

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第6964366号
(P6964366)

(45) 発行日 令和3年11月10日(2021.11.10)

(24) 登録日 令和3年10月21日(2021.10.21)

(51) Int. Cl.	F I
GO 1 Q 60/10 (2010.01)	GO 1 Q 60/10
GO 1 N 21/55 (2014.01)	GO 1 N 21/55
GO 1 N 21/01 (2006.01)	GO 1 N 21/01 D

請求項の数 10 (全 19 頁)

(21) 出願番号	特願2020-559151 (P2020-559151)	(73) 特許権者	518022950
(86) (22) 出願日	令和1年11月29日(2019.11.29)		Gセラノスティックス株式会社
(86) 国際出願番号	PCT/JP2019/046904		東京都新宿区信濃町3 Sコート202
(87) 国際公開番号	W02020/121856	(74) 代理人	100093861
(87) 国際公開日	令和2年6月18日(2020.6.18)		弁理士 大賀 真司
審査請求日	令和3年7月16日(2021.7.16)	(74) 代理人	100129218
(31) 優先権主張番号	特願2018-233878 (P2018-233878)		弁理士 百本 宏之
(32) 優先日	平成30年12月13日(2018.12.13)	(72) 発明者	重川 秀実
(33) 優先権主張国・地域又は機関	日本国(JP)		茨城県つくば市天王台一丁目1番1 国立 大学法人筑波大学内
早期審査対象出願		(72) 発明者	武内 修
			茨城県つくば市天王台一丁目1番1 国立 大学法人筑波大学内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 光出力システム、測定システム、光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡システム、演算器、プログラム、演算方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

入力された信号に応じてパルスレーザである第1光を出力する第1レーザと、
入力された信号に応じてパルスレーザである第2光を出力する第2レーザと、
前記第1レーザおよび前記第2レーザに信号を入力する演算器とを備え、
前記演算器は、前記第1レーザに信号を入力するタイミングと、前記第2レーザに信号
を入力するタイミングとの差である可変ディレイ値を複数とおりに切り替えて前記信号を
繰り返し入力し、

前記演算器は、前記可変ディレイ値を2通りに所定の周期で変化させ、

前記可変ディレイ値を変化させるタイミングを示す参照信号を出力する参照信号出力部
をさらに備える光出力システム。

【請求項2】

請求項1に記載の光出力システムにおいて、

前記第1光および前記第2光を用いた測定系の出力を処理対象とし、前記参照信号を用
いてロックイン検出を行うロックインアンプをさらに備える光出力システム。

【請求項3】

請求項1または請求項2に記載の光出力システムにおいて、

前記第1光の少なくとも一部、および前記第2光の少なくとも一部を出力光として同軸
に出力する光学系をさらに備える光出力システム。

【請求項4】

請求項 1 または請求項 2 に記載の光出力システムと、

前記光出力システムから出力される前記第 1 光の少なくとも一部および前記第 2 光の少なくとも一部をポンプ光およびプローブ光としてポンプ・プローブ法による試料の測定を行う測定系とを備える測定システム。

【請求項 5】

請求項 4 に記載の測定システムにおいて、

前記演算器は、前記可変ディレイ値を決定するディレイ決定部と、前記ディレイ決定部が決定した前記可変ディレイ値に基づいて、前記第 1 レーザおよび前記第 2 レーザに信号を入力する信号発生部を含んで構成され、

前記信号発生部は、前記第 1 光の少なくとも一部が前記試料に到達するタイミングと第 2 光が前記試料に到達するタイミングの平均時刻が、前記参照信号により示される前記可変ディレイ値を変化させるタイミングを基準とする基準時刻に一致するように前記第 1 レーザおよび前記第 2 レーザに信号を出力する測定システム。

10

【請求項 6】

請求項 1 から請求項 3 までのいずれか一項に記載の光出力システムと、

前記光出力システムから出力される前記第 1 光の少なくとも一部および前記第 2 光の少なくとも一部をポンプ光およびプローブ光として利用し試料の測定を行う光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡とを備える光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡システム。

【請求項 7】

20

請求項 6 に記載の光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡システムにおいて、

前記演算器は、前記可変ディレイ値を決定するディレイ決定部と、前記ディレイ決定部が決定した前記可変ディレイ値に基づいて、前記第 1 レーザおよび前記第 2 レーザに信号を入力する信号発生部を含んで構成され、

前記信号発生部は、前記第 1 光の少なくとも一部が前記試料に到達するタイミングと第 2 光が前記試料に到達するタイミングの平均時刻が、前記参照信号により示される前記可変ディレイ値を変化させるタイミングを基準とする基準時刻に一致するように前記第 1 レーザおよび前記第 2 レーザに信号を出力する光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡システム。

【請求項 8】

30

入力された信号に応じてパルスレーザである第 1 光を出力する第 1 レーザ、および入力された信号に応じてパルスレーザである第 2 光を出力する第 2 レーザとともに用いられる演算器であって、

前記第 1 レーザおよび前記第 2 レーザに信号を入力する信号発生部と、

前記第 1 レーザに信号を入力するタイミングと、前記第 2 レーザに信号を入力するタイミングとの差である可変ディレイ値を複数とおりに切り替えて前記信号を繰り返し入力するディレイ決定部と、

前記可変ディレイ値を変化させるタイミングを示す参照信号を出力する信号出力部とを備える演算器。

【請求項 9】

40

入力された信号に応じてパルスレーザである第 1 光を出力する第 1 レーザ、および入力された信号に応じてパルスレーザである第 2 光を出力する第 2 レーザとともに用いられる演算器に、

前記第 1 レーザおよび前記第 2 レーザに信号を入力することと、

前記第 1 レーザに信号を入力するタイミングと、前記第 2 レーザに信号を入力するタイミングとの差である可変ディレイ値を複数とおりに切り替えて前記信号を繰り返し入力することと、

前記可変ディレイ値を変化させるタイミングを示す参照信号を出力させることとを実行させるためのプログラム。

【請求項 10】

50

入力された信号に応じてパルスレーザである第 1 光を出力する第 1 レーザ、および入力された信号に応じてパルスレーザである第 2 光を出力する第 2 レーザとともに用いられる演算器が実行する演算方法であって、

前記第 1 レーザおよび前記第 2 レーザに信号を入力することと、

前記第 1 レーザに信号を入力するタイミングと、前記第 2 レーザに信号を入力するタイミングとの差である可変ディレイ値を複数とおりに切り替えて前記信号を繰り返し入力することと、

前記可変ディレイ値を変化させるタイミングを示す参照信号を出力させることとを含む演算方法。

【発明の詳細な説明】

10

【技術分野】

【0001】

本発明は、光出力システム、測定システム、光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡システム、演算器、およびプログラムに関する。

