukturen sowie das daraus resultierende Abtragsvolumen und die Abtragseffizienz bei Bestrahlung Materialien mit schnellen Pulsfolgen im GHz-Modus (zeitlicher Pulsabstand 200 - 400 ps) unterscheiden sich grundlegend von der Bestrahlung mit schnellen Pulsfolgen im MHz-Modus (zeitlicher Pulsabstand 12,5 - 16 ns). Die physikalischen Ursachen, welche eine Änderung der Topografie der Abtragsstrukturen in Abhängigkeit von der Anzahl an Pulsen und deren zeitlicher Abstand bewirken, sind jedoch noch nicht verstanden. Für eine systematische Untersuchung dieser Abhängigkeiten ist eine systematische Variation der Pulsanzahl und deren zeitlichen Abstände in Kombination mit der Modellierung und Simulation des Abtragprozesses [9] sowie der Anwendung von ultraschneller Messtechnik [9, 10] notwendig. Aus diesem Grund sollen in diesem Artikel erste Untersuchungen für einen Doppelpuls von ultrakurz ge-

pulster Laserstrahlung (Pulsdauer $\tau_H = 40$ fs, Wellenlänge $\lambda = 800$ nm) mit einem konstanten zeitlichen Pulsabstand $\Delta t = 400$ ps vorgestellt werden.

2. Material und Methoden

Zur Erzeugung von Doppelpulsen von ultrakurz gepulster Laserstrahlung wurde die vom Laser (Ti-Saphir Laser, Astrella, Coherent Inc.) emittierte Laserstrahlung (Pulsdauer $\tau_H = 40$ fs, Wellenlänge $\lambda = 800$ nm) in einem auf dem Prinzip eines Mach-Zehnder-Interferometers basierenden Aufbau mit Hilfe eines polarisationsabhängigen Strahlteilers in zwei Teilstrahlen mit unterschiedlicher Polarisation aufgeteilt (Abbildung 1). Durch die Verwendung von jeweils einer $\lambda/4$ -Wellenplatte und einem Endspiegel in beiden Interferometerarmen wurde die Polarisation durch das zweimalige Propagieren durch die $\lambda/4$ -Wellenplatte um 90° relativ zur ursprünglichen Polarisationsrichtung im jeweiligen Interferometerarm gedreht, wodurch die beiden Teilstrahlen nach der Propagation durch den Strahlteiler wieder kollinear verlaufen, jedoch orthogonale Polarisationsrichtungen besitzen. Der zeitliche Pulsabstand kann durch die Verwendung einer mechanischen Verzögerungsstrecke in einem Interferometerarm definiert eingestellt werden.

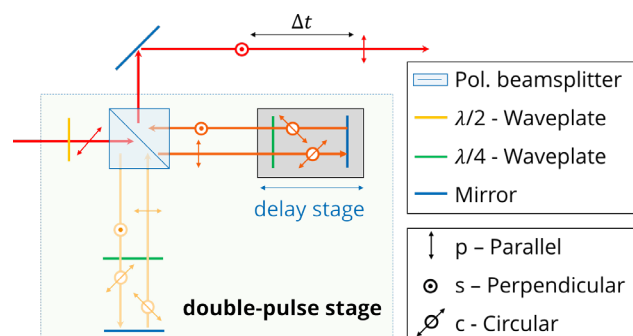


Abbildung 1: Schematischer Aufbau zur Erzeugung von Doppelpulsen von ultrakurz gepulster Laserstrahlung

