最近の研究

スピン偏極パルス透過電子顕微鏡の開発

桑原真人*

1. はじめに

透過電子顕微鏡(TEM)や走査電子顕微鏡(SEM)に代表さ れる電子顕微鏡は、これまでにウィルスやナノ構造炭素材料 の発見から、元素位置や欠陥、界面構造などの種々の微細構 造の解明、さらにはナノデバイスの不良解析に至る幅広い分 野へ貢献を果たしている⁽¹⁾⁻⁽³⁾.また近年、電子線用収差補 正技術の確立、微分位相コントラストやホログラフィーによ る高分解能の位相マッピング、高速・高感度イメージングセ ンサの発展、クライオ電子顕微鏡と単粒子解析によるタンパ ク質構造解析の進展など、今後さらに多くの分野への応用・ 発展が期待される分析手法である⁽⁴⁾⁻⁽⁸⁾.

しかし、プローブ電子をもちいたナノメートルオーダーの 局所構造解析では、静的物性またはマイクロ秒程度の時間平 均した情報に限られてきた.この要因は、連続的な電子線を 利用していること、電子線用イメージングセンサのシャッタ 速度の律速によるところが大きい.また、1980年代後半の Bostanjoglo らによる High-speed streak-imaging electron microscope の開発が進められたものの、電子線偏向器の速 度限界により時間分解能は数十ナノ秒程度に限られてきた⁽⁹⁾.

この時間分解能の限界を突破する手法として近年,パルス レーザーと光電効果を利用したパルス電子線源が電子顕微鏡 に応用され,ナノ秒から数百フェムト秒の時間分解能を有す る電子顕微鏡が開発されている.これらは大きく3つの種 類に分別される.一つは時間分解した回折図形取得を行う Ultrafast Electron Deflection(UED),シングルショット撮 像による TEM 像取得を行う Dynamic TEM (DTEM),そ してストロボ撮像による時間分解 TEM イメージングを実現 する Ultrafast Electron Microscope (UEM)である.これら の電子源には,熱電子源用チップまたは金属カソードが用い られ,数ナノ秒~数百フェムト秒の時間分解能が実現されて いる⁽¹⁰⁾⁻⁽¹³⁾.また,金属ターゲットに大強度レーザーを照

射し、電子放出点近傍で既に数 MeV の電子エネルギーを有 するパルス電子線発生が実現しており、シングルショット **UED** への応用が期待されている⁽¹⁴⁾. 一方シングルショット 撮像が可能な DTEM は、高い電荷量を持った数十 ns のパ ルス電子線発生により、非可逆過程の TEM 観察を可能にす る電子顕微鏡である.シングルショット TEM 像の時間シリ ーズは結像レンズ下の静電型高速デフレクター(電子線の進 行方向をマイクロ秒以下で変調するための偏向器)により記 録素子上に並べられ,物質の反応経過を時系列に撮像す る⁽¹⁵⁾. UEM はストロボスコピックな実験手法となり観察 対象は可逆過程に限られる.しかし,積算することで撮像に 必要となる電子数を確保することが可能となり、1パルス当 たりの電荷量は小さくて良く、数百フェムト秒までの超短パ ルス動作が可能となる. UEM の電子源には、LaB₆や銀カ ソード等に紫外レーザーによる光励起により駆動するものが 利用されおり、強度の高い紫外光源を必要とすることからパ ルス駆動のみ可能となっている.このUEMは多方面で精力 的に進められており、カルフォルニア工科大学, EPFL, Göttingen 大学, Strasbourg 大学で既に実現されてい る⁽¹⁶⁾⁻⁽¹⁸⁾. また現在開発が進められている仏国 CEMES で はコヒーレントなパルス電子線利用を目指しており、カソー ドには冷陰極電界放出電子源とレーザーを組み合わせた方式 を採用している⁽¹⁹⁾.

