

Единичная гибридная наноструктура как эффективный нанолокализованный источник света

П.Н.Мелентьев, А.Е.Афанасьев, В.И.Балыкин

Представлен краткий обзор результатов экспериментальных исследований нелинейного оптического взаимодействия лазерного излучения с гибридной плазмонной наноструктурой – Split Hole Resonator (SHR). Показана возможность генерации 2-й и 3-й гармоник от единичной SHR-наноструктуры, а также генерация излучения на смешанных частотах. Продемонстрированы возможности практического применения SHR-наноструктуры в качестве нанозонда для измерения длительности фемтосекундного лазерного излучения и создания полностью оптического нанодисплея.

Ключевые слова: гибридная плазмонная наноструктура, генерация 2-й и 3-й гармоник, нанозонд, фемтосекундное излучение, полностью оптический нанодисплей.

1. Введение

Интерес к единичным плазмонным наноструктурам во многом обусловлен возможностью их использования в схемах полностью оптического управления и передачи информации [1], в которых плазмонные наночастицы позволяют как регистрировать излучение с нанометровой пространственной точностью и субфемтосекундным временным разрешением, так и управлять им [2]. Однако современные исследования показали, что возможности использования единичной плазмонной наноструктуры значительно шире: это исследования оптических свойств металлов на наномасштабах и структур их электронных уровней, включая квантовые эффекты; исследования различных типов оптических нелинейных взаимодействий; создание высокочувствительных сенсоров. Единичная плазмонная наноструктура может быть также использована для исследования временных свойств импульсного лазерного излучения, для создания оптических пинцетов и во многих других приложениях [3].

Как хорошо известно, собственные частоты резонансов локализованных плазмонов могут определяться размером, формой и материальным составом наночастицы [4–6]. При этом следует разделять два случая: когда размер наночастицы меньше толщины скин-слоя металла или больше нее. В первом случае для рассмотрения оптического взаимодействия света с наночастицей справедливо так называемое квазистатическое рассмотрение, при этом собственные частоты плазмонных резонансов определяются оптическими константами материала наноструктур и не зависят от их размера [7]. Во втором случае плазмонные резонансы сильно зависят от размера и геометрии наноструктур, а их спектральное положение хорошо описывается теорией Ми [7]. Тогда удобно, следуя теории

Ми, анализировать оптическое взаимодействие с наноструктурами, проводя разложение наведенной в наноструктуре поляризации на мультиполю. В таком разложении можно выделить в оптическом отклике наночастицы возбужденные локализованные плазмонные резонансы различного порядка, соответствующие возбуждению мультиполей [8–11].

Решение уравнения Лапласа с соответствующими граничными условиями показывает возможность возникновения эффективной мультиполярной поляризуемости в сфере радиусом R , характеризуемой диэлектрической проницаемостью $\tilde{\epsilon}_p(\omega)$ и расположенной в среде с диэлектрической проницаемостью ϵ_{out} [12]:

$$\tilde{\alpha}_l(\omega) = R^{2l+1} [\tilde{\epsilon}_p(\omega) - \epsilon_{out}] \left[\tilde{\epsilon}_p(\omega) + \frac{l+1}{l} \epsilon_{out} \right]^{-1}, \quad (1)$$

где параметр l определяет порядок мультипольности ($l=1$ – дипольный резонанс, $l=2$ – квадрупольный и т.д.). Вклад квадрупольного члена в оптический отклик наночастицы становится заметным уже при ее размере ~ 30 нм, что соответствует характерным значениям толщины скин-слоя в видимом спектральном диапазоне. Квадрупольный резонанс в модели Друде возникает при частоте

$$\omega_{LSP} = \frac{\omega_p}{\sqrt{1 + \frac{3}{2} \epsilon_{out}}} \quad (2)$$

(ω_p – плазменная частота металла наночастицы), т.е. при более высокой энергии, чем энергия дипольного резонанса. Спектральный отклик наночастицы все еще определяется дипольным резонансом, но при увеличении размера наночастицы вклады мультипольных резонансов становятся все более заметными. Для резонансов высокого порядка резонансное условие приближается к таковому для поверхностных плазмонных поляритонов: $\epsilon_p(\omega) = -\epsilon_{out}$. Кроме того, становится существенным рассеяние излучения наночастицей. Оно становится заметным при радиусе ~ 20 нм и начинает доминировать в экстинкции при радиусах более 100 нм.

Нами рассмотрены взаимодействие лазерного света с единичной плазмонной наноструктурой специально соз-

П.Н.Мелентьев, А.Е.Афанасьев, В.И.Балыкин. Институт спектроскопии РАН, Россия, 108840 Москва, Троицк, ул. Физическая, 5; e-mail: melentiev@isan.troitsk.ru, afanasiev.isan@gmail.com

Поступила в редакцию 21 июля 2017 г., после доработки – 21 августа 2017 г.

данной геометрии – Split Hole Resonator (SHR) – и многообразии оптических явлений, которые при этом возникают, а также возможности их практического применения для построения оптических наноструктур. Рассмотрен случай взаимодействия наноструктуры SHR со слабым световым полем (линейное оптическое взаимодействие), а также взаимодействие с излучением высокой интенсивности (нелинейное оптическое взаимодействие).

2. Наноструктура, образованная наноотверстием и комплементарная наночастице: принцип Бабине

Принцип Бабине [13, 14] является классической концепцией волновой теории света. В скалярной формулировке принцип Бабине устанавливает соответствие между дифракционным полем на некотором экране и полем на так называемом дополнительном экране. В более строгой формулировке принцип Бабине предполагает, что магнитные и электрические поля являются взаимно заменяемыми по отношению к идеально проводящему планарному структурированному экрану и «дополнительному» к нему [14]. Принцип Бабине позволяет решать некоторые задачи классической электродинамики по рассеянию электромагнитной волны, заменив ее другой эквивалентной задачей, решение которой известно или может быть найдено с меньшими трудностями.

В соответствии с принципом Бабине металлическая наночастица (диск) и комплементарное к ней наноотверстие имеют комплементарные оптические спектры при освещении этих структур излучением с соответствующими (ортогональными друг другу) поляризациями: максимальное пропускание в отверстии наблюдается при гашении света в комплементарной частице.

Отметим, что принцип Бабине был сформулирован и доказан для структур, образованных идеальным проводником с бесконечной проводимостью. Однако, как показали современные исследования, его можно использовать и в случае металлов с конечной проводимостью. Тогда не приходится говорить о полной комплементарности взаимодействия света с бабине-комплементарными структурами из реальных металлов. Однако принцип Бабине позволяет найти некоторые закономерности в решении таких задач, что особенно важно при проектировании геометрии наноструктур, обладающих заданными оптическими свойствами, т. к. точно решить задачу оптического взаимодействия с наноструктурой произвольной геометрии не представляется возможным.

За последнее десятилетие объектами экспериментальных и теоретических исследований стало множество различных металлических наноструктур. Это единичные металлические наночастицы, их массивы [15, 16], а также металлические наноструктурированные пленки [17, 18]. Они рассматриваются в качестве строительных блоков более сложных структур в нанооптике и нанофотонике [19, 20]. Возможность использования принципа Бабине для создания и исследования новых конструкций металлических наночастиц или тонких металлических наноструктурированных пленок является весьма привлекательной. Так, принцип Бабине часто используется, например, при проектировании метаматериалов и наноантенн в различных спектральных диапазонах – от видимого до микроволнового [21–24].

Однако в оптическом диапазоне существуют принципиальные физические ограничения на применимость принципа Бабине. Граничные условия для металлической наноструктуры не являются строго применимыми, т. к. в этом случае глубина проникновения поля сравнима с размером структуры. Кроме того, наноструктуры в оптическом диапазоне обладают относительно высокими потерями. Возникает вопрос: насколько применим принцип Бабине в оптическом диапазоне для металлических наноструктур?

