

## 電子回折顕微鏡

## Electron Diffraction Microscope

上村 理<sup>a</sup>, 郷原 一 寿<sup>b</sup>

Osamu Kamimura and Kazutoshi Gohara

<sup>a</sup>株式会社日立製作所 中央研究所<sup>b</sup>北海道大学大学院工学研究院

**要旨** 我々は、資源やエネルギー開発の分野において重要度の増している軽元素材料の解析に向けて、低加速電子ビームと回折イメージングを組み合わせた技術開発を行ってきた。実験により得た回折パターンを計算機処理し、試料構造像(再構成像)を得る回折イメージングは、レンズ収差に制限されない高分解能像が得られることや、位相像が取得できることなど、従来のイメージング手法と異なる特長を有する。本解説では、我々が行ってきた低加速電子ビームでの回折イメージング検証結果および原子分解能実証結果を示すとともに、これまでの研究開発の中でわかってきた回折イメージングの課題と、それに対する我々の取り組みに関して説明する。

キーワード：回折, 位相, 走査電子顕微鏡, 透過電子顕微鏡, カーボンナノチューブ

## 1. はじめに

省資源・省エネルギーに向けた様々な研究および開発において、軽元素材料は重要な構成要素となっている。これら軽元素材料には、二次電池の担い手であるリチウムや電極を構成する炭素、磁石に含まれるボロン等、多様な元素が該当する。電子顕微鏡を用いて軽元素を含む材料を解析する際には、照射する電子ビームが材料にダメージを与えることと、電子が散乱され難くコントラストが低いことが課題となる。これらの課題を解決するために、低エネルギー(低加速)の電子ビームを用いる手法が着目されている。低加速電子ビームを用いることでノックオンダメージは低下するものの、レンズ収差により高分解能化が困難であることや、更なるコントラスト向上が求められていることなど、まだ課題は残る。これらに対する取り組みとして、新たな収差補正器の開発<sup>1~4)</sup>や位相像を得る手法の開発<sup>5,6)</sup>が進んでいるが、装置構成の複雑化が伴っている。

一方で、回折イメージング、もしくは回折顕微鏡と呼ばれるイメージング手法が関心を得ている<sup>7~11)</sup>。この手法では、電子ビームを試料に照射し、試料で散乱したビームが形成する回折パターンを取得して、計算機処理によって実像を再構成する。従来の電子顕微鏡がレンズの性能(収差)で分解能が制限されていたのに対して、回折イメージングでの分解能は、計算機処理に用いる回折パターンをどこまで広く(広い回折角まで)取得するかで決まる。そのため、レンズ性能に制限されない高分解能化が期待できる。従来の結晶構造解析

が周期構造を仮定するのとは異なり、非周期構造の材料でもイメージングが可能なることも特長である。また、振幅像だけでなく位相像も得ることができる。すなわち、低加速電子ビームと回折イメージングを組み合わせれば、軽元素材料に求められる解析技術を、装置構成の複雑化を伴わず実現することが可能となる。

本解説では、これまで我々が行ってきた低加速電子ビームでの回折イメージングの実証と原子分解能の実現結果をまとめる。また、その過程で解決した課題や工夫した処理方法、今後の展望を述べる。なお、回折イメージングの手法に関する概要は、文献 11 および本稿とほぼ並行に準備を進めている文献 12 も参照いただくと幸いである。

## 2. 回折イメージング概説

図 1 に回折イメージングの概念図を示す。試料構造とフーリエ変換の関係にある回折パターンは、透過電子顕微鏡の場合対物レンズの後側焦点面に形成されるが、レンズを用いなくても試料から十分離れた位置に検出器を置くことで得ることができる。回折パターンを取得する際に欠落する位相情報を再生するために、反復位相回復法<sup>11)</sup>を用いた計算機処理を行う。図 2 に反復位相回復法の概略を示す。実験で取得した回折パターンと視野の半分以上は何もないこと(試料が視野の半分以下であること: オーバーサンプリング条件<sup>13)</sup>)を既知情報として用いる。これらを逆空間と実空間の拘束条件としてフーリエ変換を繰り返すことにより、位相が再生される。再生された位相と回折パターンからの振幅との逆フーリエ変換とで得られる再構成像は試料構造を表す。このとき、実空間と逆空間の位相を再生できるため、振幅像に加えて、

