電子らせん波とその制御について*1

原田 研^{1,2,*2} 孝橋 照生² 高口 雅成²

¹理化学研究所 創発物性科学研究センター

²日立製作所 研究開発グループ

J. Japan Inst. Met. Mater. Vol. 84, No. 4 (2020), pp. 121-127

© 2020 The Japan Institute of Metals and Materials

Electron Vortex Beams and Their Control

Ken Harada^{1,2,*2}, Teruo Kohashi² and Masanari Koguchi²

¹CEMS, RIKEN (The Institute of Physical and Chemical Research), Hatoyama, Saitama 350-0395

²Research and Development Group, Hitachi, Ltd., Hatoyama, Saitama 350-0395

Electron vortex beams are considered as probes for next generation electron beam instruments with unprecedented measurement capabilities because vortex beams carry intrinsic orbital angular momenta. In order to clarify the performance of vortex beams, we generated vortex beams by using fork-shaped gratings manufactured by focused ion beam instruments. In vortex beam generation experiment, we found that shapes and sizes of grating openings were superimposed on rings of diffraction spots, typical behavior of vortex beams. This paper discusses experimental results on the generation and control of vortex beams by changing grating opening shapes and sizes.

[doi:10.2320/jinstmet.J2019047]

(Received November 27, 2019; Accepted December 20, 2019; Published January 27, 2020)

Keywords: vortex beam, helical wavefront, fork-shaped grating, orbital angular momentum, topological number

1. は じ め に

コヒーレント光学系においては、伝搬する波の位相は一意に決定される。この時、等位相面は波面と呼ばれ、その形状は、平面波、球面波、円錐面波など、伝搬する波の分類に利用されている。一方、波面が特異点を持つために、位相が一意に決定されない波も存在する。例えば、らせん波はその代表例である。らせん波とは、その名の通り特異点を軸としたらせん形状の波面を持ち、方位角が特異点の周りを周回すると、位相分布は $\pm 2\pi$ 、あるいは $\pm 2\pi$ の整数倍の位相差を持つ波の総称である。この特異点の存在は、波面の形状に依存しないため、原理的には上記分類のすべての波でらせん波を生成させることが可能である。

Fig. 1 に波面の形状による波の分類を示す。Fig. 1 の(a), (b), (c)はそれぞれ、平面波、球面波、円錐面波である。また、Fig. 1 の(d), (e), (f)はそれぞれの波でらせん状の波面をもつ波(らせん波)である。波面形状の歪はらせんの中心、すなわち特異点に集中している。軌道角運動量は、このらせんの中心に固有化されており、トポロジカル数 n で表される。トポロジカルチャージとも呼ばれるこの整数は、らせん波のらせんの巻き数に対応しており、正負の符号はらせん波の巻き方位(右巻き、左巻き)に対応している。

光学の分野では、らせん波は、ラゲール・ガウシアンビー

Fig. 1 Classification of the wave by shape of wavefronts: (a) plane wave, (b) spherical wave, (c) conical wave, (d) plane helical wave (vortex beam), (e) spherical helical wave, and (f) conical helical wave.

ム¹⁻⁴⁾、または、和名で光渦(ひかりうず)⁵⁾と呼ばれている。このらせん波は、伝搬方向に沿って軌道角運動量を保持したまま伝搬するため、力は等位相面(波面)に垂直な方向に作用し、ビームによって照射されたターゲットに運動量を放出する。例えば、細胞サイズの粒子を制御する光ピンセット⁶⁻⁹⁾、産業用レーザー加工¹⁰⁻¹²⁾、超解像顕微分光法¹³⁾、及び量子軌道角運動量をキュービットとして使用する情報技術^{14,15)}、

*1 Mater. Trans. **60** (2019) 2096-2102 に掲載

*2 Corresponding author, E-mail: kharada@riken.jp

などの技術として実用化されている。さらに、X線の分野では、材料の物理的性質の研究、例えば、磁気状態の観察や原子スケールでの3次元構造解析の研究に資するものとして技術開発が行われている¹⁶⁻¹⁹⁾。