【背景技術】

【0002】

生物の観察や材料の詳しい物性の調査に用いられるポンプ・プローブ法では、時系列の変化を調べるために、ポンプ光の照射からプローブ光の照射までのタイミングを複数とおりに切り替えて測定が行われる。照射のタイミングを変化させるために、光路長を変化させる構成が特許文献 1 に開示されている。またパルスピッカーを用いてレーザ光の照射タイ

20

【先行技術文献】

【特許文献】

【0003】

【特許文献 1】日本国特開 2014 - 175442 号公報

【特許文献 2】日本国特開 2013 - 032993 号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

特許文献 1 や特許文献 2 に記載されている発明では、2 つのパルスレーザを出力するタイ

30

ミングを切り替える構成が煩雑である。

【課題を解決するための手段】

【0005】

本発明の第 1 の態様による光出力システムは、入力された信号に応じてパルスレーザである第 1 光を出力する第 1 レーザと、入力された信号に応じてパルスレーザである第 2 光を出力する第 2 レーザと、前記第 1 レーザおよび前記第 2 レーザに信号を入力する演算器とを備え、前記演算器は、前記第 1 レーザに信号を入力するタイミングと、前記第 2 レーザに信号を入力するタイミングとの差である可変ディレイ値を複数とおりに切り替えて前記信号を繰り返し入力し、前記演算器は、前記可変ディレイ値を 2 通りに所定の周期で変化させ、前記可変ディレイ値を変化させるタイミングを示す参照信号を出力する参照信号出力部をさらに備える。

40

本発明の第 2 の態様による測定システムは、上述する光出力システムと、前記光出力システムから出力される前記第 1 光の少なくとも一部および前記第 2 光の少なくとも一部をポンプ光およびプローブ光としてポンプ・プローブ法による試料の測定を行う測定系とを備える。

本発明の第 3 の態様による光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡システムは、上述する光出力システムと、前記光出力システムから出力される前記第 1 光の少なくとも一部および前記第 2 光の少なくとも一部をポンプ光およびプローブ光として利用し試料の測定を行う光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡とを備える。

本発明の第 4 の態様による演算器は、入力された信号に応じてパルスレーザである第 1

50

光を出力する第1レーザ、および入力された信号に応じてパルスレーザである第2光を出力する第2レーザとともに用いられる演算器であって、前記第1レーザおよび前記第2レーザに信号を入力する信号発生部と、前記第1レーザに信号を入力するタイミングと、前記第2レーザに信号を入力するタイミングとの差である可変ディレイ値を複数とおりに切り替えて前記信号を繰り返し入力するディレイ決定部と、前記可変ディレイ値を変化させるタイミングを示す参照信号を出力する信号出力部とを備える。

本発明の第5の態様によるプログラムは、入力された信号に応じてパルスレーザである第1光を出力する第1レーザ、および入力された信号に応じてパルスレーザである第2光を出力する第2レーザとともに用いられる演算器に、前記第1レーザおよび前記第2レーザに信号を入力することと、前記第1レーザに信号を入力するタイミングと、前記第2レーザに信号を入力するタイミングとの差である可変ディレイ値を複数とおりに切り替えて前記信号を繰り返し入力することと、前記可変ディレイ値を変化させるタイミングを示す参照信号を出力させることとを実行させる。

本発明の第6の態様による演算方法は、入力された信号に応じてパルスレーザである第1光を出力する第1レーザ、および入力された信号に応じてパルスレーザである第2光を出力する第2レーザとともに用いられる演算器が実行する演算方法であって、前記第1レーザおよび前記第2レーザに信号を入力することと、前記第1レーザに信号を入力するタイミングと、前記第2レーザに信号を入力するタイミングとの差である可変ディレイ値を複数とおりに切り替えて前記信号を繰り返し入力することと、前記可変ディレイ値を変化させるタイミングを示す参照信号を出力させることとを含む。

【発明の効果】

【0006】

本発明によれば、2つのパルスレーザを出力するタイミングを簡易な構成で切り替えることができる。

【図面の簡単な説明】

【0007】

【図1】第1の実施の形態における光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡システム1の全体構成図

【図2】STM200の模式図

【図3】演算器13の機能ブロック図

【図4】出力光の例を示す図

【図5】STM200の出力信号と時間差 t との関係を示す図

【図6】ある1つの測定値を得るための演算器13の動作を示す図

【図7】演算器13の動作を示すフローチャート

【図8】第2の実施の形態における光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡システム1Aの全体構成図

【図9】第3の実施の形態における光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡システム1Bの全体構成図

【図10】第4の実施の形態における光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡システム1Cの全体構成図

【図11】第5の実施の形態における光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡システム1Dの全体構成図

【図12】第6の実施の形態における演算器13の動作を説明する図

【発明を実施するための形態】

【0008】

第1の実施の形態

以下、図1～図7を参照して、OPP-STM (Optical Pump-Probe Scanning Tunneling Microscopy; 光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡) の第1の実施の形態を説明する。

【0009】

(システム構成)

図1は第1の実施の形態におけるOPP-STM1の全体構成図である。図1では光を実線で示し、電気信号を破線で示している。

【0010】

OPP-STM1は、光出力システム2と、STM200とから構成される。光出力システム2は、第1レーザ11と、第2レーザ12と、演算器13と、ロックインアンプ14と、ミラーMと、ビームスプリッタBSとを備える。

【0011】

第1レーザ11は、レーザ光である第1光L1を出力するレーザ光源である。第1レーザ11は、演算器13からパルス信号が入力されると、第1遅延時間後にパルス状の第1光L1を出力する。第2レーザ12は、レーザ光である第2光L2を出力するレーザ光源である。第2レーザ12は、演算器13からパルス信号が入力されると、第2遅延時間後にパルス状の第2光L2を出力する。第1遅延時間および第2遅延時間は、略同一の非常に短い時間である。両者は厳密には一致していてもよく、後述する調整により両者の差は吸収される。

10

【0012】

第1光L1および第2光L2の強度は同一でもよいし、異なってもよい。第1光L1および第2光L2のパルス幅は同一でもよいし、異なってもよい。また第1光L1および第2光L2のパルス幅は固定値でもよいし、可変でもよい。第1光L1および第2光L2のパルス幅が可変の場合は、第1レーザ11および第2レーザ12に備えられるスイッチを手動で操作することで変更可能であってもよいし、第1レーザ11および第2レーザ12に入力されるパルス信号のパルス幅に応じて変更可能であってもよい。

20

【0013】

演算器13はパルス信号の生成装置であり、電圧の発生源、および演算部を含んで構成される。演算器13は、たとえば書き換え可能な論理回路であるFPGA(Field Programmable Gate Array)により実現される。演算器13は、第1レーザ11および第2レーザ12にパルス信号を出力し、ロックインアンプ14に参照信号を出力する。演算器13と第1レーザ11を結ぶ信号線をS1、演算器13と第2レーザ12を結ぶ信号線をS2、演算器13とロックインアンプ14を結ぶ信号線をS3と呼ぶ。