<sup>a</sup>〒185-8601 東京都国分寺市東恋ヶ窪一丁目 280 番地  
2013 年 10 月 16 日受付

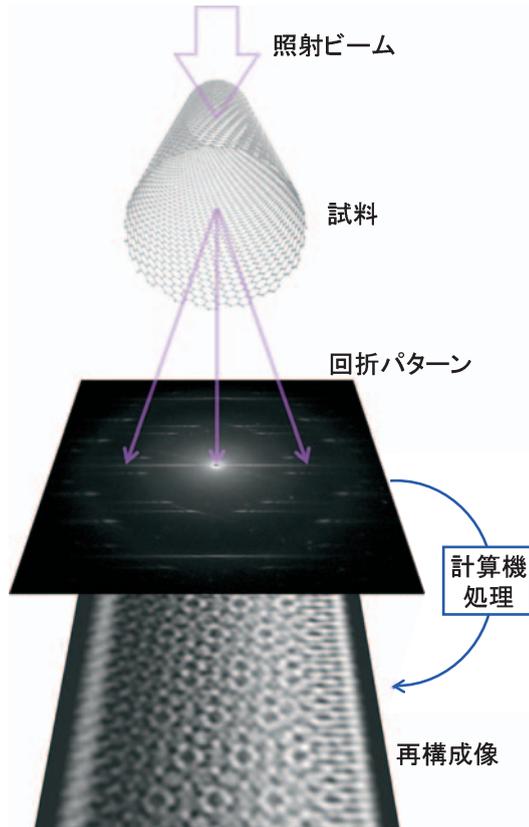


図1 回折イメージング概念図

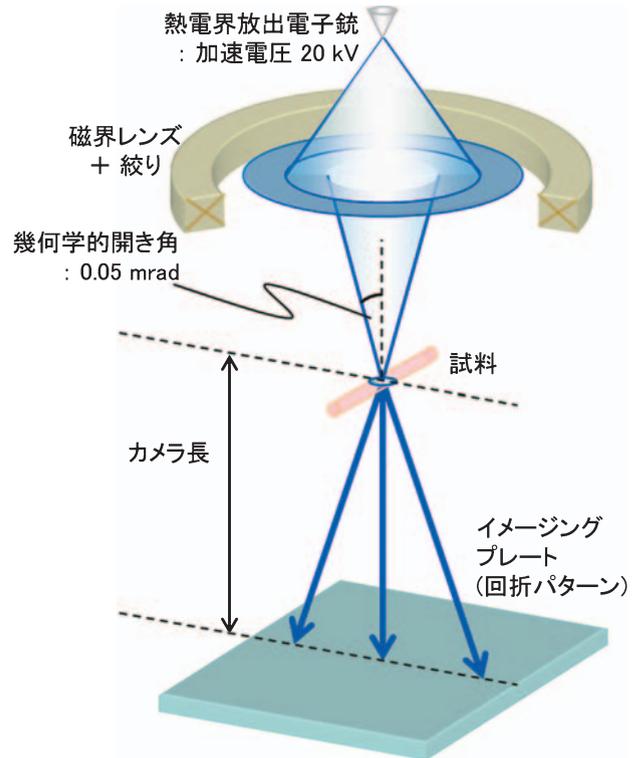


図3 照射光学系概略図

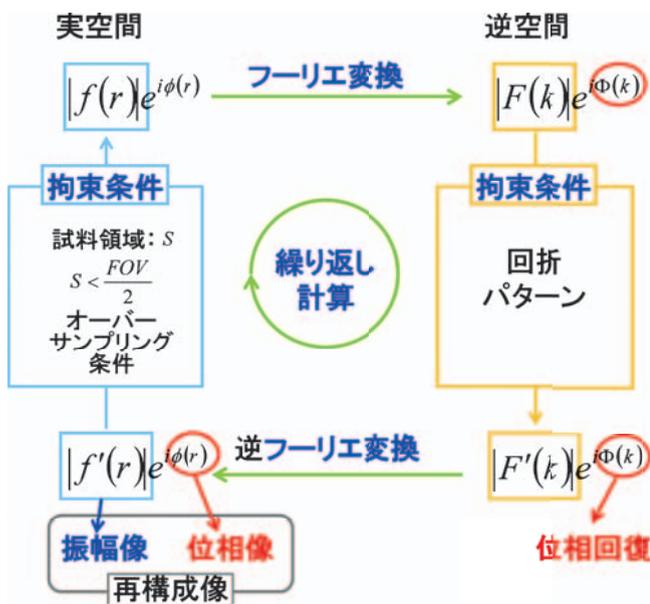


図2 反復位相回復法概略図

試料を透過した電子線の位相像を得る手段ともなりえる。視野の半分以上が何もない前提を満たすために、通常は微粒子やナノチューブのような孤立した試料を用いるか、もしくは微小開口の絞りをを用いて視野を制限する。回折イメージングは、結像レンズもしくはプローブ形成のためのレンズを用いないことから、レンズレスイメージングと言える。

回折イメージングは1952年に Sayre<sup>7)</sup> により可能性が提唱された。手法は Gerchberg と Saxton<sup>8)</sup>, Fienup<sup>9)</sup> により確立され、材料科学への適用は1999年 Miao らの実験的検証<sup>10)</sup> に始まる。X線を用いた実証例は、析出物や微粒子の三次元構造<sup>14,15)</sup>, ウイルス<sup>16,17)</sup>, 染色体<sup>18)</sup>, 細胞<sup>19)</sup> などがあり、無機物、バイオ試料を含む様々な材料で結果が示されている。これらには、計算機(コンピュータ)の発展と高輝度で高い干渉性のビームが得られる第三世代の放射光の実用化が背景にあると考えられる。さらに近年は、高輝度高干渉性光源として開発されたX線自由電子レーザーでも適用されはじめています。

一方で電子ビーム(電子顕微鏡)の分野では、2002年に原理検証が2つの微小開口を試料としてなされ<sup>20)</sup>, 2003年には、二層カーボンナノチューブ(DWCNT)を用いた実証結果が示された<sup>21)</sup>。我々は2008年にRHEED(反射高エネルギー電子回折)装置を改造したプロトタイプ実験機を用い、多層カーボンナノチューブ(MWCNT)を試料として低加速(20 kV)での実証を行った<sup>22)</sup>。その後これまでにいくつかのグループが実証例を得るに至っている<sup>23~33)</sup>。