同様に、電子光学の分野でも、電子らせん波は軌道角運動量を伝搬できると考えられており²⁰⁻²³⁾、電子らせん波をプローブとして用いることにより、新しい応用分野の開拓が期待されている。例えば、磁気構造の観察において、従来の電子線は試料面に垂直な(電子線に平行な)磁束を検出できないという欠点があったが、電子らせん波ではらせん波の持つ軌道角運動量による試料面に垂直な磁束の検出が検討されている²⁴⁻²⁶⁾。さらに電子らせん波は、微細加工や磁化制御への応用にも、その可能性が検討されている。この様に具体的に実効性のある用途が検討されているということが、電子らせん波がベッセルビームなど他の新しい電子プローブとともに、次世代の電子線技術として期待されていることを示している²⁷⁻³⁰⁾。

2. 理論的取り扱い

2.1 らせん波の生成

現在までのところ、電子らせん波の生成は、①フォーク型回折格子を用いる方法、②らせん状の厚さ分布を持つ位相板を用いる方法、③棒状の磁性体(双極子)を用いる方法、の3通りの方法が実現されている。

①のフォーク型回折格子を用いる方法では、刃状転位を持つ格子に平面波状の電子線を入射させる。フォーク型回折格子を通過し回折した電子線(電子回折波)は自動的にらせん波となっているので、複数の回折波のうちの1つを選択して後ろの光学系に伝播させてらせん波として利用する。②の位相板を用いる方法では、らせん状の厚さ分布を持つ位相板を光学系に配置し、平面波状の電子線を照射する。位相板を透過した電子線は、らせん状の波面を持つらせん波となっている。③の棒状の磁性体を用いる方法では、棒の一端から磁性体外部へ漏れ出る磁力線が、アハラノフ・ボーム効果³¹⁾を介して電子波と相互作用し、らせん波となる^{32,33)}。

上記方法のうち、②の位相板を用いる方法では、電子線の波長が原子サイズよりも極端に短いため、正確ならせん形状の膜厚分布を持つ薄膜の製造は難しく、高い精度で電子波の位相を制御することは困難と判断された。また、③の棒状の磁性体を用いる方法では、基本的に双極子であるための歪みの存在や、棒形状に起因する電子線の遮蔽・散乱の効果かららせん波面の精度を劣化させると推測された。そこで本研究では、干渉可能ならせん波の観察を高精度に実現するため、①のフォーク型の回折格子を用いる方法を採用した。以下、フォーク型回折格子を用いて生成させらせん波について議論を進める。

Fig. 2にフォーク型回折格子を用いたらせん波生成の概略図を示す。可干渉な状態にある平面波がフォーク型回折格子に照射されると、格子を通過した後の波は、そのまま通過した平面波と、格子の左右に回折され各々逆の巻き方位を持つらせん波となる。この生成法を電子線で実施するには、格子

Fig. 2 Schematic diagram of vortex beam generation using fork-shaped grating.

間隔よりも広い範囲に可干渉な電子線とその干渉光学系が必要となる。小角電子回折(Small Angle Electron Diffraction: SmAED)パターンの観察光学系は³⁴⁻³⁶⁾、この要件を満たすため実験に利用された。Fig. 2の回折波の次数は ± 1 次であり、生成されるらせん波のトポロジカル数と対応する様に描かれている。光軸を挟んだ左右の回折波は、正負が逆のトポロジカル数を持ち、らせんの巻き方位も逆になっている。

2.2 フォーク型回折格子

平面波状のらせん波(Fig. 1(d))は、フォーク型回折格子により生成できる。フォーク型回折格子は、平面波 $\varphi_p(x, y)$ と、平面状のらせん波 $\varphi_{ph}(x, y)$ の重畳によって発生する干渉縞を利用して作製された。これら2つの波は次の式(1)と式(2)で表される。

$$\varphi_p(x, y) = \exp \left[-i \frac{2\pi}{\lambda} \alpha x \right], \quad (1)$$

$$\varphi_{ph}(x, y) = \exp[in\theta] = \exp \left[in \tan^{-1} \left[\frac{y}{x} \right] \right], \quad (2)$$

ここで λ は波長、 α は2つの波の相対角度、 n はトポロジカル数、 θ は方位角である。そして、干渉縞の強度分布 $I(x, y)$ は式(3)で表される。

$$I(x, y) = 2 + 2 \cos \left[\frac{2\pi}{\lambda} \alpha x + n \tan^{-1} \left[\frac{y}{x} \right] \right]. \quad (3)$$

