



一般社団法人

日本液晶学会

The Japanese Liquid Crystal Society

本論文は日本液晶学会の学会誌「液晶」に掲載された日本液晶学会賞 論文賞B部門受賞記事です。

液晶学会にご入会いただけましたら、この他にも最新技術の紹介、講座記事など

研究に役立つ論文などがオンラインでいつでもご覧いただけます。

液晶学会への入会のお手続きは <https://jlcs.jp/access/enrollment> からお申込みください。

日本液晶学会設立20周年記念出版のお知らせ

液晶科学実験講座 -基礎と計測-

「液晶科学実験講座 -基礎と計測-」(日本液晶学会編:国際文献社)は日本液晶学会設立20周年を記念して2017年9月に発行予定です。学会誌「液晶」の講座記事、解説記事から選りすぐった記事を掲載し、A4版206頁の書籍の中には、液晶研究を行う上で基礎となる知識、具体的な方法はもちろん、機能性材料の評価方法が、きっちりとコンパクトにまとめられており、これから液晶研究を始める方にはもちろん、液晶の研究を続けている方にも、既刊の「液晶科学実験入門」と同様に有益な内容になっています。

また、購入者特典として、学会誌未収録の特別章5編についてWeb上で閲覧可能となっています。

[リーフレット\(PDF\)](#)



液晶の広範な未来を拓く

日本液晶学会

The Japanese Liquid Crystal Society (JLCS)

会員募集

主要活動

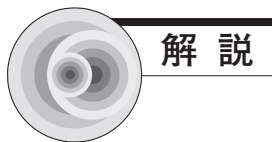
会誌「液晶」の発行(季刊)
年会「日本液晶学会討論会」の開催
研究フォーラムによるテーマ講演会の開催
液晶物理・物性研究フォーラム
液晶化学・材料研究フォーラム
液晶ディスプレイ研究フォーラム
液晶フォトンクス・光デバイス研究フォーラム
ソフトマター研究フォーラム
分子配向エレクトロニクス研究フォーラム
特別講演会/講習会等の開催
国際液晶コミュニティとの交流
インターネットによる情報提供

入会方法

電子メールによるお申し込み
jlcs-post@bunken.co.jp
学会ホームページからのお申し込み
<https://jlcs.jp/>
会費(年)
正会員 9,000円
学生会員 3,000円
賛助会員 80,000円/口

問い合わせ先

一般社団法人 日本液晶学会 事務局
〒162-0801 東京都新宿区山吹町358-5
アカデミーセンター



本論文は日本液晶学会の学会誌「液晶」に掲載された論文賞受賞記事です。液晶学会にご入会いただけましたら、この他にも最新技術の紹介、講座記事など研究に役立つ論文などがオンラインでいつでもご覧いただけます。会員登録は <https://jlcs.jp/access/enrollment> から。

超高速時間分解電子線回折法 —新しい液晶の測定方法—

羽田 真毅

本解説では、非常に複雑である液晶分子の集合構造やその構造ダイナミクスを計測する新しい計測手法を紹介する。それは、光照射によって生じる液晶分子の運動を観察すると同時にその液晶の元の集合構造を推定するというものであり、超高速時間分解電子線回折法を用いる手法である。特に本解説では、超高速時間分解電子線回折法に必要な要素技術（試料準備を含む）と本手法によって何がわかるのかについて詳しく述べる。また、超高速時間分解電子線回折法を液晶に応用した初めての例である π 拡張シクロオクタテトラエン液晶の構造推定および構造ダイナミクス観察について紹介する。

キーワード：時間分解電子線回折法、構造ダイナミクス、計測手法

1. はじめに

液晶は、液体と固体の中間的な相であり、液体の持つ流動性・柔軟性と結晶の持つ分子秩序を合わせ持つ。そのため、液晶分子は物理・化学・材料・生物分野という非常に幅広い分野で研究対象となり、またテレビやパソコンのディスプレイのように実用化されるものもある。液晶分子は光照射、電場印加、温度変化、摩擦などの外部刺激により、様々な機能を発現する。これは液晶分子の大きな構造変化およびその構造変化に伴う秩序の変化に起因する。すなわち、液晶分子の構造および秩序を理解し、そのキーとなる構造変化を解明することは、液晶分子のさらなる機能開拓につながると期待される。液晶分子の構造はメソゲン基と長鎖状炭素基（主に長鎖アルキル基）に分類される。一般に、剛直なメソゲン基に液晶としての機能を持たせることが可能であり、長鎖状炭素基により液晶の柔軟性や流動性が発現する。