これまででは高分解能レンズを製作することが困難なX線と異なり、電子顕微鏡では原子レベルの分解能を得るレンズ光学系を組むことが可能であるため、回折イメージングを利用したイメージングへの関心が低かったとも考えられる。しかしそれ以上に、電子ビーム特有の課題があり、なかなか実証に至らなかったと考えられる。本解説では、我々が行った課題解決や工夫を第5章にまとめる。

### 3. 多層カーボンナノチューブを用いた低加速回折イメージング実証

本研究ではまず、RHEED用装置を改造したプロトタイプ実験機を用いて、低加速電子回折イメージングの原理検証を行った<sup>22)</sup>。図3に、プロトタイプ実験機の光学系概略図を示す。熱電界放出電子銃より加速電圧20 kVで放出した電子ビームを磁界レンズにより収束し、試料(MWCNT)上に照射する。このとき照射ビームの開き角(平行度)は、磁界レンズ内に設置した絞りの開口半径と絞り-試料間距離(約100 mm)で幾何学的には決まる。本研究では、絞りの開口半径を5  $\mu\text{m}$ とし、幾何学的開き角を0.05 mradとした。試料を透過した回折パターンをイメージングプレート(imaging plate: IP)に記録するためのフィルム搬送機構を搭載した。IPは高いダイナミックレンジ(14 bit)と高い線形性を有するため、回折強度を定量的に解析する回折イメージングには適した検出器である。しかし、回折パターンはダイレクトビーム近傍の強度が高いため、ダイナミックレンジを超えて強度が飽和する場合があります。IPを用いても飽和は避けることはできない。強度が飽和した場合、CCDカメラでは飽和した画素近傍への強度のにじみ(ブルーミング)が起きるが、IPの場合は飽和画素からの影響が少ないことが利点である。これにより、試料とIPの間にレンズがない構造で、レンズ収差の影響を受けない回折パターンの取得を可能とした。

プロトタイプ実験機を用いた低加速電子回折イメージングの検証には、アーク放電により作製したMWCNTを用いた。プロトタイプ実験機では試料上でのビーム径が100 nm以上になるため、SEM像は得られるものの、直径数nmのMWCNTを観察することが困難であった。そこで、周辺数 $\mu\text{m}$ には他にMWCNTがないような、MWCNTが孤立した領域を選択した。その中で、比較的直線的で構造が一律なMWCNTを事前にTEM(加速電圧200 kV)を用いて選別した(図4)。MWCNTからの回折パターンを図5(a)に、そこ

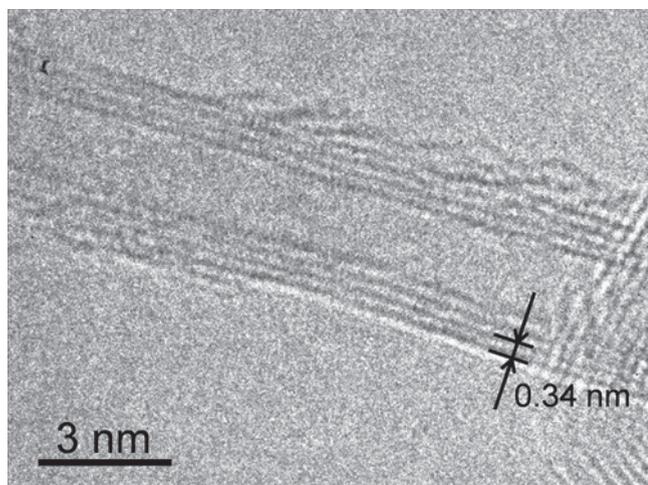


図4 MWCNTのTEM像(加速電圧:200 kV)

から得た再構成像を図5(b)に示す。また、図5(b)の再構成像にはTEM像を並べて示した。TEM像との比較から、得られた再構成像はMWCNTの特徴的な形状(内径、外径、ウォール数)を再現できていることがわかる。この結果により、低加速(20 kV)電子ビームでの回折イメージングを実証した。しかし再構成像での強度が一様でない、強いノイズがあるなどの課題が残った。これらの課題に対して、次の単層カーボンナノチューブ(SWCNT)での原子分解能実証において工夫を施した。

### 4. 単層カーボンナノチューブを用いた原子分解能実証

プロトタイプ実験機では、以下の課題があった:①実像(SEM像)は観察できるものの、磁界レンズが一段で実像の分解能が十分でない。②加速電圧が20 kVに固定で、対象試料に応じて最適加速電圧を選ぶには不適。③シャッターおよびフィルム搬送が手動で使い勝手が良くない。④絞りが固定