式(3)で表される干渉縞は、原点 $(x, y) = (0, 0)$ に n 次の刃状転位を含んでいる。本研究で用いたフォーク型回折格子は、式(3)に基づいて作製したものである。

Fig. 3は式(3)で与えられるフォーク型回折格子の強度分布を示している。各々の回折格子の中心に見える刃状転位は、らせん波のらせん軸の位置に一致し、刃状転位の次数がらせん波のトポロジカル数 n に一致する。

3. 実験方法

3.1 光学系

一般にらせん波は、フォーク型回折格子の回折パターンに

現れる環状回折スポットの観察によりその生成が確認される。Fig. 4(a)には、試料位置に挿入されたフォーク型回折格子の観察光学系(低倍率結像系)を、Fig. 4(b)にはらせん波を確認するための SmAED パターン観察光学系を示す。用いたフォーク型回折格子の平均格子間隔 400 nm は、通常の結晶格子と比較して格子間隔が 3 桁以上も大きいため、カメラ長が 150 m 以上の SmAED 光学系が必要であった³⁷⁾。

3.2 実験装置

本研究に使用したフォーク型回折格子は平均格子間隔 400 nm で、厚さ 200 nm の Si_3N_4 (窒化シリコン)膜を集束イオンビーム装置(FB-2100, (株)日立ハイテクノロジーズ)を用いて加工した。らせん波生成実験には、プロトタイプの 300-kV 電界放出形電子顕微鏡(H-9000, (株)日立製作所)を利用した³⁸⁾。用いた回折格子の像や回折パターンの記録には、2 k × 2 k 画素の CCD カメラシステム(Orius, Gatan, Inc.)を用いた。

4. 結果および考察

4.1 トポロジカル数の計測

Fig. 5 の各パネルの左側は、格子の中央部にそれぞれ 1

Fig. 5 Fork-shaped gratings and their electron diffraction patterns. Topological numbers are as follows: (a) $n = 1$, (b) $n = 3$, (c) $n = 5$, and (d) $n = 7$. Ring diameters of diffraction depend on the order of the lattice dislocation and the order of diffraction. Contrast of the diffraction spots in higher order are enhanced for better visualization.

Fig. 3 Calculated fork-shaped gratings with the topological number n : (a) $n = 1$, (b) $n = 3$, (c) $n = 5$, and (d) $n = 7$.

Fig. 4 An optical system for vortex beam observation: (a) imaging mode for fork-shaped gratings and (b) small angle electron diffraction (SmAED) mode for observing the vortex beams.

次, 3 次, 5 次, 7 次の刃状転位を持つフォーク型回折格子の透過電子顕微鏡像であり, 各パネルの右側は, パネル左側の回折格子の SmAED パターンである. 回折パターンが特徴的な環状回折スポットを示すことから, らせん波が生成していることがわかる. 環状回折スポットのリング径は, 回折の次数と刃状転位の次数の増加とともに増加していることがわかる.

フォーク型回折格子の刃状転位の次数は, 最低次の回折波として生成されたらせん波のトポロジカル数 n に一致している. 高次の回折波の場合には, らせん波のトポロジカル数は刃状転位の次数と回折波の次数の積となる. 例えば, Fig. 5 の中の最大のトポロジカル数 $n_{\max}$ は, 7 次のフォーク型格子の ± 3 次の回折波の持つ ± 21 である.

このトポロジカル数 n と環状回折スポットのリング径には相関があり, らせん波の波動関数 $\Psi(r, \theta, z)$ は円筒座標系 (r, θ, z) においてそれぞれ 3 つの固有関数 $R(r)$, $\Phi(\theta)$, $Z(z)$ に分離することが可能である. この関係は式 (4) で表される.

$$\begin{aligned}\Psi(r, \theta, z) &= R(r)\Phi(\theta)Z(z) \\ &= J_n(r)\Phi_0 \exp(\pm 2\pi i n \theta) Z_0 \exp(\pm 2\pi i k z),\end{aligned}\quad (4)$$

ここで, Φ_0 と Z_0 はそれぞれの固有関数の初期値である. この波動関数の等位面一波面一の形状は, 第 1 種ベッセル関数で表される動径方向関数 $R(r)$ によって特徴づけられる^{39,40)}.

