

高強度フェムト秒レーザー生成・加速電子線源を用いた 超高速電子線回折と偏向法

Ultrafast Electron Diffraction and Deflectometry with Electron Sources Generated and Accelerated by Intense Femtosecond Lasers

阪部 周二^{a, b*}, 橋田 昌樹^{a, b}, 時田 茂樹^{a, b#}, 井上 峻介^{a, b}, 寺本 研介^{a, b}, 渡邊 浩太^{a, b}
Shuji Sakabe, Masaki Hashida, Shigeki Tokita, Shunsuke Inoue, Kensuke Teramoto and Kouta Watanabe

^a京都大学化学研究所

^b京都大学大学院理学研究科物理学・宇宙物理学専攻

要旨 高度電子顕微鏡への次なる挑戦の一つが高い時間分解能を持つ高速電子顕微鏡の開発である。その端緒として超高速電子線回折の研究が進められている。電子線回折により超高速の非可逆過程の現象を捉えるには、高強度の短パルス電子線源の開発が必須となるが、空間電荷効果による電子パルスの広がりという本質的な問題がある。筆者らは高強度短パルスレーザー生成・加速電子を用いた超高速電子線回折法の開発を目指して、レーザーと固体との相互作用による電子生成・加速に関する研究を行っている。本方法では高強度短パルスレーザーにより標の中で電子生成（プラズマ化）と電子加速が瞬時に起こり、高密度の短パルス電子源として期待される。本論文では、レーザー電子加速の原理の概略、この電子源からのパルスの静磁場を用いた圧縮、単一パルスによる電子線回折パターン撮像の実証、さらに、短パルス電子線偏向法を用いた表面波の観察について概説する。

キーワード：超高速電子線回折、高強度フェムト秒レーザー、レーザー加速、電子偏向法

1. はじめに

物質の構造や組成を探るために様々な量子ビームが観察対象により使い分けてプローブとして用いられている。電子線は①原子弾性散乱断面積が大きい、②有効弾性散乱当たりの非弾性散乱によるエネルギー損失が小さいなどの利点がある。この四半世紀に電子顕微鏡の技術は飛躍的に進化し、弾性散乱により回折された電子を利用した物質の構造探索（透過型電子顕微鏡 TEM）¹⁾の他に、非弾性散乱過程で生じた様々な2次の信号（特性 X 線や光、2次電子など）を用いた物質組成や電子状態、表面構造探索の機能（電子エネルギー損失分光法 EELS²⁾など）も持ち合わされ、分析電子顕微鏡として、物質を多角的に探索する装置として発展してきている。TEMでの構造探索では、0.1 nm 以下の高い空間分解能が実現している。

さらなる高度化への開発課題の一つは、物質の動的構造を調べることのできる時間分解電子顕微鏡である。動的変化の観察はビデオレートの画像記録から始まった。これは、連続

電子ビームを照射しながら、試料の変化をビデオで撮影するもので、ミリ秒程度の時間分解能に限られる。本来、電子顕微鏡のもつ高い空間分解能で観る原子分子レベルの構造の動的変化は数 10 fs ~ ps 程度で生じるものであり、空間分解能に見合う時間分解能が求められる³⁾。

より高い時間分解能で動的構造を捉えることができるのは、短パルスのポンプ&プローブ法だけである。ポンプとプローブビームの時間間隔を順次変化させて動的変化を追う。よって、少なくとも観察したいコマ数だけポンプ&プローブパルス照射が必要であるので、観察現象は可逆的であるか、あるいは非可逆の場合、照射パルス毎に同品質の試料が供給されなければならない。ポンプ&プローブ法の時間分解はポンプとプローブビームのパルス幅とこれらのビームの同期精度で決まる。つまり、完全同期の極短パルスポンプとプローブビームが必要である。また、時間分解と言っても、現象の時間原点を設定しなければならない。この対象現象の誘起はポンプビームで決まる。短パルスのポンプとして最も一般的なのは光（短パルスレーザー）である。この場合、対象現象は光誘起現象になる。ポンプとして光を用いる場合、③ほとんどの観察試料において、電子の散乱行程はポンプ光の進入深さと良く一致することも、上述の電子線の利点に加わる。他の量子ビームをポンプに用いたい場合も、短パルスの量子ビームを用意しなければならないので、その生成と制御も重

[†] 〒611-0011 京都府宇治市五ヶ庄

TEL: 0774-38-3291; FAX: 0774-38-4509

* E-mail: sakabe@laser.kuicr.kyoto-u.ac.jp

#現所属：大阪大学レーザーエネルギー学センター

2015年8月10日受付

要な研究課題となる。高強度短パルスレーザーによる量子ビーム生成は最も有望な方法である。プローブ用の電子ビームをレーザーで生成する場合、短パルスレーザーを2分し、一方をポンプ量子ビーム生成に、他方を電子ビーム生成に用いれば、ポンプとプローブを完全同期することができる。