30

【0014】

ロックインアンプ14は、STM200が出力する信号を処理対象とし、演算器13が出力する参照信号を利用してSTM200の出力信号に含まれる微弱な信号を検出する。検出した微弱な信号は、ロックインアンプ14の内部に保存してもよいし、ロックインアンプ14の外部の記憶装置に保存してもよい。

40

【0015】

ミラーMは、平面ミラーである。ミラーMは、ビームスプリッタBSから出力される分光L11と分光L22を同軸に調整可能とするために、位置および姿勢の調整機構を有する。事前にオペレータが分光L11と分光L22を観察しながらミラーMの位置や姿勢を調整して、分光L11と分光L22を同軸とする。なおミラーMに位置および姿勢の調整機構を設ける代わりに、第1レーザ11や第2レーザ12に位置および姿勢の調整機構を設けてもよい。なお以下では、分光L11と分光L22とをあわせて「出力光」とも呼ぶ。

40

【0016】

ビームスプリッタBSは、入射された光を透過光と反射光に分離する。具体的にはビームスプリッタBSは、第1光L1を透過光である分光L11と、反射光である分光L12に分離し、第2光L2を透過光である分光L21と、反射光である分光L22に分離する。なおビームスプリッタBSは透過光量と反射光量が1:1である、いわゆるハーフミラーでもよいし、透過光量と反射光量の比率はそれ以外でもよい。本実施の形態では、分光L12および分光L21は利用しないので図示していない。

【0017】

50

なおビームスプリッタBSにも、ビームスプリッタBSから出力される分光L11と分光L22を同軸に調整可能とするために、位置および姿勢の調整機構が備えられてもよい。そしてたとえば、ミラーMの角度を調整することで位置を調整し、ビームスプリッタBSの角度を調整することで角度を調整してもよい。

【0018】

STM200は、第1レーザ11および第2レーザ12が出力するレーザ光を、ポンプ光およびプローブ光として利用する、走査トンネル顕微鏡(Scanning Tunneling Microscopy; STM)である。STM200の構成は後に詳述するが、STM200は検出した信号をロックインアンプ14に出力する。

【0019】

第1レーザ11から出力されたレーザ光L1は、ビームスプリッタBSにより分光L11および分光L12に分光される。ビームスプリッタBSを透過した分光L11は、STM200に入射する。第2レーザ12から出力されたレーザ光L2は、複数のミラーMで反射し、ビームスプリッタBSにより分光L21および分光L22に分光される。ビームスプリッタBSにより反射された分光L22は、STM200に入射する。なお以下では、分光L11は「ポンプ光」L11とも呼び、分光L22は「プローブ光」L22とも呼ぶ。

【0020】

(STMの構成)

図2は、STM200の模式図である。STM200は、探針210と、トンネル電流検出部220と、を備える。なお図2にはロックインアンプ14も記載しているが、STM200の構成には含まれないので破線で示している。STM200には試料900がセットされる。STM200の外部から照射される分光L11および分光L22は、探針210の先端211を含む試料900の表面に照射される。試料900はポンプ光L11が照射されると励起され、主に試料900が励起されている間にプローブ光L22が照射される。

【0021】

前述のとおり分光L11と分光L22が出力される時間差は、複数とおりに設定されるので、少なくとも1つの時間差において、試料900が励起されている間にプローブ光L22が照射されればよい。2つの分光が試料900に照射されるタイミングの差である遅延時間に依存して、プローブ光L22によって励起される光キャリアの数が変化し、探針先端部51aと試料900の表面との間に流れるトンネル電流が変化して、トンネル電流検出部220により検出される。トンネル電流検出部220は、検出した電流の信号をロックインアンプ14に出力する。

【0022】

(演算器の機能構成)

図3は、演算器13が有する各機能を機能ブロックとして表した機能ブロック図である。前述のとおり演算器13はFPGAにより実現される。FPGAは起動時に不図示のROMから論理回路情報を読み込んでFPGA内に書き込む。この書き込みにより、信号発生部132と、ディレイ決定部133と、参照信号出力部134と、入力部135と、記憶部136とが形成される。ディレイ決定部133は、後述する可変ディレイ値138の値を決定する。信号発生部132は、遅延時間の計数部およびパルス状の電圧を発生可能な電圧発生源を含む。参照信号出力部134は電圧信号を発生可能な電圧発生源を含む。

【0023】

入力部135は、ユーザの指令を受け付けるボタンなどの物理インタフェース、または電気信号によりユーザの指令を受け付ける電氣的なインタフェースを含む。記憶部136には、固定ディレイ値137および可変ディレイ値138が格納される。ただし固定ディレイ値137および可変ディレイ値138の値は不図示のROMに格納されていなくてもよく、その場合は演算器13が起動するたびに入力部135を介してユーザがその都度入力する。

10

20

30

40

50

【 0 0 2 4 】

信号発生部 1 3 2 は、第 1 レーザ 1 1 および第 2 レーザ 1 2 にパルス信号を出力する。ディレイ決定部 1 3 3 は、可変ディレイ値 1 3 8 を決定する。入力部 1 3 5 は、ユーザの入力に基づき固定ディレイ値 1 3 7 の値を記憶部 1 3 6 に書き込む。信号発生部 1 3 2 が第 1 レーザ 1 1 へパルス信号を出力してから第 2 レーザ 1 2 にパルス信号を出力するまでのディレイ値、すなわち時間の間隔は、固定ディレイ値 1 3 7 と可変ディレイ値 1 3 8 との和である。固定ディレイ値 1 3 7 は、光路長、信号ケーブルの長さ、および第 1 レーザ 1 1 と第 2 レーザ 1 2 との個体差の影響をキャンセルするためのものであり、固定ディレイ値 1 3 7 を適切な値に設定することで、可変ディレイ値がゼロのときに試料 9 0 0 に到達するポンプ光 L 1 1 とプローブ光 L 2 2 のタイミングを同時とすることができる。可変ディレイ値 1 3 8 はポンプ光 L 1 1 とプローブ光 L 2 2 が試料 9 0 0 に到達するタイミングの差を設定する値である。なお以下では、可変ディレイ値 1 3 8 を「時間差 t 」とも呼ぶ。

10

【 0 0 2 5 】

(出力光の例)

図 4 は試料 9 0 0 の位置における分光 L 1 1 および分光 L 2 2 の光強度の時間変化の例を示す図である。図 4 では図示左側から右側に向かって時間が経過しており、図 4 に示す例では第 1 光 L 1 1 が先に試料 9 0 0 に到達し、その後第 2 光 L 2 2 が試料 9 0 0 に到達した。本実施の形態では、図 4 に示すように第 1 光 L 1 1 が先に試料 9 0 0 に到達する場合に時間差 t が正の値をとることとする。

20

【 0 0 2 6 】

(測定信号)