液晶分子の構造を理解するためには、以下の3つの計測手法が用いられる。すなわち、示差走査熱量測定 (differential scanning calorimetry, DSC)、偏光顕微鏡 (polarized optical microscopy, POM)、X線回折法 (X-ray diffraction, XRD) である。その液晶分子がどの温度で結晶・液晶・液体間の相転移を示すかはDSCにより観測可能である。また、その分子が液晶相となっているかどうかはPOMおよびXRDにより理解することが可能である。さらにXRDにより、10Å以上の非常に長い周期構造を理解することが可能であり、XRDは液晶分子の構造および秩序を理解するために極めて有用な測定手法である。しかし、XRDを用いても、液晶分子の周期10Å以下のメソゲン基の構造から生じる回折図形が長鎖状炭素基から生じるブロードな

ハローパターンに埋もれてしまい、液晶の構造を理解することが困難となることがしばしば生じる。本解説では、光反応・応答性の液晶分子に超高速時間分解電子線回折法 (Time-resolved electron diffraction, TRED) を応用し、その構造・秩序および構造変化を計測・観察する新しい手法を示す^{1,2)}。超高速時間分解電子線回折法を用いて液晶分子から得られる回折図形もまたメソゲン基と長鎖状炭素基の構造の重ね合わせによって成り立つブロードな回折図形である。ここで、光反応・応答性を示すメソゲン基と光照射によって構造変化をしない長鎖状炭素基を分離するために、光照射の前後の回折図形の差分を取る。差分回折図形を取得することにより、光照射によって反応しない長鎖状炭素基の回折の寄与を差し引き、バックグラウンドノイズを低減し、光照射によってメソゲン基に生じる構造変化のみを浮き上がらせることが可能となる。この差分回折図形を光照射の数ピコ秒 (ピコ秒, ps: 10^{-12} 秒) から数ナノ秒 (ナノ秒, ns: 10^{-9} 秒) の時間スケールで時系列順に並べることにより、その時々刻々と変化する液晶の分子に構造や秩序構造を追跡する。また、本手法では、この構造変化の追跡と同時に、その構造変化が起こりうる元の構造を推定することも可能となる。この差分回折図形を利用する手法は、X線自由電子レーザーを用いた超高速時間分解X線回折法によっても実現可能である。しかし、次章で述べる通り電子線の方がX線に比べ軽元素に対する感度が高いため、超高速時間分解電子線回折法は液晶の構造を理解するために強力なツールとなると考えている。それぞれの手法の特徴を Table 1 にまとめた。

Table 1 The methodologies to understand the molecular structure in liquid crystalline phase.

	TRED	XRD	DSC	POM
Use for the phase determination	△	○	○	○
Use for the estimation of the molecular structure (>10 Å)	×	○	×	×
Use for the estimation of the molecular structure (<10 Å)	○	△	×	×
	(If photoactive)			
Time-resolution (fs-ps)	○ (This work)	○ (Possible)	×	○ (Possible)
Scattering cross-section (Sensitivity)	○	△		
Low damage	○	△		