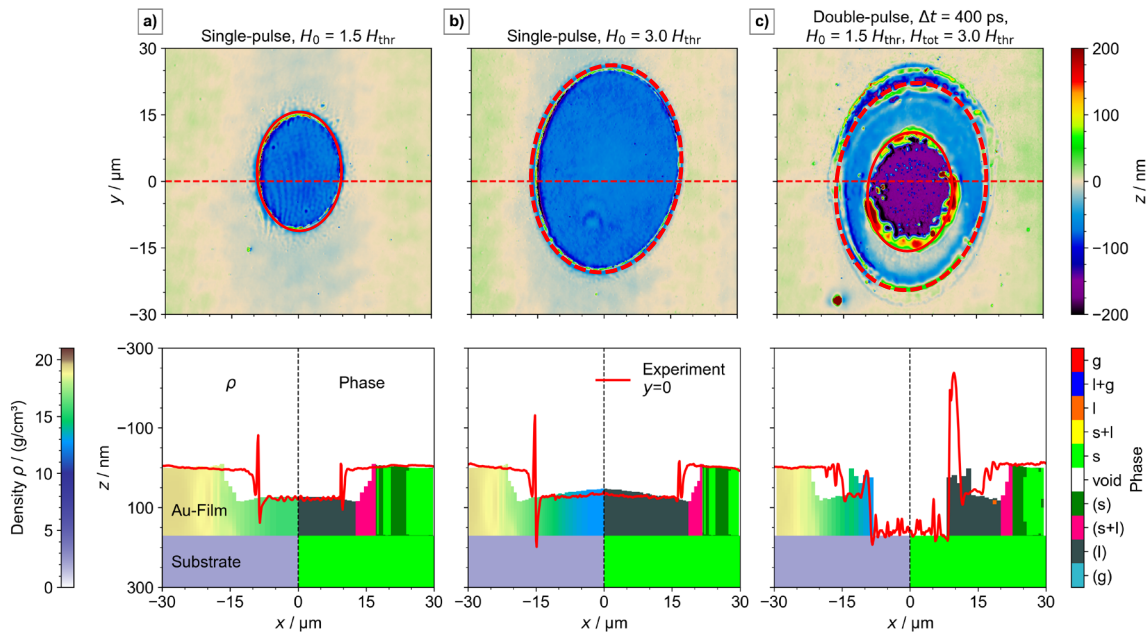


Abbildung 2: Mittels Laserscanningmikroskopie bestimmte Topografie der Abtragsstrukturen einer dünnen Goldschicht ($d_{z,\text{Au}} = 150 \text{ nm}$, $d_{z,\text{Cr}} = 25 \text{ nm}$, Quarzglassubstrat) nach Bestrahlung mit Einzelpulsen von ultrakurz gepulster Laserstrahlung ($\tau_H = 40 \text{ fs}$, $\lambda = 800 \text{ nm}$, $AOI = 53^\circ$) mit a) $H_0 = 1,5 H_{\text{thr}}$ und b) $H_0 = 3,0 H_{\text{thr}}$ sowie c) nach Bestrahlung mit Doppelpulsen von ultrakurz gepulster Laserstrahlung mit $H_{\text{tot}} = 2 \cdot 1,5 H_{\text{thr}}$ (oben). Weiterhin ist der Vergleich der experimentell erhaltenen mit der simulierten Abtragstiefe dargestellt (unten).

Der optische Aufbau zur Erzeugung von Doppelpulsen wurde in den vorhandenen Pump-Probe-Aufbau [10] integriert. Im Pump-Probe-Aufbau erfolgt die Bestrahlung der Materialoberfläche mit der Pumplaserstrahlung (Doppelpuls) unter einem Einfallswinkel von $AOI = 53^\circ$. Durch die Integration einer $\lambda/4$ -Wellenplatte vor der Fokussierlinse ($f' = 150 \text{ mm}$) wird die Polarisationsrichtung der beiden Pulse auf jeweils links- und rechtsdrehende zirkulare Polarisation eingestellt, wodurch für beide Pulse der gleiche Reflexionsgrad vorliegt und der Einfluss der unterschiedlichen Polarisationsrichtung der beiden Pulse auf das Ergebnis der Wechselwirkung der Laserstrahlung mit dem Material minimiert wird.

