

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2020年6月18日(18.06.2020)



(10) 国際公開番号

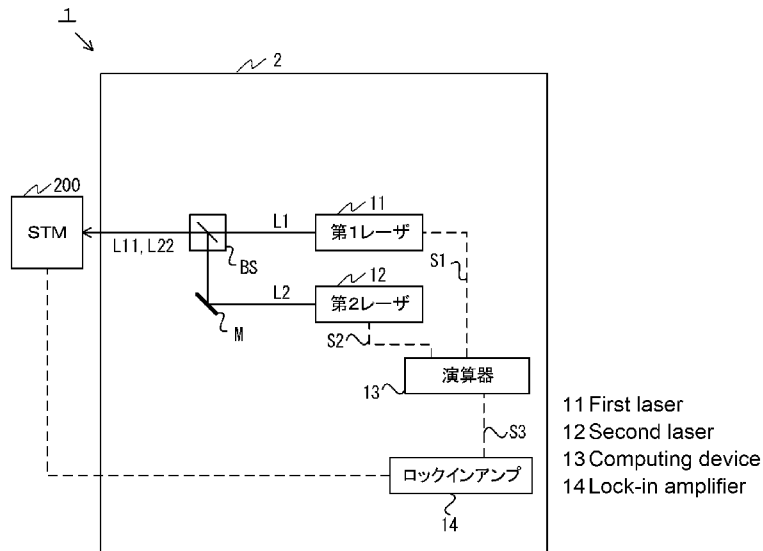
WO 2020/121856 A1

- (51) 国際特許分類:
G01Q 30/02 (2010.01) *G01N 21/01* (2006.01)
G01Q 60/10 (2010.01) *G01N 21/55* (2014.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2019/046904
- (22) 国際出願日: 2019年11月29日(29.11.2019)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
 特願 2018-233878 2018年12月13日(13.12.2018) JP
- (71) 出願人: G セラノスティックス株式会社 (GTMHERANOSTICS CO., LTD.) [JP/JP];
- 〒1600016 東京都新宿区信濃町3 S コート202 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 重川 秀実 (SHIGEKAWA, Hidemi);
 〒3058577 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 Ibaraki (JP). 武内 修(TAKEUCHI, Osamu); 〒3058577 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 Ibaraki (JP). 汪子涵(WANG Zi-han); 〒3058577 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 Ibaraki (JP).
- (74) 代理人: 大賀 眞司, 外 (OHGA, Shinji et al.);
 〒1400002 東京都品川区東品川二丁目3番12号 シーフォートスクエア セン

(54) Title: OPTICAL OUTPUT SYSTEM, MEASUREMENT SYSTEM, OPTICAL PUMP-PROBE SCANNING TUNNELING MICROSCOPE SYSTEM, COMPUTING DEVICE, PROGRAM, AND COMPUTING METHOD

(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

【図1】



(57) Abstract: This optical output system comprises a first laser for outputting first light which is a laser pulsed in accordance with an inputted signal, a second laser for outputting second light which is a laser pulsed in accordance with an inputted signal, and a computing device for inputting a signal to the first laser and the second laser, the computing device



WO 2020/121856 A1

タービルディング 16 階 サンネクスト
国際特許事務所 Tokyo (JP).

- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類 :

- 一 国際調査報告 (条約第21条(3))

switching a variable delay value, which is the difference between the timing at which the signal is inputted to the first laser and the timing at which the signal is inputted to the second laser, a plurality of ways and repeatedly inputting the signal.

(57) 要約: 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、第1レーザおよび第2レーザに信号を入力する演算器とを備え、演算器は、第1レーザに信号を入力するタイミングと、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信号を繰り返し入力する。

明 細 書

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

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ミングを制御する構成が特許文献2に開示されている。

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する。

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する光学的ポンプ・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、第1レーザおよび第2レーザに信号を入力する信号発生部と、第1レーザに信号を入力するタイミングと、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、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、第1レーザおよび第2レーザに信号を入力することと、第1レーザに信号を入力するタイミングと、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、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の態様による光出力システムは、所定の周期で光パルスである第1光を出力する第1装置と、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装置と、第1光が出力されるタイミングを基準として第2装置に信号を入力する演算器とを備え、演算器は、第1光が出力されるタイミングと、第2装置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。

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 Δt 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] 一第1の実施の形態一

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なくてもよく、後述する調整により両者の差は吸収される。

[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。

[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。

[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。

[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。

[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] 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が出力するレーザー光を、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ー光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ー光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

0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L 2 2によって励起される光キャリアの数が増減し、探針先端部5 1 aと試料9 0 0の表面との間に流れるトンネル電流が増減して、トンネル電流検出部2 2 0により検出される。トンネル電流検出部2 2 0は、検出した電流の信号をロックインアンプ1 4に出力する。

[0022] (演算器の機能構成)

図3は、演算器1 3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1 3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1 3 2と、ディレイ決定部1 3 3と、参照信号出力部1 3 4と、入力部1 3 5と、記憶部1 3 6とが形成される。ディレイ決定部1 3 3は、後述する可変ディレイ値1 3 8の値を決定する。信号発生部1 3 2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1 3 4は電圧信号を発生可能な電圧発生源を含む。

[0023] 入力部1 3 5は、ユーザの指令を受け付けるボタンなどの物理インターフェース、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ーフェースを含む。記憶部1 3 6には、固定ディレイ値1 3 7および可変ディレイ値1 3 8が格納される。ただし固定ディレイ値1 3 7および可変ディレイ値1 3 8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1 3が起動するたびに入力部1 3 5を介してユーザがその都度入力する。

[0024] 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 Δt 」とも呼ぶ。

[0025] (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、その後に第 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 Δt が正の値をとることとする。