Использование принципа Бабине для предсказания отклика металлических плазмонных наноструктур с размерами, существенно меньшими длины волны в оптическом диапазоне, не всегда приводит к согласующимся с экспериментальными данными выводами, что в большинстве случаев связано с конечностью толщины скин-слоя. Ситуация представляется еще более сложной при рассмотрении нелинейных свойств металлических наноструктур [25–28].

Приведем в качестве примера использование принципа Бабине для характеристики пропускания света через наноотверстие. Так, из принципа Бабине следует, что наноразмерное отверстие в проводящем экране и наночастицу (нанодиск) можно характеризовать эквивалентными наведенными электрическим и/или магнитным моментами. Действительно, как было показано в [29], поле на большом расстоянии от отверстия эквивалентно полю от двух диполей: магнитного диполя, параллельного экрану, и электрического диполя, перпендикулярного экрану. Строгие численные расчеты [30, 31] подтвердили основные выводы относительно оптического отклика наноотверстия и также показали, что соответствующее сечение рассеяния меньше геометрического сечения при радиусе отверстия $a < 0.2\lambda$. В реальных металлических экранах могут возникать локализованные плазмонные резонансы, которые влияют на величину сечения пропускания [32, 33].

Несмотря на отмеченные проблемы использования принципа Бабине, он является ценным ориентиром при дизайне металлических наноструктур, однако необходимо учитывать ограниченность его применения.

3. Тепло на наноуровне: наночастица и наноотверстие

При исследовании взаимодействия лазерного излучения с наноструктурами важно помнить, что резонансные металлические наноструктуры являются сильными поглотителями света. Так, почти весь свет, падающий на наноструктуру, может быть преобразован в тепло [34–38]. На резонансной частоте поперечное сечение поглощения равно квадрату длины волны излучения и может быть в несколько раз больше физического сечения наноструктуры. Сечение рассеяния металлической наноструктуры также увеличивается на резонансной частоте. В зависимости от размера наноструктуры доминирует рассеивание или поглощение – при малых размерах (менее 15 нм) поглощение доминирует над рассеянием и наоборот.

Феноменология переноса тепла довольно сильно отличается на макро- и микропространственных масштабах. И если передача тепла на макромасштабах рассматривается как медленный процесс (так, временная шкала для теплопроводности в макроскопических системах размером ~ 1 м составляет несколько минут), то распростра-

нение тепла на микроуровне является чрезвычайно быстрым и эффективным процессом с временной шкалой ~ 10 нс. Микромасштабная передача тепла происходит практически безынерционно. Такое утверждение еще более справедливо при рассмотрении передачи тепла при наноразмерных масштабах. Это связано с различной природой передачи тепла: на макроуровне это фононный и электронный переносы, на микроуровне – радиационный.

Важными характеристиками процесса поглощения лазерного излучения наночастицей является ее температура, а также временная и пространственная зависимости температуры наночастицы и ее окружения. Данные параметры существенным образом зависят от режима освещения – непрерывного или импульсного. Тепловыделение после светового возбуждения возникает из-за быстрой дефазировки когерентного электронного движения в сочетании с быстрой передачей энергии кристаллической решетке металла [39–41]. Генерация тепла происходит чрезвычайно быстро, и термализация осуществляется за время порядка нескольких пикосекунд. С другой стороны, температура окружающей среды повышается за значительно большие времена, которые определяются физическими процессами теплопроводности.

В работе [42] было показано существенное влияние геометрии и окружения наноструктуры на ее нагрев при облучении лазерным импульсом. Так, в сравнении с бабине-комплементарной структурой, изготовленной в металлической пленке, тепловое разрушение металлической наноструктуры происходит при более низких интенсивностях лазерного излучения (рис.1). На рис.1,*а* показано рассчитанное распределение температуры в наностержне из алюминия размером 50×570 нм, а на рис.1,*б* – аналогичное распределение для нанощели тех же размеров, изготовленной в пленке алюминия толщиной 50 нм. Обе структуры освещаются плоской монохроматической волной с $\lambda = 1560$ нм при интенсивности излучения 8×10^{13} Вт/см². Поляризация излучения для наностержня направлена вдоль его оси, а для нанощели она перпендикулярна большому размеру наностержня, так что в обоих случаях реализуется резонансное возбуждение плазмонных колебаний. Из рис.1 видно, что при одинаковой интенсивности нано-

стержень разогревается до существенно больших (более чем на порядок) температур в сравнении с нанощелью.

4. Гибридная плазмонная SHR-наноструктура

В работе [43] на основе использования принципа Бабине и теплового поведения наноструктур в сильном лазерном поле предложена новая концепция наноструктуры, объединяющая преимущества наноструктуры типа наностержня (сильные нелинейные свойства) и нанощели в металлическом экране (отсутствие фоновой засветки, устойчивость к высокой интенсивности излучения). Предложенная наноструктура представляет собой нанощель, изготовленную в металлической пленке с расположенным внутри нанощели наностержнем (рис.2); она получила название Split Hole Resonator (SHR) [43] и в определенном смысле является комплементарной к известной наноструктуре Split Ring Resonators (SRR) [25–28, 44].

Расчеты показали, что эффективность преобразования излучения в SHR-наноструктуре сильно зависит от ее геометрии (диаметр наноструктуры, длина наностержня), материала пленки и показателя преломления окружающей среды. Это объясняется сильной зависимостью эффективности возбуждения локализованных плазмонных колебаний от геометрии наноструктуры и ее локального окружения [45], которые определяют распределение и амплитуду электромагнитного поля вблизи наноструктуры.

На рис.2,*б* представлено рассчитанное распределение поля в SHR-наноструктуре при ее облучении плоской световой волной на $\lambda = 1.56$ мкм, соответствующей плазмонному резонансу наноструктуры. Видно, что такая наноструктура формирует однополосную антенну с полем,

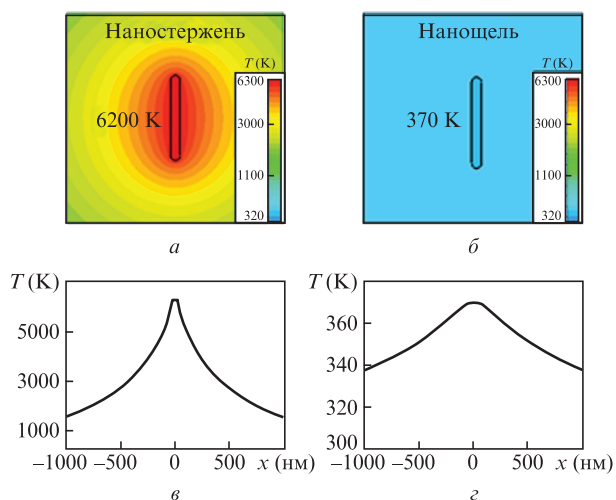


Рис.1. Расчетное пространственное 2D распределение температуры и его одномерный срез в двух комплементарных наноструктурах: алюминиевом наностержне размером $50 \times 50 \times 570$ нм (*а*) и в нанощели размером 50×570 нм, изготовленной в алюминиевой пленке толщиной 50 нм (*б*) при нагреве лазерным излучением.

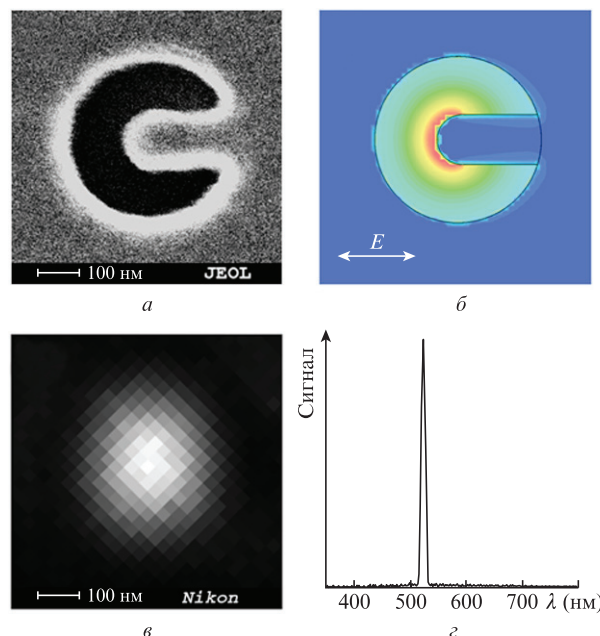


Рис.2. Изображение в электронном микроскопе SHR-наноструктуры, изготовленной в алюминиевой пленке толщиной 50 нм (*а*), расчетное распределение поля при облучении наноструктуры плоской монохроматической волной на длине волны 1560 нм (*б*), оптическое изображение наноструктуры при ее облучении лазерным излучением (1560 нм) с регистрацией на длине волны генерации 3-й гармоники (520 нм) (*в*), а также измеренный спектр генерации 3-й гармоники (*г*).