2. パルス電子ビームによる電子線回折

ポンプ&プローブ法を用いた電子顕微鏡観察は、時間分解電子線回折実験に始まり、最近では時間分解EELS測定も行われるようになった⁴⁾。これを利用して、ナノ材料表面に生成する近接場光の分布を直接観察する、光誘起近接場電子顕微鏡の開発も報告されており⁵⁾、今後のさらなる発展が期待されるとともに研究開発が重要になると考えられる。

最初の挑戦は超高速電子線回折(UED)である。UEDの重要な課題はプローブの短パルス電子線を如何に生成制御するかである。特に、上述のように非可逆過程を観察する場合、ポンパルスを照射された試料は初期状態に戻らないので、鮮明な像を得るためのさらなる重ね撮像には、新たな試料を供給しなければならない。そのため、十分な強度のフェムト秒電子パルスの生成が必要不可欠である。プローブ用の電子パルスで現在研究開発されている主なものは、フェムト秒レーザーフォトカソードとDCあるいはRF加速器を用いたものである。

フェムト秒レーザーフォトカソード電子源を用いたUEDはA.H. Zewailら^{6,7)}やJ. Millerら⁸⁾のグループが研究を進めてきた。基本的な構成は、市販の数100 keVの電子顕微鏡に装備されている電子源(熱電子放出や電子のトンネル効果を利用した電界放出方式)をフォトカソードに置き換え、電子加速や収束は加速管や電子レンズ系を基本的にはそのままに利用している。電子源のためのレーザー光や試料にポンプレーザー光を入射できるように窓やガイドミラーを設置できるように改良を加えている。フォトカソードから発する電子のパルス幅はレーザーパルス幅程度に短くできるが、発生電子を回折に利用できる数100 keVのエネルギーにまで加速しなければならない。電子源から放出した電子パルスは加速され試料に到達するまでの飛程中に「空間電荷効果」により、そのパルス幅は大きく広がり、これが時間分解能を低減する。そのためにパルス内の電子数が制限される。100 fs程度の電子パルスを保つために 10^3 個以下の電子数にしている⁹⁾。そのため、明瞭な回折パターンを得るためには、数1000パルス以上を照射し回折電子を積算しなければならないので、対象の動的現象は可逆(照射パルス時間間隔内で初期状態に戻る)でなければならない(原理的には、パルス毎に新しい試料に交換できれば非可逆でも可能のようなのであるが、数1000パルス毎に試料を取り替えることは現実的ではない)。観察対象によっては、ns程度の時間分解能でも意義のある場合もあり、実際、単一パルスでの回折パターンの撮像に成功しており、10数nsの分解能では、T. LaGrangeらは実像も捉えている¹⁰⁾。

非可逆過程を時間分解撮像するには、単一パルスで明瞭画像を捉えるうる電子数をもつ短パルス電子線が必要である。空間電荷効果によるパルス幅広がり抑制を抑制される考えられる方法は、(1)電子を相対論領域のエネルギー(>MeV)にまで加速する、(2)電子パンチ密度を下げる(究極には1個)があるが、(1)は試料の損傷、散乱断面積の低減の問題があり、現実に結晶化学分野で汎用している電子顕微鏡のエネルギーは数100 kV以下である。(2)は上述のように、多パルスによる積算が必要であるので、非可逆過程の観察ができない。第3の方法として、運動量にある程度の広がりを持つ短パルス線源を用い、それによるパルス広がり位相回転することによりパルス圧縮する(自己圧縮)方法がある。これでは、狭いエネルギー(運動量)幅を必要とする高空間分解能の実像撮像には用いることはできないが、回折パターンの取得には有効であると考えられる。

図1に時間分解電子線回折(回折モード)実験として報告されている主な短パルス電子の電子量とパルス幅を示す(ここでは、上述のように1 MeV未満の電子を対象としている)^{9~22)}。電子検出器の性能から、撮像するには対象試料の結晶に 10^6 個程度以上の電子を照射する必要がある。単一撮像にはフォトカソードによる発生とDC電場での加速だけでは限界のあることが図から分かる。これらはいずれも数 10^3 から数 10^4 個のパルスを照射し信号を積算して回折パターンを得ている。

この分野において2010年に特筆すべき二つの発表があった。一つは、後述する筆者のグループのレーザー加速電子を用いた電子線回折パターンの取得である¹⁷⁾。従来のフォトカ