これらとは一線を画す方法として我々は半導体フォトカソ ード電子源を採用したスピン偏極パルス透過電子顕微鏡 (SPTEM)を開発し、コヒーレント時間分解 TEM 像の取 得、高いエネルギー分解能を有する時間分解 EELS の実現 を進めている.この半導体フォトカソードは、負の電子親和 性(NEA: Negative Electron Affinity)表面を介して電子放出 がなされ、高い量子効率と高いスピン偏極度の両立が可能な 方式である.偏極度および量子効率はそれぞれ約90%、 0.5%が実現されており、さらに表面電荷制限現象の克服に より高い繰返し周波数でサブピコ秒パルスビーム生成が可能

* 名古屋大学 未来材料・システム研究所 附属高度計測実践センター;准教授(〒464-8601 名古屋市千種区不老町) Development of Spin-polarized Pulse-TEM; Makoto Kuwahara(Advanced Measurement Technology Center, Institute of Materials and Systems for Sustainability, Nagoya University, Nagoya) Keywords: *transmission electron microscope, spin, pulse, photocathode*

2019年2月12日受理[doi:10.2320/materia.58.269]

となっている⁽²⁰⁾⁽²¹⁾. また SPTEM を用いて,半導体フォト カソードが高輝度かつ低エネルギー分散の電子波であること が明らかとなってきている⁽²²⁾⁽²³⁾.

2. NEA 表面を有する半導体フォトカソード

(1) 負の電子親和性(NEA)表面

p型半導体の清浄表面にアルカリ金属を一原子層程度蒸着 すると、その真空準位は伝導帯下端のエネルギーよりも低く なる.この表面状態を負の電子親和性(NEA: Negative Electron Affinity)表面といい、伝導帯底に存在する低エネル ギー電子を真空中に取り出すことが可能となる. SPTEM で は、この半導体部分に GaAs-GaAsP 歪超格子を主に用いて いる.半導体フォトカソードでは、次の三つの過程を経て電 子線が生成される.まず,(i)半導体バンドギャップ程度の エネルギーを持つレーザー光を照射し、活性層の伝導帯に電 子を励起する. その後, 励起電子は(ii)表面へと拡散し, (iii)NEA 表面を介して真空へ放出される(図1). 金属カソ ードやLaB6を用いた光陰極材料では、近紫外レーザーによ り数 eV の真空準位を越えるエネルギーを電子に与え,光電 子放出を実現しているのに対して, NEA 表面を有する半導 体フォトカソードではバンドギャップ程度の光子エネルギー で光電子放出が可能となる.

(2) 時間応答性能と光-電子変換効率(量子効率)

通常の金属フォトカソードでは、紫外レーザーにより物質 中に励起された電子はエネルギー緩和を強く受けながら表面 近傍へと拡散してくる.この緩和過程を経てもなお表面の真 空準位より大きなエネルギーを持つ一部の電子が電子線とし て取り出される.このエネルギー緩和過程は数十fsと早い ため、脱出できる電子の物質内平均自由行程は数nmと浅 い⁽²⁴⁾.このため、金属カソードではフェムト秒の超高速電 子パルス生成が容易に可能となる.しかし、エネルギー緩和 により励起した電子の殆どが脱出できず、その量子効率は



図1 電子放出機構とエネルギー分散幅.

一方,NEAを用いた半導体フォトカソードは,伝導帯下端にエネルギー緩和した電子であっても真空中に取り出すことが可能である.伝導帯下端の電子は再結合により消滅するがその再結合時間は100 ps 程度と長いため,100 nm の活性層のの拡散時間が数 ps であることを考慮すると,非常に効率の良い光陰極であることが分かる⁽²⁶⁾.不利な点は拡散時間によりパルス幅が律速されてしまうことである.しかし,活性層の厚みを減らし拡散距離を短くすることで,サブピコ秒パルスの発生が可能となる.実際に,数ピコ秒までの早いパルス生成が確認されており,ほぼ固体内部の拡散速度程度の早さで電子放出が起こっていることが確かめられている⁽²⁷⁾⁽²⁸⁾.