локализованным вблизи кончика ее наностержня. Расчеты показали [43], что максимум поля в SHR-наноструктуре на порядок больше, чем для наностержня при выбранной частоте возбуждающего излучения.

Важным свойством SHR-наноструктуры является сильная зависимость резонансных частот ее плазмонных колебаний от размера и формы наноструктуры и, как следствие, ее оптических свойств. Для создания наноструктуры с заданными оптическими свойствами ее геометрия, как правило, должна контролироваться с точностью $\sim \lambda/10$. В случае нелинейных процессов необходимо контролировать геометрию наноструктуры с еще более высокой ($\sim \lambda/100$) точностью [43], что требуется для контроля поверхностных состояний электронов, задаваемых неровностями на поверхности наноструктуры.

Контроль формы и размера наноструктур позволяет управлять характером их нелинейно-оптического взаимодействия с лазерным излучением (нелинейные процессы, их эффективность) [43, 46]. Так, взаимодействие лазерного излучения с наноструктурами с «гладкой» поверхностью характеризуется в основном когерентной динамикой ансамбля свободных электронов (плазмонов). Результатом такого взаимодействия является генерация гармоник излучения. Принципиально другой сценарий реализуется для наноструктуры, на поверхности которой есть «шероховатости» с характерным размером ~ 10 нм. Это может приводить к доминированию процессов, связанных с динамикой экранированных электронов, и к нелинейно-оптическому взаимодействию, проявляющемуся как многофотонная люминесценция.

4.1. Генерация 3-й гармоники от SHR

Нелинейная оптика металлов – это оптика поверхностей, наноструктурированных поверхностей и наноструктур, поскольку излучение проникает в металл на глубину порядка толщины скин-слоя. Отметим, что в оптическом диапазоне толщина скин-слоя составляет 30–50 нм, что может быть сравнимо с размером наночастицы. С физической точки зрения возникновение оптической нелинейности в металлических наноразмерных структурах обусловлено движением электронов в полях резонанса, индуцированного лазерным излучением [47]. В сильных лазерных полях движение свободных электронов плазмонных наноструктур характеризуется большими амплитудами колебаний. Это приводит к проявлению ангармонизма в движении облака электронов и, как следствие, к возникновению эффективного нелинейного дипольного момента [48].

Известным эффектом нелинейно-оптического взаимодействия лазерного излучения с наноструктурами является генерация гармоник [49–56]. К настоящему времени в нанолазмонике проведены многочисленные исследования генерации 3-й гармоники от металлических поверхностей [57–63], металлических наноструктурированных поверхностей [58, 61, 64–66], от ансамбля наночастиц [27, 46, 67–70] и единичных наноструктур [11, 43, 52, 71–73]. Выполнены работы с металлическими наноструктурами в виде наностержней (наноантен) [71, 72, 74] и наноотверстий [11, 68, 75]. Установлено, что эффективность нелинейных процессов существенно зависит от формы и размеров наноструктур. Так, в круглом наноотверстии эффективность на несколько порядков меньше, чем в наноструктуре в форме наностержня [72] или наношели

[42, 75]. Это обусловлено большим различием в усилении поля локализованными вблизи наноструктур плазмонными колебаниями.

Оптический отклик SHR-наноструктуры резонансно зависит от ее размеров [43], тщательный выбор которых позволяет реализовать эффективную генерацию 3-й гармоники от SHR. Наиболее распространенным плазмонным материалом является золото. Однако недавние исследования показали, что алюминий обладает значительно большей оптической нелинейностью. Так, на длине волны 1560 нм коэффициент восприимчивости третьего порядка для алюминия на три порядка выше, чем для золота [42, 75]. На длине волны 780 нм это различие достигает около 10^2 [76]. Таким образом, наноструктуры из алюминия могут быть более эффективными (в сравнении с наночастицами золота) источниками генерации 3-й гармоники. Однако на длине волны 780 нм в золотой наноструктуре наблюдается большее усиление амплитуды поля в сравнении с наноструктурой из алюминия, где потери очень велики. Это объясняется тем, что золото обладает лучшими плазмонными свойствами на $\lambda = 780$ нм, чем алюминий (большее усиление локального поля, меньшие потери) [42, 75].

Практический интерес представляет также получение генерации гармоник от наночастиц на частотах УФ диапазона. Во-первых, это позволяет реализовать нано локализованные источники УФ излучения, необходимые для нанодиагностики и нанолитографии. Во-вторых, высокая оптическая нелинейность наночастиц в УФ спектральном диапазоне может использоваться в фототерапии клеток [77]. Генерация УФ излучения плазмонными наноструктурами слабо изучена. Существует всего несколько экспериментальных работ [68, 78, 79], демонстрирующих генерацию 3-й гармоники при возбуждении наноструктур излучением фемтосекундного лазера. Так, в работе [79] от единичной золотой наноструктуры был получен поток УФ фотонов, равный 10^4 фотон./с.

Как показано в работе [43], плазмонные моды в SHR-наноструктуре возникают при некотором соотношении между диаметром отверстия и длиной наностержня, от которых зависит возникновение различной мультипольности в отклике наноструктуры. Число возбуждаемых мод определяется шириной спектра возбуждающего лазерного излучения. При малых размерах наноструктуры число возбуждаемых мод определяется только размером наноструктуры и оно невелико. Напротив, при больших размерах наноструктуры число возбужденных плазмонных мод может быть значительным, и для их эффективного возбуждения требуется довольно большая ширина спектра лазерного излучения [11].

Экспериментально исследовалась [43] генерация 3-й гармоники от SHR-наноструктуры в геометрии рис.2,а. Наноструктуры изготавливались с помощью сфокусированного ионного пучка в металлической пленке и облучались импульсным излучением фемтосекундной длительности, сфокусированным в малое пятно. На рис.3 иллюстрируется характер генерации гармоник излучения в SHR-наноструктуре. Лазерное излучение возбуждает в ней четыре плазмонные моды: дипольную моду ω_1 ($\lambda_1 = 750$ нм), мультипольную ($n = 3$) моду ω_2 ($\lambda_2 = 770$ нм), мультипольную ($n = 4$) моду ω_3 ($\lambda_3 = 800$ нм) и мультипольную ($n = 5$) моду ω_4 ($\lambda_4 = 880$ нм). Спектральные зависимости интенсивности поля в этих модах представлены на рис.3,а. Для возбуждения перечисленных локали-