演算器 1 3 の動作を説明する前に、その動作の理解を助けるために S T M 2 0 0 の測定信号の概要を説明する。ただし以下の説明は S T M 2 0 0 がある試料を測定対象とした際の代表的な測定結果を説明するものであり、試料の種類を問わず同様の傾向を有することを O P P - S T M 1 の前提とするものではない。

【 0 0 2 7 】

図 5 は、S T M 2 0 0 の出力信号と時間差 t との関係を示す図である。ポンプ光 L 1 1 が照射されることにより試料 9 0 0 が励起され、時間の経過とともに緩和する。たとえば、 $t_1 < t_2 < t_3$ の関係にある場合に、時間差 t が t_1 、 t_2 、 t_3 の場合の測定値はそれぞれ、 s_{13} 、 s_{12} 、 s_{11} であり、 $s_{13} > s_{12} > s_{11}$ の関係にある。時間差 t が大きく becoming つれて測定信号は減少し、時間差 t がある値以上、図 5 に示す例では時間差 t が t_6 以上では測定信号はこの測定における最小値である s_0 に収束する。

30

【 0 0 2 8 】

ただし測定信号としての最小値、すなわち図 5 の縦軸における「0」と測定の最小値 s_0 との信号レベルの差に比べて、 s_0 と s_{13} との信号レベルの差は小さい。すなわち本測定は S N 比が非常に小さいため通常の測定は困難であるため、ロックインアンプ 1 4 を利用する。遅延時間 t を周期的に切り替えながら、ロックインアンプ 1 4 をその周期に同期させて用いることにより、測定値 s_{13} 、 s_{12} 、 s_{11} などを、ゼロとの比較ではなく s_0 との比較で評価することにより S N 比が低い問題を解決するものである。

40

【 0 0 2 9 】

なお図 5 に示した例はあくまで概要であり、実際には t_6 や s_0 の値は測定前には明確ではないため、十分に長い時間、たとえば想定される減衰までの時間の数倍の時間を t_6 の代わりに用いることが広く行われている。本実施の形態では、十分に長い時間を t_9 として説明する。また本実施の形態では図 5 に示した s_0 や s_{11} などの値は直接は測定できず、基準となる s_0 との相対値、すなわち「 $s_{13} - s_0$ 」の値や、「 $s_{12} - s_0$ 」の値が得られる。

【 0 0 3 0 】

(測定信号)

50

図6は、 s_0 を基準とした s_{13} 、すなわち「 $s_{13} - s_0$ 」を得るための演算器13の動作を示す図である。図6では図示左から右に向かって時間が経過しており、縦軸は時間差 t を示している。図6下部に示す矢印Flipは、演算器13がロックインアンプ14に出力する参照信号が反転するタイミングを示している。図6に示す例では演算器13は、変調周期を L とすると、その半分の時間である所定の時間 $L/2$ ごとに時間差 t を t_1 と t_9 とに切り替える。所定の時間 $L/2$ において、ポンプ光 L_{11} やプローブ光 L_{22} は複数回、たとえば数十回や数百回出力される。

【0031】

ポンプ光 L_{11} とプローブ光 L_{22} が試料900に到達するタイミングの差が可変ディレイ値138、すなわち時間差 t と等しくなる理由を以下に説明する。信号発生部132はまず第1レーザ11にパルス信号を出力し、その出力から固定ディレイ値137と可変ディレイ値138との和の時間が経過した後に第2レーザ12にパルス信号を出力する。第1レーザ11および第2レーザ12が信号パルスを受け取ってから光パルスを出力するまでの時間差および、第1レーザ11および第2レーザ12から試料900までの光路を光が通過する時間差と固定ディレイ値137とが等しいため、ポンプ光 L_{11} とプローブ光 L_{22} が試料900に到達するタイミングの差がちょうど可変ディレイ値138、すなわち時間差 t となる。なお信号発生部132は、内蔵される発振器などの発振回数を数えることで時間の経過を測定する。すなわち本実施の形態では、固定ディレイ値137および可変ディレイ値138は発振器の発振周期を単位として制御可能となる。

【0032】

たとえば演算器13は、時間差 t を t_9 としてポンプ光 L_{11} およびプローブ光 L_{22} を $L/2$ の時間にわたって100回出力し、次に時間差 t を t_1 として出力光を $L/2$ の時間にわたって100回出力する。演算器13はこの動作を複数回繰り返すことで、図6に示す t の周期的変更を実現する。たとえば演算器13は t を t_9 としている $L/2$ の時間にわたり参照信号に $-1V$ を出力し、 t を t_1 としている $L/2$ の時間にわたり参照信号に $1V$ を出力することで、ロックインアンプ14に遅延時間変更と同期したロックイン検出を行わせる。STM200からの出力は遅延時間の変化にあわせて周期 L で S_0 と S_{13} との間で振動する。参照信号に同期して動作するロックインアンプの出力から、 S_0 と S_{13} の差である「 $S_{13} - S_0$ 」を高いSN比で測定できる。

【0033】

(フローチャート)

図7は、演算器13の動作を示すフローチャートである。なお本実施の形態では演算器13はFPGAにより実現されるため、図7に示すフローチャートはハードウェアの動作を必ずしも忠実には示していない。たとえば実際にはパルス数をカウントするカウンタ回路と、カウンタが特定の値の場合に電気パルスを発生させる回路などが常時独立して並列に動作しており、それらの入力や出力が相互に接続される。本実施の形態では、便宜的にフローチャートを用いて演算器13の動作を説明する。

【0034】

以下に説明する各ステップは S_{313} は参照信号出力部134が実行し、 S_{315} は信号発生部132が実行し、他はディレイ決定部133が実行する。演算器13はまず S_{311} において、周期的に変更する2つの可変ディレイ値138を決定する。この可変ディレイ値138は、あらかじめ記憶部136に格納されていてもよいし、実行のたびにユーザが入力部135から入力してもよい。続く S_{312} では演算器13は、 S_{311} において設定した2種類の可変ディレイ値138のうちいずれか一方を使用する可変ディレイ値138として設定して S_{313} に進む。

【0035】

S_{313} では演算器13は、ロックインアンプ14に出力する参照信号を反転させる。たとえば S_{313} の実行直前までの参照信号が「 $-1V$ 」であった場合には S_{313} において参照信号を「 $+1V$ 」に変更する。続く S_{314} では演算器13は、パルス数をカウントするパルスカウンタをゼロに初期化する。続く S_{315} では演算器13は、現在設定

10

20

30

40

50

されている可変ディレイ値 138 を用いて、信号発生部 132 に第 1 レーザ 11 および第 2 レーザ 12 にパルス信号を出力させる。続く S316 では演算器 13 は、パルスカウンタのカウント数を 1 増加させ、パルスカウンタのカウント数が所定の規定値、たとえば 100 に達したか否かを判断する。演算器 13 は既定のカウントに到達した、すなわち S314 の実行から時間 $L/2$ が経過したと判断する場合は S317 に進み、既定のカウント数に到達していないと判断する場合は S315 に戻る。