Für die Untersuchungen wurde eine 150 nm dicke Goldschicht auf einem Substrat aus Quarzglas verwendet. Weiterhin befindet sich noch eine ca. 25 nm dicke Schicht aus Chrom zwischen der Goldschicht und dem Substrat als Haftvermittler. Die Goldschicht wurde mit einem Doppelpuls mit einem zeitlichen Pulsabstand von 400 ps bestrahlt, wobei jeder einzelne Puls des Doppelpulses eine Spitzenfluenz von $H_0 = 1,5 H_{\text{thr}}$ und somit insgesamt $H_{\text{tot}} = 2 \cdot 1,5 H_{\text{thr}}$ aufwies. Die Schwellfluenz H_{thr} für einen Materialabtrag wurde im Vorfeld mit der Methode des quadrierten Strahldurchmessers in Abhängigkeit vom natürlichen Logarithmus der Fluenz (Liu-Plot-Methode [11]) bestimmt. Für einen Vergleich und zur Interpretation der erhaltenen Abtragsstrukturen nach der Bestrahlung mit einem Doppelpuls wurde die Goldschicht ebenfalls mit einem Einzelpuls mit jeweils $H_0 = 1,5 H_{\text{thr}}$ und $H_0 = 3,0 H_{\text{thr}}$ bestrahlt, wodurch zum einen Rückschlüsse auf die Wechselwirkung des ersten Pulses mit dem Material getroffen werden können und zum anderen ein direkter Vergleich des Doppelpulses

mit einem Einzelpuls gleicher Gesamtenergie möglich ist.

Die Topografie der erhaltenen Abtragsstrukturen wurden mittels Laserscanningmikroskopie bestimmt.

3. Topografie der Abtragsstrukturen

Die durch die Bestrahlung der Goldschichten mit Einzelpulsen erzeugten Abtragsstrukturen weisen für beide untersuchten Fluenzen, $H_0 = 1,5 H_{\text{thr}}$ und $H_0 = 3,0 H_{\text{thr}}$, eine konstante Abtragstiefe von ca. 100 nm über die gesamte Abtragsstruktur auf und sind von einer Erhöhung am Rand gekennzeichnet (Abbildung 2 a und b), was bereits in Vorversuchen beobachtet wurde [9, 12]. Die Topografie der Abtragsstruktur, welche durch die Bestrahlung mit Doppelpulsen erzeugt wurde, weist hingegen mehrere verschiedene Teilbereiche auf (Abbildung 2 c), wobei anzumerken ist, dass die Überlagerung der beiden Teilpulse nicht optimal war, wodurch durch den Versatz der beiden Teilpulse weitere Teilstrukturen entstanden sind, welche jedoch in diesem Artikel nicht weiter diskutiert werden sollen und stattdessen die Hauptstrukturen im Mittelpunkt stehen. In der Mitte der Wechselwirkungszone wurde die komplette Goldschicht sowie die Haftvermittlerschicht aus Chrom abgetragen. Durch den Vergleich mit den Abtragsstrukturen des Einzelpulses wird deutlich, dass die lateralen Abmessungen des Abtrages in der Mitte exakt den lateralen Abmessungen der Abtragsstruktur des Einzelpulses mit $H_0 = 1,5 H_{\text{thr}}$ entsprechen (Abbildung 2 a und c, rote Ellipse mit durchgezogener Linie). Die Abtragsstruktur in der Mitte ist von zwei Ringstrukturen umschlossen. Die erste Ringstruktur weist eine Erhöhung im Vergleich zum