[0026] (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 STM 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 STM 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 OPP-STM 1 の前提とするものではない。

[0027] 図 5 は、STM 2 0 0 の出力信号と時間差 Δt 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 Δt 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 Δt が大きくなるにつれて測定信号は減少し、時間差 Δt がある値以上、図 5 に示す例では時間差 Δt 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。

[0028] 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SN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14を利用する。遅延時間 Δt を周期的に切り替えながら、ロックインアンプ14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SN比が低い問題を解決するものである。

[0029] 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。

[0030] (測定信号)

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 Δt を示している。図6下部に示す矢印 F_{lip} 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 Δt 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 Δt 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L11とプローブ光L22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 Δt 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 Δt を t_9 としてポンプ光L11およびプローブ光L22を $L/2$ の時間にわたって100回出力し、次に時間差 Δt 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 Δt の周期的変更を実現する。たとえば演算器は Δt 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、 Δt 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ー回路と、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S313は参照信号出力部134が実行し、

S 3 1 5 は信号発生部 1 3 2 が実行し、他はディレイ決定部 1 3 3 が実行する。演算器 1 3 はまず S 3 1 1 において、周期的に変更する 2 つの可変ディレイ値 1 3 8 を決定する。この可変ディレイ値 1 3 8 は、あらかじめ記憶部 1 3 6 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 1 3 5 から入力してもよい。続く S 3 1 2 では演算器 1 3 は、S 3 1 1 において設定した 2 種類の可変ディレイ値 1 3 8 のうちいずれか一方を使用する可変ディレイ値 1 3 8 として設定して S 3 1 3 に進む。

[0035] S 3 1 3 では演算器 1 3 は、ロックインアンプ 1 4 に出力する参照信号を反転させる。たとえば S 3 1 3 の実行直前までの参照信号が「 -1V 」であった場合には S 3 1 3 において参照信号を「 $+1\text{V}$ 」に変更する。続く S 3 1 4 では演算器 1 3 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 3 1 5 では演算器 1 3 は、現在設定されている可変ディレイ値 1 3 8 を用いて、信号発生部 1 3 2 に第 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させる。続く S 3 1 6 では演算器 1 3 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 1 0 0 に達したか否かを判断する。演算器 1 3 は既定のカウントに到達した、すなわち S 3 1 4 の実行から時間 $L/2$ が経過したと判断する場合は S 3 1 7 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 S 3 1 5 に戻る。

[0036] S 3 1 7 では演算器 1 3 は、可変ディレイ値 1 3 8 を S 3 1 1 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 S 3 1 3 に戻る。なお演算器 1 3 は S 3 1 7 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 S 3 1 1 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。

[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 L 1 を出力する第 1 レーザ 1 1 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。

[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。

[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。

- [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。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。さらに演算器 13 は、異なる構成の組み合わせ、たとえば CPU、R

OM、およびRAMとFPGAの組み合わせ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] ー第 2 の実施の形態ー

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 1 A 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 B S が光出力システム 2 A 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 2 A 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 B S を用いることで同様の作用効果が得られる。

[0056] ー第 3 の実施の形態ー

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 1 B 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 L 1 および出力光 L 2 がそのまま STM 2 0 0 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 2 A 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] ー第 4 の実施の形態ー

図 1 0 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 Δt 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 1 3 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した。しかし求められる計時の精度に比べて演算器 1 3 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 1 0 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 1 C 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 1 C は、光出力システム 2 C と STM 2 0 0 とを備える。光出力システム 2 C と光出力システム 2 との違いは、光出力システム 2 C は遅延回路 1 8 をさらに備える点である。本実施の形態では、演算器 1 3 から第 2 レーザ 1 2 へのパルス信号の出力は、遅延回路 1 8 を介して行われる。

[0062] 遅延回路 1 8 における遅延時間は、演算器 1 3 から S 2 5 を通じた制御信号により調整可能である。遅延回路 1 8 はたとえば、ps 単位で遅延時間を調整できる。遅延回路 1 8 は、演算器 1 3 からパルス信号が S 2 1 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 Δt 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 Δt を制御できる。

[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] 一第5の実施の形態一

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。

[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。

[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1

5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。

[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。

[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。

[0072] 一第6の実施の形態一

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。

[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 $T101$ 、 $T102$ 、 $T103$ 、 \dots 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。

[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。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、1 A、1 B、1 C、1 D…光学的ポンプ・プローブ走査トンネル顕微鏡

システム

2、2 A…光出力システム

3…演算器

1 1…第1レーザ

1 2…第2レーザ

1 3…演算器

1 4…ロックインアンプ

1 5…光検出器

1 3 1…調整部

1 3 2…信号発生部

1 3 3…ディレイ決定部

1 3 4…参照信号出力部

1 3 5…入力部

1 3 6…記憶部

1 3 7…固定ディレイ値

1 3 8…可変ディレイ値

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

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する光出力システム。
- [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3] 請求項2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4] 請求項1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5] 請求項1から請求項4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

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6] 請求項2または請求項3に従属する請求項5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。

[請求項7] 請求項1から請求項4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8] 請求項2または請求項3に従属する請求項7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

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9]

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10]

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11]

所定の周期で光パルスである第1光を出力する第1装置と、

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装置と、

前記第1光が出力されるタイミングを基準として前記第2装置に信号を入力する演算器とを備え、

前記演算器は、第1光が出力されるタイミングと、前記第2装置に

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光出力システム。

[請求項12]