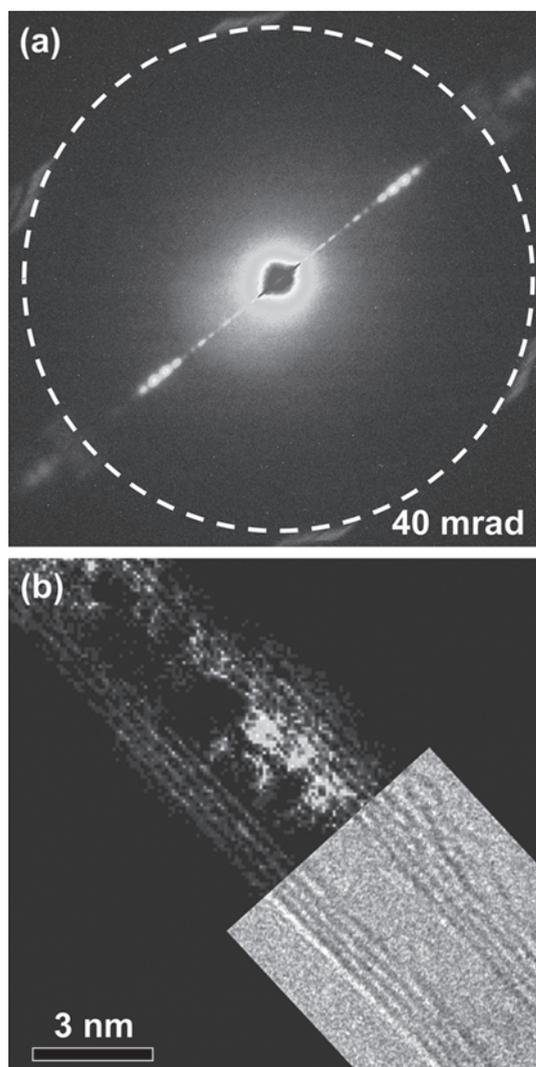


図5 MWCNTでの低加速回折イメージング実証結果<sup>22)</sup>  
(a) 回折パターン(加速電圧:20 kV)、(b) 再構成像(200 kV TEM像を挿入)。

のため試料へ照射するビームの開き角と電流量が固定で実験条件の自由度が低い。

そこで、高い分解能での像観察と回折パターン取得の両立に加え、上記課題を解決した電子回折顕微鏡を、走査電子顕微鏡 (SEM) をベースに製作した<sup>28)</sup>。その概観を図 6 に示す。インレンズ型の SEM S-5500 (日立ハイテクノロジーズ製) をベース機とし、回折パターンを記録するために TEM 用カメラ室 (フィルム搬送機構) と CCD カメラを搭載した。以下に示した回折パターンは、TEM 用カメラ室内に入れた IP を用いて記録したものである。このような装置構成により、プロトタイプ実験機と比べて SEM 像の分解能が向上し、直径 1 nm 程度の CNT でも SEM 像で選択し、回折パターンを取得することが可能となった。また、可動式の STEM 検出器を搭載し、明視野 STEM 像を得られるようにした。加速電圧は 0.5 kV から 30 kV の間で可変である。

本電子回折顕微鏡では、SEM および STEM 像を得るとき

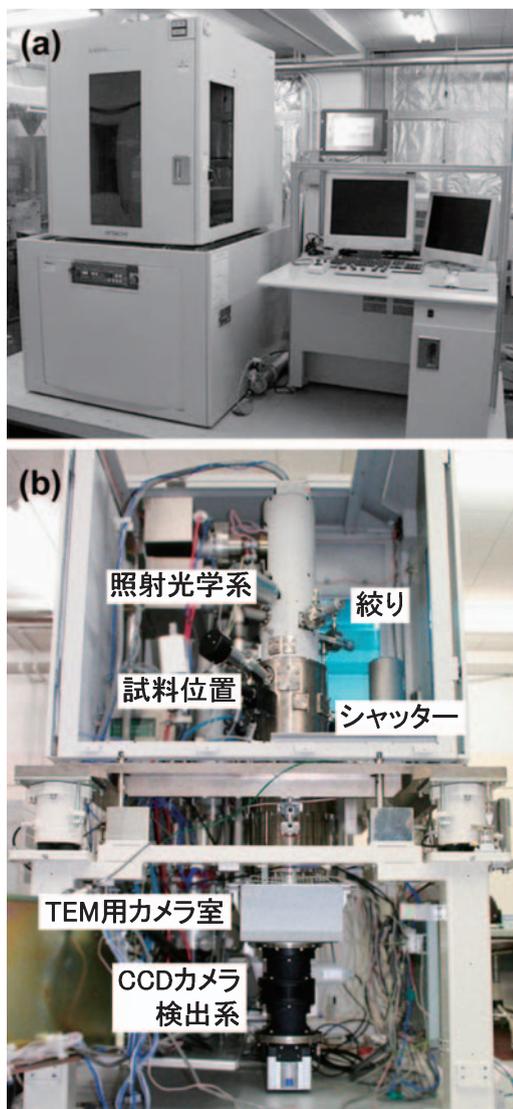


図 6 電子回折顕微鏡概観図<sup>28)</sup>

と回折パターンを得るときとは、照射光学系を切り替えることとした。図 7 にその概略図を示す。SEM および STEM 像を得る際の分解能は試料上にどれだけ小さなビームを形成できるかで決まるため、対物レンズでビームを小さく絞り試料上に照射する。一方回折パターンを取得する際には、対物レンズを用いずコンデンサレンズで試料上にビームをフォーカスする。ここで照射ビームの開き角は途中に設置してある絞りの開口径で規定し、現セットアップでは 0.015 ~ 0.3 mrad で可変としてある。図 8 に電子回折顕微鏡で得た回折パターンの例を示す。試料は DWCNT で、加速電圧 30 kV、露光時