Fig. 6 に Fig. 5 に示したらせん波の環状スポット径とらせん波のトポロジカル数 n との関係を示す. Fig. 6 の背景には, Fig. 5(a) の 1 次の回折スポットを基準として第 1 種ベッセル関数の値をベッセル関数の次数をパラメータ (トポロジカル数 n) として描いている. その結果, 回折スポットのリング径と第 1 種ベッセル関数の最低次の縮とが一致していることがわかる.

4.2 回折格子の開口形状によるらせん波の制御

前節の実験により, 環状回折スポットのリング径が, 第 1 種ベッセル関数の最低次曲線に一致することが明らかとなった. しかし, 回折スポットのリング径とトポロジカル数 n と

Fig. 6 Relation between the ring diameter and the topological number in terms of the Bessel function of the first kind. Inset is a three-dimensional drawing of the Bessel function of the first kind.

の関係を正確に決定することは, 現状では困難である. この原因の 1 つとして, 回折スポットのリング径がフォーク型格子の開口径にも依存していることが挙げられる^{41,42)}. Fig. 7 の左側パネルは, それぞれ開口径の異なる 3 次のフォーク型回折格子の透過電子顕微鏡像であり, 右側のパネルは, それぞれの格子からの SmAED パターンである. 小さい開口径ほど, 大きな径の環状回折スポットとなっている. これは単純開口のフラウンホーファー回折の特徴である. このとき, 開口を通過できる電子線の強度は開口径の 2 乗に比例して減少するので, 回折パターンサイズが増加するのに相まって, 開口を通過してくる電子線が減少し, らせん波を示す環状回折パターンの単位面積当たりの電子線強度は著しく低下した.

フォーク型回折格子の開口径が環状回折パターンのリング径に直接反映されるということは, 回折格子の開口形状が回折パターンの形状に影響を与えるということを示唆する. この仮定を検証するために, 開口部形状の異なるフォーク型回折格子を作製し, 各々の SmAED パターンを観察した. その結果を Fig. 8 に示す. Fig. 8(a) は円形, Fig. 8(b) は三角形, Fig. 8(c) は正方形, Fig. 8(d) は五角形, そして Fig. 8(e) は星形の開口形状をした 3 次のフォーク型回折格子 (左側パネル) とその回折パターン (右側パネル) である. 各々の環状回折スポットの形状が格子の開口形状を反映していることがわかる^{41,42)}.

Fig. 8 の右側パネルの SmAED パターンでは, 環状回折スポットの形状が格子の開口形状を反映していることを示している. 一般に, 逆空間における格子からの回折パターンは, 格子が位置している実空間の空間周波数と格子の方位に対応した単純な点状スポットとなる. 一方, 本研究では実空間での格子の開口形状が逆空間の回折スポット形状に反映されている. 特に, Fig. 8(b), (d), (e) の各回折パターン (三角形, 五角形, 星形) は, 格子の開口形状からそれぞれ 90 度の方位角回転が明確であり, 本現象が, 開口部形状のフーリエ変換, あるいはフラウンホーファー回折と関連があることを示唆している.

上記仮説を検証するために, らせん波を生成しない, すなわち刃状転位を含まない単純格子を利用して, 開口形状のフラウンホーファー回折が回折スポットに与える効果を実験に

Fig. 7 Ring diameters of diffraction are a function of opening sizes: (a) 10 μm in diameter of the opening, (b) 6.7 μm in diameter, and (c) 3.3 μm in diameter. Contrast of the diffraction spots in higher order are enhanced for better visualization.

より調べた. Fig. 9 にその結果を示す. Fig. 8 と同じ開口形状をもつ単純格子とその SmAED パターンである. 結果は, 単純格子からの回折スポットは, 単純格子の空間周波数に応

Fig. 8 Effect of opening shapes on diffraction ring shapes: (a) circular opening, (b) triangular opening, (c) square opening, (d) pentagonal opening, and (e) star-shaped opening. The fork-shaped gratings have the third order edge dislocation and their average grid spacing is 400 nm.

Fig. 9 No effects of opening shape on diffraction spot shapes for simple grating without edge dislocations: (a) circular opening, (b) triangular opening, (c) square opening, (d) pentagonal opening, and (e) star-shaped opening. All the openings generated simple diffraction spots corresponding to the spatial frequency of the simple grating.