3. 半導体フォトカソードを用いた透過電子顕微鏡

(1) 装置の概要

図2にNEA 表面を有する半導体フォトカソードを搭載し た SPTEM の装置構成を示す. 電子顕微鏡本体は超高真空 対応300 kV 透過電子顕微鏡 H9000-UHV(日立製作所製)を ベースに開発を行った.本装置において NEA フォトカソー ド型 DC 電子銃から放出された電子は,スピン制御器を介し て電子顕微鏡本体へと入射される.この電子銃では、背面照 射型フォトカソードを採用することで大きな光収束角を可能 にし、励起レーザーのスポット直径1.8 mµm を実現してい る⁽²⁹⁾.これにより、輝度はショットキー型電子源と同等か それ以上の性能が期待される. さらに電子銃の引き出し電界 は、空間電荷効果を抑制(輝度の低下を抑制)するために、フ ォトカソード表面上で4 MV/m の高い電場勾配になるよう 設計されている. これにより, 高い電荷量を持ったパルス電 子線発生が可能となる.また安定的に電子顕微鏡を動作させ るために、電子銃の真空度は10⁻¹⁰ Pa 台の極高真空を実現 し、NEA 表面劣化を抑制している.電子顕微鏡本体とレー ザー光学系は別に設置されており,カソードへのレーザー照 射は光ファイバーを用いて行われる.これにより,TEM 鏡 体とレーザー光学系との相対的な振動をキャンセルすること ができ、安定した電子線光源位置の確保が可能となってい る. また, 真空外部より試料励起用レーザーを導入可能であ り、ポンプ光で物質を励起させプローブ電子で観測するポン プープローブ実験が可能となる. 電子パルス幅測定にはファ ラデーカップ型電流モニターを設けることで、ナノ秒までの 電子パルス幅を直接観察する. ピコ秒パルスの場合は,静電 型高速偏向器を用いたストリーク法によりパルス幅を測定す る⁽²⁸⁾.本装置では記録装置としてシンチレーターを介した CCD カメラ(Gatan 社製 Orius SC200) とエネルギー損失分 光装置(Gatan 社製 ENFINA)を有している.

SPTEM では,連続電子線からピコ秒までの時間変調した 電子線の発生が可能であり,広いダイナミックレンジを有す る時間分解能が実現される.レーザー光学系はパルス電子線



図2 SPTEM と電子源駆動レーザーおよび試料励起用レーザーの構成.

のパルス幅により2つの光学台から構成されている.一つ は、CWレーザーを音響光学変調器(Acousto-Optic Modulator: AOM)(または電気光学変調器(Electro-Optic Modulator: EOM))で強度変調することにより、連続(CW: continuous wave)モードから2nsパルス電子線までの電子線発生が 可能となる光学系である.もう一つの下段の光学系では20 psから180 fsのパルス幅が発生できる.またレーザー行路 を2方向に分割し、一方に光路差を調整する遅延機構を備 えることで、ポンプレーザーとプローブ電子線からなる時間 分解測定を可能にしている.また、波長幅選択によるピコ秒 パルスレーザー生成系と群速度分散補償系が備わっており、 光ファイバー伝送中に発生する群速度分散を相殺し、励起レ ーザーのパルス幅増大を抑制している.

(2) プローブ電子線の基礎特性

SPTEM では連続モードにおいて, TEM 像および回折図 形の取得が可能であることを確認し, 平面から放出される電 子源を用いた初めての例となった.また,電子エネルギー損 失分光(EELS)におけるゼロロスピーク幅から現行の最高輝 度を有する電界放出型電子源を越える240 meV 以下の狭線 幅を有することが確認された(図3)⁽²²⁾.これは EELS 分析 においてエネルギー分解能に寄与する性能であり,詳細な組 成分析や小さなエネルギー分裂を検出することが可能とな る.また色収差の低減による分解能の向上,モノクロメータ による極単色化における高輝度電子源として利用が期待され る.EEL スペクトルにおけるゼロロスピークは非対称なス ペクトル形状をしており,正のエネルギー損失側の急峻な立 ち下がりは低いバックグラウンドの実現につながる.この特



図3 エネルギー損失分光スペクトルにおけるゼロロス ピーク形状.