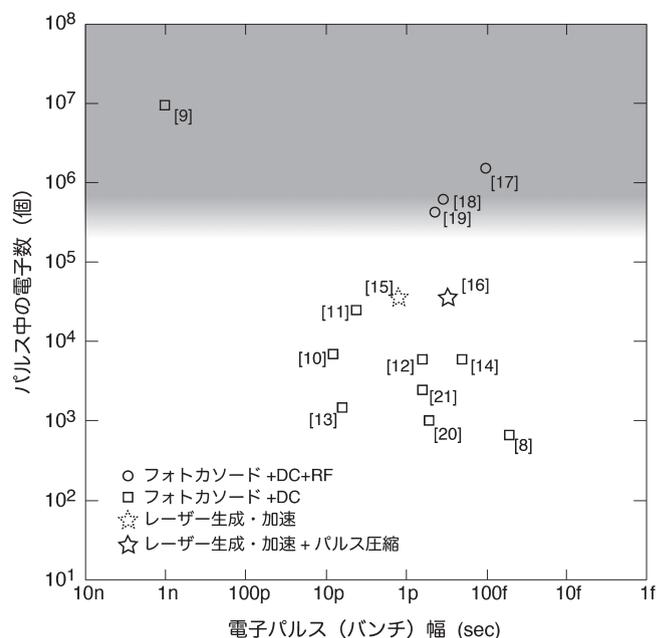


図1 超高速電子線回折や動的電子顕微鏡(回折モード)に用いられている1 MeV未満の電子のパルス幅とパルス中電子数。グレー背景はCCDカメラを用いて撮像するのに必要な電子数。

ソード方式に変わる新たな手法の提案・実証である。他方、奇しくも、同じ学術雑誌の同じ巻に、O.J. Luiten のグループは、フォトカソードと RF 空洞加速を用いた素晴らしい成果を発表した¹⁸⁾。フェムト秒レーザーフォトカソードから放射される短パルス電子は DC 電場内での加速とつづく飛程間に空間電荷効果によりそのパルス幅は広がるが、この電子パルスを RF 空洞により位相回転し、試料位置において短パルスを実現する方式である。

3. レーザー加速電子の電子線回折への応用

多くの電子を含む高エネルギー電子短パルスを生成するのに、短パルスレーザーフォトカソードと DC (RF) 加速を用いた方式では空間電荷効果によるパルス幅広がりや課題である。フォトカソードで多くの電子を発生するには大きなエネルギーの光パルスを照射し、電界で引き出さなければならない。しかし、カソードの損傷を避けるためには照射レーザーフルエンスを制限する必要がある。フルエンスを下げるために照射面積を大きくすると放射電子のエミッタンスを悪化させ、そのあとの利用効率が低くなる。さらに、たとえ大量の電子を生成できたとしても、加速電界の大きさにも限りがあるので、どうしてもある程度の加速長が必要となり、その間の空間電荷効果によるパルス広がりや避けられない。瞬時に大量の電子を生成し瞬時に高エネルギーに加速する。このような方式があれば理想的である。

近年の高強度短パルスレーザー技術の飛躍的な進歩と相まって、レーザー電子加速の研究が進展している。電子の「レーザー加速」と言えば、一般には、超高強度短パルスレーザーにより気体中に生成誘起したプラズマ波による加速（レーザー誘起航跡場加速）が世界で研究されており^{23,24)}、超高エネルギー電子加速を指向して、従来型電磁石を用いた加速器に変わりうる次世代の加速器を目指している。筆者らが研究している「レーザー加速」は気体を標的としたプラズマ加速ではなく、固体薄膜を標的としたレーザー光場による直接加速である。図 2 に固体薄膜との相互作用によるレーザー電子加速の概念を示す。レーザー光を薄膜に照射すると、生成されたプラズマの薄膜シート表面で疑似共鳴吸収²⁵⁾、真

空加熱²⁶⁾が生じる。これは、直線偏光の超高強度極短パルスレーザーを薄膜標的に斜入射照射すると、レーザーパルスの手前裾部分で瞬時にプラズマ化された薄膜は、レーザーが短パルスであるがゆえに、表面で急峻な密度勾配が保たれたまま、その後の主パルスが表面で反射される。反射点では、レーザーの電界の方向は表面に垂直となる。レーザーの電界は振動しているが、反射点ではプラズマ内部には電界は入らないので、真空側だけに電界が存在し、これが電子を標的の後方方向垂直に加速する。

また、内部で $J \times B$ 加熱^{27,28)}により電子は加速される。光の強度が大きいと、電子は電磁波の電界だけではなく磁界の影響（ローレンツ力）も受け、レーザー伝搬方向にも運動する。この場合、加速される電子のエネルギー E (keV) 分布は典型的にはレーザー強度 I ($\times 10^{18}$ W/cm²) により、 $\exp(-E/T)$ 、 $T(\text{keV}) = 511[(1 + I/1.37)^{\frac{1}{2}} - 1]$ ²⁹⁾。例えば、パルス幅 100 fs、エネルギー 100 mJ のレーザーパルスを直径 4 μm 程度に集光すると、集光点でのレーザー強度は 10^{18} W/cm² を越え、加速電子のエネルギーは 200 keV 以上になる。