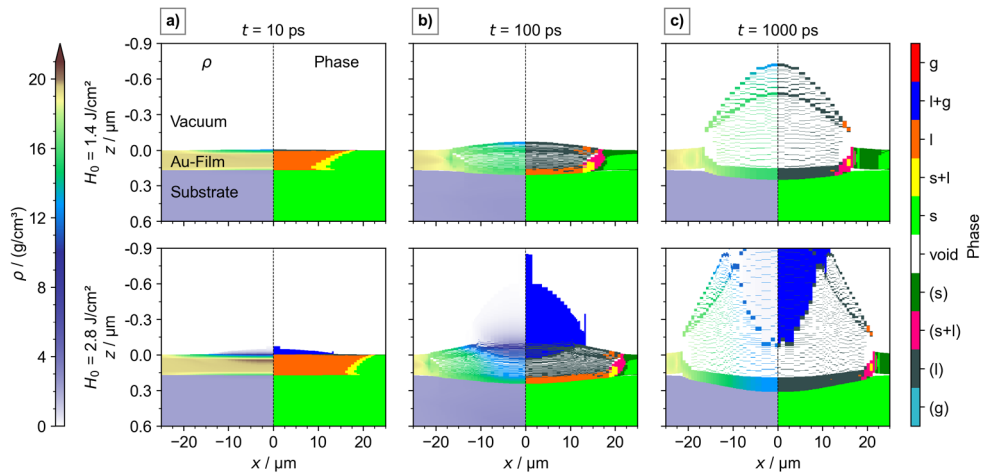


Abbildung 3: Simulierte quasi-zweidimensionale Verteilung der Dichte ρ und des Aggregatzustandes einer dünnen Goldschicht ($d_{z,Au} = 150 \text{ nm}$, $d_{z,Cr} = 25 \text{ nm}$, Quarzglassubstrat) für die Zeitpunkte a) 10 ps, b) 100 ps und c) 1000 ps nach der Anregung mit einem Einzelpuls von ultrakurz gepulster Laserstrahlung ($\tau_H = 40 \text{ fs}$, $\lambda = 800 \text{ nm}$, $H_0 = 1,5 H_{\text{thr}}$ (oben) und $H_0 = 3,0 H_{\text{thr}}$ (unten)).

unbearbeiteten Material auf, welche jedoch unregelmäßig ist und abgerundete Kanten aufweist. Dieser ersten Ringstruktur schließt sich eine zweite Ringstruktur an, welche durch eine konstante Abtragstiefe von ca. -100 nm gekennzeichnet ist und exakt die gleichen lateralen Abmessungen wie die Abtragsstruktur des Einzelpulses mit $H_0 = 3,0 H_{\text{thr}}$ besitzt. (Abbildung 2 b und c, rote Ellipse mit gestrichelter Linie).

Zur Erklärung der Topografie der erhaltenen Abtragsstrukturen wurden Simulationen auf der Basis des Zwei-Temperatur-Modells (Engl. TTM – two-temperature model) in Verbindung mit hydrodynamischen Berechnungen (HD – Hydrodynamics), kurz TTM-HD-Berechnungen [9], durchgeführt (Abbildung 3 und Abbildung 4).

Anhand der simulierten quasi-zweidimensionalen Verteilungen [9] der Dichte ρ und des Aggregatzustandes der Einzelpulse mit $H_0 = 1,5 H_{\text{thr}}$ und $H_0 = 3,0 H_{\text{thr}}$ (Abbildung 3) wird deutlich, dass bei beiden Fluenzen Spallation auftritt. Durch Spallation wird immer eine dünne geschlossene Schicht aus flüssigem Material an der Oberfläche des Wechselwirkungsbereiches abgetragen.

Dreidimensional gesehen ergibt sich somit eine als Spallationsblase oder Spallationskuppel bezeichnete Struktur. Zwischen der geschlossenen Schicht und dem nicht-abgetragenen Material befindet sich eine schaumartige Struktur. Für $H_0 = 3,0 H_{\text{thr}}$ tritt zusätzlich noch Phasenexplosion in der Mitte der Wechselwirkungszone auf, jedoch beeinflusst das dabei entstehende Gas-Flüssigkeits-Gemisch (GFG) nicht die Ablation von Material, sodass für beide Fluenzen Spallation die Ursache der Ablation darstellt. In der Simulation ergibt sich für beide Fluenzen ebenfalls eine konstante Abtragstiefe, welche nahezu mit der experimentell bestimmten Abtragstiefe (Abbildung 2 a, unten) übereinstimmt. Die Ursache der konstanten Abtragstiefe stellt die Interferenz der induzierten Verdichtungs- und Verdünnungswellen dar [9]. Der simulierte Durchmesser der Abtragsstruktur (Abbildung 2 a, unten) ist bei beiden untersuchten Fluenzen größer als der experimentell bestimmte Durchmesser der Abtragsstruktur, was durch das verwendete eindimensionale Modell zu begründen ist [9]. In der Simulation sind keine lateralen Kräfte und Spannungen vorhanden, welche dem Materialabtrag entgegenwirken, was