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、

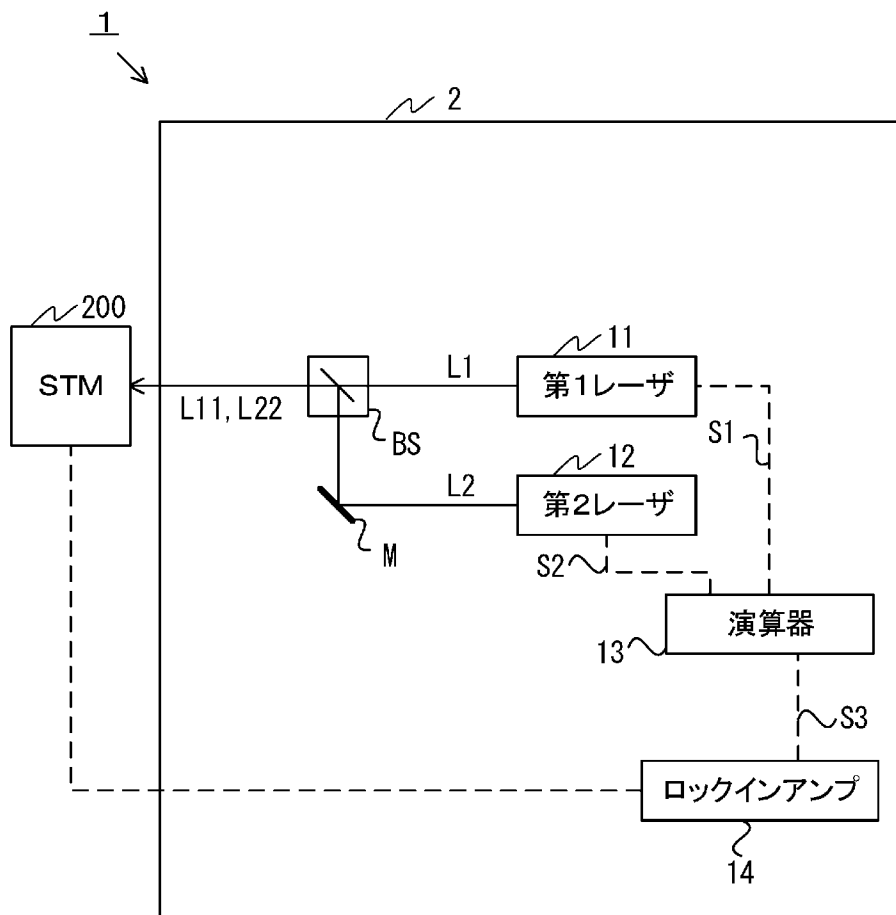
前記第1レーザおよび前記第2レーザに信号を入力することと、

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。

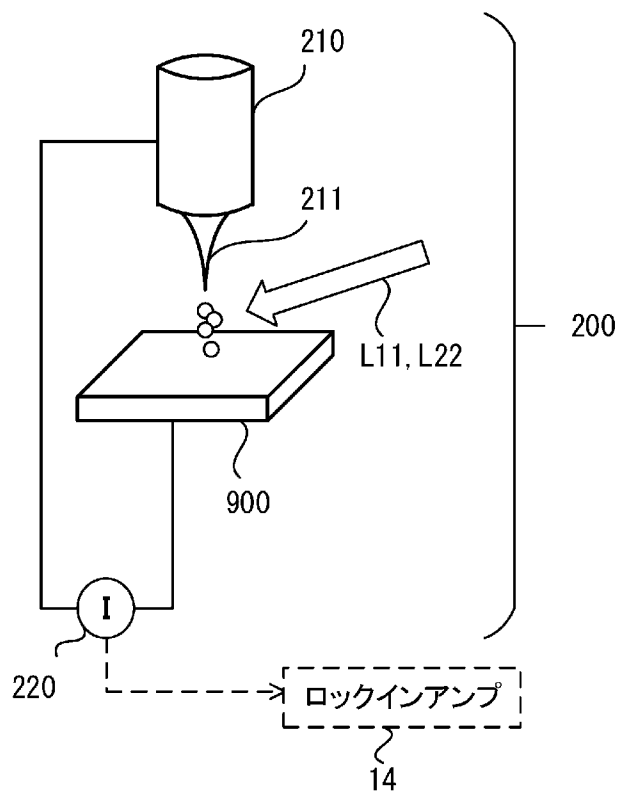
【図1】

【図1】



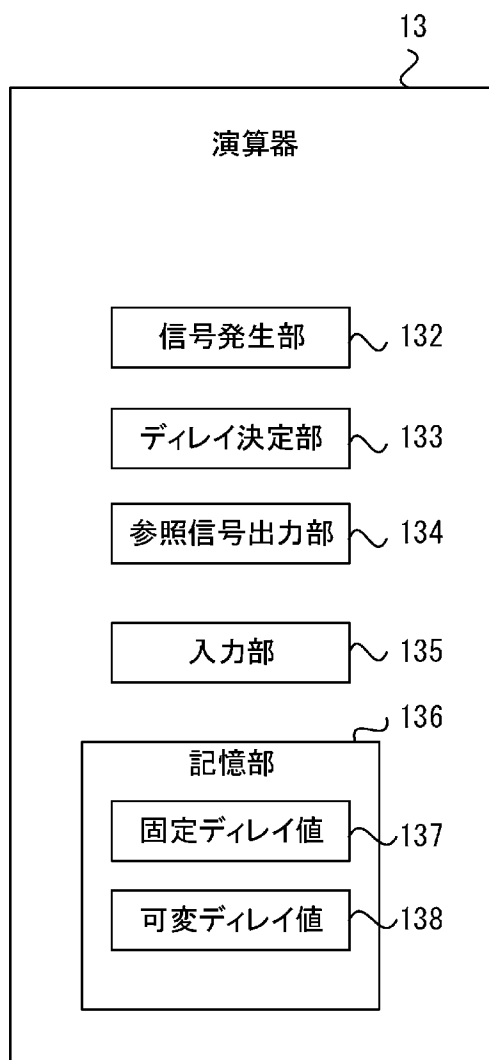
[図2]