2. 超高速時間分解電子線回折法

2.1 超高速時間分解電子線回折で何がわかってきたのか

超高速時間分解電子線回折法^{3,4)}は、過渡透過率測定に代表されるポンプ・プローブ法の一つであり、ポンプ（励起）光にレーザーの光学パルスをプローブ（検出）光に電子線パルスを用いる。加速電圧30~100kVで加速された電子線のド・ブロイ波長は、3.7~7.0pmであり原子・分子間距離よりも小さいため、周期的に並んだ原子・分子によって回折される。つまり、プローブ光に電子線パルスを用いるポンプ・プローブ法により、光照射直後の数百フェムト秒（フェムト秒, fs: 10^{-15} 秒）から数ナノ秒の時間スケールでの周期的に並んだ原子・分子の構造情報を直接得ることが可能となる。超高速時間分解電子線回折法は、2000年代に初めて開発された測定手法であり、光照射によって生じる金属や半導体結晶の融解現象⁵⁻⁷⁾や無機物質結晶の光誘起相転移現象⁸⁻¹²⁾の構造ダイナミクス計測に主に使われてきた。さらに、2010年代中盤に入って、超高速時間分解電子線回折法が有機物結晶の構造変化に対して感度が高く、有機物の構造ダイナミクスを計測するために有効な手法であることが示された^{1,13-16)}。これらの有機物質の構造ダイナミクスは、「分子動画」と呼ばれる。この「分子動画」により、光照射直後にどのように分子が動いているのかを直接的に見ることが可能となった。参考文献¹³⁻¹⁵⁾のサプリメンタルインフォメーションにいくつかの分子動画が掲載されているので、参照してもらいたい。

この超高速時間分解電子線回折法の有機物質への有効性は、電子線の原子との散乱断面積がX線のそれと比べると1000倍から10000倍高く、電子線が有機物質を構成する炭素原子、酸素原子、窒素原子、水素原子といった軽元素原子からも効率よく散乱をされることに起因する。そのため、電子線（エネルギー：30~100keV）の物質中の平均自由行程は、10~100nm程度となり、電子線回折に用いられる試料はその厚みが10~100nmという極薄膜にしなければならないという制限が生じる。しかし、この10~100nmという厚みは光反応・応答性物質への光学侵入長と一致する。したがって、超高速時間分解電子線回

折法では、観測している試料の厚みすべてが光励起されていることとなり、非常に高いシグナル感度を得ることが可能となる。ただし、散乱断面積が極めて高いということは、多重散乱の影響を無視できなくなるため、得られた回折図形から実際の構造を解析することが困難となる。したがって、基礎学理がしっかりと理解されているXRDを用いて材料の構造を明らかにし、その構造がはっきりとした材料に対して、超高速時間分解電子線回折計測を行い光照射化の構造や構造ダイナミクスを探索するなどXRDと超高速時間分解電子線回折法の相補的な利用方法が求められる。

2.2 実験セットアップ

Fig. 1に超高速時間分解電子線回折法の実験セットアップの概略図を示す。超高速時間分解電子線回折装置は、フェムト秒の光パルスを発生するフェムト秒レーザー、電子線を発生させるフォトカソード、電子線パルスを加速する静電場もしくは高周波電場、電子線パルスを収束する電磁石、電子線回折パターンを取得する二次元検出器からなる¹⁷⁾。フェムト秒レーザーには、中心波長が800nm、パルス幅が約100 fs、1パルス当たりのパワーが1mJ以上、繰り返し頻度が1kHz程度のチタンサファイアレーザーの再生増幅器が用いられる。このフェムト秒レーザーから出力される光パルスをポンプ光とプローブ光にビームスプリッターで分離する。波長800nmのプローブ光を第三次高調波発生により紫外光パルス（波長：266nm）に変換し、その紫外光パルスを厚み20nm程度の金薄膜に照射し、光電効果により電子線パルスを出力する。金薄膜はサファイアもしくは合成石英に蒸着したものを利用する。静電加速器型の電子線源では、フォトカソードは通常30~100kVの負電圧が印加されており、接地されたアノードとの間で電子線パルスは加速される。電子線パルスは加速された後、電磁石により収束され、試料に入射・回折され、蛍光スクリーン上で回折図形を形成する。蛍光スクリーン上の回折図形はCCD（charge coupled detector）カメラのような二次元検出器で読み取られる。1パルス当たりの電子数は、 10^4 ~ 10^5 個程度であり、電子線は試料上の $\phi 100\mu\text{m}$ の領域に照射される。試料静電加速型の電子線源では、試料面でパルス幅が十分短く、また輝度の高い電子線を得るため、フォト

