The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	レーザ励起磁場を用いた走査型 SQUID顕微鏡に関する研究
Author(s)	中谷, 悦啓
Citation	大阪大学, 2012, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/24879
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

レーザ励起磁場を用いた
走査型 SQUID 顕微鏡に関する研究

平成２４年３月

中谷　悦啓

レーザ励起磁場を用いた
走査型 SQUID 顕微鏡に関する研究

博士（工学）論文提出先

大阪大学大学院基礎工学研究科

平成２４年３月

中谷　悦啓

要旨

本論文は、走査型 SQUID (Superconducting Quantum Interference Device) 顕微鏡に、レーザ照射機構を付加することにより半導体評価を可能にしたレーザ SQUID 顕微鏡に関する研究をまとめたものである。本研究では評価試料として主に多結晶シリコン太陽電池を用いた。

第 1 章では、まず、研究背景として一般的に開発されている走査型 SQUID 顕微鏡の現状について述べた後、半導体のキャリア発生効率や欠陥を局所的かつ非破壊に評価するために、走査型 SQUID 顕微鏡にレーザ照射機構を組み合わせて開発されたレーザ SQUID 顕微鏡について述べ、他の研究機関で行われているレーザ SQUID 顕微鏡の開発状況についてまとめた。次に、本研究の目的および意義を述べ、本論文の構成について説明した。

第 2 章では、一般的なレーザ SQUID 顕微鏡の測定原理について説明した。最初に、試料にレーザを照射した際に生じるレーザ励起電流について述べた。また、電流から生じる磁場分布の計算例を示し、電流の分布の仕方によっては磁場が打ち消され、磁場分布から元の電流分布が得られないことを示した。次に、SQUID の素子構造およびその磁場測定原理について簡単に述べ、最後に、SQUID によって取得された磁場情報から元の電流分布を推定する手法についてまとめた。

第 3 章では、開発したレーザ SQUID 顕微鏡について述べた。最初に開発したレーザ SQUID 顕微鏡の装置構成の概要について説明し、本顕微鏡の構成要素である走査型 SQUID 顕微鏡部およびレーザ光学系についてまとめた。特に、本研究において走査型 SQUID 顕微鏡には、大気中・室温下におかれた試料の磁場分布を高空間分解能に測定するために、高透磁率材料を用いて作成したニードルを用いている。また、レーザ光学系に関しては、2 通りのレーザ照射方法を適用した。1 つ目はレーザ走査法で、これは試料に対しレーザ照射点を走査し、レーザ照射点に対してニードル(結果として SQUID)の位置関係を固定する方法である。レーザ走査法により、試料の各位置における光応答を調べることができる。2 つ目はレーザ固定法で、試料上のレーザ照射位置を固定し、試料上でニードル(結果として SQUID)を走査する手法で、レーザ照射点周辺に生じた磁場分布が測定される。これら 2 つのレーザ光学系の構成と両者の意義について述べた。また、レーザ SQUID 顕微鏡は、レーザ照射による能動的測定法であることから、レーザ強度を変調し、レーザ照射に相関のある信号を抽出することにより、SN 比の改善に取り組んだ。さらに、レーザ SQIUD 顕微鏡画像の処理方法についても説明した。

第 4 章では、開発したレーザ SQUID 顕微鏡の基本的な性能評価について述べた。まず、磁化された試料の磁場分布を測定し、走査型 SQUID 顕微鏡としての測定性能の確認を行った。次に、開発したレーザ光学系のレーザ照射性能の確認を行い、レーザ SQUID 顕微鏡の空間分解能の評価を行った。また、各種サンプルを探索的に測定した。

第 5 章では、開発したレーザ SQUID 顕微鏡を用いて多結晶シリコン太陽電池を測定した結果についてまとめた。まず、レーザ走査法において、405 nm、780 nm、1065 nm の 3 波長のレーザを用いて測定し、得られる画像の波長依存性を確認した。特に、780 nm のレーザを用いた際に、多結晶のグレインバウンダリーに対応する線状のコントラストが明瞭に観察された。次に、レーザ強度等、レーザ SQUID 顕微鏡画像に影響を与える計測パラメータを検討した。また、磁場情報から電流に関する情報の推定を試みた。まず、レーザ照射位置を起点として磁場測定位置を 2 点選び、この 2 点の磁場情報から、レーザ照射位置における電流ベクトルを推定する方法について検討した。しかし、この手法では、詳細な電流ベクトルを決定することが難しいため、より多くの点における磁場情報から電流推定を行うことにした。そこで、レーザ照射点をサンプルに固定するレーザ固定法を用いて、サンプル上の磁場分布を取得し、磁場分布から元のレーザ励起電流を解析する方法を検討した。この解析法では逆問題を解くために磁場を生じない等方的な電流分布の解は得られないものの、多結晶シリコン太陽電池においては表面電極がレーザ励起電流の経路に大きな影響を与えていることが明らかとなった。電極がないサンプルにおいては、レーザ照射点がサンプルの端に近いほど、レーザ照射点での異方性成分の電流密度が大きく、レーザ照射点近傍からサンプル中央に向かってキャリアが拡散している結果が得られた。一方、表面にフィンガー電極があるサンプルでは、レーザ照射点ではなく、レーザ照射点から最も近い電極上で電流密度が最も大きくなる推定結果が得られた。これらのことから、電極のように導電率が周囲と異なる箇所があると、電流密度分布に影響があることが判明した。最後に、レーザ SQUID 顕微鏡による測定結果と、電気的接触を要する LBIC(Laser beam induced current)法による測定結果との比較を行い、LBIC 法と同等の検査を非接触に行えることを示した。

第 6 章では、本論文全体の研究成果を総括し、本研究で開発したレーザ SQUID 顕微鏡により、多結晶シリコン太陽電池のグレインバウンダリーや欠陥等の評価や、電流経路の推定を非接触で行えることを結論づけた。