徴は、プラズモンやバンド間遷移などの数 eV 程度の低エネ ルギー領域で起きるエネルギー損失において分析精度の向上 に大きく貢献する.平面の半導体フォトカソードから放出さ れる電子線の輝度を計測した結果、ソース電流2.5 μ A にお いて3.8×10⁷ A cm⁻² sr⁻¹ @30 keV であることを直接測定 した.これはビームエネルギー200 keV において3.1×10⁸ A cm⁻² sr⁻¹に相当し、ショットキー電子源と同等の輝度であ る⁽³⁰⁾.次に、カソード放出面上でのエミッタンスについて も実測を行い、規格化した横方向の運動量拡がりを算出し た.その結果を図4に示す.これより、30 keV における電 子ビームの拡がり角は2 mrad 程度であり、電子が高い平行 性を持って半導体フォトカソード表面から放出されることが 確認された⁽²³⁾⁽³¹⁾.この横方向の運動量拡がりは、半導体中



図4 電子線発生時の横方向運動量広がりと励起エネル ギー依存性.実線は理論から予想される運動量広 がり.

の波数-エネルギー分散特性,輸送中のエネルギー緩和,固 体中における電子の有効質量により特性が決定される.近 年,市橋らによる角度分解光電子分光(ARPES)測定により, NEA 表面を介した光電子のエネルギー分散計測が行われ た⁽³²⁾.そのエネルギー分散は伝導帯底付近の波数特性を反 映した分散構造を有していることが実測されている.特に, SPTEM で使用している半導体の活性層厚は100 nm 程度と 薄いため,伝導帯底の波数-エネルギー空間における分散曲 線を強く反映する.半導体中における波数の広がりが均一で あると過程すると、平面から放出される電子の横方向運動量 拡がり $\langle p_{\perp} \rangle / m_0 c$ は、電子親和度 χ_{NEA} と伝導帯底から見た 光励起電子のエネルギーるEを用いて、 $\sqrt{\{k_{\rm B}T + 2(\chi_{\rm NEA} + \delta E)/3\}/m_0c^2}$ と表される⁽²³⁾. このため, 伝導帯底へ励起した電子を活用できる NEA フォトカソード では、エネルギー幅と横方向運動量分散が同時に小さい状態 を実現することが可能となる. この性能は電子波のコヒーレ ンス特性に重要な意味を持つ.実際に本装置をもちいて電子 線バイプリズムにより生成した干渉縞(図5)から, 試料面上 で150 nm 以上の可干渉長を有していること,その平行度は $(1.76\pm0.3) \times 10^{-5}$ rad であることが確認された⁽²³⁾. これは 電子波束が4×10-6の高い縮退度を有し、高い偏極度、高 い輝度,長いコヒーレント長から量子干渉効果(アンチバン チング)の増幅が期待されることを示している⁽³³⁾.

4. パルス電子線発生と時間分解測定への応用

SPTEM では連続動作とパルス動作において,フォトカソ ードに照射するレーザー径およびその位置は変化しない.こ のため,空間電荷効果がない場合,その光源位置およびビー ムエミッタンスは両動作条件において同じである.このた め,電子光学条件を一定にしていれば,試料位置における電 子線の干渉性は連続動作とパルス動作で同じになる特徴を持 つ.これは,電子源の量子効率が十分に高いため使用するレ ーザー強度は低くて良く,小型のレーザー光源や光ファイバ ーによるレーザー輸送が容易にできることが関わっている.



図5 連続電子線による干渉縞の様子.干渉縞は電子線 バイプリズムを用いた電子波の重ね合わせにより 実現されている.



図6 (a)連続電子線による磁区構造観察(ローレンツ顕 微鏡像),(b)ピコ秒パルス電子波による電子線ホ ログラム.(c)パルス電子線ホログラフィー(b)を 用いて抽出した位相像.