レーザー光による加速であるので、発生する電子パルス幅はレーザーと同様に短く³⁰⁾、瞬時、極短距離での加速であるので空間電荷効果による広がりも小さい。さらに、固体標的との相互作用であるので高い電子密度が期待できる。標的をプラズマ化しての加速であるので、本質的に標的の損傷問題はない。そして、レーザーのパルス形状や標的のプラズマ表面状態などから、発生電子は運動量広がりをもつので、レーザー薄膜相互作用による発生・加速電子は位相回転による自己パルス圧縮に適していると考えられる。

4. 京都大学化学研究所での超高速電子線回折法の研究

筆者はこのレーザー加速電子を用いた UED の開発を行っている。実験装置の概略を図 3 に示す¹⁷⁾。画像検出用の EMCCD カメラ以外の装置はすべて約 10^{-2} Pa に減圧された真空容器内に配置されるが、従来の電磁石型加速器を用いていないので電子顕微鏡筐体内部のような高い真空を必要としない。京都大学化学研究所の T⁶-レーザー装置（フェムト秒チタンサファイアチャープパルス増幅レーザー）からのレーザービーム（波長 800 nm, 140 mJ, パルス幅 150 fs, 直径約 50 mm）を 2 分割し、一方は電子加速用、もう一方はパルス幅測定用とした。後者のビームラインには光学遅延可変器を挿入している。それぞれのビームを軸外し放物面鏡（焦点距離 165 mm）で集光する（集光点のビーム幅： $6 \times 4 \mu\text{m}^2$, 集光点の光強度：約 10^{18} W/cm²）。電子加速ビームをポリエチレン膜（厚さ 10 μm ）の標的に入射角 10° で照射し、標的を電離し、生成電子を加速・放出する。このとき電子は集光点と同程度の領域から放出するが発散角が大きいため、磁気レンズ（永久磁石）とアパーチャ（直径 1 mm）により発散角の小さい電子ビームへと整形した。標的から放出した電子は幅広いエネルギー分布（100 keV ~ 1 MeV）をもつが、磁気レンズを通過した時点でおおよそ 350 keV を中心にエネルギー

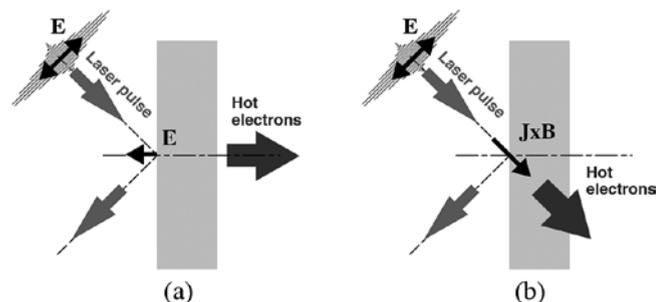


図 2 薄膜標的と高強度短パルスレーザーとの相互作用による電子加速の原理。(a) Brunel 吸収（疑似共鳴吸収）、真空加熱、(b) $J \times B$ 加熱。

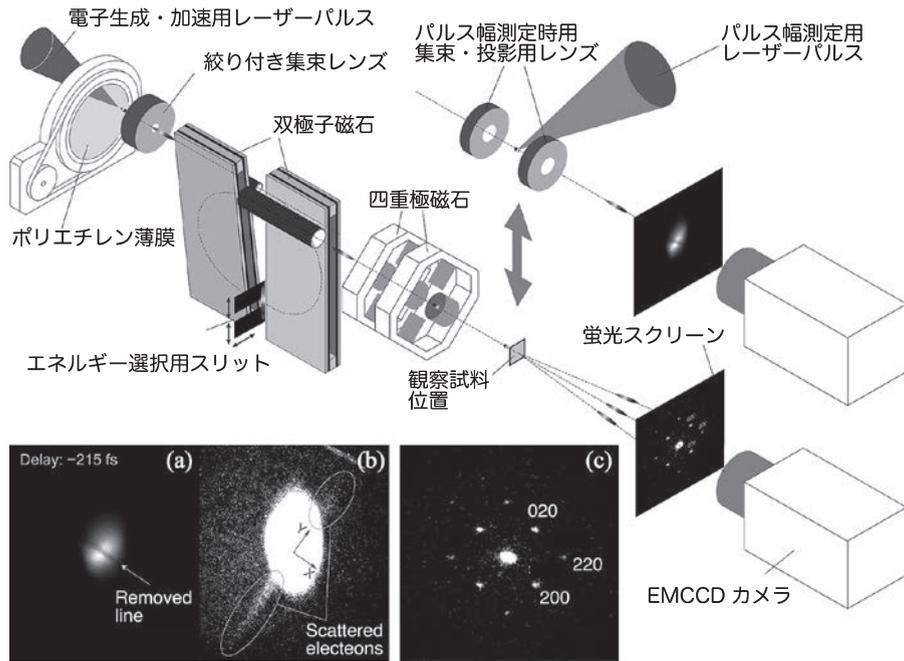


図3 高強度フェムト秒レーザー生成・加速電子パルスを用いた超高速電子線回折装置。(a) (b) 高強度レーザーにより電子パルスビームを散乱させ、散乱電子とレーザーパルス遅延との相関より電子パルス幅を測定、(c) 単一レーザーパルスで撮像された金の単結晶の回折パターン。