【0036】

S317 では演算器 13 は、可変ディレイ値 138 を S311 において決定した 2 種類のうち、現在設定されている値ではない他方の値に変更して S313 に戻る。なお演算器 13 は S317 においてさらに、処理回数が所定の回数に達したか否かを判断し、所定の回数に達していると判断する場合は S311 に戻って異なる 2 種類の可変ディレイ値に対して測定を続行してもよいし、図 7 に示す処理を終了してもよい。

10

【0037】

上述した第 1 の実施の形態によれば、次の作用効果が得られる。

(1) 光出力システム 2 は、入力された信号に応じてパルスレーザである第 1 光 L1 を出力する第 1 レーザ 11 と、入力された信号に応じてパルスレーザである第 2 光 L2 を出力する第 2 レーザ 12 と、第 1 レーザ 11 および第 2 レーザ 12 に信号を入力する演算器 13 とを備える。演算器 13 は、第 1 レーザ 11 に信号を入力するタイミングと、第 2 レーザ 12 に信号を入力するタイミングとの差である可変ディレイ値 138 を複数とおりに切り替える。そのため第 1 レーザ 11 と第 2 レーザ 12 がパルスレーザを出力するタイミングを簡易な構成で切り替えることができる。

20

【0038】

ところで、従来技術における光路長を変化させる手法では、ステージの移動やミラーの駆動など機械的な動作が必要であり、振動の発生が避けられないという問題、および切り替え速度に物理的な限界があるという問題が存在する。これらの問題を改善するためにポッケルスセルを利用する構成が知られている。しかしポッケルスセルでは上述した 2 つの問題が改善できるものの、完全には光を遮断することができない問題、および装置構成が大がかりになる問題がある。

【0039】

完全には光を遮断することができない問題とは、光を遮断すべきタイミングにおいて弱い光が漏れ出てしまうことである。すなわち弱い光は常に照射されることとなり、測定値に意図しない影響を及ぼしてしまう。装置構成が大がかりになる問題とは、ポッケルスセルだけで設定可能な遅延時間の分解能は元のレーザの繰り返し周期 ($\sim 10 \text{ ns}$) で制限されるため、それ以下の遅延時間分解能が必要な場合には別途 2 つのレーザのパルス出力タイミングをコントロールするために仕組みが必要となることである。制御が煩雑になると装置が大がかりなものとなり、装置の設置面積や必要コストも大きなものとなる。

30

【0040】

しかし光出力システム 2 は第 1 レーザ 11 および第 2 レーザ 12 に入力する電気信号のタイミングを制御することで遅延時間を自在に設定できるので、光路長を変化させる手法やポッケルスセルを利用する手法のような問題が生じない。具体的には光出力システム 2 では振動がなく、切り替え速度の制限がなく、パルスとパルスとの間に不要な微弱な光パルスの照射がなく、装置構成が単純で設置面積も小さいという利点を有する。

40

【0041】

(2) 演算器 13 は、可変ディレイ値 138 を 2 通りに所定の周期 L で変化させ、可変ディレイ値を変化させるタイミングを示す参照信号を出力する参照信号出力部 134 を備える。そのためロックインアンプ 14 の使用を前提として、STM200 の出力する微弱な信号から必要な情報を取得できる。

【0042】

(3) 光出力システム 2 は、第 1 光 L1 および第 2 光 L2 を用いた STM200 の出力を処理対象とし、参照信号を用いてロックイン検出を行うロックインアンプ 14 を備える。

50

そのためSTM200の出力する微弱な信号から必要な情報を取得できる。

【0043】

(4) 光出力システム2は、第1光L1の少なくとも一部、および第2光L2の少なくとも一部を出力光として同軸に出力するビームスプリッタBSを備える。仮に光出力システム2の出力が第1光L1と第2光L2とが異なる光軸を有する場合は、使用する測定系によっては両者を同軸にしなければならないが、光出力システム2の出力は両者が同軸なので利用しやすい利点を有する。

【0044】

(5) 光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡システム1は、光出力システム2と、光出力システム2から出力される第1光L1の一部および第2光L2の一部をポンプ光L11およびプローブ光L22として利用するSTM200とを備える。そのため、簡易な構成で時間分解機能を有するSTMを利用できる。

【0045】

(変形例1)

上述した第1の実施の形態では、演算器13は、FPGAにより実現された。しかし演算器13の少なくとも一部は、FPGAの代わりに中央演算装置であるCPU、読み出し専用の記憶領域であるROM、および読み書き可能な記憶領域であるRAMの組み合わせによって実現されてもよい。この場合にはROMに格納されるプログラムをCPUがRAMに展開して実行する。また演算器13は、FPGAの代わりに特定用途向け集積回路であるASIC (Application Specific Integrated Circuit) により実現されてもよい。

【0046】

すなわち以下のプログラムも本発明の範囲に含まれる。

(6) 第1レーザ11、および第2レーザ12とともに用いられる演算器13が実行するプログラムであって、第1レーザ11および第2レーザ12に信号を入力することと、第1レーザ11に信号を入力するタイミングと、第2レーザ12に信号を入力するタイミングとの差である可変ディレイ値138を複数とおりに切り替えることと、可変ディレイ値138を変化させるタイミングを示す参照信号を出力させることとを実行させるプログラム。

【0047】

さらに本発明には、上述のプログラムと同一の動作を可能とするFPGAの回路のプログラムも含まれる。

【0048】

(変形例2)

光出力システム2は、ロックインアンプ14を備えなくてもよい。この場合は演算器13はロックインアンプ14にパルス信号を出力しない。

【0049】

(変形例3)

ロックインアンプ14は光出力システム2の外部に存在してもよい。この場合は演算器13は、光出力システム2の外部に存在するロックインアンプ14にパルス信号を出力する。

【0050】

(変形例4)

光出力システム2と組み合わせて利用する計測装置は、STM200に限定されない。ポンプ・プローブ法による測定を行う計測装置であればよい。

【0051】

(変形例5)

図1に示した光出力システム2の構成では、ミラーMは1つのみ含まれた。しかし光出力システム2は、配置や調整の自由度を上げるために複数のミラーMを備えてもよい。こ

10

20

30

40

50

の場合はさらに、第1レーザ11からビームスプリッタBSまでの光路長と第2レーザ12からビームスプリッタBSまでの光路長が調整可能となるように、第1レーザ11、ビームスプリッタBS、第2レーザ12、および複数のミラーMを配置してもよい。

【0052】

(変形例6)

演算器13は、入力インタフェースを備え、固定ディレイ値137をユーザが入力や調整可能に機構されてもよい。たとえば演算器13はボリュームスイッチを備え、ユーザがボリュームスイッチの回転方向および回転量に合わせて固定ディレイ値137を増減してもよい。