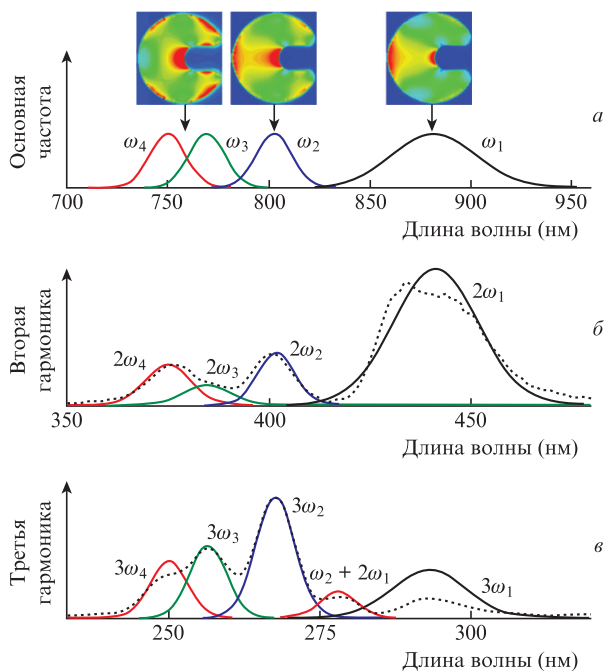


Рис.3. Генерация гармоник излучения в SHR-наноструктуре: *a* – нормированные расчетные спектральные зависимости интенсивностей полей плазмонных мод $\omega_1, \omega_2, \omega_3, \omega_4$ и соответствующие им расчетные распределения амплитуды ближнего поля SHR-наноструктуры; *b* – измеренный спектр излучения 2-й гармоники (пунктир) и расчетные спектры генерации 2-й гармоники, соответствующие возбуждению в SHR плазмонных мод $\omega_1, \omega_2, \omega_3, \omega_4$; *c* – измеренный спектр излучения на частоте 3-й гармоники и расчетные спектры генерации 3-й гармоники, соответствующие возбуждению в SHR плазмонных мод $\omega_1, \omega_2, \omega_3, \omega_4$.

зованных плазмонных резонансов SHR-наноструктура облучалась фемтосекундным излучением длительностью в два периода световой волны, которое фокусировалось в пятно диаметром несколько микрон [11]. Большая ширина спектра такого лазерного излучения позволяет одновременно возбудить в SHR-наноструктуре четыре мультипольные плазмонные моды.

На вставках рис.3,*a* приведены результаты численного моделирования (с использованием метода FDTD) распределения амплитуды ближнего поля SHR-наноструктуры при ее облучении монохроматически депolarизованным излучением. Полученные распределения амплитуды ближнего поля подтверждают мультипольный характер возбуждаемых резонансов. Спектральная близость мод ω_3 и ω_4 приводит к тому, что ближнее поле на длинах волн вблизи этих резонансов является суммой ближних полей мод ω_3 и ω_4 . Большая спектральная ширина плазмонных мод объясняет отличие числа мультиполей (вставки на рис.3,*a*) от найденных экспериментально значений мультипольности для каждой моды.

Возбуждение плазмонных мод приводит к увеличению локального поля на соответствующих длинах волн $\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3$ и λ_4 , поэтому излучение 2-й и 3-й гармоник реализуется на удвоенных и утроенных частотах этих резонансов. На рис.3,*b* представлены расчетный и измеренный спектры генерации 2-й гармоники, соответствующие возбуждению в SHR-наноструктуре плазмонных мод $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ и ω_4 . На рис.3,*c* приведены расчетный и измеренный спектры излучения на частоте 3-й гармоники, соответствующие возбуждению плазмонных мод $\omega_1, \omega_2, \omega_3$ и ω_4 . Как было показано в работе [11], сечение процесса

генерации 2-й гармоники единичной SHR-наноструктурой $\sigma_{\omega \rightarrow 2\omega} = 2.4 \times 10^{-18} \text{ см}^2$, для 3-й гармоники $\sigma_{\omega \rightarrow 3\omega} = 7 \times 10^{-16} \text{ см}^2$. Пиковая мощность $I_{3\omega \text{ peak}} = 3.4 \times 10^7 \text{ Вт/см}^2$, а амплитуда поля излучения на частоте 3-й гармоники составила значительную часть амплитуды поля на фундаментальной частоте: $E_{3\omega} = 0.006 E_{\omega}$. Таким образом, SHR-наноструктура является наносточником УФ излучения с рекордно высокой интенсивностью и эффективностью преобразования света с потоком фотонов в УФ спектральном диапазоне $4 \times 10^8 \text{ фотон./с}$ [11].

4.2. Многофотонная люминесценция от SHR

Примером проявления динамики экранированных электронов в плазмонных наноструктурах являются однофотонная [80–82] и многофотонная [83–86] фотолюминесценции. Нелинейная фотолюминесценция наночастиц активно исследуется в последнее время в связи с многочисленными применениями в спектроскопии и для зондирования. Среди нелинейных процессов фотолюминесценции наиболее детально изученным является двухфотонный процесс (2ФФЛ) в золотых наночастицах. На рис.4,*a* показана схема 2ФФЛ при возбуждении золота излучением с длиной волны 780 нм [87]. Первый фотон возбуждает электрон через внутризонный переход *sp*-зоны проводимости. Второй фотон возбуждает электрон из зоны *d*,

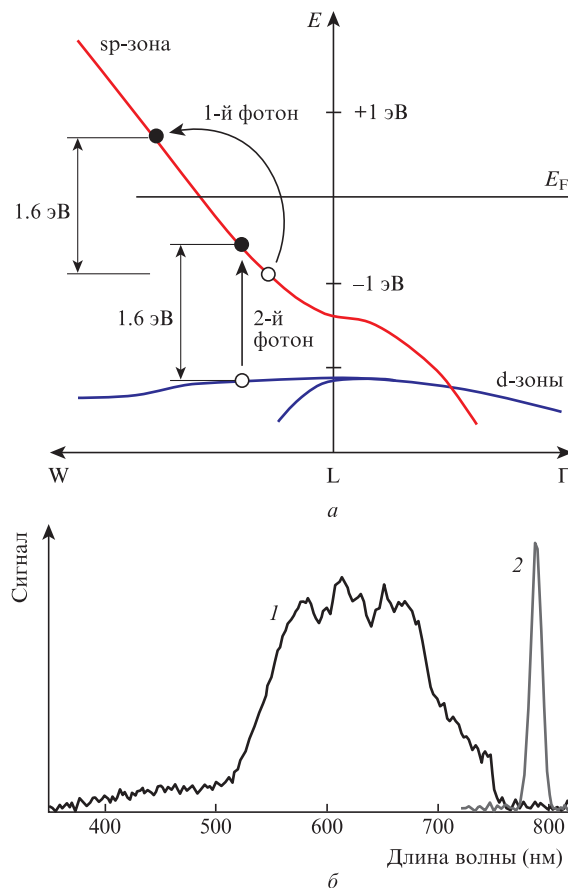


Рис.4. Двухфотонная люминесценция в золоте: *a* – схема зонной структуры золота вблизи точки симметрии L первой бриллюэновской зоны; многофотонное возбуждение переводит электрон из зоны *d* в зону *sp*, после безызлучательной релаксации дырки и электрона возможна электронно-дырочная рекомбинация со спонтанным излучением фотона (фотолюминесценция) и *b* – измеренный спектр 2ФФЛ (1) и спектр возбуждающего лазерного излучения (2).

и электрон рекомбинирует с *sr*-дыркой в зоне проводимости. ФЛ возникает в результате двухфотонного процесса создания дырки в зоне *d* и последующей рекомбинации с электроном в *sr*-зоне. Из-за повышенной плотности состояний межзонная излучательная рекомбинация при 2ФФЛ, как и при обычной ФЛ, происходит вблизи точек *L* и *X* обратного пространства, приводя к появлению двух полос излучения в зеленом и красном спектральных диапазонах соответственно [87].