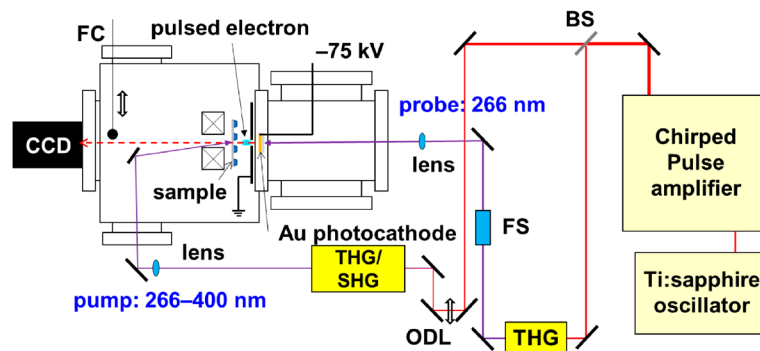


Fig. 1 Schematic illustration of the experimental setup for time-resolved electron diffraction. A chirped pulse amplifier generates an optical pulse with a wavelength of 800 nm, pulse duration of 120 fs, power of ~ 2.5 mJ, and repetition rate of 1 kHz. BS: beam splitter, SHG: second harmonic generation, THG: third harmonic generation, FS: fused silica optical windows, FC: faraday cup, ODL: optical delay line, and CCD: charge coupled detector.

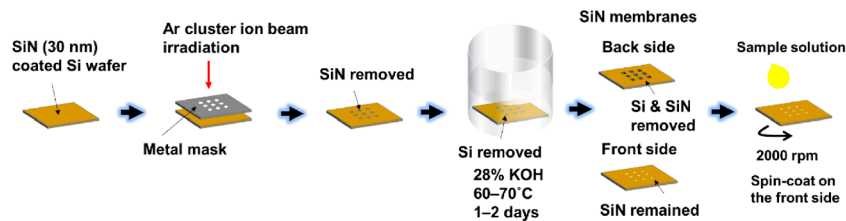


Fig. 2 Protocol to make a SiN membrane. Si wafer is coated with a SiN thin film on both sides. Irradiation using an Ar cluster ion beam removes the SiN thin film on one side of the wafer. Si etching with a KOH solution. The SiN membrane for the sample substrate. The sample solution is spin-coated onto the front side of the substrate.

カソードとアノード間をできるだけ短くする必要があるが、同時にフォトカソードとアノード間が近いと放電するため、フォトカソードとアノード間隔には注意が必要となる。電子は電荷を持つフェルミ粒子であるため、パルス幅が十分短かつ輝度の高い電子線を得ることは、互いにトレードオフの関係にある¹⁸⁾。つまり、非常に密度の濃い電子線パルスは、空間電荷効果によりすぐに1~10psのパルス幅に伸びてしまう。しかし、液晶は結晶に比べて分子運動は遅く、1~10psの時間分解能があれば十分にその構造ダイナミクスを計測することが可能である。液晶分子に変化を生じさせるポンプ光は、非線形光学結晶によって波長変換され、光学遅延回路に導入され、プローブ電子線に対して時間遅延をつけられて、試料に照射される。一般に、電子線は有機物質に対してダメージを生じやすいと考えられている。しかし、超高速時間分解電子線回折実験で用いる電子線量は、1パルスで $\phi 1\mu\text{m}$ あたり電子数1~10個程度でありフルーエンスが低い。そのため、数日間にわたり電子線を照射し続けても、得られた電子線回折図形に電子線誘起のダメージによる変化を確認できたことはこれまでにない。

2.3 試料基板作製と試料準備

上述のように超高速時間分解電子線回折法で要求される試料は、厚み数10~100nmの自立型薄膜となる。このような自立薄膜試料は、透過型電子顕微鏡と同じものであり、その試料準備は極めて重要なポイントである。最も簡