じた点状スポットを形成するのみであった. Fig. 8 と Fig. 9 に示された実験結果を比較すると, 実空間における格子の開口形状とらせん波とが逆空間において相互作用を持ち, それが逆空間における回折パターンの形状に反映されていると考えられる.

そこで, フォーク型回折格子内の刃状転位の存在と格子の開口形状からのフラウンホーファー回折波の相互作用をシミュレーションにより検討した. Fig. 10 に, Fig. 8 および Fig. 9 で用いたのと同じ開口形状で, 格子の中央部に 3 次の刃状転位格子を持つフォーク型回折格子のパターン(左側パネル)とその 2 次元フーリエ変換パターン(右側パネル)を示す. Fig. 10 と Fig. 8 にはよい一致が見られるが, これはこの現象が物理的なものと言うよりも, 干渉効果を含む数学的なものであることを意味している. 加えて実験で用いた電子波が, 用いた格子サイズ(平均 400 nm)に対して十分に可干渉な状態であったことを示している. 本研究でのこの結果は新しい知見であり, 実空間から逆空間の電子線の形状を制御する新しい手段を提供するものである.

4.3 らせん波のビーム形状

回折格子の開口形状がらせん波の回折スポットの形状に強く反映されるという実験結果は, らせん波の伝搬中のビーム形状のねじれの観察に役立てることができる. Fig. 11 に, 5 通りにデフォーカス距離を変化させたときの, ひし形開口をもつフォーク型回折格子からの回折パターンの変化の様子を示す. デフォーカス状態は, 対物レンズの焦点距離を変化させることによって作り出した(Fig. 4 参照). フォーカス条件をアンダーフォーカスからオーバーフォーカスに逐次変更した一スルーフォーカス条件一場合, Fig. 11 の回折パターン

Fig. 10 Two-dimensional Fourier transform results for five opening shapes of the fork-shaped gratings: (a) circular opening, (b) triangular opening, (c) square opening, (d) pentagonal opening, and (e) star-shaped opening. Diffraction patterns in Fig. 8 are clearly reproduced.

Fig. 11 Changes in diffraction patterns from a fork-shaped grating with a diamond-shaped opening under different defocusing distances Δf : (a) $\Delta f = 2$ mm (under-focus), (b) $\Delta f = 1$ mm (under-focus), (c) $\Delta f = 0$ mm (in-focus), (d) $\Delta f = -1$ mm (over-focus), and (e) $\Delta f = -2$ mm (over-focus). The diamond-shaped diffraction spots rotate with the defocusing distance changes.

右側のひし形をした回折スポットは時計方向に方位角回転し、左側の回折スポットは反時計方向に方位角回転した。回折スポットの形状をひし形にできたため、スポットの方位角回転が明瞭に観察されたものである^{41,42)}。

Fig. 12 に、1 次、2 次、3 次の回折スポットの方位角回転の角度とデフォーカス距離との関係を示す。回転角度は、左右の回折スポットのデフォーカス距離の増加とともに増加(減少)し、低次の回折スポットの回転角は高次のスポットよりも大きいことがわかる。

各々のフォーカス位置でのスポット形状から、電子らせん波のねじれたビーム形状を再構成することが可能である。Fig. 13 はデフォーカス距離の異なる 45 枚の回折パターンを 3 次元画像処理法によって光軸方向に積み重ねて表示したもので、電子線が収束するとともにねじれている様子が良く再現されている^{43,44)}。図では左右の回折スポットが互いに逆方向にねじれていることが示されており、このねじれが電磁レンズ内の磁場によるラーモア回転ではないことが明らかである。このらせん波のビーム自体がもつねじれは、Gouy 位相で説明される^{41,42,45-48)}。

これらの実験結果からは、格子の開孔形状が回折スポットの形に反映されることを利用すれば、回折パターンのインフォーカスを高精度で決定できることが示唆される。近い将来、この技術が走査型透過電子顕微鏡におけるインフォーカス条件の決定に利用されることを期待している。

Fig. 12 Azimuthal rotation angles of the first, second and third diffraction spots on both sides versus defocusing distance Δf .

Fig. 13 Three-dimensional reconstruction of diffraction beams.