目次

第 1 章 序論 1

1.1 研究背景 1
1.2 研究目的 5
1.3 本論文の構成 5

第 2 章 レーザ SQUID 顕微鏡の原理 7

2.1 半導体におけるレーザ励起電流 7
2.2 太陽電池におけるレーザ励起電流 13
2.3 電流による磁場導出（順方向問題） 15
2.4 SQUID による磁場測定原理 17
2.5 取得磁場情報によるレーザ励起電流の解析 19
2.6 まとめ 23

第 3 章 レーザ SQUID 顕微鏡の開発 24

3.1 装置構成 24
3.2 走査型 SQUID 顕微鏡の開発 26
3.2.1 SQUID のピックアップループサイズ効果とニードル 27
3.2.2 SQUID の設計・作製・評価 33
3.2.3 サンプル走査機構 39
3.2.4 制御プログラム 41
3.3 光学系の開発 45
3.3.1 レーザ走査法の光学系 45
3.3.2 レーザ固定法の光学系 53
3.4 ロックインアンプによる SN 比の改善 54
3.5 画像処理法 60
3.6 まとめ 65

第 4 章 レーザ SQUID 顕微鏡の基本的性能評価 67

4.1 走査型 SQUID 顕微鏡機能の評価 67

4.2　使用したレーザの特性 70
4.3　空間分解能の評価 73
4.4　各種サンプルの探索実験 76
4.5　まとめ 80

第 5 章　レーザ SQUID 顕微鏡の多結晶シリコン太陽電池への適用 81

5.1　波長依存性 81
5.2　磁場像に対する計測パラメータの影響 85
5.3　磁場測定位置の影響 89
5.4　レーザ励起電流の解析 92
5.4.1　2 点磁場を用いた解析 92
5.4.2　8 点磁場を用いた解析 95
5.4.3　磁場像を用いた解析 98
5.4.4　解析結果の比較 100
5.5　表面電極の影響 100
5.5.1　表面電極がない試料の測定結果 101
5.5.2　フィンガー電極のある試料の測定結果 104
5.5.3　櫛形電極のある試料の測定結果 106
5.5.4　まとめ 109
5.6　電気的接触を要する LBIC 法との比較 111
5.7　まとめ 117

第 6 章　結論 119

謝辞 121

参考文献 123

発表論文リスト 130

第1章　序論

本研究は、レーザ励起磁場を用いた走査型 SQUID 顕微鏡に関する研究をまとめたものである。走査型 SQUID 顕微鏡とは、磁場分解能の高い磁気センサである SQUID（Superconducting QUantum Interference Device）を試料近傍で走査し、試料の磁場分布を得る装置である。本研究では、半導体評価のために、走査型 SQUID 顕微鏡にレーザ照射装置を付加したレーザ SQUID 顕微鏡の開発を行い、開発したレーザ SQUID 顕微鏡を用いて、多結晶シリコン太陽電池の評価を検討した。第 1 章では、研究背景と研究目的を述べ、最後に本論文の構成について述べる。

1.1　研究背景

SQUID は、超伝導特有の現象である磁束量子化とジョセフソン効果を利用した高感度な磁場センサであり、磁束の最小単位として知られる磁束量子の百万分の 1 程度の磁束を測定することが原理上可能である。一般に、SQUID の磁場分解能は、ピックアップループの大きさにも依存するが、最高でフェムトテスラ程度の磁場分解能を有している。その高い磁場分解能を生かした応用研究が各方面で活発に行われている。医学方面では、脳の活動[1]や心臓の拍動によって生ずる磁場の測定[2]が行われている。材料分野においては、物質の磁化特性評価[3]や、NMR 信号測定[4]の研究が行われている。工学分野においては、鉄道レールなどの非破壊検査[5]や、試料表面の局所磁場計測が可能な走査型 SQUID 顕微鏡などの研究が行われている。特に、走査型 SQUID 顕微鏡は、1990 年代に開発された磁場顕微鏡であり、近年のナノテクノロジーやスピントロニクスの進展に伴い局所磁場の測定が重要になっていることから、微細な磁場分布を観察できる顕微鏡の一つとして注目されている[6-10]。SQUID は、原理的に磁束計であるので、均一な磁場を測定する場合には、センサに入る磁束を多くするほど感度が上がる。つまり、磁束密度分解能（磁場分解能）は、磁束を捕獲するピックアップループの面積が大きい方が高くなる。走査型 SQUID 顕微鏡で、磁場分解能と同様に重要な性能として空間分解能が挙げられるが、空間分解能はピックアップループの面積が小さい方が高い。また、空間分解能は SQUID と試料間の距離に依存し、SQUID - 試料間距離に反比例して低下する[11]。磁場分解能と空間分解能を両立させるために、ピックアップループサイズの最適値が存在し、おおよそ SQUID - 試料間距離に相当する大きさとされている。SQUID - 試料間距離は装置設計仕様によって制限されるので、SQUID のピックアップループサイズを SQUID - 試料間距離と同じ大きさにするような設計方針がとられる。SQUID は、超伝導現象を利用しているため、超伝導転移臨界温度以下の温度で保持しておく必要があるが、測定試料も SQUID と同じ低温・真空中に設置できる場合には、試料を SQUID と接触させることができる。この構成を採用した例では、10 μm

の距離まで SQUID のピックアップループを近づけ、11.2 μm の空間分解能を達成している[8]。

近年では、ナノスケールのピックアップループサイズの SQUID の作製の研究が行われており、ナノスケールの空間分解能を持つ走査型 SQUID 顕微鏡も期待されている。大気中・室温試料の測定でナノレベルの磁場の空間分解能をもつ顕微鏡として MFM（Magnetic Force Microscopy）がある。MFM では、強磁性体でコートしたカンチレバーを試料近傍で励振させ、試料の磁場分布と磁化したカンチレバーとの間に働く磁気力によって、カンチレバーの振動の位相が変化することを利用している[12]。しかし、位相情報から磁場を定量的に評価するには工夫が必要である[13]。一方で SQUID を用いた方法は、直接磁場を測定する点で磁場の定量性に優れている。