連続動作時の干渉実験と同様に,電子線バイプリズムを用い てピコ秒パルス電子線による干渉縞が得られるかを実験し, パルス電子による時間分解位相情報の抽出が可能であること を明らかにした⁽³⁴⁾.図6にパルス動作時における電子線ホ ログラフィーの一例を示す.試料はSrFe₁₂O₁₉をアルゴンイ オンミリングにより薄片化したものであり、室温において試 料内部は迷路状の磁区ドメインを有する.本試料は名古屋工 業大学の浅香透准教授よりご提供いただいた.パルス電子線 によるホログラフィーには、試料中の磁区構造が真空境界付 近まで存在する箇所を用い、真空中に漏れ出す磁場を計測し た.図6(a)にローレンツ像により観察した磁区構造を示 す. 試料端の磁壁位置のフレネル縞が曲がっていることから も磁場が真空中に漏れていることが推察される.図6(b)は 80 MHz の16 ps パルス幅の電子線を用い, 露光時間 5 秒で 取得した電子線ホログラムである.干渉縞は電子線バイプリ ズムを用いて,漏れ磁場によって変調を受けた電子波(試料 の界面付近)と、参照波(真空領域)を重ね合わせることで生 成される.フーリエ変換再生法を用いて干渉領域の位相抽出 を行った結果,図6(c)に示す磁場分布を反映した時間分解 位相像を得た.ここで,図6(c)は位相を二倍増幅し位相変 化を強調して表している. この等位相線図は試料からの漏れ 磁場の分布に対応している.

しかしながら,図6(b)のホログラムを見て分かる通り, 電子線ホログラフィーに利用できる電子線量が連続動作に比 ベて少ない.これは,パルス電子線のピーク輝度は連続動作 時よりも高いが,そのデューティ比(パルス幅とパルス間隔 の比)が低いことにより,時間平均したときの輝度は低く見 えてしまうことに起因する.一方,パルス動作において電荷 量をさらに増やそうとすると,ベルシェ効果を含む空間電荷 効果による輝度の低下,パルス幅やエネルギー幅の増大が生 じてしまう.このため,パルス当たりに詰め込められる電子 数には限界が存在する.本装置においても,空間電荷制限現 象によりエネルギー幅の増加,干渉性の低下などが実験的に 確かめられている⁽³⁵⁾.空間電荷効果を含むシミュレーショ ンにより,空間電荷制限効果は電子源の加速部分で起こって いることが解明されており,その加速電場の改善が問題克服 の鍵となる.

5. 高輝度パルス電子線の実現に向けて

TEM においてコヒーレントなビコ秒パルス電子線発生を 実現してきた.しかし,電子線発生部における空間電荷効果 により,パルス当たりの電子数に制限が生じることも明らか となった.この制限のため,ストロボ撮像法による時間分解 測定では1回の像取得に長い時間を要してしまう.さら に,シングルショット撮像法においては像取得に必要となる 電子数確保と撮像時間(またはTEM 像の拡大率)とトレード オフ関係により,非可逆過程の観測における時間分解能が数 百ナノ秒程度に留まっている.このため,投影型像取得の強 みである非可逆過程の観察を大きく発展させるには,電子線 発生部の高性能化による高輝度パルス電子発生の実現が必要 不可欠である.高密度なパルス電子発生には,高い初期加速 電場と速やかな相対論領域への加速が有効であり,図7に示 すシミュレーション結果もそれを支持している.図7は1 psパルス幅で電子発生させた時の規格化輝度が,電荷量に



図7 空間電荷効果を考慮したシミュレーションにより 算出した規格化輝度の電荷量依存特性.

応じてどのように変化するか、加速電圧と併せてプロットし たものである.ここで、加速電圧による輝度の増幅を無視す るため、電子線進行方向の運動量を moc とすることで規格 化を行っている. また図中の一点鎖線は輝度が電荷量に比例 する場合の直線を表している. このシミュレーションは加速 勾配の増加に伴い、線形性から外れる電荷量が大きくなるこ とを示唆している. その結果, 最高輝度を実現する電荷量は 加速電圧が高い方が大きいことがわかる.一方,装置自体の 高度化によっても時間分解能の限界が存在するため、分析機 自体の高度化だけではなく、情報学的アプローチによる超低 ドーズ量画像処理を組み合わせることが今後必須と考えられ る.動的観察では像全体は大きく変化することはなく、その 一部分の変化を捉えることが主であるため、データとしては スパースとなる. このため, 圧縮センシングや辞書学習を用 いた画像解析の導入が適している(36)(37).量子効率の高いフ ォトカソードを活用する装置では、連続駆動からピコ秒動作 までの広いダイナミックレンジを電子光学系の変更無しで実 現できる.これにより,超時空間分解測定前後の像取得が可 能となるため、十分なコントラストをもつ参照像を取得でき る. この特徴を活かすことで、低いコントラストの時間分解 測定像それぞれを圧縮センシングにより回復させることが可 能となり、超低ドーズ量での時間分解測定が期待できる.こ のように装置の高度化と新たな画像解析手法の相乗効果によ り、利用可能な電子線量を余すことなく利用し、電子顕微鏡 の時空間分解能の限界を越えていくことが今後の課題となる.