【図2】



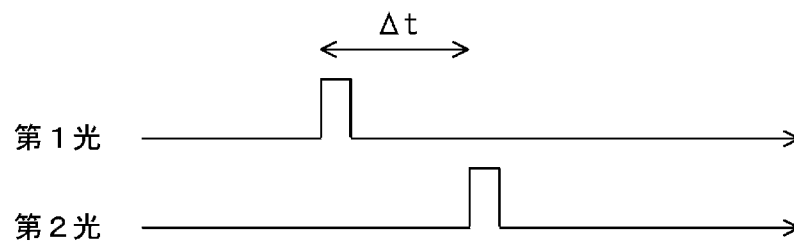
[図3]

【図3】



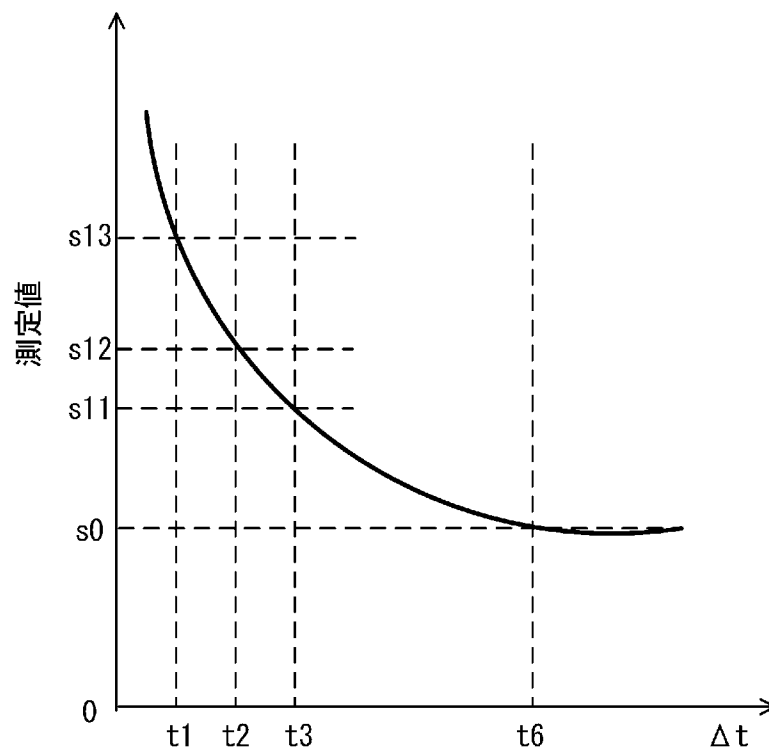
[図4]

【図4】



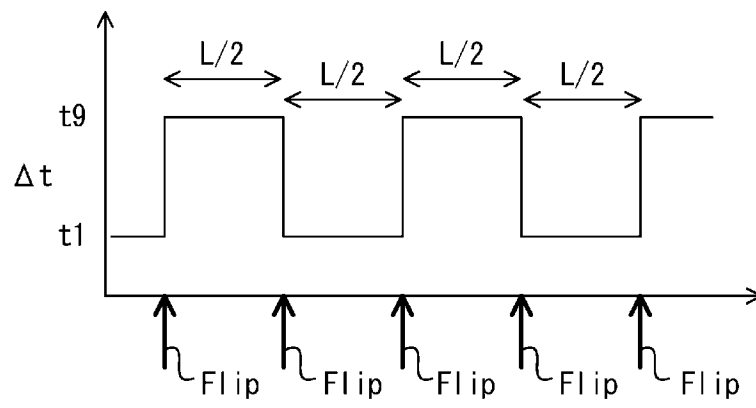
[図5]

【図5】



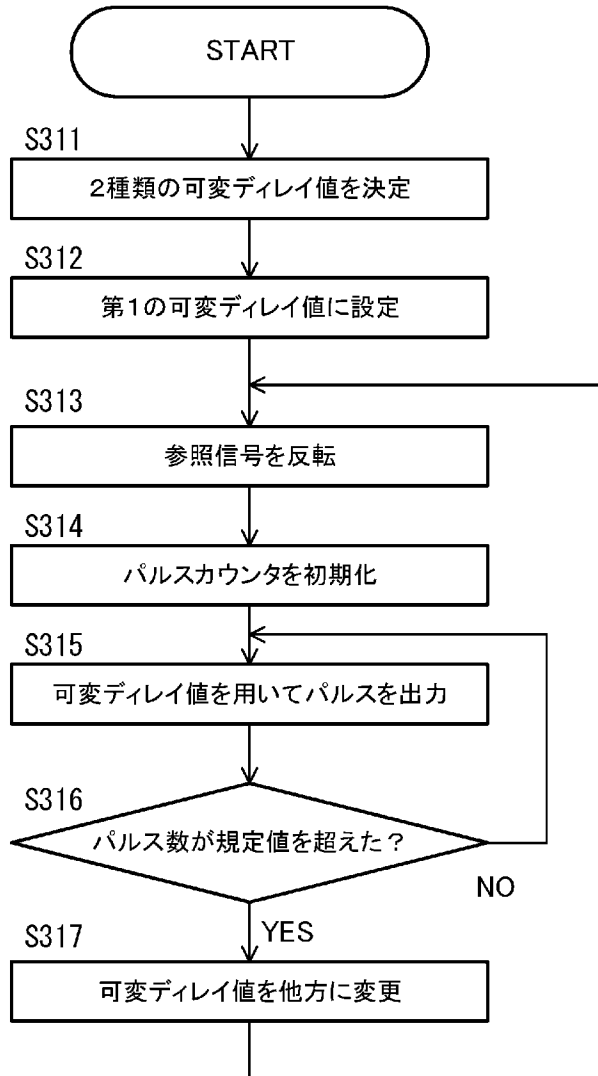
[圖6]