Известно, что многофотонная фотолюминесценция имеет наибольшую эффективность при малых размерах наноструктур [86, 88]. В этом случае образуются локализованные поверхностные электронные состояния экранированных электронов. Пример проявления таких поверхностных состояний представлен на рис.5, где показаны результаты измерений генерации излучения единичной SHR-наноструктуры, на кончике наностержня которой находятся специально изготовленные неровности размером 5–15 нм (рис.5,а). При этом остальные геометрические размеры в точности такие же, как у SHR-наноструктуры, представленной на рис.2. Эта наноструктура облучалась излучением на длине волны 1560 нм с теми же параметрами, что и наноструктура на рис.2. Расчеты показывают, что распределение ближнего поля этой наноструктуры на частоте возбуждающего излучения не отличается от распределения ближнего поля в наноструктуре с «гладким» наностержнем (см. рис.2): в пространственном распределении поля на основной частоте есть четко выраженный максимум в центре наноструктуры, вблизи кончика наностержня (рис.3,б). В оптическом изображении наноструктуры, при регистрации в спектральном диапазоне 400–800 нм, видно пятно, диаметр которого ограничен числовой апертурой объектива микроскопа

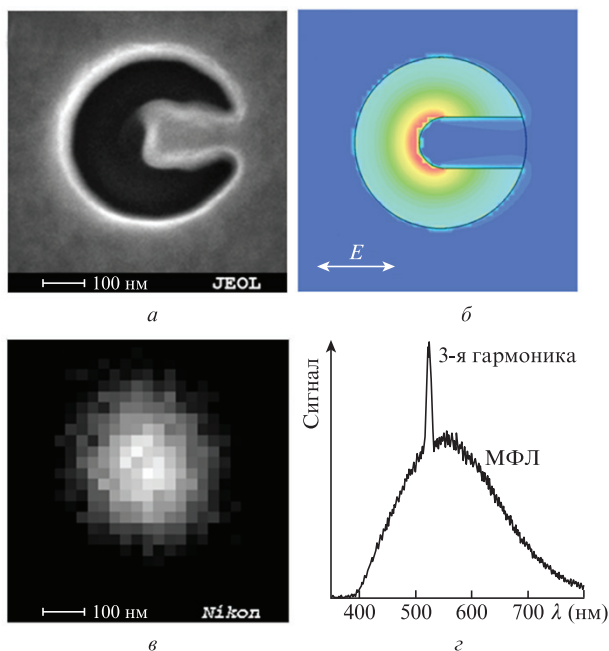


Рис.5. Многофотонная фотолюминесценция (МФЛ) от SHR-наноструктуры, изготовленной в алюминиевой пленке толщиной 50 нм: а – изображение наноструктуры в электронном микроскопе; б – расчетное распределение поля при облучении наноструктуры плоской монохроматической волной на $\lambda = 1560$ нм; в – оптическое изображение наноструктуры при ее облучении лазерным излучением на $\lambda = 1560$ нм и регистрации в спектральной области 400–800 нм; г – измеренный спектр излучения МФЛ при освещении наноструктуры лазерным излучением с $\lambda = 1560$ нм.

(дифракционно ограниченное пятно) (рис.3,в). В спектре излучения наноструктуры помимо узкого пика, соответствующего генерации 3-й гармоники излучения, присутствует широкополосное излучение в спектральном диапазоне от 390 нм до более чем 800 нм (рис.5,г). Такое широкополосное излучение является результатом многофотонной люминесценции, имеющей порядок вплоть до 4-го: измерения показали, что мощность этого излучения зависит от интенсивности возбуждающего излучения в степени 3.3. Многофотонное излучение является следствием возбуждения локализованных на поверхности алюминия поверхностных состояний электронов, возникших на наноразмерных неоднородностях поверхности алюминиевой пленки. В SHR-наноструктуре эти состояния были созданы ионным пучком на кончике наностержня – в месте нахождения максимума поля на основной частоте.

Эффективность фотолюминесценции может быть значительно увеличена. В работе [86] продемонстрировано усиление фотолюминесценции в 10^6 раз при использовании наноструктуры из золота, помещенной вблизи фотонного кристалла, который поддерживает оптическое таммовское состояние на длине волны возбуждения фотолюминесценции.

Одним из возможных практических применений 2ФФЛ является создание нанолокализованных широкополосных источников лазерного излучения [87].

5. Наноструктуры на основе SHR

5.1. Полностью оптический нанодисплей

Геометрия SHR имеет явно выраженную анизотропию, определяемую направлением ее наностержня (см. рис.2), что предполагает поляризационную зависимость оптического отклика SHR на внешнее лазерное поле. Поляризационная зависимость нелинейного отклика SHR на внешнее лазерное поле исследовалась нами в [89]. Теоретические расчеты распределения ближнего поля SHR-наноструктуры в поле монохроматического лазерного излучения на фундаментальной частоте ($\lambda = 1560$ нм) показали, что изменение поляризации излучения с параллельного наностержню на ортогональное приводит к изменению интенсивности поля на основной частоте в 50 раз. При этом экспериментально показано, что такое изменение поляризации увеличивает мощность излучения на частоте 3-й гармоники в 40000 раз [89].

На рис.6 представлена зависимость сигнала генерации 3-й гармоники от поляризации возбуждающего излучения. Видно, что при поляризации излучения, ортогональной наностержню ($\varphi = 90^\circ$), эффективность генерации 3-й гармоники минимальна. При повороте поляризации на 90° мощность излучения на частоте 3-й гармоники возрастает в 4×10^4 раз. Высокая чувствительность к поляризации является следствием трехстепенной зависимости эффективности процесса генерации 3-й гармоники от интенсивности падающего излучения.

Сильная зависимость генерации 3-й гармоники SHR-наноструктуры позволяет использовать ее для создания прототипа полностью оптического дисплея, в котором пикселями являются сами SHR-наноструктуры [89]. Такой оптический дисплей представляет собой матрицу 4×4 SHR-наноструктур с расстоянием между ними 1 мкм (рис.7). Размер оптического дисплея определяется минимальным расстоянием между наноструктурами, равным

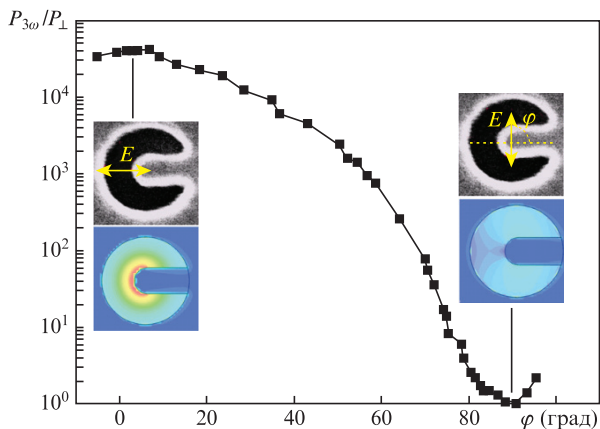


Рис.6. Зависимость амплитуды генерации 3-й гармоники от поляризации возбуждающего излучения. На вставках приведены расчетные распределения ближнего поля на основной частоте для максимальной и минимальной эффективностей генерации.

500 нм (1/3 длины волны возбуждающего излучения). Наноструктуры изготавливались в пленке алюминия толщиной 50 нм. Наностержень каждой SHR повернут относительно соседней наноструктуры на угол 11.5° (рис.7,а). Работа такого оптического дисплея происходит следующим образом. Все SHR-наноструктуры освещаются фемтосекундным излучением ($\lambda = 1.56$ мкм). Если поляризация излучения выбрана вдоль наностержня одной из SHR, тогда только эта наноструктура находится в точном резонансе с лазерным полем и именно она становится эффективным источником 3-й гармоники. Таким образом, выбирая определенное направление вектора поляризации излучения, можно «включать» определенные пиксели дисплея.

На рис.7,б и в демонстрируется работа оптического нанодисплея, который освещается излучением фемтосекундного лазерного импульса. При вращении вектора поляризации возникает резонанс с одной из SHR-структур дисплея, и эта SHR становится источником излучения на частоте 3-й гармоники. Например, для адресного обращения к первому пикселю дисплея (на рис.7,а – квадрат слева) вектор поляризации направлен вдоль наностержня этой SHR. Освещение дисплея в данном случае приводит к возникновению свечения только этого пикселя (рис.7,б).

При повороте вектора поляризации происходит его совпадение с направлением наностержня другого SHR (на рис.7,а – квадрат справа). В результате возникает его резонанс с падающим излучением и появляется свечение только этого пикселя (рис.7,в).