単な試料準備方法は、液晶分子をアモルファスの自立型薄膜の上にスピんキャストすることである。Fig. 2に、基板となるスピんキャスト可能な自立型薄膜の作製方法を示す。膜厚30nmのアモルファス窒化シリコン膜を化学気相成長法でシリコン(100)面上に両面成長させた基板を用いる。片面に金属マスクをし、イオンビーム照射やプラズマ照射により窒化シリコン膜の一部を除去する。この一部の窒化シリコン膜を除去した基板のシリコン部分を水酸化カリウム水溶液(28w%, 60~70%)を用いて、異方エッチングする。水酸化カリウム水溶液では窒化シリコンはエッチングされないため、片面の窒化シリコン膜だけが残り、自立型薄膜が作製される。この窒化シリコン膜の自立型薄膜は、縦横の面積が約 $500\mu\text{m} \times 500\mu\text{m}$ であり、厚みが30nmである。この窒化シリコン膜の上に試料を溶媒に溶かしたものをスピんキャストする。試料の厚みは、触診段差計やエリプソメーターにより測定する。

3. 超高速時間分解電子線回折法の液晶への応用

3.1 液晶からの回折図形(差分回折図形)

液晶から得られる回折図形は、メソゲン基と長鎖状炭素基の構造の重ね合わせによって成り立つブロードな回折図形である(Fig. 3a)。このメソゲン基に光反応・応答性の部位が組み込まれている場合、光照射によって液晶分子の構造変化が生じ、ブロードな回折図形にモジュレーションが生じる。しかし、この変化は非常に小さいため回折図形

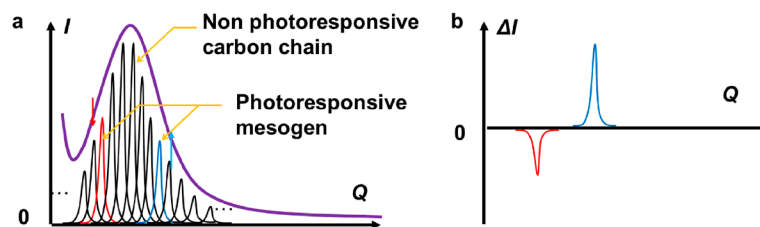


Fig. 3 A schematic of the differential diffraction method. (a) The peaks from the photoresponsive moieties are buried in a broad halo pattern from the long carbon chains. (b) The differential diffraction method can detect the peaks from photoresponsive moieties.

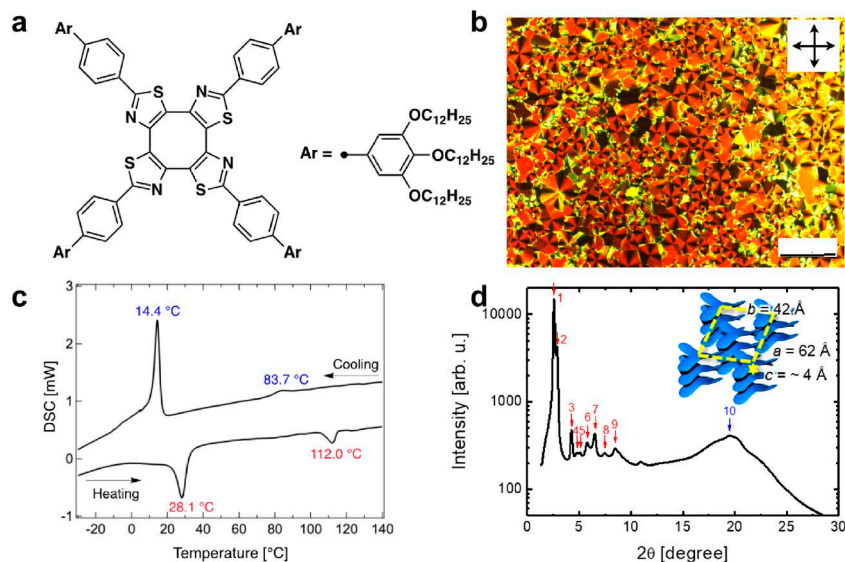


Fig. 4 Molecular structure and lattice parameters of the liquid crystal. (a) Chemical structure (b) POM image of the LC thin film at 80°C under crossed Nicols. The white scale bar demonstrates 200 μm. (c) Differential scanning calorimetry. (d) The static X-ray diffraction pattern with several peaks indicated by arrows. Blue arrow particularly indicates the (001) peak. Inset figure shows the lattice parameters in the LC phase. Rectangular columnar phase of C2/m was assigned according to the extinction rule.