5. 終わりに

本研究では SmAED の光学系を用いて、格子内に刃状転位を有するフォーク型回折格子を通過する電子線が、回折パターンにらせん状の波面を有することを確認した。また、フォーク型回折格子の開孔部形状と開孔サイズ、格子間隔をコントロールすることにより、逆空間のらせん波が実空間から直接コントロールできることを見出した。電子らせん波は、まだ十分に研究が進んでいない電子の重要な特性である軌道角運動量を運ぶと考えられるため、次世代の電子プローブと考えられている。近い将来、らせん波を利用した新しい計測手法、データ処理技術が開発されることが期待される。

本研究は遂行に当たり、(株)日立製作所の岩根智広氏、守谷騰氏、山根未有希氏に援助いただきました。ここに記して謝意を表します。

文 献

- 1) H. Kogelnik and T. Li: Proc. IEEE **54** (1966) 1312-1329.
- 2) L. Allen, M.W. Beijersbergen, R.J.C. Spreeuw and J.P. Woerdman: Phys. Rev. A **45** (1992) 8185-8189.
- 3) L. Allen, S.M. Barnett and M.J. Padgett (eds.): *Optical Angular Momentum*, (CRC Press Taylor & Francis Group, London, 2003) pp. 21-26.
- 4) S. Franke-Arnold, L. Allen and M.J. Padgett: Laser Photon. Rev. **2** (2008) 299-313.
- 5) Y. Miyamoto and A. Wada: Optics **35** (2006) 618-624 (in Japanese).
- 6) H. He, M.E.J. Fries, N.R. Heckenberg and H. Rubinsztein-Dunlop: Phys. Rev. Lett. **75** (1995) 826-829.
- 7) Q. Zhan and J.R. Leger: Opt. Express **10** (2002) 324-331.
- 8) N.B. Simpson, K. Dholakia, L. Allen and M.J. Padgett: Opt. Lett. **22** (1997) 52-54.
- 9) M.E.J. Friese, T.A. Nieminen, N.R. Heckenberg and H. Rubinsztein-