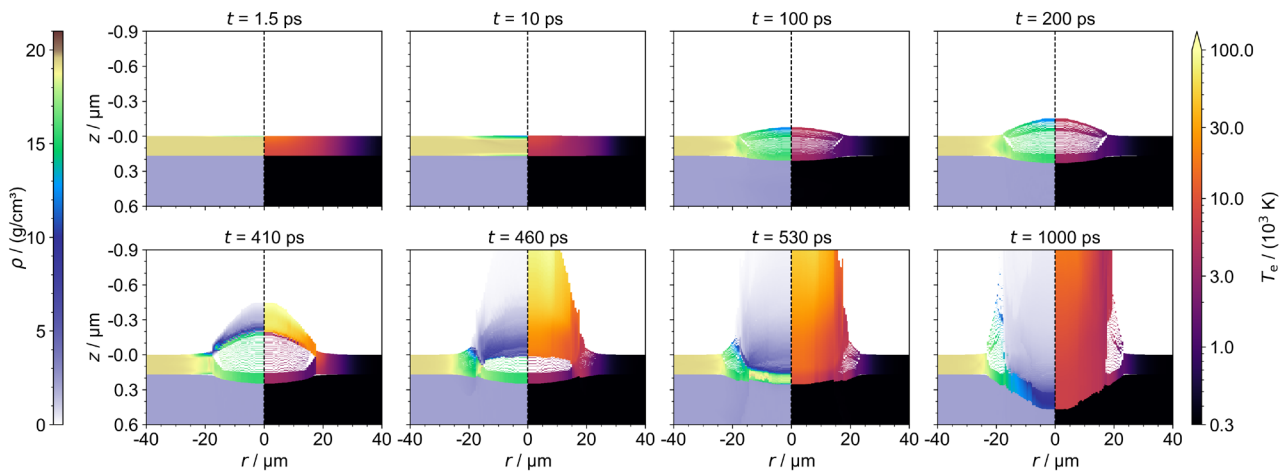


Abbildung 4: Simulierte quasi-zweidimensionale Verteilung der Dichte ρ und der Elektronentemperatur T_e einer dünnen Goldschicht ($d_{z,Au} = 150 \text{ nm}$, $d_{z,Cr} = 25 \text{ nm}$, Quarzglassubstrat) für die Zeitpunkte 1,5 ps bis 1000 ps nach der Anregung mit einem Doppelpuls von ultrakurz gepulster Laserstrahlung ($\tau_H = 40 \text{ fs}$, $\lambda = 800 \text{ nm}$, $\Delta t = 400 \text{ ps}$, $H_{\text{tot}} = 2 \cdot 1,5 H_{\text{thr}}$).