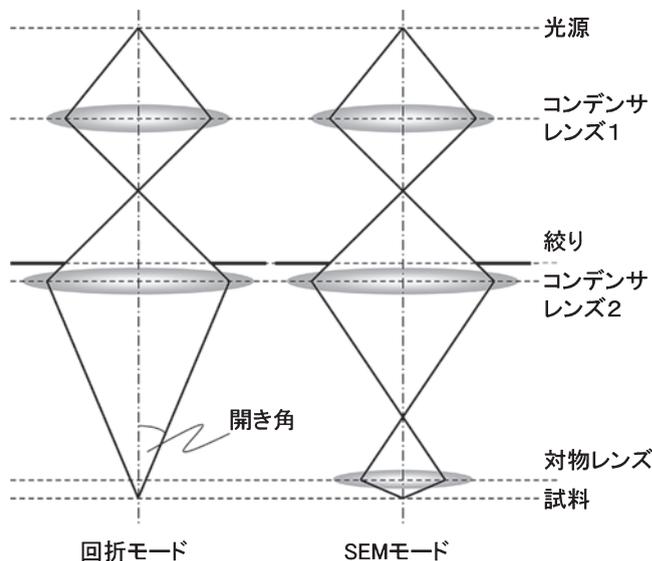


図 7 電子回折顕微鏡の光学系概略図

回折パターンを取得する際 (回折モード) と SEM および BF-STEM 像を取得する際 (SEM モード) では、照射光学系を切り替える。

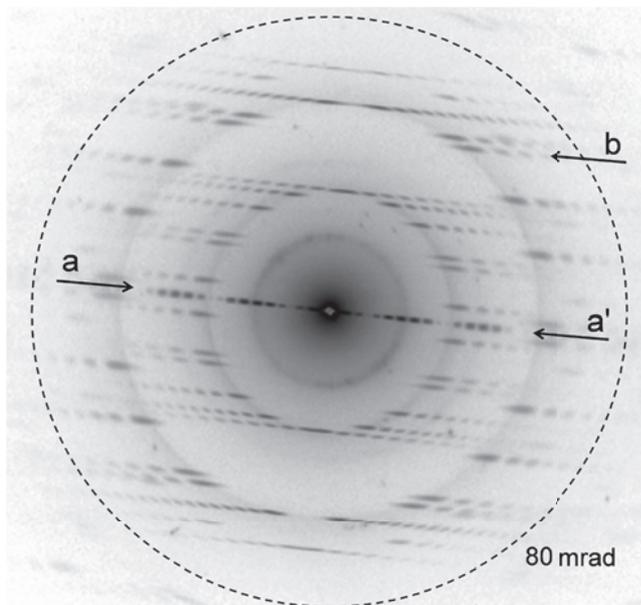


図 8 回折パターン例 (試料: DWCNT, 加速電圧: 30 kV, 白黒反転)

間 60 秒で得たものであり、equatorial line (図中 aa') 上の強度分布や layer line (一例図中 b) 上の強度分布が解像できている。

原子分解能の実証を行う際には、SWCNT を試料とした。SWCNT は MWCNT よりも細いため、チューブがベンドしたり振動したりしやすく、回折パターンの広角側強度がシャープでなくなりやすい。そのため、両端が固定された SWCNT を選択した。図 9 に用いた SWCNT の SEM 像と、加速電圧 30 kV、開き角 0.15 mrad、露光時間 30 秒で取得した回折パターンを示す。得られた回折パターンから、SWCNT の直径を 3.2 nm と導出した。また、照射ビームに対して SWCNT は垂直でなく、8 度 (± 2 度) 程度チューブの長手方向に傾斜していることがわかった<sup>30)</sup>。

MWCNT を用いた実証では、ノイズが強く再構成像の強度が様でないことが課題であった。そこで、回折パターンに対して以下の工夫を施した：①ダイレクトビーム近傍の強度からガウス分布を仮定してバックグラウンドを引いた (非弾性散乱に由来する強度を近似した)。②回折パターン全体に対して一様強度を引いた。これらの画像処理を施した回折パターンに反復位相回復法を適用した。また、反復位相回復法適用時に、照射ビームの開き角を補正するためにデコンボリューションを施した。このようにして得た再構成像を

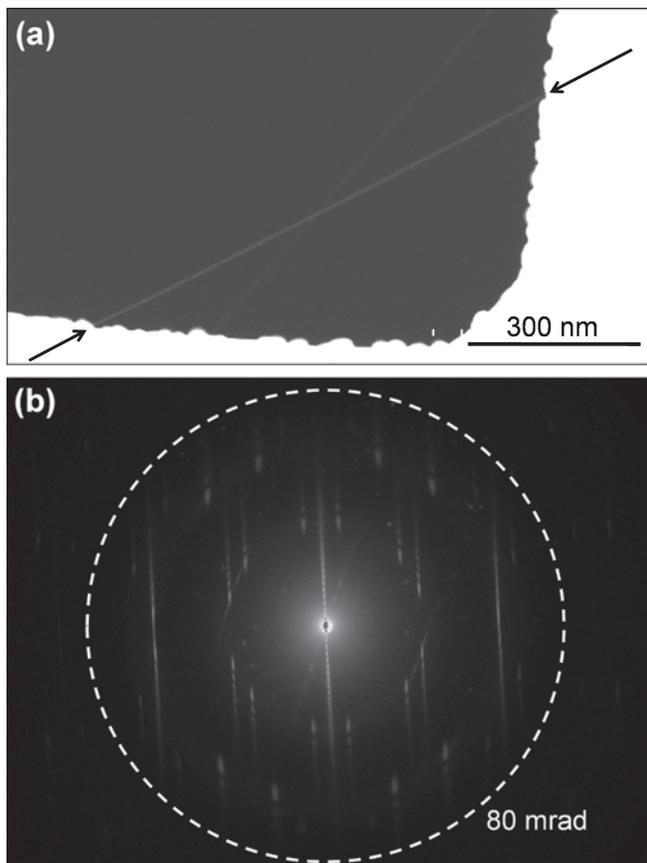


図 9 SWCNT の SEM 像 (a) と回折パターン (b) (加速電圧: 30 kV)