6. おわりに

半導体フォトカソードを利用した SPTEM では,これま でにピコ秒パルス電子発生とそれを用いた TEM 像,干渉縞 観測までを実現した.ここで紹介した時間分解測定結果はす べてストロボスコピックな測定方法によるものであり, UEM モードでの時間分解測定を可能とする内容である.今 後は,局所状態を時間軸で捉えることで過渡現象を含む物質 の動的性質を明らかにし,エネルギー損失過程の解明を目指 す. さらにプラズモンポラリトンの高速時間分解測定などへ の応用を図り、省エネルギーデバイスの高効率化に寄与する 分析手法へと展開していく⁽³⁸⁾⁽³⁹⁾. また、シングルショット イメージングにおいて高い時間分解能を実現し、光励起過程 の観察に限られてきた時間分解計測から脱し、高分子材料や 生体試料などの電子線損傷を受けやすい試料の構造解析やオ ペランド観察の実現を目指していく⁽⁴⁰⁾⁽⁴¹⁾.

本内容は、名古屋大学の石田高史助教、齋藤晃教授、宇治 原徹教授、田中信夫名誉教授と共同で実施した研究結果をま とめたものである.また、日立製作所中央研究所の品田様、 高口様、菅谷様、古川様には透過電子顕微鏡開発におけるサ ポートに感謝いたします.本研究は、科学研究費補助金 (17H02737,15K13404,18H05208)および JST 未来社会 想像事業(JPMJMI18G2)の補助により推進している.

文 献

- (1) P. Roingeard: Biol. Cell, 100(2018), 491–501.
- (2) S. Iijima: Nature, **354**(1991), 56–58.
- (3) A. Tonomura, N. Osakabe, T. Matsuba, T. Kawasaki and J. Endo: Phys. Rev. Lett., 56(1986), 792–795.
- (4) N. Shibata *et al.*: Nature Comm., 8(2017), 15631.
- (5) T. Tanigaki et al.: Scientific Reports, 7(2017), 16598.
- (6) D. Contarato, P. Denies, D. Doering, J. Joseph and B. Krieger: Nucl. Instr. Amd Meth. A, 635 (2011), 69–73.
- (7) E. J. Boekema, M. Folea and R. Kouril: Photosynth Res., **102** (2009), 189–196.
- (8) M. Liao, E. Cao, D. Julius and Y. Cheng: Nature, **504**(2013), 7478.
- (9) O. Bostanjoglo, R. P. Tornow and W. Tornow: Ultramicroscopy, 21 (1987), 367–373.
- (10) O. Bostanjoglo, B. Elschner, Z. Mao, T. Nink and M. Weingarter: Ultramicroscopy, 81 (2000), 141–147.
- (11) R. J. D. Miller: Science, 343(2014), 1108–1116.
- (12) B. Siwick and E. Collet: Nature, 496(2013), 306-307.
- (13) P. Zhu, H. Berger, J. Cao, J. Geck, Y. Hidaka, R. Kraus, S. Pjerov, Y. Shen, R. I. Tobey and Y. Zhu: New J. Phys., 17 (2015), 063004.
- (14) S. Tokita, M. Hashida, S. Inoue, T. Nisyoji, K. Otani and S. Sakabe: Phys. Rev. Lett., 105 (2010), 215004.
- (15) M. R. Armstrong, B. W. Reed, B. R. Torralva and N. D. Browning: Appl. Phys. Lett., 90 (2007), 114101.
- (16) H. S. Park, J. S. Baskin and A. H. Zewail: Nano Lett., 10 (2010), 3796.
- (17) L. Piazza, D. J. Masiel, T. LaGrange, B. W. Reed, B. Barwick and F. Carbone: Chem. Phys., **423**(2013), 79–84.
- (18) A. Feist, E. Echternkamp, J. Schauss, S. V. Yalunin, S. Schäfer and C. Ropers: Nature, **521** (2015), 200–203.
- (19) F. Houdellier, G. M. Caruso, S. Weber, M. Kociak and A. Arbouet: Ultramicroscopy, 186 (2018), 128–138
- (20) T. Nishitani, T. Nakanishi, M. Yamamoto et al.: J. Appl. Phys.,

97(2005), 094907.