だけを見ているだけでは、その構造および構造変化を予想することは困難である。そこで、Fig. 3bのように照射後の回折図形から照射前の回折図形を差分（差分回折図形）することにより、照射によって生じる変化のみを浮かび上がらせることを考える。この差分回折図形において、ポジティブ側に現れるピークは元々存在しないが光励起により現れる周期性あるいは分子間距離を示し、ネガティブ側に現れるピークは元々存在し光励起によって減少する周期性あるいは分子間距離を示す。回折図形の強度変化は、結晶では単位格子中の原子変位に対応するが、液晶では秩序構造の中の分子変位に対応する。分子動力学シミュレーションなどによって得られた構造と、超高速時間分解電子線回折法の差分回折図形を比較することによって、その構造変化をより正確に追跡することが可能となる。また、その構造変化が起こりえるような元々の構造も推定することが可能となる。

3.2 π拡張シクロオクタテトラエン液晶への応用

本手法を液晶分子（π拡張シクロオクタテトラエン液晶）に応用した例を紹介する¹⁾。Fig. 4aにπ拡張シクロオクタテトラエン分子の化学式を示す。この分子は中央に光応答

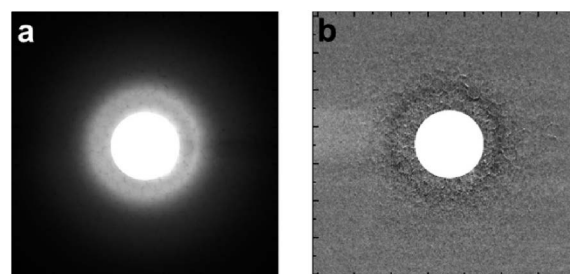


Fig. 5 Electron diffraction patterns from a π-COT-based LC thin film. (a) The electron diffraction pattern without photoexcitation. (b) Differential diffraction pattern obtained with and without photoexcitation. Reprinted with permission from reference 1). Copyright 2017, American Chemical Society.

性のメソゲン基（シクロオクタテトラエン）を有し、長鎖アルキル基がメソゲン基を囲うように位置している。この分子はPOMおよびDSCにより、室温で液晶相を示すことがわかった（Fig. 4b, c）。また、XRDにより、この液晶分子のカラムナー液晶であり、ディスクの水平方向（a, b軸方向）の周期性が $a=62\text{Å}$, $b=42\text{Å}$ であることがわかった（Fig. 4d）。しかし、XRDではこの分子の垂直方向（c軸方向）の周期性は、アルキル基から生じるブロードなハローパターンに埋もれてしまい、決定することはできなかつ