【0053】

第2の実施の形態

図8を参照して、光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡システムの第2の実施の形態を説明する。以下の説明では、第1の実施の形態と同じ構成要素には同じ符号を付して相違点を主に説明する。特に説明しない点については、第1の実施の形態と同じである。本実施の形態では、主に、光出力システムが2つのレーザ光を独立して出力し、光出力システムの外部で2つのレーザ光を同軸にする点で、第1の実施の形態と異なる。

【0054】

図8は、第2の実施の形態における光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡システム1Aの全体構成図である。第1の実施の形態との相違点は、ミラーMおよびビームスプリッタBSが光出力システム2Aに含まれない点である。その他の構成は第1の実施の形態と同様である。

【0055】

上述した第2の実施の形態によれば、光出力システム2Aと組み合わせる測定装置が同軸でない光を用いてポンプ・プローブ法の計測を行う場合に有用である。また同軸の光を用いてポンプ・プローブ法による計測を行う場合でも、第1の実施の形態と同様にミラーMおよびビームスプリッタBSを用いることで同様の作用効果が得られる。

【0056】

第3の実施の形態

図9を参照して、光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡システムの第3の実施の形態を説明する。以下の説明では、第1の実施の形態と同じ構成要素には同じ符号を付して相違点を主に説明する。特に説明しない点については、第1の実施の形態と同じである。本実施の形態では、主に、光出力システムが2つのレーザ光を同軸とせずに出力する点で、第1の実施の形態と異なる。

【0057】

図9は、第3の実施の形態における光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡システム1Bの全体構成図である。第1の実施の形態との相違点は、ビームスプリッタおよびミラーを備えない点である。すなわち本実施の形態では、出力光L1および出力光L2がそのままSTM200に入力される。

【0058】

上述した第3の実施の形態によれば、光出力システム2Aと組み合わせる測定装置が同軸でない光を用いてポンプ・プローブ法の計測を行う場合に有用である。

【0059】

第4の実施の形態

図10を参照して、光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡システムの第4の実施の形態を説明する。以下の説明では、第1の実施の形態と同じ構成要素には同じ符号を付して相違点を主に説明する。特に説明しない点については、第1の実施の形態と同じである。本実施の形態では、主に、高精度な時間差 t の制御が可能な点で、第1の実施の形態と異なる。

【0060】

上述した第1の実施の形態では、求められる計時の精度に比べて演算器13が備える発

10

20

30

40

50

振器の1回あたりの発振の時間が十分に短いとした。しかし求められる計時の精度に比べて演算器13が備える発振器の1回あたりの発振の時間が十分に短い、という条件を満たさない場合には、以下に説明するアナログのディレイ回路の併用が有効である。

【0061】

図10は、第4の実施の形態における光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡システム1Cの全体構成図である。光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡システム1Cは、光出力システム2CとSTM200とを備える。光出力システム2Cと光出力システム2との違いは、光出力システム2Cは遅延回路18をさらに備える点である。本実施の形態では、演算器13から第2レーザ12へのパルス信号の出力は、遅延回路18を介して行われる。

10

【0062】

遅延回路18における遅延時間は、演算器13からS25を通じた制御信号により調整可能である。遅延回路18はたとえば、ps単位で遅延時間を調整できる。遅延回路18は、演算器13からパルス信号がS21を通じて入力されると、アナログ回路の特性により設定された遅延時間だけ遅れて第2レーザ12にパルス信号をS22を通じて出力する。

【0063】

上述した第4の実施の形態によれば、より高精度な時間差 t の制御が可能である。たとえば演算器13に備えられる発振器の周波数が1GHzの場合には、1周期が1nsなので1周期未満の時間であるps単位の制御は実現できない。しかし遅延回路18を利用することで、演算器13に備えられる発振器の1周期よりも短い時間の分解能で時間差 t を制御できる。

20

【0064】

(第4の実施の形態の変形例)

遅延回路18は、演算器13と一体に構成されていてもよい。たとえば出力遅延回路を備えるFPGAを用いることで、遅延回路18を内蔵する演算器13を実現できる。

【0065】

第5の実施の形態

図11を参照して光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡システムの第5の実施の形態を説明する。以下の説明では、第1の実施の形態と同じ構成要素には同じ符号を付して相違点を主に説明する。特に説明しない点については、第1の実施の形態と同じである。本実施の形態では、主に、第1レーザが外部から信号を入力されることなく、所定の周期でパルスレーザを出力し続ける点が第1の実施の形態と異なる。

30

【0066】

図11は、第5の実施の形態における光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡システム1Dの全体構成図である。第1の実施の形態との相違点は、第1レーザ11の代わりに独立して動作する第1レーザ11Aを備える点、第1レーザ11Aの出力である第1光L1を分光する2つのビームスプリッタBS1およびBS2を備える点、第1レーザ11Aの出力を検出する光検出器15を備える点である。また演算器13の動作も第1の実施の形態と異なる。

40

【0067】

第1レーザ11Aがパルスレーザを出力する周波数は既知であり、たとえば100kHzである。ただしこの周波数は必ずしも厳密ではなく、少なくとも演算器13に内蔵される発振器とは完全な同期が期待できない。

【0068】

光検出器15は、受信した光を電気信号に変換して出力する。光検出器15は光電子増倍管を用いて実現されてもよいし、半導体のpn接合を利用したフォトダイオードを用いて実現されてもよい。光検出器15には、第1レーザ11が出力する第1光L1の一部である分光L12が入力される。光検出器15は、受信した光を変換した電気信号を同期信号S5として演算器13に出力する。

50

【0069】

演算器13は、同期信号S5を基準タイミングとして数百倍～数千倍のクロックを生成し、可変ディレイ値138のカウントに利用する。たとえば第1レーザ11Aの出力が100kHzの場合に、演算器13は100MHzのクロックを生成し、同期信号S5の受信時刻を基準として可変ディレイ値138をカウントする。

【0070】

上述した第5の実施の形態によれば、次の作用効果が得られる。

(7) 光出力システム2Dは、所定の周期で光パルスである第1光L1を出力する第1レーザ11Aと、入力された信号に応じてパルスレーザである第2光を出力する第2レーザ12と、第1光L1が出力されるタイミングを基準として第2レーザ12に信号を入力する演算器13とを備える。演算器13は、第1光L1が出力されるタイミングと、第2レーザ12に信号を入力するタイミングとの差である可変ディレイ値138を複数とおりに切り替える。そのため、従来から用いられている所定の周期でレーザ光を出力するレーザ発振器を用いて第1の実施の形態と同様の作用効果を得ることができる。入力されたパルス信号に応じてパルスレーザを出力する第2レーザ12などは、出力が必ずしも高くないため、本実施の形態の構成であれば高出力のレーザ発振器を利用できるというさらなる利点を有する。

10

【0071】

(第5の実施の形態の変形例)