低温試料に関しては、SQUID を接触させることで高空間分解能な測定が可能となるが、通常の試料では室温・大気中での測定が望ましく、高空間分解能な測定を実現するためには特別な工夫が必要である。一つの方法は、SQUID を真空中・低温下に置き、薄い真空隔壁を隔てて大気中・室温の試料に向い合せる方法である。この方法で最も近づけられた例では、厚さ 3 μm の窒化ケイ素の薄い板を隔壁として用い、大気中・室温下の試料と、真空中で液体窒素温度に冷却された高温超伝導 SQUID を対向させ、SQUID と試料間の距離を 15 μm まで短くすることに成功している[14]。その他にも大気中・室温の試料に対して、高空間分解能を達成する別の方法も開発されている[15-22]。これは、高透磁率材料を針状にしたニードルプローブを真空隔壁に貫通させ、試料の局所的磁場をニードルプローブの先端から吸い取り、SQUID へ磁束を伝達する方法である。このニードルプローブ付走査型 SQUID 顕微鏡の場合、空間分解能はニードルプローブの先端径で決まる。ニードルが、磁場分布を持った試料に近接すると、ニードルから磁束が導かれ、SQUID へと伝えられるが、ニードルの先端に近い部分の磁束が主に導かれるため、ニードル先端径程度の領域の磁場が SQUID に伝達されることになる。また、SQUID を近づける場合と同様に、ニードルプローブを用いた場合でも、ニードルプローブ先端と試料をできるだけ近づけることが必要であるが、ニードルプローブは室温下にあり、プローブを試料に接触させながら測定することもできる。このニードルプローブ付走査型 SQUID 顕微鏡をさらに改良したものに STM-SQUID（Scanning Tunneling microscope-SQUID）顕微鏡がある[23-25]。先端を 100 nm 以下まで尖らせたニードルを用い、ニードルの先端と試料との距離を STM の機能を用い、可能な限り近づけている。この手法で、大気中・室温試料に対し、2 μm の周期的磁場模様の観察が成功している。

半導体評価用にレーザ照射機能を付加した走査型 SQUID 顕微鏡はレーザ SQUID 顕微鏡と呼ばれる。半導体にバンドギャップエネルギー以上のエネルギーをもつフォトンを局所的に照射すると、照射領域において電子‐正孔対が生成される。レーザ照射領域からキャリアの拡散長以内に内部電界が存在すると電子‐正孔対が分離され正味の電流が流れる。電流が流れると周囲に磁場が生じ、これを SQUID で測定するという原理である。レーザ

SQUID 顕微鏡を用いた半導体評価を最初に行ったのが、ドイツの Physikalisch Technische Bundesanstalt (PTB)の Beyer らのグループである[26]。Beyer らは、厳重な磁気シールド環境下で、低温超伝導 SQUID マグネトメータを用い、レーザ照射点から 15 mm 離れた位置で、試料面と水平方向の磁場を測定するレーザ SQUID 顕微鏡を開発した。不純物濃度の分布に揺らぎのある FZ シリコンウエハを測定し、不純物濃度勾配が存在する方向と直交する方向の磁場成分を測定したところ、不純物濃度勾配に対応する磁気画像が得られた。これは、不純物濃度勾配により内部電界が生じ、レーザ励起で生成された電子 - 正孔対が分離され、勾配の方向に電流が流れるためと考えられる。これにより、不純物濃度の面内分布をレーザ SQUID 顕微鏡によって非接触で評価できることが示されている。

レーザ SQUID 顕微鏡の研究グループは、現在までに、我々を含め世界で 4 グループある。前述のドイツの PTB のグループと我々の他に、岩手大学の大坊らのグループ、NEC の二川らのグループがある。それぞれのグループで、レーザ SQUID 顕微鏡の構成やねらいに違いがある。それぞれの主な研究状況について概説する。

大坊らのグループが開発したレーザ SQUID 顕微鏡は、レーザ照射点と高温超伝導 SQUID との距離が 10.2~11.6mm[27-31]となっている。大坊らは、最初にグラジオメータ型 SQUID を用い、シールドのない環境下で、n 型シリコン基板上の p 型のアイランドのレーザ SQUID 顕微鏡画像を取得し、pn 接合にレーザを照射すると、磁気勾配が生じることを示した[27]。次にマグネトメータ型 SQUID を用いて、pn 接合を横切るラインスキャンデータをレーザの波長を変えて取得することにより、少数キャリアの拡散長の定量評価を非接触でできることを示した[28-29]。

二川らのグループでは、レーザ SQUID 顕微鏡を用いて、LSI 欠陥検査に取り組んだ[32]。空間分解能として 1.3 μm を達成している。LSI の構造は非常に複雑であり、良品と欠陥品のレーザ SQUID 顕微鏡画像を比較することによって、欠陥を検出する方法を採用している。

このように、レーザ SQUID 顕微鏡は、半導体デバイス作製のさまざまな段階で評価に使えることがわかる。半導体デバイスの作製は、シリコンウエハを用意するところから始まり、シリコンウエハに不純物をドーピングして素子を作りこみ、微細加工や配線を行って LSI を作製するという流れがある。この一連の作業の中で、シリコンウエハの検査、pn 接合の検査、LSI の検査と、様々な段階でレーザ SQUID 顕微鏡技術を使うことができる。

多結晶シリコン太陽電池に関しては、Beyer らのグループと大坊らのグループがレーザ SQUID 顕微鏡を用いた評価を検討している。Beyer らは、レーザ照射点から垂直に 2 mm 離れたところで、試料面に水平方向の磁場成分を測定するレーザ SQUID 顕微鏡を開発し、まず、pn 接合のない多結晶シリコン基板を測定した。その結果、レーザ照射点が結晶粒界を横切る前後で信号の正と負のピークが見られた[33]。このピーク間距離は、キャリアの拡散長と関係のある距離だと考えられた。太陽電池の測定では、7 μW のレーザを用いると、太陽電池の広い範囲で 1.4 pT 程度の磁気信号が得られ、結晶粒界で磁気信号強度が低下する様子が観察された[33]。この試料は、受光面にフィンガー電極があったが、別途、受光面