が選択される。整形した電子ビームを2台の偏向磁石（磁場強度 63 mT）を用いて 180° 偏向を2回（合わせて 360°）行う。偏向磁石へのビームの入出射のため、第2の偏向磁石を第1の磁石に対し 12° 傾けて配置し、エネルギー選択のため第1と第2偏向磁石の間のビーム行路上に幅約 1 mm スリット（中心エネルギー 350 keV において約 1% の運動量幅に対応）を配置している。さらに、360° 偏向後のビーム行路に2台の四重極電磁石を配置し、スクリーン上での電子ビーム径が最小となるように電子ビームの水平・垂直方向の広がり角を調整した。また、四重極電磁石の中心軸とビーム軸を変位させることにより、偏向磁石で生じる横方向のエネルギー分布偏りを補正している。四重極磁石通過後およそ 0.1 m の位置（電子発生標的位置から 0.45 m）で電子パルスは圧縮され、パルス時間幅が最小となる。この位置で電子パルスと高強度レーザーパルスを交差させ、光の振動電磁場から受ける力（ポンドロモティブ力）による電子散乱（図 3 (a)）を観測することによりパルス幅を測定した。高い時間分解能を得るため電子ビームは第2の磁気レンズにより 70 μm まで収束し、測定レーザービーム（ビーム幅 6 μm × 4 μm）と交差させ、第3の磁気レンズにより再び平行ビームに戻した後、蛍光スクリーンに入射する。

電子パルスとレーザーパルス間の遅延時間を変化させ、それぞれの時刻に得られたスクリーンの画像からポンドロモティブ力により散乱された電子（図 3 (b)）の信号量を算出し、遅延時間に対してプロットすると相関波形が得られる。これは電子パルスとレーザーパルス波形の包絡線の相互相関に対応する。各々のパルスがガウス関数の包絡線を持つと仮定す

ると、電子パルスの時間幅（半値全幅）は 300 fs 程度と見積もられる（注：文献の論文の中では 500 fs 程度であるが、その後の研究で得られた値である）。この時間幅は電子加速に用いたレーザーパルスの時間幅（150 fs）と比較して大きい。これは軌道計算により、挿入した電子レンズのエネルギー分散によるパルス広がりによるものと考えられる。パルス幅測定の為に挿入した第2, 3の磁気レンズがなければ、また第1のレンズの後方のアパーチャの径を小さくできれば、レーザーパルス幅と同程度の電子幅が期待される。そのためにも、パルス内の電子量の増大が求められる。

この装置を用いて行った電子回折パターン撮像の実証実験について述べる。観察試料として金の単結晶 (001) 薄膜（厚さ 10 nm）を四重極磁石後のビーム行路上に置いた。パルス幅測定時に用いた第2, 第3の磁気レンズを取り除き、スクリーンに近づくにつれ徐々にビームが収束するように四重極磁石を調整する。試料位置での電子ビームの直径は約 0.8 nm であり、パルスあたりの電荷量は 6 fC である。試料により散乱された電子は 0.41 m 後方の蛍光スクリーンへ入射し、スクリーン上の回折パターンは電子増倍管付きの EMCCD カメラにより撮影する。単一ショット撮影により得られた回折パターンを図 3 (c) に示す。明瞭な (020) 及び (220) 面の回折スポットが観察でき、単一ショット撮影に十分なビーム強度が得られていることがわかる。既知の金単結晶の格子定数より、電子ビームのエネルギーは 356 keV と算出された。

以上の通り、筆者らは 350 keV のレーザー加速電子ビームを 300 fs に圧縮することを世界で初めて実証し、それを用いて単一パルスでの電子線回折パターンの撮像に成功した。

図1に我々の現在の結果も合わせて記している。現状では、O.J. Luiten グループの成果が電子量、パルス幅ともに上回っているが、電子発生用の材料をポリエチレン薄膜からアルミニウム薄膜に代えると電子量が数10倍以上増える事をすでに確認している³¹⁾。不透明の材料を用いる場合は、レーザーパルスの前部裾野の成分（プリパルスという）の低減が必要であり、我々はこれを除去するためにレーザーにプラズマミラーシステム³²⁾を導入した。さらに金属細線のような新しい線源の研究にも取り組んでいる^{33,34)}。レーザーの短パルス化も実施しており、今後、より高い線量の短パルス電子線源の可能性がある。筆者らは、図1上でパルス幅 <100 fs、電子線量 >10⁶ を目指して研究の取り組んでいる。