図 10 (a) に示す<sup>30)</sup>。同じ再構成像と比較のためのシミュレーション結果として、exit wave の振幅像を図 10 (b) に示す。図 10 (c), (d) には、再構成像と exit wave 振幅像から特徴的構造を拡大した図を示し、対応する原子配列モデル図を図 10 (e) に示した。これらの像の比較から、得られた再構成像は SWCNT の原子配列を示しているとみなせる。また、この SWCNT の直径は 3.2 nm であり、このような立体的な構造を有する試料に対して (SWCNT の 3 nm 以上離れた上下両面で)、同等の分解能が得られていることがわかる。

図 11 には、中心部分をトリミングしたものを示す。図 11 (a), (b), (c) はそれぞれ再構成像、シミュレーション結果 (exit wave 振幅像)、原子配列モデル図である。図 11 (b) のシミュレーションと図 11 (c) の原子配列モデル図は、試料傾斜を考慮して導出した。図 11 (a) で青色と紫色の矢じりで示した強度は原子配列モデル図 (図 11 (c)) との比較から、それぞれ 2 個の炭素原子がオーバーラップしたものと孤立した炭素原子とであることがわかり、それらのプロファイルを示した図 11 (d), (e) でも違いが確認できる。すなわち、得られた再構成像の強度分布は、炭素原子 1 個と 2 個の違いを識別できる程度の定量性があることがわかる。さらに、図 11 (f) には、再構成像 (図 11 (a)) とシミュレーション像 (図 11 (b)) との線 AA' および BB' に沿った強度分布を比較した。これより、実験結果とシミュレーションとでわずかな違いはあるもの、強度分布が対応していることがわかった。今後より実験精度を向上することで、さらに定量化の精度を上げることが可能となる。

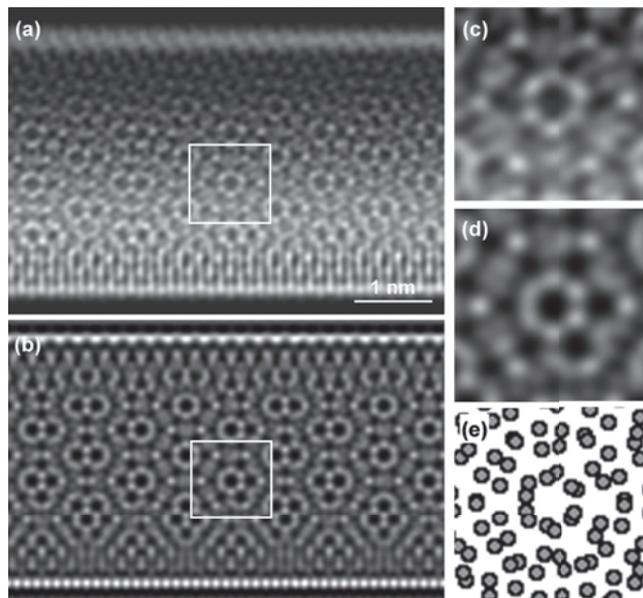


図 10 SWCNT での原子分解能低加速電子回折イメージングの再構成結果<sup>30)</sup>

(a) 再構成像, (b) シミュレーション結果 (exit wave 振幅像), (c) 再構成像拡大 (図 (a) 中四角形部分), (d) シミュレーション像拡大 (図 (b) 中四角形部分), (e) (c), (d) と同じ領域の原子配列モデル図。

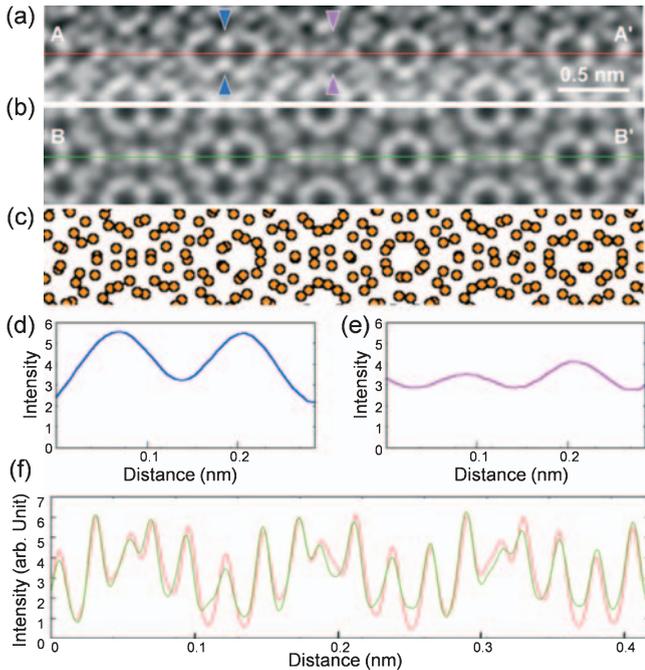


図 11 SWCNT での原子分解能低加速電子回折イメージングの再構成結果 (拡大)<sup>30)</sup>  
 (a) 再構成像, (b) シミュレーション結果, (c) 原子配列モデル図, (d), (e) 図 (a) 中青色と紫色の矢じり間のラインプロファイル, (f) 図 (a) と (b) のラインプロファイル比較