- Dunlop: *Nature* **394** (1998) 348–350.
- 10) A.V. Nesterov, V.G. Niziev and V.P. Yakunin: *J. Phys. D* **32** (1999) 2871–2875.
 - 11) V.G. Niziev and A.V. Nesterov: *J. Phys. D* **32** (1999) 1455–1461.
 - 12) K. Toyoda, K. Miyamoto, N. Aoki, R. Morita and T. Omatsu: *Nano-Letters* **12** (2012) 3645–3649.
 - 13) B. Harke, J. Keller, C.K. Ullal, V. Westphal, A. Schönle and S.W. Hell: *Optics Express* **16** (2008) 4154–4162.
 - 14) A. Mair, A. Vaziri, G. Weihs and A. Zeilinger: *Nature* **412** (2001) 313–316.
 - 15) J. Leach, M.J. Padgett, S.M. Barnett, S. Franke-Arnold and J. Courtial: *Phys. Rev. Lett.* **88** (2002) 257901.
 - 16) Y. Takahashi, A. Suzuki, S. Furutaku, K. Yamauchi, Y. Kohmura and T. Ishikawa: *Phys. Rev. B* **87** (2013) 121201.
 - 17) Y. Kohmura, V. Zhakhovsky, D. Takei, Y. Suzuki, A. Takeuchi, I. Inoue, Y. Inubushi, N. Inogamov, T. Ishikawa and M. Yabashi: *Appl. Phys. Lett.* **112** (2018) 123103.
 - 18) S. Matsuba, K. Kawase, A. Miyamoto, S. Sasaki, M. Fujimoto, T. Konomi, N. Yamamoto, M. Hosaka and M. Katoh: *Appl. Phys. Lett.* **113** (2018) 021106.
 - 19) Y. Taira and M. Katoh: *Phys. Rev. A* **98** (2018) 052130.
 - 20) M. Uchida and A. Tonomura: *Nature* **464** (2010) 737–739.
 - 21) J. Verbeeck, H. Tian and P. Schattschneider: *Nature* **467** (2010) 301–304.
 - 22) B.J. McMorran, A. Agrawal, I.M. Anderson, A.A. Herzing, H.J. Lezec, J.J. McCelland and J. Unguris: *Science* **331** (2011) 192–195.
 - 23) K. Saitoh, Y. Hasegawa, N. Tanaka and M. Uchida: *J. Electron Microsc.* **61** (2012) 171–177.
 - 24) K.Y. Bliokh, M.R. Dennis and F. Nori: *Phys. Rev. Lett.* **107** (2011) 174802.
 - 25) P. Schattschneider, M. Stöger-Pollach and J. Verbeeck: *Phys. Rev. Lett.* **109** (2012) 084801.
 - 26) P. Schattschneider, S. Löffler, M. Stöger-Pollach and J. Verbeeck: *Ultramicroscopy* **136** (2014) 81–85.
 - 27) B.J. McMorran, A. Agrawal, P.A. Ercius, V. Grillo, A.A. Herzing, T.R. Harvey, M. Link and J.S. Pierce: *Phil. Trans. R. Soc. A* **375** (2017) 20150434.
 - 28) K. Saitoh, Y. Hasegawa, K. Hirakawa, N. Tanaka and M. Uchida: *Phys. Rev. Lett.* **111** (2013) 074801.
 - 29) V. Grillo, E. Karimi, G.C. Gazzadi, S. Frabboni, M.R. Dennis and R.W. Boyd: *Phys. Rev. X* **4** (2014) 011013.
 - 30) V. Grillo, G.C. Gazzadi, E. Karimi, E. Mafakheri, R.W. Boyd and S. Frabboni: *Appl. Phys. Lett.* **104** (2014) 043109.
 - 31) A. Tonomura: *Rev. Mod. Phys.* **59** (1987) 639–669.
 - 32) A. Béché, R. Van Boxem, G. Van Tendeloo and J. Verbeeck: 18th International Microscopy Congress (IMC18): (Prague, Czech, September 7–12, 2014) IT-1-P-1486 (two pages).
 - 33) A.M. Blackburn and J.C. London: *Ultramicroscopy* **136** (2014) 127–143.
 - 34) T. Yoshida, J. Endo, H. Kasai, K. Harada, T. Matsuda and A. Tonomura: *J. Appl. Phys.* **85** (1999) 1228–1230.
 - 35) T. Koyama, K. Takayanagi, Y. Togawa, S. Mori and K. Harada: *AIP Advances* **2** (2012) 012195.
 - 36) H. Nakajima, A. Kotani, K. Harada, Y. Ishii and S. Mori: *Microscopy* **65** (2016) 473–478.
 - 37) K. Harada: *Appl. Phys. Lett.* **100** (2012) 061901.
 - 38) T. Kawasaki, T. Matsuda, J. Endo and A. Tonomura: *Jpn. J. Appl. Phys.* **29** (1990) L508–L510.
 - 39) P. Schattschneider and J. Verbeeck: *Ultramicroscopy* **111** (2011) 1461–1468.
 - 40) K. Saitoh, Y. Hasegawa and M. Uchida: *Kenbikyō* **48** (2013) 39–46 (in Japanese).
 - 41) K. Harada, T. Kohashi and T. Iwane: *Microsc. Microanal.* **20** (2014) 273–275.
 - 42) K. Harada, T. Kohashi and T. Iwane: 18th International Microscopy Congress (IMC18), (Prague, Czech, September 7–12, 2014) IT-11-P-1673 (two pages).
 - 43) K. Harada: *Proc. NIMS Conference 2015 –Materials Innovation Driven by Advanced Characterization–*, (Tsukuba, Ibaraki, July 14–16, 2015) TS4-3, p. 45.
 - 44) K. Harada, T. Kohashi and T. Iwane: *Microsc. Microanal.* **21** (2015) 669–670.
 - 45) C.R. Gouy and C.R. Hebd: *Seances Acad. Sci.* **110** (1890) 1251.
 - 46) G. Guzzinati, P. Schattschneider, K.Y. Bliokh, F. Nori and J. Verbeeck: *Phys. Rev. Lett.* **110** (2013) 093601.
 - 47) Y. Hasegawa, K. Saitoh, N. Tanaka and M. Uchida: *J. Phys. Soc. Japan* **82** (2013) 073402.
 - 48) P. Schattschneider, Th. Schachinger, M. Stöger-Pollach, S. Löffler, A. Steiger-Thirsfeld, K.Y. Bliokh and F. Nori: *Nature Comm.* **5** (2014) 4586.