5. レーザー加速電子を用いた電子偏向法による電磁場ダイナミックスの測定

物質探索に用いられる量子ビームの中でも、電荷を有する電子ビームは局所電磁場の測定にも有効である。短パルス電子ビームを用いる事により電磁場の動的挙動の観察が可能となる。筆者らは、上述のUEDのために開発している装置を用いて、金属表面を伝搬する表面波（電磁波）を捉える事に成功した³⁵⁾。

高強度短パルスレーザー加速電子を用いたUEDの開発のために、レーザー生成加速電子の特性やその高効率化、制御性に関する研究を行っている。上述のように、レーザー光場による電子加速の基本原理は示されているが、実際の複雑な相互作用過程はまだ十分に解明されていない。標的はレーザーによりプラズマ化され、その電子がレーザー光場により加速されるが、その後の放射過程は複雑であると考えられる。実際、筆者らの研究からも、標的としてポリエチレン薄膜と同じ薄膜の裏面に数nmのアルミニウムを蒸着した標的では電子の放射特性が著しく異なる事を発見した。ポリエチレン薄膜標的の場合は比較的レーザー進行方向に電子が放射されるのに対して、アルミニウム蒸着ポリエチレン標的では標的の面方向に多くの電子が放射した。この結果から、電子は導電性標的に沿って誘導されるのではと考え、標的に金属細線を用いれば細線方向に電子が誘導されると考察し、実験を実施した。その結果、多くの電子が金属細線の方向に誘導されることが実証された^{33,34)}。この電子の細線周辺に収束する力を明らかにするために、金属細線周辺の電磁場ダイナミックス測定を、UEDに用いたレーザー加速電子パルスによる電子偏向法により行った。

図4に実験の配置を示す。UED装置の観察試料照射位置の下方0.5mmに、金属細線を電子ビーム進行方向に直交するように配置する。直交位置から d (mm)はなれた金属細線上にレーザーパルスを照射する。このレーザーパルスは電子発生・加速用レーザーから分岐したものである。金属細線近傍を通過した電子パルスはスクリーンとEMCCDカメラにより観察される。電子パルス生成用レーザーパルスと金属細線照射用レーザーパルスの時間差を変えながら、電子ビーム

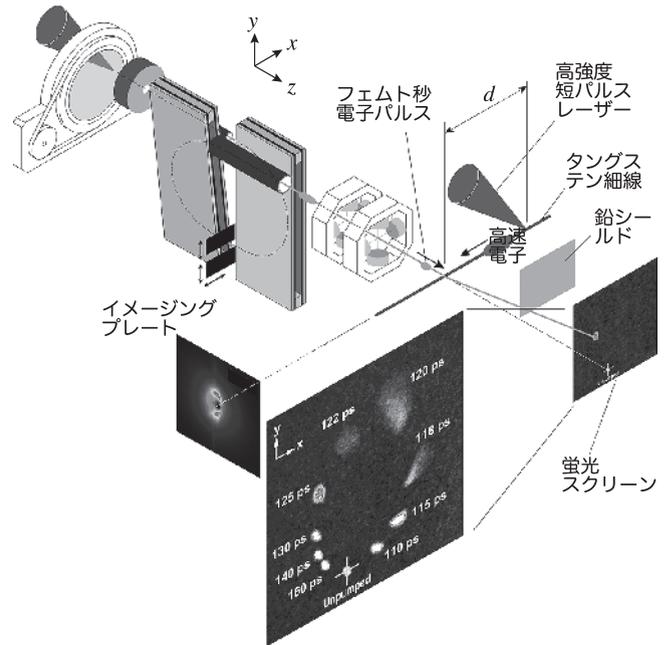


図4 高強度フェムト秒レーザー生成・加速電子パルスを用いた時間分解電子偏向法の応用例。高強度レーザーと金属細線との相互作用により誘起される金属細線近傍の電磁場ダイナミックスの測定。金属細線を伝搬する表面電磁波を捉えた。

を撮像した。その結果を図4中に示す。これらから、(1) 電子ビームが時々刻々と偏向し、金属細線に対して垂直方向だけではなく、平行方向にも偏向している、(2) d を変化させてもその偏向の様子は変わらない、(3) d と偏向の時刻との関係から、偏向を生じる電磁場が光速での金属細線に沿って進行していることが明らかとなった。これらの結果は、細線に高強度レーザーを照射し電子を生成・加速する瞬間に同時に表面波を生成していることにより解釈できる。金属細線を伝搬する表面波はSommerfeld波と呼ばれ、径方向の電場と周方向の磁場をもつ電磁波である。本実験で発生した表面波では194 V/m、パルス幅7 psとなり、高強度短パルスレーザーと金属細線との相互作用により高強度のサブテラヘルツ波の発生と誘導を実証した。この研究では、レーザー生成・加速電子パルスを用いた電子偏向法が高速で変化する電磁場測定にも有用であることを示した。