【圖6】

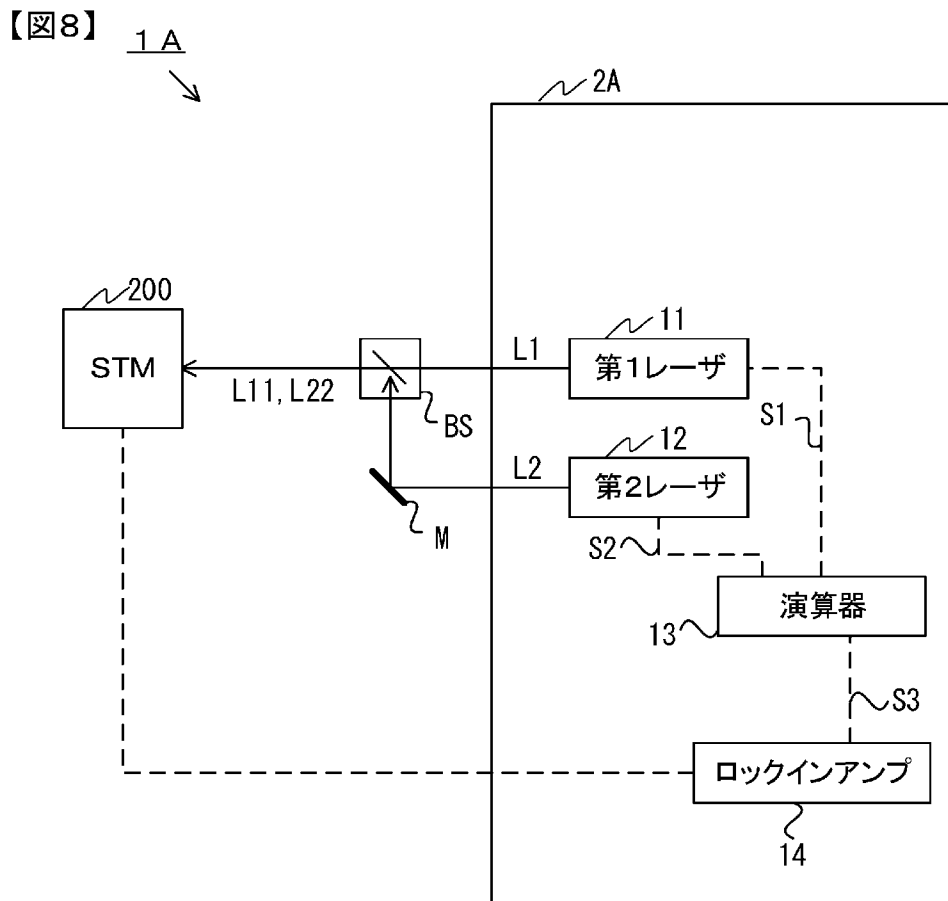


【図7】

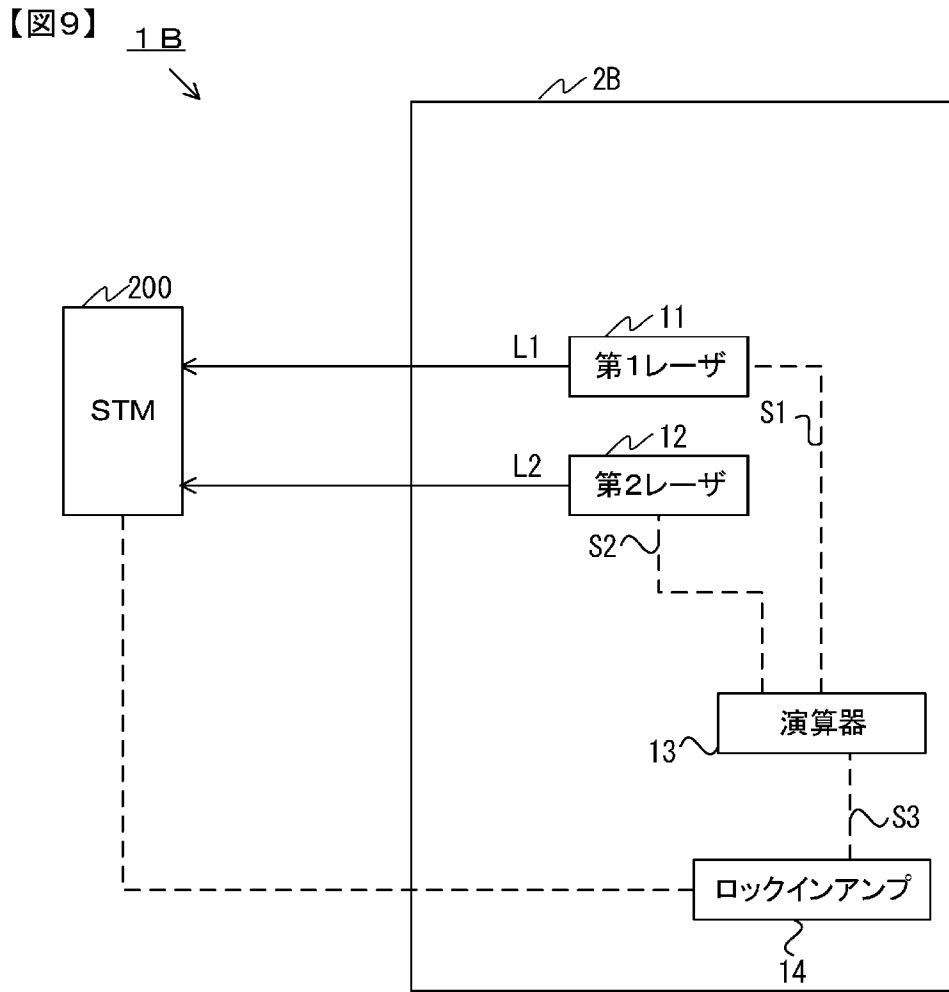
【図7】



【図8】

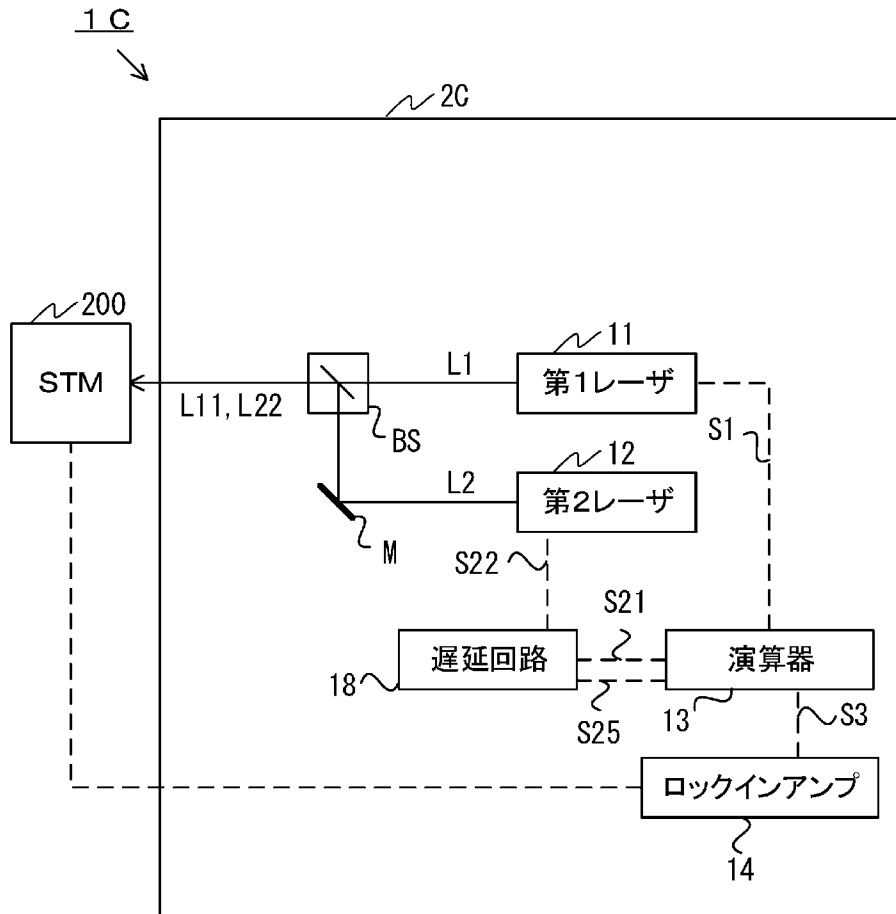


【図9】



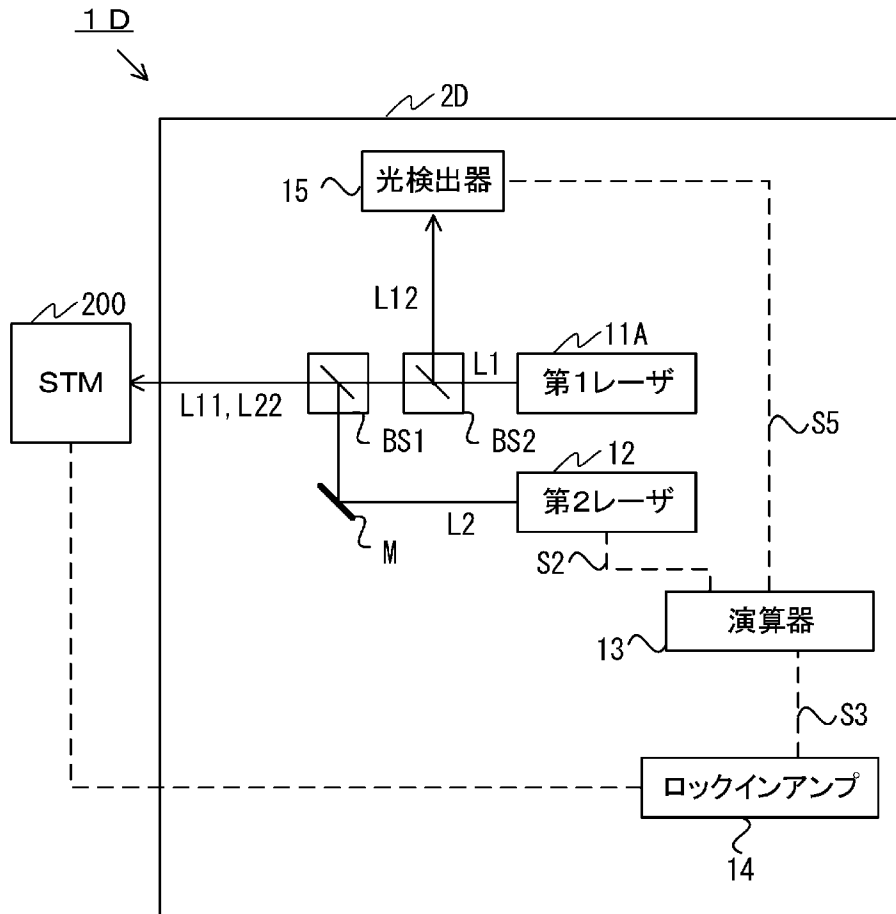
【図10】

【図10】

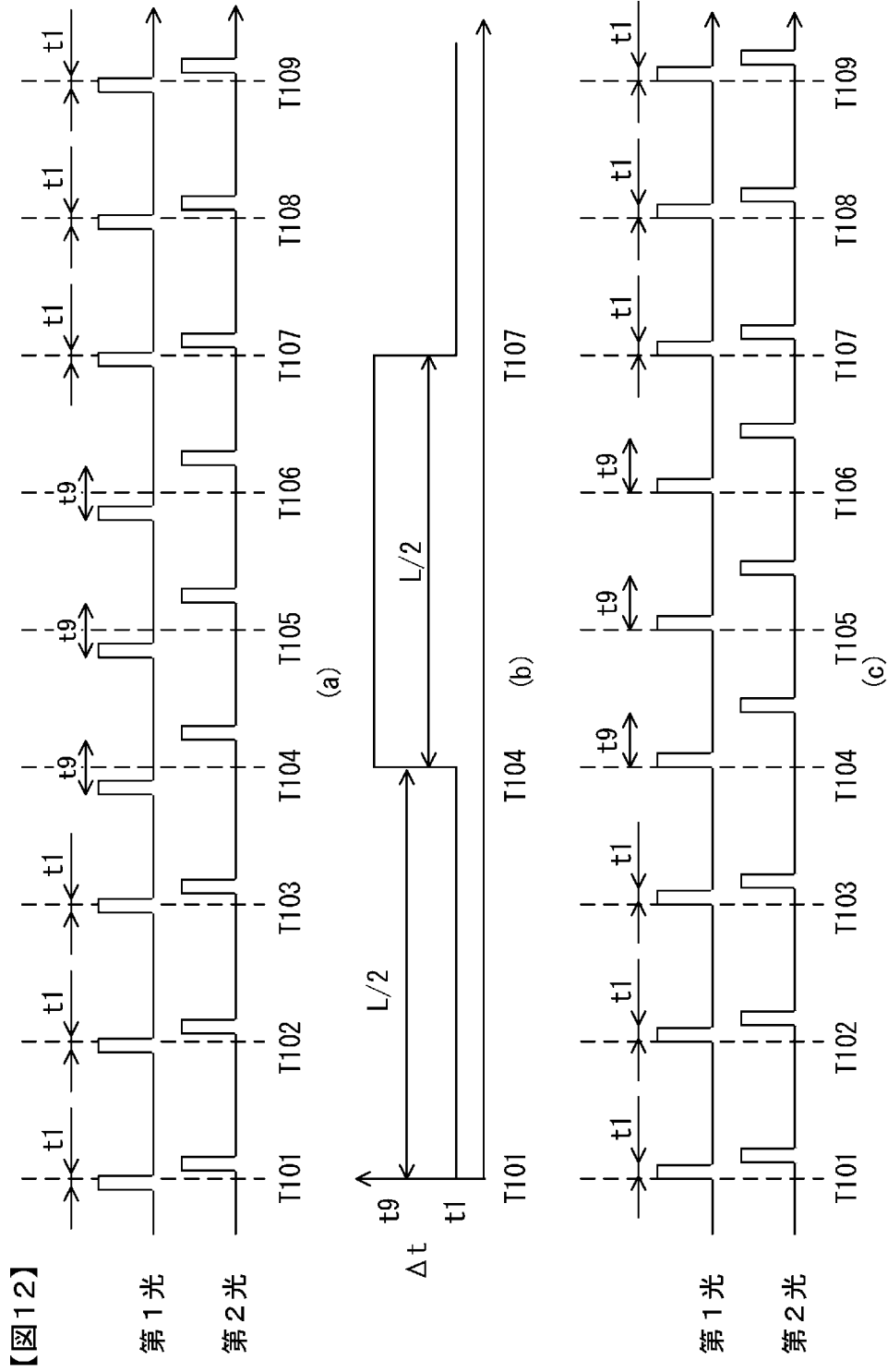


[図11]

【図11】



[圖12]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/046904

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER G01Q 30/02(2010.01)i; G01Q 60/10(2010.01)i; G01N 21/01(2006.01)i; G01N 21/55(2014.01)i FI: G01N21/01 D; G01Q30/02; G01N21/55; G01Q60/10 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) G01Q10/00-90/00; G01N21/01; G01N21/17; G01N21/55 Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Published