## 5. 電子顕微鏡で回折イメージングを実行する上での課題

以下に、回折イメージングの課題や我々がこれまでに適用した工夫をまとめる。

回折イメージングを行う上での大きな課題は、ダイレクトビーム近傍のデータ欠損である。回折パターンでは一般にダイレクトビームの強度が高く、通常は検出器のダイナミックレンジを超えて強度が飽和する。そのため、飽和した領域は正確な回折強度分布とはみなせなくなる。この課題に対して、今回の SWCNT の実証例では IP の 2 回読み取りをすることで、飽和した領域の強度を再現させた<sup>30)</sup>。1 回目には強度が飽和していた画素も、2 回目にゲインを下げた読み出しでは飽和せず、ダイレクトビームに相当すると考えられる強度分布が得られた。

また、回折パターンに含まれる様々なノイズは、再構成像に影響を与えている。本実証例でも示したように、非弾性散乱の影響は回折パターンでの強度が高いため、再構成像への影響は大きい。さらに、画像全体のノイズの低減が望まれる。これらを解決するには、エネルギーフィルターの適用や、検出器の感度の向上、電子源の輝度向上が重要であると考えられる。

回折イメージングは、試料中各点からの散乱波の干渉により得られた回折パターンを利用している。そのため再構成できる領域の大きさは、照射ビームの可干渉距離に依存する。照射ビームの可干渉距離は  $\frac{\lambda}{2\alpha}$  で表わされ ( $\lambda$ : ビームの波長,  $\alpha$ : 開き角)<sup>34)</sup>、加速電圧 30 kV (波長 0.007 nm)、照射ビー

ムの開き角が 0.1 mrad の場合、35 nm となる。再構成領域は可干渉距離程度かそれより小さいため、用いる試料は十分小さいものを選択する必要がある。もしくは、加速電圧を低くするか (波長が長くなる) 照射ビームの開き角を小さくし、可干渉距離を拡大する必要がある。ただし、照射ビームの開き角を小さくすると試料上での電流密度が小さくなるため、輝度の高い電子源を用いることが重要である。

## 6. まとめと今後の展望

ここでは、低加速電子ビームでの回折イメージングの実証と原子分解能の実現に関して述べた。回折イメージングを適用することで、カーボンナノチューブのようにビームによるダメージを受けやすく立体的で複雑な構造を有する試料に対して、試料ダメージの少ない低加速電子ビームを用いた場合でも原子分解能でイメージングができることを示した。

電子回折イメージングによる原子分解能での実証例はいくつかあるものの、まだ欠陥やグレインバウンダリーなどの非周期な要素を再構成した例はみられていない。これには、原子配列を示す強い回折スポットと、非周期構造に由来する回折強度の両方を、高いダイナミックレンジで記録することが重要になると考える。また、電子回折イメージングでの位相像の再構成例は、楔形に厚さが変化した Si での実証例等成果が出始めており<sup>33)</sup>、今後さらに進展していくものと考えている。

一方、微粒子やナノチューブといった孤立した試料に対しての実証例が主体であったことに対して、微小開口を使う手法<sup>23,33)</sup>と試料上でビームをシフトさせて得た複数の回折パターンから再構成を行う手法 (タイコグラフィ<sup>29,31,32)</sup>) は、試料への制約を緩和するものである。タイコグラフィは、試料上でのビームシフトの精度が分解能と関連しているため、原子分解能を得るには照射ビームもしくは試料微動の位置制御が重要になるものの、これらの技術は回折イメージングのさらなる展開可能性を示すと言える。

取差補正器による高分解能化、波動場再構成や位相板による位相のイメージングとともに、回折イメージングは電子顕微鏡の可能性を広げる手法である。特に低加速電子ビームを用いることは、試料ダメージの低減に加え、原子分解能の実現や位相像の再構成を、簡便なハードウェアで実現することができる。今後、社会的ニーズである軽元素材料を中心とした新たな材料開発およびデバイス開発に、走査電子顕微鏡をベースとしたこの装置および手法が貢献できることを期待する。

## 謝 辞

本研究における実験データの取得および計算機処理は、日立製作所中央研究所土橋高志氏、北海道大学前原洋祐氏との共同研究によるものである。また、原子分解能実証実験で用いた単層カーボンナノチューブは、名古屋大学篠原久典教授のグループで作製された。この研究の一部は、独立行政法人科学技術振興機構 (JST) の重点地域研究開発推進プログラム (育成研究) により行った。