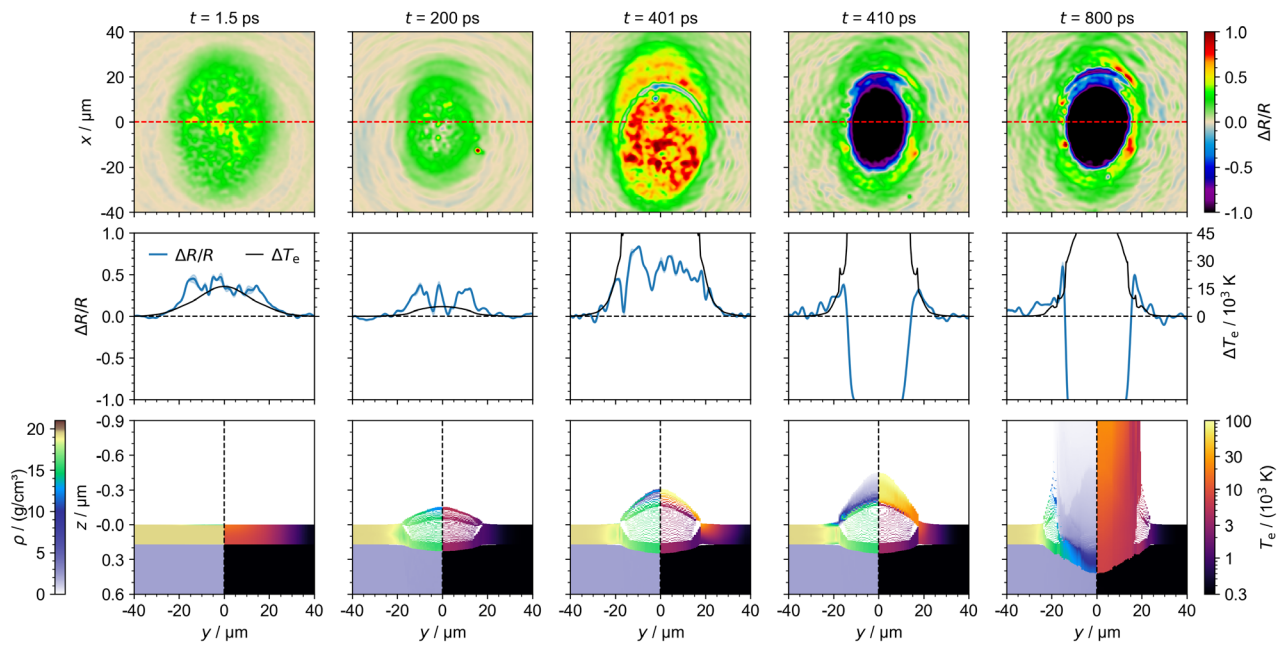


Abbildung 5: Vergleich von experimentell bestimmter orts aufgelöster relativer Änderung des Reflexionsgrades $\Delta R/R$ (oben und Mitte) mit der simulierten quasi-zweidimensionalen Verteilung der Dichte ρ und der Elektronentemperatur T_e einer dünnen Goldschicht ($d_{z,Au} = 150$ nm, $d_{z,Cr} = 25$ nm, Quarzglassubstrat) für die Zeitpunkte 1,5 ps bis 800 ps nach der Anregung mit einem Doppelpuls von ultrakurz gepulster Laserstrahlung ($\tau_H = 40$ fs, $\lambda = 800$ nm, $\Delta t = 400$ ps, $H_{tot} = 2 \cdot 1,5 H_{thr}$).

im Experiment jedoch der Fall ist. Anhand der simulierten quasi-zweidimensionalen Verteilung der Elektronentemperatur T_e des Doppelpulses wird deutlich, dass der erste Puls eine identische Dynamik der Ablation bis zu $t = 400$ ps wie ein Einzelpuls mit $H_0 = 1,5 H_{thr}$ bewirkt (vgl. Abbildung 3 und Abbildung 4). Ab einer Zeit von 400 ps findet die Wechselwirkung mit dem zweiten Puls statt. Dieser wechselwirkt zum einen mit dem durch Spallation abgetragenen Material des ersten Pulses und zum anderen mit dem noch nicht abgetragenen Material. Die in der dünnen flüssigen Schicht der Spallationsblase absorbierte Energie des zweiten Pulses bewirkt eine nahezu instantane und extreme Erhöhung der Elektronentemperatur auf Werte von über 100 kK, da die dünne flüssige Schicht nur eine geringe Masse aufweist und keine Wärmeleitung zu Material in größeren Tiefen stattfinden kann. Folglich findet innerhalb von 10 ps nach der Wechselwirkung Phasenexplosion der dünnen Schicht statt, wobei sich das entstehende Gas-Flüssigkeits-Gemisch explosionsartig in alle Raumrichtungen ausdehnt. Die sich allseitig ausdehnende Ablationswolke kollidiert ab einer Zeit von ca. 530 ps, was ca. 130 ps nach der Wechselwirkung mit dem zweiten Puls entspricht, mit dem noch nicht abgetragenen Material des ersten Pulses, welches ebenfalls flüssig ist. Der durch diese Kollision übertragene Impuls bewirkt in der Simulation eine starke Deformation des Substrates, was für $t = 1000$ ps deutlich zu sehen ist und erneut durch die fehlenden lateralen Kräfte im verwendeten eindimensionalen Modell zu begründen ist. Im Experiment ist daher eine geringere Deformation des Substrates anzunehmen, da das am Substrat keine Beschädigungen sichtbar sind. Eine solch starke Deformation, wie in der Simulation, würde jedoch zwingend zu Schädigungen

führen. Stattdessen wird durch den Impulsübertrag der Ablationswolke das flüssige Material aus dem Wechselwirkungsbereich herausgedrückt, was die Höhendaten der ersten Ringstruktur um den Abtragsbereich in der Mitte erklärt. Die Erhöhung stellt daher wiedererstartete Schmelze dar. Die Übereinstimmung der lateralen Abmessungen des Abtragsbereiches in der Mitte des Doppelpulses mit den lateralen Abmessungen der Abtragsstruktur des Einzelpulses mit $H_0 = 1,5 H_{thr}$ sind daher das Ergebnis der Absorption des zweiten Pulses in der Ablationswolke des ersten Pulses und der anschließenden Wechselwirkung der durch den zweiten Puls weiter aufgeheizten und nun allseitig expandierenden Ablationswolke mit dem vom ersten Puls noch nicht abgetragenen Material.