にフィンガー電極のない太陽電池を作製し評価した場合については、フィンガー電極のある試料とは異なり、レーザが結晶粒界を横切る前後で信号の正と負のピークがみられることがわかった。これは、pn 接合のない多結晶シリコン基板と同様な信号であった。この時のレーザ波長とパワーは、それぞれ、680 nm、0.8 mW であり、磁気信号は、–47.5 pT～10 pT 程度が得られている。また、フィンガー電極のある場合と比較して、結晶粒界以外の磁場分布の太陽電池面内の変動も大きく、フィンガー電極のある試料と異なっていた。したがって、フィンガー電極の存在が磁場生成メカニズムを変えている可能性が示唆されるが、これまで納得のできる説明はされていない。しかし、フィンガー電極を途中で切断した場合や、フィンガー電極の一部を裏側の金属層に短絡させた場合にみられる磁場像の変化から、レーザ SQUID 顕微鏡を、フィンガー電極の検査に使えることが示されている。

大坊らも、多結晶シリコン太陽電池をレーザ SQUID 顕微鏡で検査し[34]、磁場分布の緩やかな変動を観測している。大坊らは、この磁場分布の原因について、電流が作る磁場分布が SQUID の位置でキャンセルされてしまうような複雑な電流分布になっているのが一因だと指摘している。このように、多結晶シリコン太陽電池の評価に関しては、まだわかっていないことが多く、レーザ SQUID 顕微鏡を用いた非接触評価のためには、太陽電池における磁場生成のしくみを明らかにしておく必要があると考えられる。

レーザ SQUID 顕微鏡における磁場源は、レーザによって励起された電流である。レーザ SQUID 顕微鏡で得られる磁場像から、レーザ励起電流に関する情報を抽出する研究も行われた。最も簡単な方法としては、電流の円周方向に磁場が生じることを利用し、レーザ照射点直上で、磁場の水平方向成分を測定し、それを、試料の電流に対応させる方法である。例えば、xy平面内に薄い試料があるとし、z方向の電流を無視できる場合、磁場のx方向成分（B_x）を測定することで、電流のy成分（J_y）と対応させるような方法である[35]。垂直磁場（B_z）を測定する場合には、SQUID をレーザ照射軸からずらした 2 か所の位置に配置し（例えば、（$B_z(a,0,d)$と$B_z(0,a,d)$を測定する）レーザ照射点での光励起電流ベクトルを推定する [31]。ただし、これらの手法は、レーザ照射点で直線的な電流のみ存在し、レーザ照射点での電流から生じる磁場が最も強くなるような試料に対してのみ有効である。レーザ照射点以外の箇所でも電流が流れ、その電流によって生じる磁場の方が強くなるような場合には、今述べたような 1 点や 2 点での磁場情報では不十分である。その場合には、レーザ照射点周辺の磁場像を取得する必要がある。

レーザを試料の一点に固定し、SQUID を二次元走査させて磁場分布を得て、さらに、拘束条件を付けたうえで、磁場分布から電流分布を計算することができる[36]。この際に、磁場分布から電流分布を計算する手法としては Roth らの手法が知られている[37]。Roth らは、2 次元平面内で流れる電流に関しては、電流の連続の式を拘束条件として用いることにより、磁場分布から電流分布が一意に求まることを示している。ただし、磁場分布から電流分布を求めることは、逆問題と呼ばれ、得られる解は、拘束条件を満たす場合にのみ正しいものとなる。また、求められる電流像の空間分解能は、磁場測定ノイズに大きく依存し[11]、

十分に SN 比を確保できれば、磁場像の空間分解能よりも、電流像の空間分解能の方が高くなることもある[38]。

1.2　研究目的

これまでに進められてきたレーザ SQUID 顕微鏡開発においては、大気中・室温下の試料を測定できる走査型 SQUID 顕微鏡機能があっても、それらの空間分解能が十分でなかったことや、太陽電池におけるレーザ励起磁場生成機構に不明な点が多いことなどの課題があった。そこで、本研究は大気中・室温下におかれた試料の磁場像を高空間分解能で得られる独自のレーザ SQUID 顕微鏡を開発し、それにより多結晶シリコン太陽電池を非接触に評価することを目的とした。

そのために、ニードルプローブ付走査型 SQUID 顕微鏡を開発し、レーザの交換が可能なレーザ光学系と組み合わせることで、独自のレーザ SQUID 顕微鏡を開発した。さらに、レーザを試料に固定する光学系も別途開発し、得られる磁場像からレーザ励起電流の解析を検討した。また、接触を要する太陽電池の評価手法である LBIC（Laser Beam Induced Current）法との比較検討も行った。

1.3　本論文の構成

本論文の構成を図 1.1 に示す。本論文は、序論から結論まで全 6 章から成る。

第 1 章では、走査型 SQUID 顕微鏡の研究背景とその半導体評価用への展開と課題について述べたのち、本研究における目的を述べ、本論文の構成を示す。

第 2 章では、レーザ SQUID 顕微鏡の測定原理について説明した。最初に、半導体や太陽電池にレーザを照射した際に生じるレーザ励起電流について述べた。また、電流から生じる磁場分布の計算例を示し、SQUID により測定される磁場分布の意味を考察した。次に、SQUID の素子構造およびその磁場測定原理について述べ、最後に、SQUID によって取得された磁場情報から元の電流分布を解析する計算手法についてまとめた。

第 3 章では、レーザ SQUID 顕微鏡の開発についてまとめた。まず、走査型 SQUID 顕微鏡部に関して、SQUID の設計・作製・評価を行い、さらにサンプル走査機構や制御プログラムの開発を行った。レーザ光学系に関しては、レーザ走査法とレーザ固定法の 2 通りのレーザ照射方法で開発を行った。さらに、ロックインアンプを使用して SN 比の改善に取り組んだ。さらに、レーザ SQUID 顕微鏡画像の処理方法についても説明した。