examined utility model applications of Japan 1922-1996 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2020 Registered utility model specifications of Japan 1996-2020 Published registered utility model applications of Japan 1994-2020 Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	JP 2018-175999 A (KAO CORP.) 15.11.2018 (2018-11-15) paragraphs [0015]-[0019], [0033]-[0035], [0073]	1, 4-5, 7, 11 2-3, 6, 8-10, 12
Y A	JP 2018-179506 A (KAO CORP.) 15.11.2018 (2018-11-15) paragraphs [0013]-[0015], [0020], [0039]-[0041], [0077]	1, 4-5, 7, 11 2-3, 6, 8-10, 12
Y A	JP 2008-139028 A (JAPAN SCIENCE AND TECHNOLOGY AGENCY) 19.06.2008 (2008-06-19) paragraphs [0055]-[0059], fig. 7	1, 4-5, 7, 11 2-3, 6, 8-10, 12
A	WO 2013/018813 A1 (JAPAN SCIENCE AND TECHNOLOGY AGENCY) 07.02.2013 (2013-02-07) entire text, all drawings	1-12
A	JP 2014-518387 A (ECOLE POLYTECHNIQUE/DGAR) 28.07.2014 (2014-07-28) entire text, all drawings	1-12
<input checked="" type="checkbox"/>	Further documents are listed in the continuation of Box C.	<input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family	
Date of the actual completion of the international search 23 January 2020 (23.01.2020)	Date of mailing of the international search report 04 February 2020 (04.02.2020)	
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer Telephone No.	