Следует отметить, что оптический дисплей может обеспечивать ультрабыстрое управление пикселями, поскольку характерное время релаксации плазмонных колебаний в алюминии составляет около 100 ас [2].

5.2. Нанозонд фемтосекундного лазерного импульса

В настоящее время измерение сверхбыстрого (на фемтосекундной временной шкале) оптического поля с нанометровым пространственным разрешением по-прежнему представляется трудно выполнимой задачей. Такие измерения принципиально важны и для понимания пространственно-временной динамики сверхкоротких импульсов [90], и для многих научных и практических применений, таких как изучение взаимодействия света и вещества на наномасштабе [91–93].

Хорошо известно, что полное знание параметров лазерного импульса $E(t)$ может быть достигнуто путем измерения автокорреляционных функций всех порядков $G_n(\tau)$ [90]. Экспериментально корреляционные функции высших порядков могут быть получены с использованием многофотонных процессов. На практике, как правило, ограничиваются измерениями автокорреляционной функции второго порядка и последующим анализом результатов в предположении априорного знания вида огибающей функции лазерного импульса. Еще более сложной задачей является измерение сверхкороткого оптического импульса с наноразмерным пространственным разрешением [94–96].

SHR-наноструктура может служить нанозондом фемтосекундного лазерного импульса. При высокой интенсивности лазерного излучения реализуется эффективное нелинейное взаимодействие излучения с SHR-наноструктурой, приводящее к генерации гармоник, излучение которых можно использовать для проведения автокорреляционных измерений длительности возбуждающего наноструктуру лазерного импульса. При этом оптические поля 2-й и 3-й гармоник локализованы на нанометровом масштабе и, следовательно, эффективный размер зонда так-

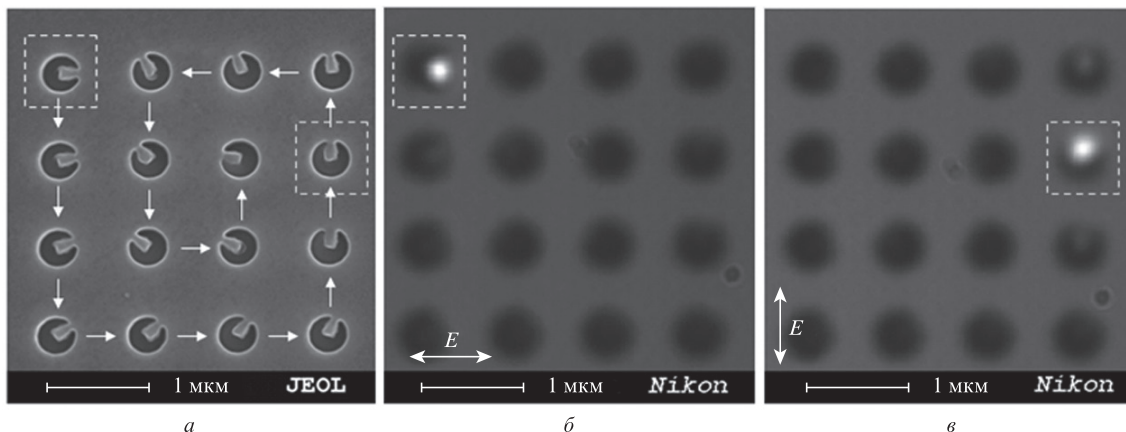


Рис.7. Полностью оптический дисплей на основе SHR-наноструктур, изготовленных в пленке алюминия толщиной 50 нм в виде матрицы 4×4 с шагом 1 мкм. Изображение оптического дисплея в электронном микроскопе (а), изображение дисплея в оптическом микроскопе при его освещении излучением с поляризацией вдоль наностержня первой SHR, указанной рамкой слева (б), и изображение дисплея в оптическом микроскопе при его облучении излучением с поляризацией вдоль направления наностержня SHR, указанной рамкой справа (в). Стрелки на SHR-наноструктуре показывают направления поляризации возбуждающего излучения.

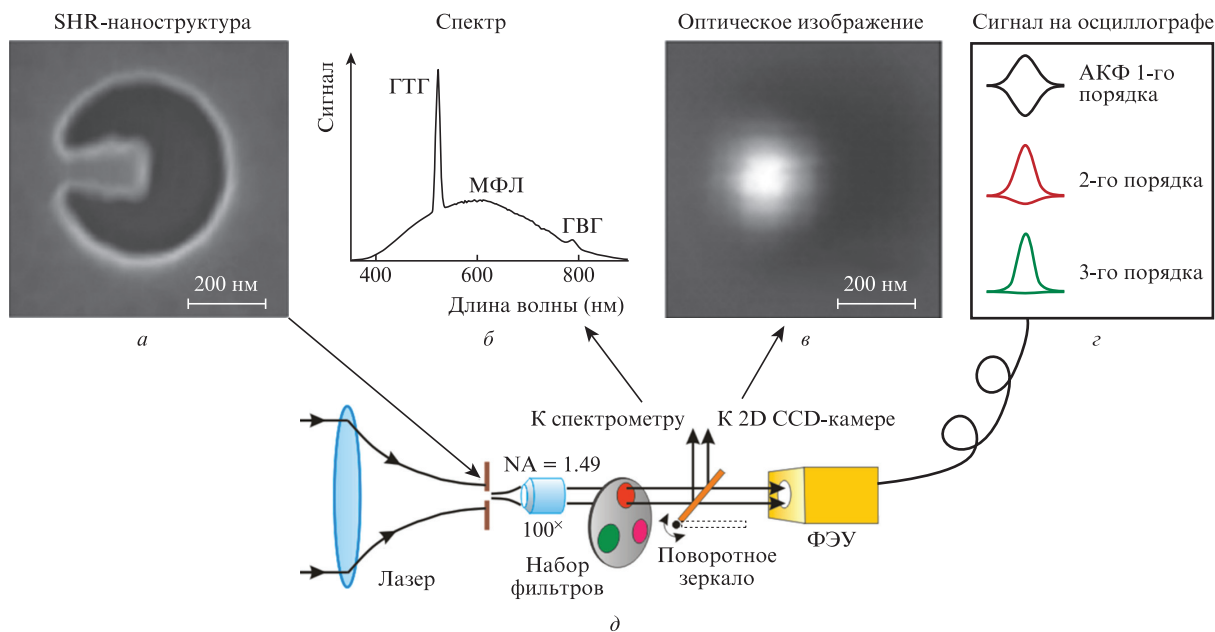


Рис.8. SHR-нанозонд фемтосекундного лазерного импульса: *a* – электронное изображение SHR-наноструктуры; *б* – спектр излучения SHR при возбуждении излучением с $\lambda = 1560$ нм; *в* – оптическое изображение SHR-наноструктуры на длине волны генерации 3-й гармоники; *г* – АКФ 1-го, 2-го и 3-го порядков, измеряемые с помощью SHR; *д* – принципиальная схема измерения пространственно-временных свойств фемтосекундного лазерного импульса с помощью SHR-наноструктуры.

же является нанометровым. Таким образом, SHR может быть использована для измерения временных свойств фемтосекундного лазерного излучения.

SHR-структура, использованная в качестве нанозонда, была изготовлена в пленке алюминия (100 нм) нанесенной на ультратонкую мембрану (40 нм) с помощью острогофокусированного ионного пучка [43]. Геометрические размеры наноструктуры выбраны такими, чтобы можно было реализовать максимальное усиление амплитуды ближнего поля на фундаментальной частоте [43]. Излучение от SHR-наноструктуры при возбуждении ее лазером с длиной волны 1560 нм содержит 2-ю и 3-ю гармоники (рис.8,а). Оптическое изображение SHR-наноструктуры на длине волны генерации 3-й гармоники показано на рис.8,в.