第 4 章では、開発したレーザ SQUID 顕微鏡の基本的な性能評価の結果について述べた。磁化された試料の磁場分布を測定し、走査型 SQUID 顕微鏡としての測定性能の確認を行った。次に、開発したレーザ光学系のレーザ照射性能の確認を行い、レーザ SQUID 顕微鏡の空間分解能の評価を行った。また、各種サンプルを探索的に測定した。

第 5 章では、開発したレーザ SQUID 顕微鏡により多結晶シリコン太陽電池を測定した結果についてまとめた。まず、レーザ走査法における波長依存性について述べた。次に、レーザ強度等、レーザ SQUID 顕微鏡画像に影響を与える計測パラメータを検討した。また、レーザ励起電流の解析を検討した。さらに、レーザ固定法を用いて、サンプルの形状や電極配置などがレーザ励起電流に与える影響について調べた。最後に、レーザ SQUID 顕微鏡による測定結果と、電気的接触を要する LBIC 法による測定結果との比較について述べた。

第 6 章では、本論文で得られた主要な研究成果を総括した。

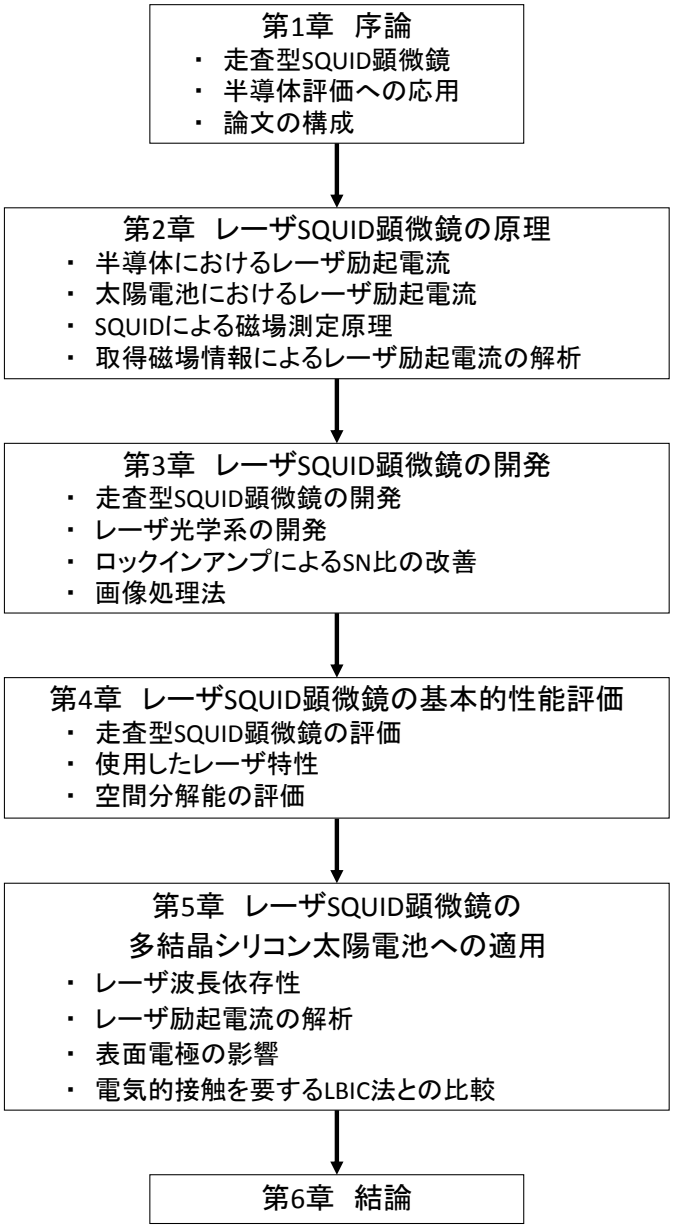


図 1.1　本論文の構成

第2章　レーザ SQUID 顕微鏡の原理

半導体試料にレーザを照射すると、試料内部に電流が流れ、磁場が生じる場合がある。レーザ SQUID 顕微鏡では、このようなレーザ励起磁場を SQUID で検出する。本章では、半導体や太陽電池において、レーザを照射した場合に流れる電流および、電流によって生じる磁場について説明し、さらに SQUID による磁場の測定原理について述べ、最後に磁場情報から元の電流分布を推定する手法について説明する。

2.1　半導体におけるレーザ励起電流

半導体にバンドギャップエネルギー以上のエネルギーを持つ光子を照射すると、半導体の価電子帯にある電子が光子のエネルギーを受け取り、伝導帯に励起される。ここで、光子は、次式のように波長 λ [nm]に反比例したエネルギーを持っている。

$$E\ [\mathrm{eV}] = \frac{1240}{\lambda\ [\mathrm{nm}]} \tag{2.1}$$

一方で、半導体の代表例であるシリコンのバンドギャップは、以下の式に示すように温度 $T[K]$の関数となっている[39]。

$$E_g(T) = 1.170 - \frac{4.73 \times 10^{-4} T^2}{T + 636}\ [\mathrm{eV}] \tag{2.2}$$

この式から、室温（T=300K）におけるシリコンのバンドギャップは、1.12 eV であることがわかる。このエネルギーに相当する光子の波長は、式(2.1)より、1100 nm である。波長の短い方が光子のエネルギーが高くなるので、シリコンに対しては、1100 nm 以下の波長のレーザを照射すれば、帯間遷移により、電子を励起させることができるようになるが、シリコンは間接遷移半導体であり、バンドギャップ付近のエネルギーを持つ光子で電子を励起する場合には、フォノンも同時に吸収されなければならない。この吸収が生じる確率は低く、バンドギャップ付近のエネルギーを持つ波長のシリコンに対する吸収率は低い。