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/046904

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2017-3338 A (NIPPON TELEGRAPH AND TELEPHONE CORP.) 05.01.2017 (2017-01-05) entire text, all drawings	1-12
A	US 2003/0184328 A1 (LEE, Jong-Joo) 02.10.2003 (2003-10-02) entire text, all drawings	1-12
P, A	WO 2019/142914 A1 (GATHERANOSTICS CO., LTD.) 25.07.2019 (2019-07-25) entire text, all drawings	1-12
P, A	MOGI, Hiroyuki, WANG, Zihan, KIKUCHI, Ryusei, YOON, Cheul-Hyun, YOSHIDA, Shoji, TAKEUCHI, Osamu, SHIGEKAWA, Hidemi, "Externally triggerable optical pump-probe scanning tunneling microscopy", Applied Physics Express, 18 January 2019, vol. 12, no. 2, pp. 025005_1-025005_4, https://doi.org/10.7567/1882-0786/aaf8b2 entire text, all drawings	1-12

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2019/046904

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 2018-175999 A	15 Nov. 2018	(Family: none)	
JP 2018-179506 A	15 Nov. 2018	(Family: none)	
JP 2008-139028 A	19 Jun. 2008	US 2010/0088787 A1 paragraphs [0119]- [0123], fig. 7 WO 2008/066090 A1 EP 2090880 A1 KR 10-2009-0082934 A CA 2670948 A CN 101595379 A JP 2013-32993 A US 2014/0240710 A1 EP 2741072 A1 CN 103733045 A KR 10-2014-0056304 A CA 2880769 A1 JP 2017-161535 A US 2014/0293288 A1 WO 2013/001242 A1 FR 2977320 A1 (Family: none) KR 10-2003-0077734 A (Family: none)	
WO 2013/018813 A1	07 Feb. 2013		
JP 2014-518387 A	28 Jul. 2014		
JP 2017-3338 A	05 Jan. 2017		
US 2003/0184328 A1	02 Oct. 2003		
WO 2019/142914 A1	25 Jul. 2019		

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） G01Q 30/02(2010.01)i; G01Q 60/10(2010.01)i; G01N 21/01(2006.01)i; G01N 21/55(2014.01)i FI: G01N21/01 D; G01Q30/02; G01N21/55; G01Q60/10		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） G01Q10/00-90/00; G01N21/01; G01N21/17; G01N21/55 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2020年 日本国実用新案登録公報 1996-2020年 日本国登録実用新案公報 1994-2020年		
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y A	JP 2018-175999 A（花王株式会社）15.11.2018（2018-11-15） 段落0015-段落0019、段落0033-段落0035、段落0073	1,4-5,7,11 2-3,6,8-10,12
Y A	JP 2018-179506 A（花王株式会社）15.11.2018（2018-11-15） 段落0013-段落0015、段落0020、段落0039-段落0041、段落0077	1,4-5,7,11 2-3,6,8-10,12
Y A	JP 2008-139028 A（独立行政法人科学技術振興機構）19.06.2008（2008-06-19） 段落0055-段落0059、図7	1,4-5,7,11 2-3,6,8-10,12
A	WO 2013/018813 A1（独立行政法人科学技術振興機構）07.02.2013（2013-02-07） 全文、全図	1-12
A	JP 2014-518387 A（エコール ポリテクニク/デジュアエル）28.07.2014（2014-07-28） 全文、全図	1-12
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献 “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日	
23.01.2020	04.02.2020	
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官） 山口 剛 2J 9806 電話番号 03-3581-1101 内線 3250	

C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2017-3338 A (日本電信電話株式会社) 05.01.2017 (2017 - 01 - 05) 全文、全図	1-12
A	US 2003/0184328 A1 (LEE Jongjoo) 02.10.2003 (2003 - 10 - 02) 全文、全図	1-12
P, A	WO 2019/142914 A1 (Gセラノスティックス株式会社) 25.07.2019 (2019 - 07 - 25) 全文、全図	1-12
P, A	MOGI Hiroyuki, WANG Zi-han, KIKUCHI Ryusei, YOON Cheul Hyun, YOSHIDA Shoji, TAKEUCHI Osamu, SHIGEKAWA Hidemi, "Externally triggerable optical pump-probe scanning tunneling microscopy", Applied Physics Express, 2019.01.18, Vol.12, No.2, pp.025005_1-025005_4, https://doi.org/10.7567/1882-0786/aaf8b2 全文、全図	1-12

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
 PCT/JP2019/046904

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2018-175999 A	15.11.2018	(ファミリーなし)	
JP 2018-179506 A	15.11.2018	(ファミリーなし)	
JP 2008-139028 A	19.06.2008	US 2010/0088787 A1 [0119]-[0123], Fig. 7 WO 2008/066090 A1 EP 2090880 A1 KR 10-2009-0082934 A CA 2670948 A CN 101595379 A	
WO 2013/018813 A1	07.02.2013	JP 2013-32993 A US 2014/0240710 A1 EP 2741072 A1 CN 103733045 A KR 10-2014-0056304 A CA 2880769 A1	
JP 2014-518387 A	28.07.2014	JP 2017-161535 A US 2014/0293288 A1 WO 2013/001242 A1 FR 2977320 A1	
JP 2017-3338 A	05.01.2017	(ファミリーなし)	
US 2003/0184328 A1	02.10.2003	KR 10-2003-0077734 A	
WO 2019/142914 A1	25.07.2019	(ファミリーなし)	