Die konstante Abtragstiefe der Ringstruktur des Doppelpulses mit den gleichen lateralen Abmessungen wie die Abtragsstruktur des Einzelpulses mit $H_0 = 3,0 H_{thr}$ ist hingegen auf Wärmeakkumulation zurückzuführen. Da der erste Puls in diesen Bereichen noch keinen Abtrag bewirkt, verbleibt die gesamte absorbierte Energie in der Schicht und wird durch Wärmeleitung gleichmäßig in z-Richtung verteilt. Die Wärmeleitung in das Substrat kann für die Zeitdauer von $\Delta t = 400$ ps vernachlässigt werden. Die nun zusätzlich absorbierte Energie des zweiten Pulses des Doppelpulses (DP) bewirkt eine Gesamtenergiedichte in der Schicht, welche ungefähr der Energiedichte eines Einzelpulses (SP) mit doppelter Fluenz und damit $H_{0,SP} = H_{tot,DP}$ entspricht.

4. Abbildende Pump-Probe Reflektometrie

Anhand der durchgeführten quasi-zweidimensionalen kann die Topografie der experimentell bestimmten Abtragsstrukturen für beide Einzelpulse sowie den Doppelpuls erklärt werden. Dieser Vergleich stellt jedoch nur einen *ex situ* Vergleich dar und erlaubt keine Rückschlüsse, ob die simulierte Dynamik der Ablation korrekt ist. Aus diesem Grund, wurde ultraschnelle Messtechnik in Form von abbildender Pump-Probe Reflektometrie [10] angewandt.

Die mittels abbildender Pump-Probe Reflektometrie bestimmte orts- und zeitaufgelöste relative Änderung des Reflexionsgrades $\Delta R/R$ korreliert mit der berechneten Dynamik der Ablation (Abbildung 5). So wurden für $t = 1,5$ ps nach der Anregung durch den ersten Puls die größten Werte $\Delta R/R$ mit den größten Durchmessern gemessen. Zu diesem Zeitpunkt liegt noch keine Ablation durch Spallation vor und $\Delta R/R$ wird nur durch die Änderung der Elektronentemperatur T_e bestimmt. Für $t = 200$ ps ist die Elektronen-Phononen-Kopplung bereits abgeschlossen, weshalb die Elektronentemperatur auf deutlich geringere Werte gefallen ist und auch die lateralen Abmessungen von $\Delta R/R$ haben sich im Vergleich zu $t = 1,5$ ps deutlich verringert. Weiterhin findet bereits eine Ablation statt, wodurch sich eine Ringstruktur von $\Delta R/R$ mit einem Minimum im Zentrum der Wechselwirkungszone bildet. Zum Zeitpunkt $t = 401$ ps ist die direkte Wechselwirkung der Ablationswolke des ersten Pulses mit dem zweiten Puls abgeschlossen, weshalb die höchsten Werte T_e vorliegen und sich das Gas-Flüssigkeits-Gemisch (GFG) bildet. Das GFG besitzt bei $t = 401$ ps jedoch noch annähernd die Dichte von flüssigem Gold, weshalb eine erhöhte Absorption und eine Streuung der Probelerstrahlung im GFG zu diesem Zeitpunkt vernachlässigt werden kann und der Reflexionsgrad dem der erhitzten Flüssigkeit entspricht. Zum Zeitpunkt $t = 410$ ps, also nur 9 ps später, hat sich das GFG jedoch bereits deutlich ausgedehnt. Folglich finden eine starke Streuung und Absorption der Probelerstrahlung im GFG statt, wodurch $\Delta R/R$ auf Werte von -1 sinkt und kein Signal vom Detektor gemessen werden kann. Der räumliche Bereich von $\Delta R/R \approx -1$ ist auf den

Bereich der Ablationswolke des ersten Pulses beschränkt. In den umliegenden Bereichen korreliert $\Delta R/R$ wieder mit T_e , wobei für $t = 800$ ps räumliche Modulationen von $\Delta R/R$ auftreten, welche auf den zusätzlichen Abtrag durch den zweiten Puls zurückzuführen sind.