第1装置1011は、レーザ以外を出力してもよい。たとえば第1装置1011がシンクロトロンであり、所定の周期でX線パルスを出力してもよい。

20

【0072】

第6の実施の形態

図12を参照して光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡システムの第6の実施の形態を説明する。以下の説明では、第1の実施の形態と同じ構成要素には同じ符号を付して相違点を主に説明する。特に説明しない点については、第1の実施の形態と同じである。本実施の形態では、主に、信号発生部132からの電気信号の出力タイミングを特定している点で第1の実施の形態と異なる。

【0073】

第6の実施の形態における光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡システムのハードウェア構成は第1の実施の形態と同様なので説明を省略する。第6の実施の形態における光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡システムの機能構成は信号発生部132の実装の詳細を除いて第1の実施の形態と同様である。以下では、信号発生部132および信号発生部132を含む演算器13の動作を説明する。

30

【0074】

図12は、第6の実施の形態における演算器13の動作を説明する図である。図12(a)は第6の実施の形態における演算器13の動作を示す図、図12(b)は参照信号を示す図、図12(c)は比較例の動作を示す図である。なお図12(a)～図12(c)は図示横方向の時間軸を同期させている。図12に示す例では、図示の都合により、変調周期の半分の時間であるL/2の時間において、第1光L1と第2光L2のそれぞれは平均で3回のみ出力される。図12に示すT101、T102、T103、・・・は変調周期Lの開始時刻を基準とし、L/2の長さをN分割、図12に示す例では3分割する時刻である。以下ではこのT101、T102などのそれぞれを「基準時刻」と呼ぶ。

40

【0075】

本実施の形態では信号発生部132は、図12(a)に示すように、T101やT102などの基準時刻に対して第1光L1を可変ディレイ値138の半分だけ前に、第2光L2を可変ディレイ値138の値の半分だけ後ろにずらすことで、両者が試料900へ到達する時刻差を可変ディレイ値138とする。たとえば可変ディレイ値138がt1の場合に、第1光L1は基準時刻よりもt1/2だけ早く到達し、第2光L2は基準時刻よりもt1/2だけ遅く到達するように第1レーザ11および第2レーザ12に信号を出力する

50

。また可変ディレイ値 138 が t_9 の場合は、L1 は基準時刻よりも $t_9 / 2$ だけ早く到達し、L2 は基準時刻よりも $t_9 / 2$ だけ遅く到達するように第 1 レーザ 11 および第 2 レーザ 12 に信号を出力する。その一方で、図 12 (c) に示す比較例では、信号発生部 132 は第 1 光 L1 が常に基準時刻に到達し、第 2 光 L2 は基準時刻から可変ディレイ値 138 だけ遅れて到達するよう動作することで、両者が試料 900 へ到達する時刻差を可変ディレイ値 138 とする。

【0076】

両者の違いは、可変ディレイ値を切り替える時刻の前後で顕著となる。図 12 (a) では、切り替えの前後でも第 1 光 L1 および第 2 光 L2 をあわせた合計の光パルス数の時間方向の密度は略一定であり、時間的な粗密は存在しない。しかし比較例では第 1 光 L1 の光パルス数の時間方向の密度は時刻によらず完全に一定であるが、第 2 光 L2 については T104 の前後では試料 900 に照射される光が時間的に粗となり、T107 の前後では試料 900 に照射される光が時間的に密となる。そのため比較例では STM200 の出力には、変調期間 L の半周期ごとに可変ディレイ値 138 が変更される影響だけでなく半周期ごとに発生する照射される光の時間的な粗密の影響も含まれる可能性がある。その一方で本実施の形態では、変調の前後でも試料 900 に照射される光の粗密が起こりにくいいため、可変ディレイ値 138 の影響を測定しやすい利点を有する。

【0077】

上述した第 6 の実施の形態によれば、次の作用効果が得られる。

(8) 信号発生部 132 は、第 1 光 L1 が試料 900 に到達するタイミングと第 2 光 L2 が試料 900 に到達するタイミングの平均時刻が、参照信号の変調タイミングを基準とする基準時刻に一致するように第 1 レーザ 11 および第 2 レーザ 12 に信号を出力する。そのため、可変ディレイ値 138 の変化の前後でも試料 900 に照射される光の粗密が起こりにくく、可変ディレイ値 138 の影響を測定しやすい。

【0078】

上述した各実施の形態および変形例は、それぞれ組み合わせてもよい。上記では、種々の実施の形態および変形例を説明したが、本発明はこれらの内容に限定されるものではない。本発明の技術的思想の範囲内で考えられるその他の態様も本発明の範囲内に含まれる。

【0079】

次の優先権基礎出願の開示内容は引用文としてここに組み込まれる。

日本国特許出願 2018 - 233878 (2018 年 12 月 13 日出願)

【符号の説明】

【0080】

- 1、1A、1B、1C、1D... 光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡システム
- 2、2A... 光出力システム
- 3... 演算器
- 11... 第 1 レーザ
- 12... 第 2 レーザ
- 13... 演算器
- 14... ロックインアンプ
- 15... 光検出器
- 131... 調整部
- 132... 信号発生部
- 133... ディレイ決定部
- 134... 参照信号出力部
- 135... 入力部
- 136... 記憶部
- 137... 固定ディレイ値
- 138... 可変ディレイ値

10

20

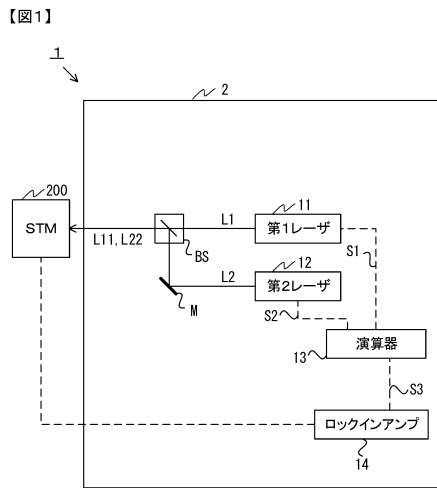
30

40

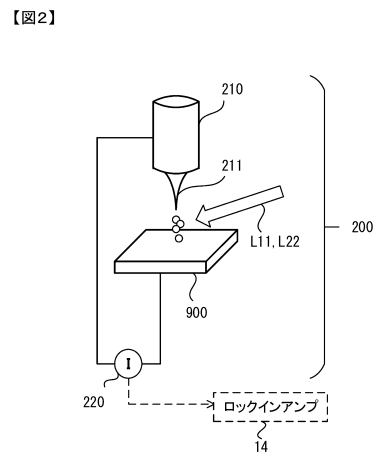
50

- 9 0 0 ... 試料
- L 1 ... 第 1 光
- L 1 1 ... ポンプ光
- L 2 ... 第 2 光
- L 2 2 ... プローブ光