シリコンの吸収係数の波長依存性は、W. C. Dash ら[40]と G. G. Macfarlane ら[41]によって、独立に調べられており、彼らの結果を図 2.1 と図 2.2 にそれぞれ示す。図 2.1 と図 2.2 から、吸収係数 α を読み取ることができる。吸収係数とは、以下の式のように、物体中を伝搬する光の相対減衰率のことであり、物体の表面に光強度I_0で入射した光は、物質中を伝搬するにしたがって、指数関数的に減衰する。

$$I(x) = I_0 \exp(-\alpha x) \tag{2.3}$$

ここで、光の強度が$1/e$に減衰する距離を光の侵入深さと呼び、吸収係数の逆数（$1/\alpha$）で表される。シリコンに対する侵入深さの波長依存性を表 2.1 にまとめた。波長を短くするほど侵入深さが浅くなり、表面近くで光子が吸収されてしまうことがわかる。

次に、半導体の端部にバンドギャップ以上のエネルギーを持つ光子が定常的に照射されている場合を考える。簡単のため、図 2.3 のような 1 次元モデルを考える。均一な不純物半導体の端に光が照射され、定常状態に達している場合を考える。熱平衡状態に比べて過剰に生成される電子と正孔に対する連続の方程式は次のようになる。

$$\frac{1}{q}\frac{\partial J_n}{\partial x} + G - \frac{\Delta n}{\tau_n} = 0 \tag{2.4}$$

$$\frac{1}{q}\frac{\partial J_p}{\partial x} + G - \frac{\Delta p}{\tau_p} = 0 \tag{2.5}$$

Δnは p 型半導体中の過剰電子密度、Δpは n 型半導体中の過剰正孔密度である。Gはキャリア生成確率、τはキャリア寿命、qは電荷素量である。

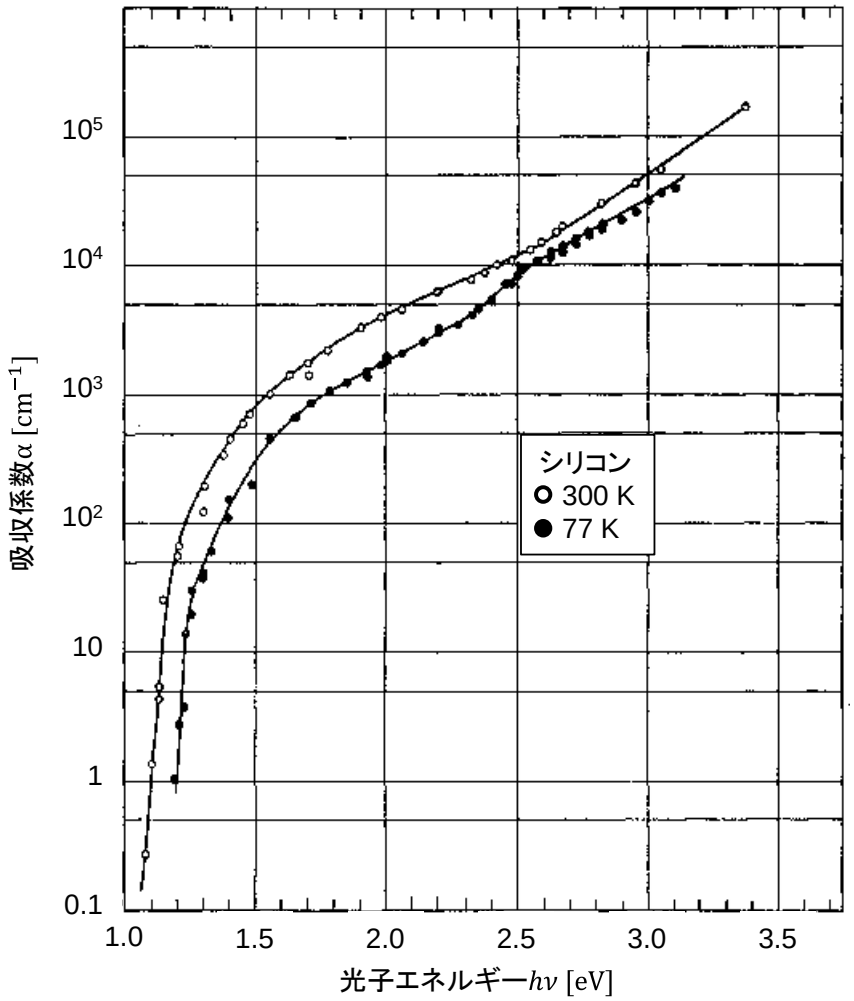


図 2.1　シリコンの吸収係数の光子エネルギー依存性[40]