6. まとめ

進化を続ける電子顕微鏡の次なる挑戦の一つが高速時間分解機能を持つことである。その端緒として超高速電子線回折(UED)の研究が進められている。UEDにより非可逆過程の現象を捉えるには、高強度の短パルス電子線源の開発が必須となるが、空間電荷効果による電子パルス(バンチ)の広がりという本質的な問題がある。筆者らは高強度短パルスレーザー生成・加速電子を用いたUEDの開発を目指して、レーザーと固体との相互作用による電子生成・加速に関する研究を行っている。短パルス高強度レーザーと薄膜との相互作用

では、①固体密度との相互作用により多くの電子の加速が可能、②レーザー光場による電子加速のため、加速時間はレーザーパルス幅程度であるので、加速長が短く、空間電荷効果広がりを抑制できる、③加速電子の位相空間広がりがあるので位相回転によるパルスの自己再圧縮が可能であるなどの特徴があり、UED用電子源として期待される。筆者らは、より明瞭な回折パターンを得るための高強度電子線源の開発と実際の高速度現象の回折パターン撮像に取り組んでいる。

尚、本解説論文では既述のように1 MeV未達の電子線に限ったが、厚い試料の観察には高エネルギー化が必要となる。1 MeVを超える短パルス電子線の研究では、例えば、室岡ら³⁶⁾や楊ら³⁷⁾はフォトカソードRF空洞加速により単一パルスの回折パターンを得ており、細貝らはレーザー航跡場加速とその制御により高エネルギー電子短パルス発生を実証している³⁸⁾。これら>1 MeV電子線回折については、それぞれの参考文献と本特集号の他の解説論文を参照頂きたい。

謝 辞

本論文執筆にあたり、ご助言を頂きました京都大学化学研究所の倉田博基氏、また、執筆を勧めていただきました名古屋大学エコトピア科学研究所の齋藤晃氏に深く感謝いたします。本論文に記載されている筆者らの研究は科研費(18206006, 22654050, 23226002, 24540537, 25600138, 26800280)の助成を受けて実施されました。また、研究を助成いただいた池谷科学振興財団、山田科学財団、三菱財団に感謝いたします。

文 献

- 1) Williams, D.B. and Carter, C.B.: *Transmission Electron Microscopy*, Springer, New York (2009)
- 2) Egerton, R.F.: *Electron Energy-Loss Spectroscopy in the Electron Microscope*, Springer, New York (2011)
- 3) King, W.E., Campbell, G.H., Frank, A., Reed, B., Schmerge, J.F., Siwick, B.J., Stuart, B.C. and Weber, P.M.: *J. Appl. Phys.*, **97**, 111101-1-5 (2005)
- 4) Zewail, A.H. and Thomas, J.M.: *4D Electron Microscopy: imaging in space and time*, Imperial College Press, London (2010)
- 5) Baskin, J.S. and Zewail, A.H.: *C. R. Physique*, **15**, 176-189 (2014)
- 6) Zewail, A.H.: *Annu. Rev. Phys. Chem.*, **57**, 65-103 (2006)
- 7) Baum, P. and Zewail, A.H.: *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, **103**, 16105 (2006)
- 8) Hebeisen, C.T., Sciaini, G., Harb, M., Ernstorfer, R., Dartigalongue, T., Kruglik, S.G. and Miller, R.J.D.: *Opt. Express*, **16**, 3334-3341 (2008)
- 9) Cao, J., Hao, Z., Park, H., Tao, C., Kau, D. and Blaszczyk, L.: *Appl. Phys. Lett.*, **83**, 1044-1046 (2003)
- 10) LaGrange, T., Armstrong, M.A., Boyden, K.R., Brown, C.G., Browning, N.D., Campbell, G.H., Colvin, J.D., DeHope, W.J., Frank, A.M., Gibson, D.J., Hartemann, F.V., Kim, J.S., King, W.E., Pyke, B.J., Reed, B.W., Shirk, M.D., Shuttlesworth, R.M., Stuart, B.C. and Torralva, B.R.: *Appl. Phys. Lett.*, **89**, 044105-1-3 (2006)
- 11) Cao, J., Ihee, H. and Zewail, A.H.: *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, **96**