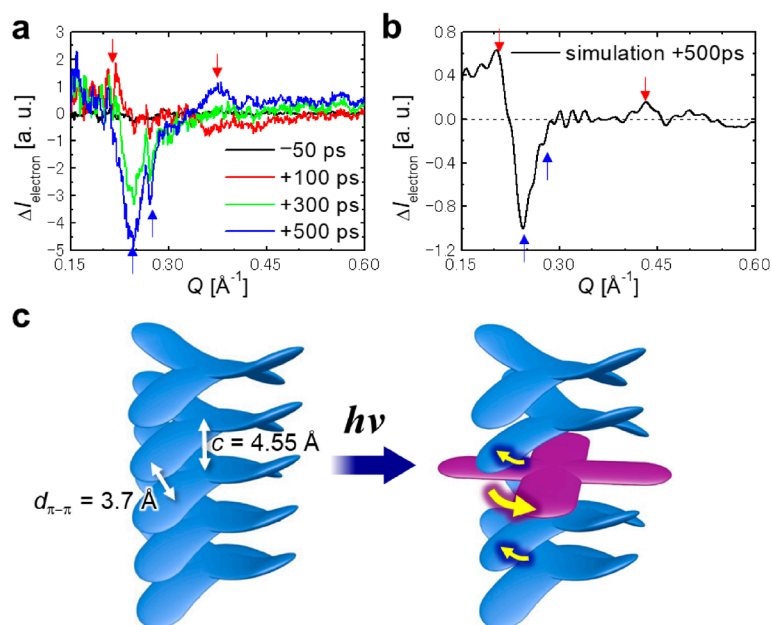


Fig. 6 Ultrafast time-resolved electron diffraction of a π -COT based LC thin film. (a) Differential electron diffraction pattern at -50 , 100 , 300 , and 500 ps. Red and blue arrows indicate positive and negative peaks. (b) Simulated differential electron diffraction pattern on the basis of the MD calculation of columnar π -stacked structure containing 2.9% of excited molecules. (c) Structural dynamics of the photoexcited columnar LC. The dynamics of the columnar LC structure were observed using time-resolved electron diffraction. The white arrows indicate the periodicity of the stacked molecules (4.55 Å) as well as the π -stacking distance between the biphenyl moieties (3.7 Å). The yellow arrows indicate the displacement of molecules.

た。ここで、この分子が光刺激によって構造が変化するという特色を利用する。この分子は基底状態ではサドル型の構造を取り、紫外線照射により平面型の構造に変化すると予想されてきた。まず、この構造変化を超高速度時間分解電子線回折法を用いて観測する。Fig. 5に光照射前の電子線回折図形と光照射前後の差分回折図形を示す。この分子は室温で液晶相を示すため、超高速度時間分解電子線回折実験は室温 (20°C) で測定した。差分回折図形には変化が生じていることがわかる。この回折図形は軸対称の形状をしているため、動径分布関数を取る (Fig. 6a)。上述のように、この動径分布関数のポジティブピーク ($0.190, 0.370 \text{ \AA}^{-1}$) は元々存在しないが光励起により現れる周期性あるいは分子間距離を示し、ネガティブピーク ($0.245, 0.270 \text{ \AA}^{-1}$) は元々存在し光励起によって減少する周期性あるいは分子間距離を示す。この得られた差分回折図形の動径分布関数を分子動力学シミュレーションの結果 (Fig. 6b) と照らし合わせることで、どのようにこの分子が動いていくのかおよび元々この分子が液晶相でどのような形をしていたかを推定する (Fig. 6c) が可能となる。実際、液晶分子のすべてが光照射によってサドル型から平面型へと変化しているわけではなく、 1% 程度の分子が構造変化をしており、多数のサドル型構造の中に平面型構造が現れることになる。つまり、平面型構造はサドル型構造の間にサンドイッチされた形になる。このときに平面型の分子の長鎖アルキル基が上下のサドル型の分子に接触し立体障害が生まれる。そのため、Fig. 6cのように平面型の分子が軸回転し、立体障害を避けることとなる。この一連の動きを超高速度時

間分解電子線回折実験の結果が示唆している。

4. まとめ

超高速度時間分解電子線回折法により、特に光反応・応答性の部位を持つ液晶分子の集合構造やその構造ダイナミクスを計測することが可能であるということが示された。液晶分子から得られるブロードなハローパターン状の回折図形も、光照射の前後の回折図形の差分を取ることで、光反応・応答性を示すメソゲン基と光照射によって応答しない長鎖状炭素基に分離することが可能である。つまり、差分回折図形を取ることで光照射によって反応しない長鎖状炭素基の回折の寄与を差し引き、光照射によってメソゲン基に生じる構造変化のみを浮き上がらせることが可能である。本研究で用いた技術を光反応・応答性の液晶分子に一般的に利用し、これまで決定することが不可能であった液晶分子の集合構造および構造ダイナミクスを明らかにすることにより、液晶分子の機能開拓にさらなる飛躍をもたらすと期待している。

謝辞

本研究は、科学技術振興機構の戦略的創造研究推進事業 (さきがけ研究「分子技術と新機能創出」領域) の支援を受けて行った。また、本稿で述べた研究は京都大学の齊藤尚平准教授、九州大学の恩田健教授および筑波大学の重田育照教授との共同研究による成果であり、深く御礼を申し上げる。