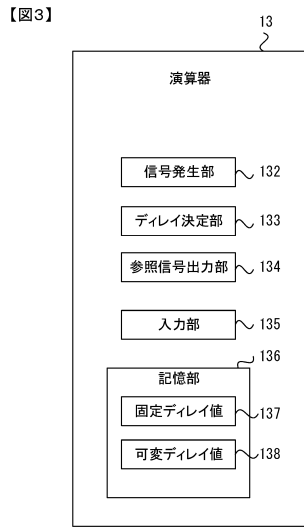
【 図 1 】



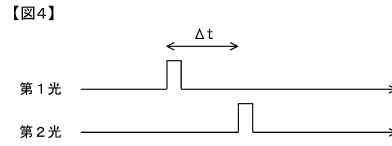
【 図 2 】



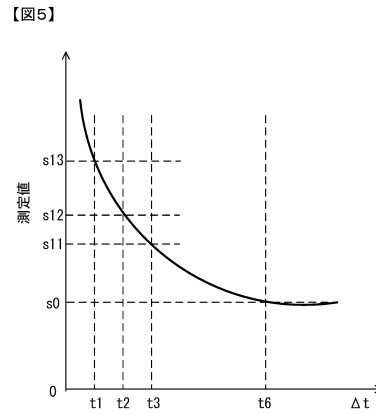
【図3】



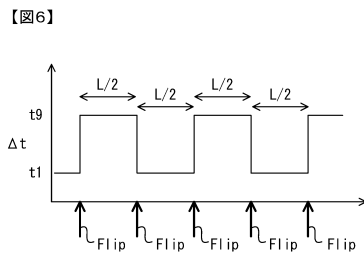
【図4】



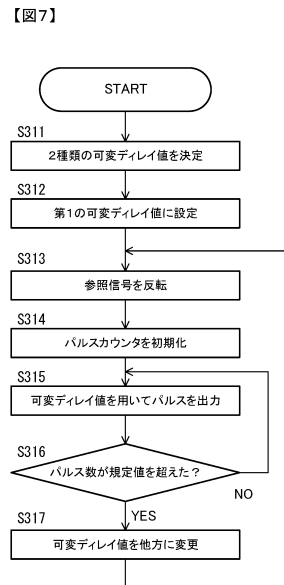
【図5】



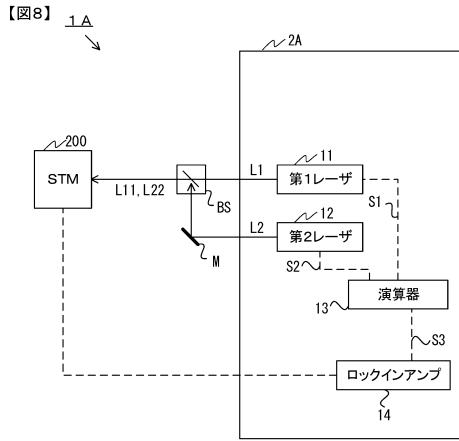
【図6】



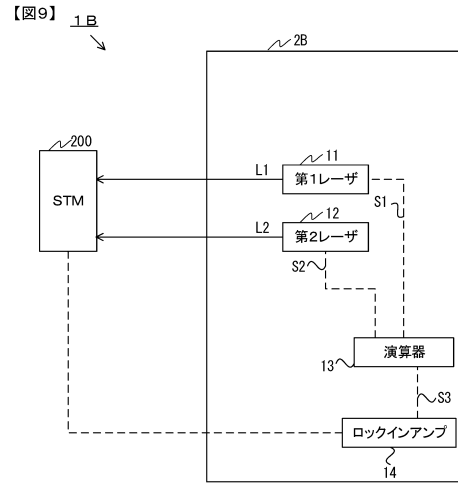
【図7】



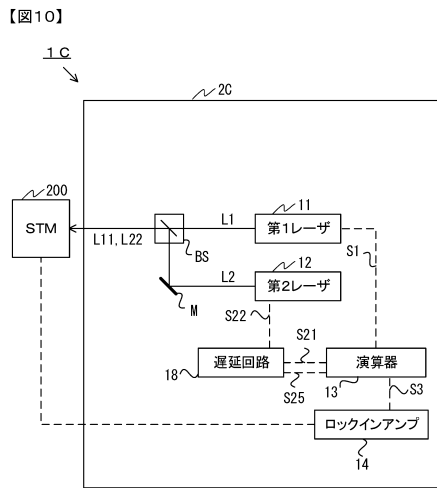
【図8】



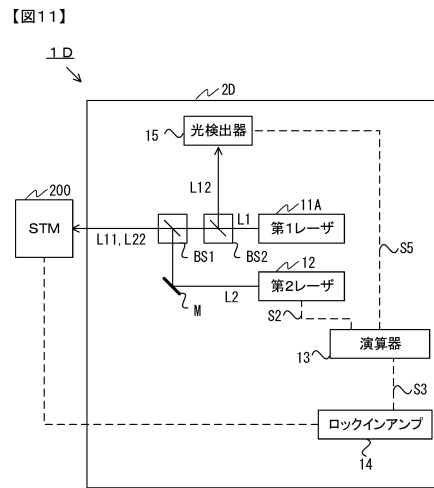
【図9】



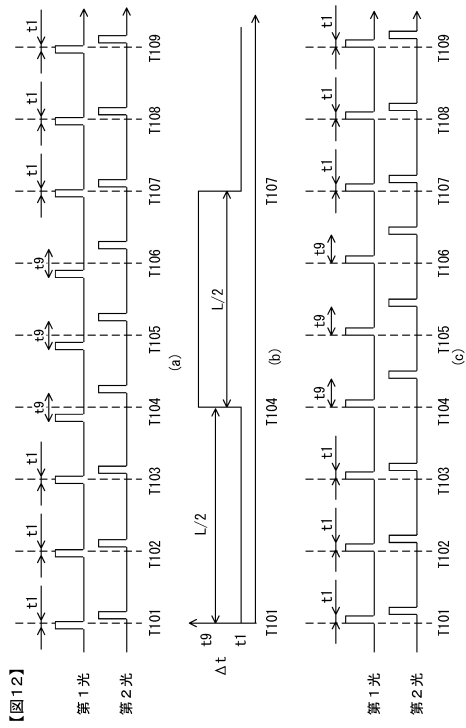
【図10】



【図11】



【 図 1 2 】



フロントページの続き

(72)発明者 汪 子涵

茨城県つくば市天王台一丁目1番1 国立大学法人筑波大学内

審査官 山口 剛

(56)参考文献 特開2018-175999(JP,A)
特開2018-179506(JP,A)
特開2008-139028(JP,A)
国際公開第2013/018813(WO,A1)
特表2014-518387(JP,A)
特開2017-003338(JP,A)
米国特許出願公開第2003/0184328(US,A1)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

G01Q 10/00 - 90/00
G01N 21/01
G01N 21/17
G01N 21/55