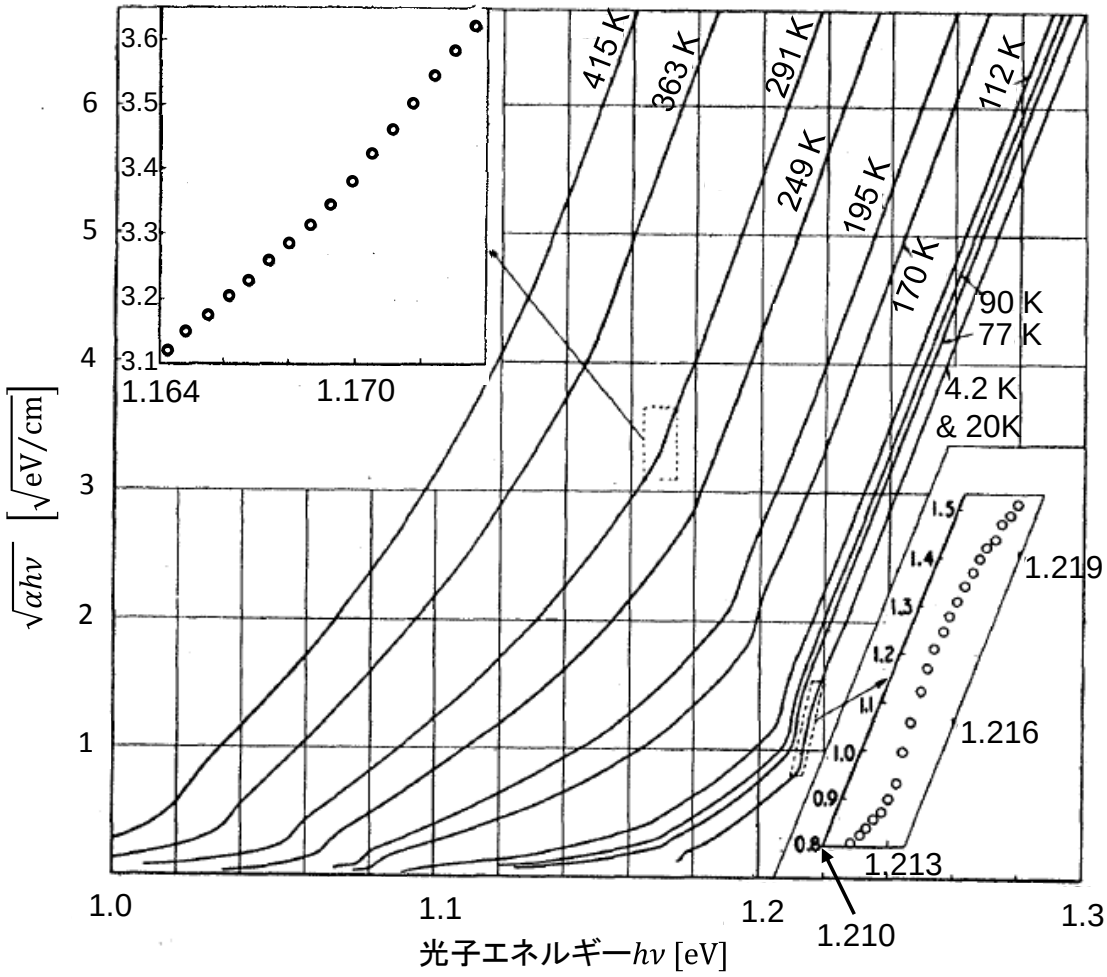


図 2.2　吸収端付近のシリコンの吸収係数の光子エネルギー依存性[41]

表 2.1　室温での侵入深さの波長依存性

波長λ [nm]	シリコンに対する侵入深さ$1/\alpha$ [μm]	
405	0.16	(300K)
780	8	(300K)
1065	1.2×10^{3}	(291K)

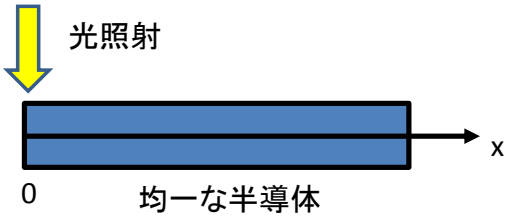


図 2.3　均一な半導体の端に光が照射されている 1 次元モデル

p 型半導体における電子電流を考える。均一な半導体で内部電界がない場合は、電流については拡散電流のみを考えればよく、

$$J_n = J_{n(diff)} = qD_n \frac{d\Delta n}{dx} \tag{2.6}$$

となる。ここで、D_nは、電子の拡散係数である。さらに、$x = 0$の地点にのみ光が照射されて、電子 - 正孔対が生成されており、$x > 0$ の部分では電子 - 正孔対が生成していないとすると、式は次のようになる。

$$qD_n \frac{d^2\Delta n}{dx^2} = q\frac{\Delta n}{\tau_n} \tag{2.7}$$

境界条件として、$x = 0$において$\Delta n = \Delta n(0)$、$x = \infty$において$\Delta n = 0$を与えると、式(2.7)の解は次のように与えられる。

$$\begin{aligned} \Delta n(x) &= \Delta n(0) \exp\left(-\frac{x}{\sqrt{D_n \tau_n}}\right) \\ &= \Delta n(0) \exp\left(-\frac{x}{L_n}\right) \end{aligned} \tag{2.8}$$

ここで、$L_n = \sqrt{D_n \tau_n}$とした。この距離は、過剰の電子が再結合するまでに拡散によって移動する平均距離である。式(2.8)を式(2.6)に代入すると、

$$J_n(x) = \frac{qD_n}{L_n} \Delta n(0) \exp\left(-\frac{x}{L_n}\right) \tag{2.9}$$

となる。過剰の電子による電流は、拡散距離程度まで流れることがわかる。n 型半導体における過剰の正孔による電流も同様にして、以下のようになる。

$$J_p(x) = \frac{qD_p}{L_p} \Delta p(0) \exp\left(-\frac{x}{L_p}\right) \tag{2.10}$$

これまでの議論では、少数キャリアの挙動について考えてきた。そして、少数キャリアによる電流は、拡散距離程度で減衰することがわかった。しかし、正味の電流は、少数キャリアの電流と多数キャリアによる電流の和である。多数キャリアは、少数キャリアの分布によって生じる電荷分布の偏りを中和するように素早く配置される[39]。そのため、定常状態では多数キャリアの電流は、少数キャリアの電流のちょうど逆向きになる。したがって、均一な半導体においては、レーザを照射しても、電子電流と正孔電流が完全に打ち消しあうために、正味の電流は生じない。

次に、不均一な半導体の例として、図 2.4 に示すような pn 接合のある半導体を考える。この接合の一部に光を照射する場合に流れる電流を考えるが、この問題は二次元的に考える必要があり、より詳しい定量的解析には個々のケースに対応した数値計算が必要である。ここでは、定性的な説明を行う。図 2.4 を図 2.5 のような等価回路に置き換えて考える。光の照射されている部分を電流源とダイオードに置き換え、それ以外の pn 接合を 1 つのダイオードで代表させ、接続抵抗を直列に加えた回路とした。