- (21) K. Togawa, T. Nakanishi, T. Baba *et al.*: Nucl. Instr. and Meth. A, **455**(2000), 118.
- (22) M. Kuwahara, S. Kusunoki, X. G. Jin *et al.*: Appl. Phys. Lett., 101 (2012), 033102.
- (23) M. Kuwahara, S. Kusunoki, Y. Nambo, K. Saitoh, X. G. Jin, T. Ujihara, H. Asano, Y. Takeda and N. Tanaka: Appl. Phys. Lett., 105 (2014), 193101.
- (24) D. R. Penn: Phys. Rev. B, 35(1987), 482-486.
- (25) H. Sugiyama, H. Kobayakawa, Y. Takeda, Y. Takashima and K. Naniwa: J. Japan Inst. Metals, 69 (2005), 493–496.
- (26) R. Shinohara, K. Yamaguchi, H. Hirota, Y. Suzuki, T. Manago, H. Akinaga, T. Kuroda and F. Minami: Jpn. J. Appl. Phys., **39**(2000), 7093.
- (27) K. Aulenbacher, J. Schuler, D. V. Harrach *et al.*: J. Appl. Phys., 92(2002), 7536.
- (28) Y. Honda, S. Matsuba, X. G. Jin, T. Miyajima, M. Yamamoto, T. Uchiyama, M. Kuwahara and Y. Takeda: Jpn. J. Appl. Phys., 52(2013), 086401.
- (29) X. G. Jin, N. Yamamoto, Y. Nakagawa *et al.*: Appl. Phys. Express, 1(2008), 045002.
- (30) L. Reimer and H. Kohl: Transmission Electron Microscopy (Springer, New York), 5th edition (2008), Chap. 4.
- (31) P. W. Hawkes and H. Kasper: Principles of Electron Optics (Academic Press, London), Vol. 2(1989), Chap. 48.
- (32) F. Ichihashi, X. Dong, A. Inoue, T. Kawaguchi, M. Kuwahara, T. Ito, S. Harada, M. Tagawa and T. Ujihara: Rev. Sci. Instr., 89(2018), 073103.
- (33) M. P. Silverman: Phys. Lett. A, 120(1987), 442.
- (34) 桑原真人,宇治原 徹,浅野秀文,齋藤 晃,田中信夫:顕微 鏡, 50 (2016), 151.
- (35) M. Kuwahara, Y. Nambo, K. Aoki, K. Sameshima, X. G. Jin, T. Ujihara, H. Asano, K. Saitoh, Y. Takeda and N. Tanaka: Appl. Phys. Lett., **109** (2016), 013108.
- (36) E. J. Candes and T. Tao: IEEE Trans. Inform. Theory, 56 (2010), 2053–2080.
- (37) S. Ono: IEEE Transactions on Image Processing, 26(2017), 1554–1564.
- (38) N. Yamamoto and H. Saito: Opt. Express, 22(2014), 29761.
- (39) A. L. Koh, A. I. Fernandez–Dominguez, D. W. McComb, S. A. Maier and J. K. W. Yang: Nano Letters, 11 (2011), 1323.
- (40) J. M. Yuk, J. Park, P. Ercius, K. Kim, D. J. Hellebusch, M. F. Crommie, J. Y. Lee, A. Zettl and A. P. Alivisatos: Science, 336 (2012), 61.
- (41) A. Merk, A. Bartesaghi, S. Banerjee, V. Falconieri, P. Rao, M. I. Davis, R. Pragani, M. B. Boxer, L. A. Earl, J. L. S. Milne and S. Subramaniam: Cell, 166 (2016), 1698–1707.