Схема измерения пространственно-временных свойств фемтосекундного лазерного излучения с помощью единичной плазмонной SHR-наноструктуры показана на рис.8. После интерферометра Майкельсона излучение заводилось в микроскоп и фокусировалось на SHR-наноструктуре. Прошедшее через наноструктуру излучение на фундаментальной частоте, а также излучение 2-й и 3-й гармоник собиралось на фотодетектор. Прошедшее через наноструктуру излучение на основной частоте позволяло проводить автокорреляционные измерения 1-го порядка, на частоте 2-й гармоники – 2-го порядка и на частоте 3-й гармоники – 3-го порядка. Таким образом, нанозонд на основе SHR-наноструктуры дает возможность измерять длительности фемтосекундных импульсов с нанометровым пространственным разрешением.

6. Заключение

В настоящей работе представлен краткий обзор экспериментальных исследований линейных и нелинейных свойств единичной плазмонной SHR-наноструктуры. Показана возможность эффективной генерации гармоник от инфракрасного до ультрафиолетового диапазона длин

волн, а также многофотонной люминесценции от SHR-наноструктуры. Продемонстрировано создание оптических наноприборов на основе SHR-наноструктуры: полностью оптического нанодисплея и нанозонда для измерения длительности фемтосекундного излучения.

Авторы выражают благодарность А.П.Виноградову за полезные обсуждения и критические замечания. Исследования проведены при частичной финансовой поддержке Программы Президиума РАН «Экстремальное лазерное излучение: физика и фундаментальные приложения» и РФФИ (грант № 17-02-01093).

1. Brongersma M.L., Shalaev V.M. *Science*, **328**, 440 (2010).
2. Stockman M.I., Kling M.F., Kleiberg U., Krausz F. *Nat. Photon.*, **1**, 539 (2007).
3. Балькин В.И., Мелентьев П.Н. *УФН*, 2017, принято в печать. DOI: 10.3367/UFNe.2017.06.038163.
4. Kreibig U., Vollmer M. *Optical Properties of Metal Clusters* (Berlin: Springer Verlag, 1995).
5. Bohren C., Huffman D. *Absorption and Scattering of Light by Small Particles* (New York: Wiley, 1998).
6. Liz-Marzán L.M. *Langmuir*, **22**, 32 (2006).
7. Klimov V.V. *Nanoplasmonics* (Singapore: Pan Stanford, 2014).
8. Sosa I.O., Noguez C., Barrera R.G. *J. Phys. Chem. B*, **107**, 6269 (2003).
9. Noguez C. *J. Phys. Chem. C*, **111**, 3806 (2007).
10. Khlebtsov B.N., Khlebtsov N.G. *J. Phys. Chem. C*, **111**, 11516 (2007).
11. Melentiev P.N., Afanasiev A.E., Kuzin A.A., Gusev V.M., Kompanets O.N., Esenaliev R.O., Balykin V.I. *Nano Lett.*, **16**, 1138 (2016).
12. Fuchs R., Claro F. *Phys. Rev. B*, **35**, 3722 (1987).
13. Babinet M. *C.R. Acad. Sci.*, **4**, L638 (1837).
14. Jackson J.D. *Classical Electrodynamics* (New York: John Wiley & Sons, 1999).
15. Jain P.K., Huang X., El-Sayed I.H., El-Sayed M.A. *Plasmonics*, **2**, 107 (2007).
16. Garcia M.A. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **44**, 283001 (2011).
17. Sarychev A.K., Shalaev V.M. *Electrodynamics of Metamaterials* (Singapore: World Scientific, 2007).
18. Kumar C.S. (Ed.) *Nanostructured Thin Films and Surfaces* (Weinheim: John Wiley & Sons, 2010, Vol. 5).
19. Lal S., Link S., Halas N.J. *Nature Photon.*, **1**, 641 (2007).
20. Atwater H.A., Polman A. *Nature Mater.*, **9**, 205 (2010).