参考文献

- 1) M. Hada, S. Saito, S. Tanaka, R. Sato, M. Yoshimura, K. Mouri, K. Matsuo, S. Yamaguchi, M. Hara, Y. Hayashi, F. Röhricht, R. Herges, Y. Shigeta, K. Onda and R. J. D. Miller, *J. Am. Chem. Soc.*, **139**, 15792 (2017).
- 2) M. Hada, S. Saito, R. Sato, K. Miyata, Y. Hayashi, Y. Shigeta and K. Onda, *J. Vis. Exp.*, **135**, e57612 (2018).
- 3) A. H. Zewail, *Science*, **328**, 187 (2010).
- 4) R. J. D. Miller, *Annu. Rev. Phys. Chem.*, **65**, 583 (2014).
- 5) B. J. Siwick, J. R. Dwyer, R. E. Jordan and R. J. D. Miller, *Science*, **302**, 1382 (2003).
- 6) R. Ernstorfer, M. Harb, C. T. Hebeisen, G. Sciaini, T. Dartigalongue and R. J. D. Miller, *Science*, **323**, 1033 (2009).
- 7) G. Sciaini, M. Harb, S. G. Kruglik, T. Payer, C. T. Hebeisen, F.-J. Meyer zu Heringdorf, M. Yamaguchi, M. Horn-von Hoegen, R. Ernstorfer and R. J. D. Miller, *Nature*, **458**, 56 (2009).
- 8) M. Eichberger, H. Schäfer, M. Krumova, M. Beyer, J. Demsar, H. Berger, G. Moriena, G. Sciaini and R. J. D. Miller, *Nature*, **468**, 799 (2010).
- 9) N. Erasmus, M. Eichberger, K. Haupt, I. Boshoff, G. Kassier, R. Birmurske, H. Berger, J. Demsar and H. Schwoerer, *Phys. Rev. Lett.*, **109**, 167402 (2012).
- 10) Z. Tao, T.-R. T. Han, S. D. Mahanti, P. M. Duxbury, F. Yuan, C.-Y. Ruan, K. Wang and J. Wu, *Phys. Rev. Lett.*, **109**, 166406 (2012).
- 11) V. R. Morrison, R. P. Chatelain, K. L. Tiwari, A. Hendaoui, A. Bruhács, M. Chaker and B. J. Siwick, *Science*, **346**, 445 (2014).
- 12) L. Waldecker, T. A. Miller, M. Rude, R. Bertoni, J. Osmond, V. Pruneri, R. Simpson, R. Ernstorfer and S. Wall, *Nat. Mater.*, **14**, 991 (2015).
- 13) M. Gao, C. Lu, H. Jean-Ruel, L. C. Liu, A. Marx, K. Onda, S. Koshihara, Y. Nakano, X. Shao, T. Hiramatsu, G. Saito, H. Yamochi, R. R. Cooney, G. Moriena, G. Sciaini and R. J. D. Miller, *Nature*, **496**, 343 (2013).
- 14) H. Jean-Ruel, M. Gao, M. A. Kochman, C. Lu, L. C. Liu, R. R. Cooney, C. A. Morrison and R. J. D. Miller, *J. Phys. Chem. B*, **117**, 15894 (2013).
- 15) T. Ishikawa, S. A. Hayes, S. Keskin, G. Corthey, M. Hada, K. Pichugin, A. Marx, J. Hirscht, K. Shionuma, K. Onda, Y. Okimoto, S. Koshihara, T. Yamamoto, H. Cui, M. Nomura, Y. Oshima, M. Abdel-Jawad, R. Kato and R. J. D. Miller, *Science*, **350**, 1501 (2015).
- 16) R. Xian, G. Corthey, D. M. Rogers, C. A. Morrison, V. I. Prokhorenko, S. A. Hayes and R. J. D. Miller, *Nat. Chem.*, **9**, 516 (2017).
- 17) M. Hada, K. Pichugin and G. Sciaini, *Eur. Phys. J. Spec. Top.*, **222**, 1093 (2013).
- 18) M. Aidelsburger, F. O. Kirchner, F. Krausz and P. Baum, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, **107**, 19714 (2010).

受理：2019.5.7



Masaki HADA
筑波大学エネルギー物質科学研究センター・准教授
茨城県つくば市天王台1-1-1 (〒305-8573)
E-mail: hada.masaki.fm@u.tsukuba.ac.jp
専門分野：超高速現象、構造ダイナミクス計測、装置開発