- (1999)
- 12) Ihee, H., Lobastov, V.A., Gomez, U.M., Goodson, B.M., Srinivasan, R., Ruan, C.-Yu and Zewail, A.H.: *Science*, **291**, 458-462 (2001)
- 13) Siwick, B.J., Dwyer, J.R., Jordan, R.E and Miller, R.J.D.: *Science*, **302**, 1382-1385 (2003)
- 14) Janzen, A., Krenzer, B., Heinz, O., Zhou, P., Thien, D., Hanisch, A., Meyer zu Heringdorf, F.-J., von der Linde, D. and von Hoegen, M. Horn: *Rev. Sci. Instrum.*, **78**, 013906-1-7 (2007)
- 15) Harb, M., Ernstorfer, R., Hebeisen, C.T., Sciaini, G., Peng, W., Dartigalongue, T., Eriksson, M.A., Lagally, M.G., Kruglik, S.G. and Miller, R.J.D.: *Phys. Rev. Lett.*, **100**, 155504-1-4 (2008)
- 16) Tokita, S., Inoue, S., Masuno, S., Hashida, M. and Sakabe, S.: *Appl. Phys. Lett.*, **95**, 111911-1-3 (2009)
- 17) Tokita, S., Hashida, M., Inoue, S., Nishoji, T., Otani, K. and Sakabe, S.: *Phys. Rev. Lett.*, **105**, 215004-1-4 (2010)
- 18) van Oudheusden, T., Pasmans, P.L.E.M., van der Geer, S.B., de Loos, M.J., van der Wiel, M.J. and Luiten, O.J.: *Phys. Rev. Lett.*, **105**, 264801-1-4 (2010)
- 19) Chatelain, R.P., Morrison, V.R., Godbout, C. and Siwick, B.J.: *Appl. Phys. Lett.*, **101**, 081901-1-4 (2012)
- 20) Jean-Ruel, H., Gao, M., Kochman, M.A., Lu, C., Liu, L.C., Cooney, R.R., Morrison, C.A. and Miller, R.J.D.: *J. Phys. Chem. B*, **117**, 15894-15902 (2013)
- 21) Zhu, P., Chen, J., Li, R., Chen, L., Cao, J., Sheng, Z. and Zhang, J.: *Appl. Phys. Lett.*, **103**, 231914-1-4 (2013)
- 22) Li, R.-Ze, Zhu, P., Chen, L., Chen, J., Cao, J., Sheng, Z.-Ming and Zhang, J.: *J. Appl. Phys.*, **115**, 183507-1-5 (2014)
- 23) Tajima, T. and Dawson, J.M.: *Phys. Rev. Lett.*, **43**, 267-270 (1979)
- 24) Nakanii, N., Masuda, S. and Hosokai, T.: *Rev. Laser Eng. (in Japanese)*, **40**, 819 (2012)
- 25) Ebrahim, N.A., Baldis, H.A., Joshi, C. and Benesch, R.: *Phys. Rev. Lett.*, **45**, 1179-1182 (1980)
- 26) Brunel, F.: *Phys. Rev. Lett.*, **59**, 52-55 (1987)
- 27) Cai, H.-B., Wei, Yu., Zhu, S.-P., Zheng, C.-Y., Cao, L.-H. and Pei, W.-B.: *Phys. Plasmas*, **13**, 063108-1-6 (2006)
- 28) Kruer, W.L. and Estabrook, K.: *Phys. Fluids*, **28**, 430-432 (1985)
- 29) Wilks, S.C., Kruer, W.L. and Tabak, M.: *Phys. Rev. Lett.*, **69**, 1383 (1992)
- 30) Inoue, S., Tokita, S., Otani, K., Hashida, M., Hata, M., Sakagami, H., Taguchi, T. and Sakabe, S.: *Phys. Rev. Lett.*, **109**, 18501-1-5 (2012)
- 31) Sakabe, S., Hashida, M., Tokita, S. and Inoue, S.: *CLEO-PR 2013*, 30 June-4 July, 2013, Kyoto, Japan.
- 32) Maeda, K., Tokita, S., Inoue, S., Hashida, M. and Sakabe, S.: *Int. Conf. on High Energy Density Science*, 23-25 April, 2013, Yokohama, Japan.
- 33) Tokita, S., Otani, K., Nishoji, O., Inoue, S., Hashida, M. and Sakabe, S.: *Phys. Rev. Lett.*, **106**, 255001-1-4 (2011)
- 34) Nakajima, H., Tokita, S., Inoue, S., Hashida, M. and Sakabe, S.: *Phys. Rev. Lett.*, **110**, 155001-1-4 (2013)
- 35) Tokita, S., Sakabe, S., Nagashima, T., Hashida, M. and Inoue, S.: *Sci. Rep.*, **5**, 8268-1-6 (2015)
- 36) Murooka, Y., Naruse, N., Sakakihara, S., Ishimaru, M., Yang, J. and Tanimura, K.: *Appl. Phys. Lett.*, **98**, 251903-1-3 (2011)
- 37) 楊 金峰, 成瀬延康, 室岡義栄, 菅 晃一, 近藤孝文, 谷村克己, 吉田陽一: *放射線化学*, **94**, 3-12 (2012)
- 38) 細貝知直, 中新信彦, 益田伸一: *光学*, **43**, 426 (2014)