21. Lee T. *Planar Microwave Engineering* (Cambridge: Cambridge Univ. Press, 2004).
22. Feth N., Linden S., Klein M.W., Decker M., Niesler F.B.P., Zeng Y., Hoyer W., Liu J., Koch S.W., Moloney J.V., Wegener M. *Opt. Lett.*, **33**, 1975 (2008).
23. Rockstuhl C., Zentgraf T., Meyrath T.P., Giessen H., Lederer F. *Opt. Express*, **16**, 2080 (2008).
24. Zentgraf E., Meyrath T.P., Seidel A., Kaiser S., Giessen H., Rockstuhl C., Lederer F. *Phys. Rev. B*, **76**, 033407 (2007).
25. Linden S., Enkrich C., Wegener M., Zhou J., Koschny T., Soukoulis C.M. *Science*, **306**, 1351 (2004).
26. Klein M.W., Enkrich C., Wegener M., Linden S. *Science*, **313**, 502 (2006).
27. Klein M.W., Wegener M., Feth N., Linden S. *Opt. Express*, **15**, 5238 (2007).
28. Klein M.W., Wegener M., Feth N., Linden S. *Opt. Express*, **16**, 8055 (2008).
29. Bethe H.A. *Phys. Rev.*, **66**, 163 (1944).
30. Roberts A. J. *Opt. Soc. Am. A*, **4**, 1970 (1987).
31. García de Abajo F.J. *Opt. Express*, **10**, 1475 (2002).
32. Degiron A., Lezec H.J., Yamamoto N., Ebbesen T.W. *Opt. Commun.*, **239**, 61 (2004).
33. Rindzevicius T., Alaverdyan Y., Sepulveda B., Pakizeh T., Käll M., Hillenbrand R., Aizpurua J., García de Abajo F.J. *J. Phys. Chem. C*, **111**, 1207 (2007).
34. Boyer D., Tamarat P., Maali A., Lounis B., Orrit M. *Science*, **297**, 1160 (2002).
35. Richardson H.H., Hickman Z.N., Govorov A.O., Thomas A.C., Zhang W., Kordesh M.E. *Nano Lett.*, **6**, 783 (2006).
36. Richardson H.H., Carlson M.T., Tandler P.J., Hernandez P., Govorov A.O. *Nano Lett.*, **9**, 1139 (2009).
37. Skirtach A.G., Dejugnat C., Braun D., Susha A.S., Rogach A.L., Parak W.J., Möhwald H., Sukhorukov G.B. *Nano Lett.*, **5**, 1371 (2005).
38. Carslaw H.S., Jaeger J.C. *Conduction of Heat in Solids* (Oxford: Oxford Univ. Press, 1959).
39. Perner M., Feldmann J., Gresillon S., März J., Von Plessen G., Porstendorfer J., Berg K.-J., Berg G. *Phys. Rev. Lett.*, **85**, 792 (2000).
40. Link S., El-Sayed M.A. *Ann. Rev. Phys. Chem.*, **54**, 331 (2003).
41. Khurgin J.B., Sun G. *Phys. Rev. A*, **88**, 053838 (2013).
42. Melentiev P.N., Konstantinova T.V., Afanasiev A.E., Kuzin A.A., Baturin A.S., Balykin V.I. *Laser Phys. Lett.*, **10**, 075901 (2013).
43. Melentiev P.N., Afanasiev A.E., Kuzin A.A., Baturin A.S., Balykin V.I. *Opt. Express*, **21**, 13896 (2013).
44. Pendry J.B., Holden A.J., Robbins D.J., Stewart W.J. *IEEE Trans. Microwave Theory Tech.*, **47**, 2075 (1999).
45. Garcia-Vidal F.J., Martin-Moreno L., Ebbesen T.W., Kuipers L. *Rev. Mod. Phys.*, **82**, 729 (2010).
46. Nezami M.S., Gordon R. *Opt. Express*, **23**, 32006 (2015).
47. Bergman J.G., McFee J.H., Crane G.R. *Appl. Phys. Lett.*, **18**, 203 (1971).
48. Fomichev S., Popruzhenko S., Zaretsky D., Becker W. *Opt. Express*, **11**, 2433 (2003).
49. Мелентьев П.Н., Афанасьев А.Е., Балыкин В.И. *Квантовая электроника*, **44**, 547 (2014) [*Quantum Electron.*, **44**, 547 (2014)].
50. Czaplicki R., Mäkitalo J., Siikanen R., Husu H., Lehtolahti J., Kuittinen M., Kauranen M. *Nano Lett.*, **15**, 530 (2015).
51. Bouhelier A., Beversluis M., Hartschuh A., Novotny L. *Phys. Rev. Lett.*, **90**, 013903 (2003).
52. Lippitz M., van Dijk M.A., Orrit M. *Nano Lett.*, **5**, 799 (2005).
53. Kim S., Jin J., Kim Y.J., Park I.Y., Kim Y., Kim S.W. *Nature*, **453**, 757 (2008).
54. Bar-Elli O., Grinvald E., Meir N., Neeman L., Oron D. *ACS Nano*, **9**, 8064 (2015).
55. Aouani H., Rahmani M., Navarro-Cía M., Maier S. *Nature Nanotech.*, **9**, 290 (2014).
56. Aouani H., Navarro-Cía M., Rahmani M., Maier S.A. *Adv. Opt. Mater.*, **3**, 1059 (2015).
57. Farkas Gy., Toth Cs., Moustazis S.D., Papadogiannis N.A., Fotakis C. *Phys. Rev. A*, **46**, R3605 (1992).
58. Kim E.M., Elovikov S.S., Murzina T.V., Nikulin A.A., Akstipetrov O.A., Vader M.A., Marowsky G. *Phys. Rev. Lett.*, **95**, 227402 (2005).
59. Константинова Т.В., Мелентьев П.Н., Афанасьев А.Е., Кузин А.А., Стариков П.А., Батурич А.С., Таусенев А.В., Конященко А.В., Балыкин В.И. *Квантовая электроника*, **43**, 379 (2013) [*Quantum Electron.*, **43**, 379 (2013)].
60. Georges A.T. *Phys. Rev. A*, **54**, 2412 (1996).
61. Shalaev V.M. *Nonlinear Optics of Random Media: Fractal Composites and Metal-dielectric Films* (Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag, 2000).
62. Fomichev S.V., Zaretsky D.F., Becker W. *Phys. Rev. B*, **79**, 085431 (2009).
63. Petrov G.I., Shcheslavskiy V., Yakovlev V.V., Ozerov I., Chelnokov E., Marine W. *Appl. Phys. Lett.*, **83**, 3993 (2003).
64. Poliakov E.Y., Markel V.A., Shalaev V.M., Botet R. *Phys. Rev. B*, **57**, 14901 (1998).
65. Wang L., Shorokhov A.S., Melentiev P.N., Kruk S., Decker M., Helgert C., Setzpfandt F., Fedyanin A.A., Kivshar Y.S., Neshev D.N. *ACS Photon.*, **3**, 1494 (2016).
66. Hajisalem G., Nezami M.S., Gordon R. *Nano Lett.*, **14**, 6651 (2014).
67. Metzger B., Schumacher T., Hentschel M., Lippitz M., Giessen H. *ACS Photon.*, **1**, 471 (2014).
68. Xu T., Jiao X., Blair S. *Opt. Express*, **17**, 23582 (2009).
69. Reinhold J., Shcherbakov M.R., Chipouline A., Panov V.I., Helgert C., Paul T., Rockstuhl C., Lederer F., Kley E.B., Tünnermann A., Fedyanin A.A. *Phys. Rev. B*, **86**, 115401 (2012).
70. Scalora M., Vincenti M.A., De Ceglia D., Roppo V., Centini M., Akozbek N., Bloemer M.J. *Phys. Rev. A*, **82**, 043828 (2010).
71. Metzger B., Cesar J., Knittel V., Trügler A., Hohenester U., Leitenstorfer A., Bratschitsch R. *Nano Lett.*, **12**, 992 (2012).
72. Hanke T., Krauss G., Träutlein D., Wild B., Bratschitsch R., Leitenstorfer A. *Phys. Rev. Lett.*, **103**, 257404 (2009).
73. Huang L., Cheng J.X. *Ann. Rev. Mater. Res.*, **43**, 213 (2013).
74. Metzger B., Hentschel M., Schumacher T., Lippitz M., Ye X., Murray C.B., Knabe B., Buse K., Giessen H. *Nano Lett.*, **14**, 2867 (2014).
75. Константинова Т.В., Мелентьев П.Н., Афанасьев А.Е., Кузин А.А., Стариков П.А., Батурич А.С., Таусенев А.В., Конященко А.В., Балыкин В.И. *ЖЭТФ*, **144**, 27 (2013).
76. Castro-Lopez M., Brinks D., Sapienza R., Van Hulst N.F. *Nano Lett.*, **11**, 4674 (2011).
77. Sasanpour P., Rashidian B., Rashidian B., Vossoughi M. *Nano*, **5**, 325 (2010).
78. Мелентьев П.Н., Кузин А.А., Афанасьев А.Е., Балыкин В.И. *Квантовая электроника*, **46**, 414 (2016) [*Quantum Electron.*, **46**, 414 (2016)].
79. Schwartz O., Oron D. *Nano Lett.*, **9**, 4093 (2012).
80. Mooradian A. *Phys. Rev. Lett.*, **22**, 185 (1969).
81. Dulkeith E., Niedereichholz T., Klar T.A., Feldmann J., von Plessen G., Gittins D.I., Mayya K.S., Caruso F. *Phys. Rev. B*, **70**, 205424 (2004).
82. Melentiev P.N., Konstantinova T.V., Afanasiev A.E., Kuzin A.A., Baturin A.S., Balykin V.I. *Opt. Express*, **20**, 19474 (2012).
83. Ghenuche P., Cherukulappurath S., Taminiau T.H., van Hulst N.F., Quidant R. *Phys. Rev. Lett.*, **101**, 116805 (2008).
84. Bouhelier A., Beversluis M.R., Novotny L. *Appl. Phys. Lett.*, **83**, 5041 (2003).
85. Schuck P., Fromm D.P., Sundaramurthy A., Kino G.S., Moerner W.E. *Phys. Rev. Lett.*, **94**, 017402 (2005).
86. Melentiev P.N., Afanasiev A.E., Kuzin A.A., Zablotkiy A.V., Balykin V.I. *Opt. Express*, **23**, 11444 (2015).
87. Biagioni P., Huang J.S., Hecht B. *Rep. Progr. Phys.*, **75**, 024402 (2012).
88. Shahbazyan T.V. *Nano Lett.*, **13**, 194 (2003).
89. Melentiev P.N., Afanasiev A.E., Kuzin A.A., Baturin A.S., Balykin V.I. *Opt. Lett.*, **38**, 2274 (2013).
90. Sarger L., Oberlé J. *Femtosecond Laser Pulses: Principles and Experiments* (New York: Springer-Verlag, 2005, p. 195).
91. Kubo A., Onda K., Petek H., Sun Z., Jung Y.S., Kim H.K. *Nano Lett.*, **5**, 1123 (2005).
92. Mårssell E., Losquin A., Svård R., Miranda M., Guo C., Harth A., Lorek E., Mauritsson J., Arnold C.L., Xu H., L'Huillier A. *Nano Lett.*, **15**, 6601 (2015).
93. Jahng J., Brocious J., Fishman D.A., Yampolsky S., Nowak D., Huang F., Apkarian V.A., Wickramasinghe H.K., Potma E.O. *Appl. Phys. Lett.*, **106**, 083113 (2015).
94. Bowlan P., Gabolde P., Trebino R. *Opt. Express*, **15**, 10219 (2007).
95. Extermann J., Bonacina L., Courvoisier F., Kiselev D., Mugnier Y., Dantec R.L., Galez C., Wolf J.P. *Opt. Express*, **16**, 10405 (2008).
96. Li H., Jia Y., Xu Q., Shi K., Wu J., Eklund P.C., Xu Y., Liu Z. *Appl. Phys. Lett.*, **96**, 021103 (2010).