文 献

- 1) Suenaga, K., Sato, Y., Liu, Z., Kataura, H., Okazaki, T., Kimoto, K., Sawada, H., Sasaki, T., Omoto, K., Tomita, T., Kaneyama, T. and Kondo, Y.: *Nature Chemistry*, **1**, 415–418 (2009)
- 2) Meyer, J.C., Kisielowski, C., Erni, R., Rossell, M.D., Crommie, M.F. and Zettl, A.: *Nano. Lett.*, **8**, 3582–3586 (2008)
- 3) Krivanek, O.L., Chisholm, M.F., Nicolosi, V., Pennycook, T.J., Corbin, G.J., Dellby, N., Murfitt, M.F., Own, C.S., Szilagy, S., Oxley, M.P., Pantelides, S.T. and Pennycook, S.J.: *Nature*, **464**, 571–574 (2010)
- 4) Suenaga, K. and Koshino, M.: *Nature*, **468**, 1088–1090 (2010)
- 5) Matsumoto, T. and Tonomura, A.: *Ultramicroscopy*, **63**, 5–10 (1996)
- 6) Danev, R. and Nagayama, K.: *Ultramicroscopy*, **88**, 243–252 (2001)
- 7) Sayre, D.: *Acta Crystallogr.*, **A 5**, 43 (1952)
- 8) Gerchberg, R.W. and Saxton, W.O.: *Optik*, **35**, 237–246 (1972)
- 9) Fienup, J.R.: *Appl. Opt.*, **23**, 2758–2769 (1982)
- 10) Miao, J., Charalambous, P., Kirz, J. and Sayre, D.: *Nature*, **400**, 342–344 (1999)
- 11) 郷原一寿, 上村 理 : 顕微鏡, **44**, 69–73 (2009)
- 12) 上村 理, 郷原一寿 : 日本結晶学会誌, in press
- 13) 西野吉則, 石川哲也 : 放射光, **19**, 3–14 (2006)
- 14) Takahashi, Y., Nishino, Y., Ishikawa, T. and Matsubara, E.: *Appl. Phys. Lett.*, **90**, 184105 (2007)
- 15) Takahashi, Y., Zettsu, N., Nishino, Y., Tsutsumi, R., Matsubara, E., Ishikawa, T. and Yamauchi, K.: *Nano. Lett.*, **10**, 1922–1926 (2010)
- 16) Shapiro, D., Thibault, P., Beetz, T., Elser, V., Howells, M., Jacobsen, C., Kirz, J., Lima, E., Miao, H., Neiman, A.M. and Sayer, D.: *Proc. Nat. Acad. Sci.*, **102**, 15343–15346 (2005)
- 17) Song, C., Jiang, H., Mancuso, A., Amrbekian, B., Peng, L., Sun, R., Shah, S.S., Zhou, Z.H., Ishikawa, T. and Miao, J.: *Phys. Rev. Lett.*, **101**, 158101 (2008)
- 18) Nishino, Y., Takahashi, Y., Imamoto, N., Ishikawa, T. and Maeshima, K.: *Phys. Rev. Lett.*, **102**, 018101 (2009)
- 19) Jiang, H., Song, C., Chen, C.-C., Xu, R., Raines, K.S., Fahimian, B.P., Lu, C.-H., Lee, T.-K., Nakashima, A., Urano, J., Ishikawa, T., Tamanoi, F. and Miao, J.: *Proc. Nat. Acad. Sci.*, **107**, 11234–11239 (2010)
- 20) Weierstall, U., Chen, Q., Spence, J.C.H., Howells, M.R., Isaacson, M. and Panepucci, R.R.: *Ultramicroscopy*, **90**, 171–195 (2002)
- 21) Zuo, J.M., Vartanyants, I., Gao, M., Zhang, R. and Nagahara, L.A.: *Science*, **300**, 1419–1421 (2003)
- 22) Kamimura, O., Kawahara, K., Doi, T., Dobashi, T., Abe, T. and Gohara, K.: *Appl. Phys. Lett.*, **92**, 024106 (2008)
- 23) Morishita, S., Yamasaki, J., Nakamura, K., Kato, T. and Tanaka, N.: *Appl. Phys. Lett.*, **93**, 183103 (2008)
- 24) Huang, W.J., Zuo, J.M., Jiang, B., Kwon, K.W. and Shim, M.: *Nature Physics*, **5**, 129–133 (2009)
- 25) Dronyak, R., Liang, K.S., Stetsko, Y.P., Lee, T.-K., Feng, C.-K., Tsai, J.-S. and Chen, F.-R.: *Appl. Phys. Lett.*, **95**, 111908 (2009)
- 26) Dronyak, R., Liang, K.S., Tsai, J.-S., Stetsko, Y.P., Lee, T.-K. and Chen, F.-R.: *Appl. Phys. Lett.*, **96**, 221907 (2010)
- 27) De Caro, L., Carlino, E., Caputo, G., Cozzoli, P.D. and Giannini, C.: *Nature Nanotechnology*, **5**, 360–365 (2010)
- 28) Kamimura, O., Dobashi, T., Kawahara, K., Abe, T. and Gohara, K.: *Ultramicroscopy*, **110**, 130–133 (2010)
- 29) Hue, F., Rodenberg, J.M., Maiden, A.M., Sweeney, F. and Midgley, P.A.: *Phys. Rev.*, **B 82**, 12415(R) (2010)
- 30) Kamimura, O., Maehara, Y., Dobashi, T. and Gohara, K.: *Appl. Phys. Lett.*, **98**, 174103 (2011)
- 31) Humphry, M.J., Kraus, B., Maiden, A.M. and Rodenberg, J.M.: *Nature Communications*, **3**, 730 (2012)
- 32) Putkunz, C.T., D'Alfonso, A.J., Morgan, A.J., Weyland, M., Dwyer, C., Bourgeois, L., Etheridge, J., Roberts, A., Scholten, R.E., Nugent, K.A. and Allen, L.J.: *Phys. Rev. Lett.*, **108**, 073901 (2012)
- 33) Yamasaki, J., Ohta, K., Morishita, S. and Tanaka, N.: *Appl. Phys. Lett.*, **101**, 234105 (2012)
- 34) Born, M. and Wolf, E.: *Principles of Optics*, 7th ed. (1999)