5. Zusammenfassung

Eine dünne Goldschicht ($d_z = 150$ nm mit 25 nm Haftvermittlerschicht aus Chrom auf einem Substrat aus Quarzglas) wurde mit Einzel- und Doppelpulsen von ultrakurz gepulster Laserstrahlung (Pulsdauer $\tau_H = 40$ fs, Wellenlänge $\lambda = 800$ nm, zeitlicher Pulsabstand $\Delta t = 400$ ps, Spitzenfluenz pro Puls $H_0 = 1.5 H_{thr}$) bestrahlt. Die Doppelpulse wurden mit Hilfe eines auf dem Prinzip eines Mach-Zehnder-Interferometers basierenden Aufbaus erzeugt. Die Topografie der Abtragsstrukturen für den Doppelpuls mit $H_{tot} = 2 \cdot 1.5 H_{thr}$ stellt eine Kombination der Abtragsstrukturen der Einzelpulse mit $H_0 = 1.5 H_{thr}$ und $H_0 = 3.0 H_{thr}$ dar. Die Ursache dafür kann mit den durchgeführten TTM-HD-Simulationen gefunden werden. In der Mitte findet die Wechselwirkung des zweiten Pulses mit der Ablationswolke des ersten Pulses statt, wodurch sich ein allseitig expandierendes Gas-Flüssigkeits-Gemisch bildet. Dieses bewirkt einen Impulsübertrag auf das nichtabgetragene flüssige Material des ersten Pulses und drückt dieses aus der Wechselwirkungszone. In den umliegenden Bereichen findet hingegen eine Wärmeakkumulation durch die absorbierte Energie von jedem der beiden Pulse statt. Die simulierte Dynamik der Ablation konnte weiterhin mit Hilfe der mittels abbildender Pump-Probe-Reflektometrie bestimmten zeit- und ortsaufgelöste relativen Änderung des Reflexionsgrades $\Delta R/R$ validiert werden.

Danksagung

Die Autoren danken der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) für die Finanzierung des Projektes MULTIPULS (458053570) sowie für die Finanzierung der Laborausstattung (INST 522/14-1 FUGG).

Literaturverzeichnis

- [1] K. Sugioka, Nanophotonics **6**, 2913 (2017)
- [2] A. Horn, C.-C. Kalmbach, J.G. Moreno, V. Schütz, U. Stute, L. Overmeyer, Physics Procedia **39**, 709 (2012)
- [3] P. Kubis, J. Winter, A. Gavrilova, M. Hennel, S. Schlosser, I. Richter, A. Distler, M. Heyder, S. Kery, P. Lenk, S. Geiger, C.J. Brabec, H.P. Huber, H.-J. Egelhaaf, Prog. Photovolt: Res. Appl. **15**, 36 (2019)
- [4] C. Kerse, H. Kalaycioglu, P. Elahi, B. Cetin, D.K. Kesim, Ö. Akcaalan, S. Yavas, M.D. Asik, B. Öktem, H. Hoogland, R. Holzwarth, F.Ö. Ilday, Nature **537**, 84 (2016)
- [5] A. Žemaitis, M. Gaidys, M. Brikas, P. Gečys, G. Račiukaitis, M. Gedvilas, Scientific reports **8**, 17376 (2018)
- [6] D. Metzner, P. Lickschat, A. Engel, T. Lampke, S. Weißmantel, Applied Physics A **128** (2022)
- [7] D. Metzner, P. Lickschat, S. Weißmantel, Journal of Laser Applications **33**, 12057 (2021)
- [8] P. Lickschat, D. Metzner, S. Weißmantel, Journal of Laser Applications **33**, 22005 (2021)
- [9] M. Olbrich, T. Pflug, C. Wüstefeld, M. Motylenko, S. Sandfeld, D. Rafaja, A. Horn, Optics and Lasers in Engineering **129**, 106067 (2020)
- [10] T. Pflug, M. Olbrich, J. Winter, J. Schille, U. Löschner, H. Huber, A. Horn, J. Phys. Chem. C **125**, 17363 (2021)
- [11] J.M. Liu, Opt. Lett. **7**, 196 (1982)
- [12] T. Pflug, J. Wang, M. Olbrich, M. Frank, A. Horn, Applied Physics A **124**, 17572 (2018)