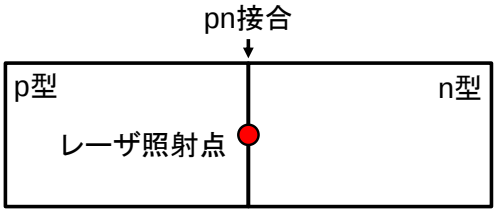


図 2.4　局所的にレーザを照射された pn 接合

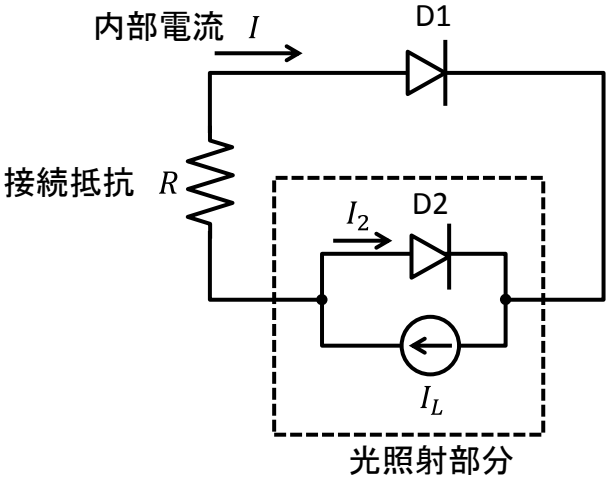


図 2.5　局所的にレーザを照射された pn 接合の等価回路

このような等価回路を考えることで、現象が理解しやすくなる。この回路は試料内部の閉じた回路となっていて、外に電流は流れないが、磁場は試料内部の閉回路に電流が流れると生じる。この試料内部の電流について考える。まず、pn 接合の理想的な電流 - 電圧特性は次式で与えられる[42]。

$$I = SJ_s\left(\exp\left(\frac{qV}{kT}\right) - 1\right) \tag{2.11}$$

$$J_s \equiv \frac{qD_p p_{n0}}{L_p} + \frac{qD_n n_{p0}}{L_n} \tag{2.12}$$

ここで、Sは pn 接合の面積、J_sは飽和電流密度、Vは pn 接合の両端にかかる電圧、kはボルツマン定数である。D1 と D2 は、pn 接合の面積のみ異なり、他のパラメータは同じだとする。D2 の pn 接合の面積を Sとし、D1 の pn 接合の面積をaS とする。また、$I_s = SJ_s$とすると、D1 と D2 に流れる電流IとI_2は次式のようになる。

$$I = aI_s\left(\exp\left(\frac{q(V - RI)}{kT}\right) - 1\right) \tag{2.13}$$

$$I_2 = I_s\left(\exp\left(\frac{qV}{kT}\right) - 1\right) \tag{2.14}$$

光照射部分から流れ出す電流Iは、図 2.5 のように、光電流I_Lとダイオード D2 に流れる電流の差となる。従って光照射部分の電流 - 電圧特性は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} I &= I_L - I_2 \\ &= I_L - I_s\left(\exp\left(\frac{qV}{kT}\right) - 1\right) \end{aligned} \tag{2.15}$$

式(2.13)と式(2.15)からVを消して、IとI_Lのみの式にすると、次式のようになる。

$$I_L = \frac{I + aI_s}{a}\exp\left(\frac{q(RI)}{kT}\right) + I - I_s \tag{2.16}$$

ここで、$I_s = 10^{-9}$ A、$R = 0.1\ \Omega$、$a = 10000$ とし、横軸を光電流I_L、縦軸を内部電流Iにすると、図 2.6 のようになる。点線は、内部電流が光電流と一致する場合を表す。このグラフから、光電流が十分に弱い場合には、光電流と内部電流がほぼ一致することがわかる。しかし、光電流が強くなるとこの比例関係からずれていく傾向があることがわかる。光電流は光強度と比例関係にあるので、このグラフの横軸を、光強度に置き換えることもできる。そうすると、光強度が弱い場合には、光強度と回路に流れる電流は比例関係にあることがわかる。

ここでは、簡単のため、pn 接合の場合を考えたが、不純物濃度の微妙な差によっても内部電界は生じる。その場合にも今回の考え方を適用でき、内部電流の存在が考えられる。LSI の場合には、デバイスとして作りこまれた pn 接合が必ず存在する。その pn 接合にレーザが照射されたときに、(2.15)で表される電流が生じる。この電流は、LSI 中の表面の金属配線を含む回路で流れるか、もしくは素子内部で流れる場合もあると考えられる。

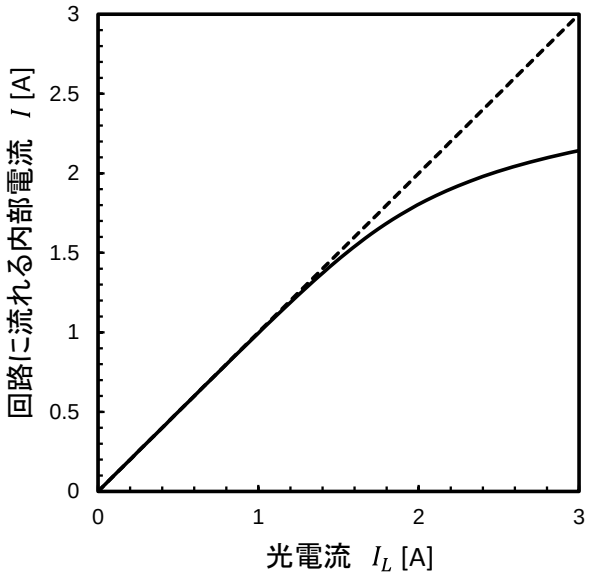


図 2.6　局所的にレーザを照射された pn 接合の等価回路に流れる電流の光電流依存性

2.2　太陽電池におけるレーザ励起電流

過去のレーザ SQUID 顕微鏡の研究[33-35, 43-45] において、開放状態の太陽電池における閉回路電流について検討されていなかったが、ここでは、2.1 章での議論を拡張させることで検討してみた。図 2.7 のように、p 型シリコン基板の表面に n 層があり、その上に前面櫛形電極が形成されている多結晶シリコン太陽電池におけるレーザ励起電流を考える。単純な pn 接合にレーザを当てた場合については、2.1 章で検討したが、多結晶シリコン太陽電池の場合には、内部の結晶粒界での再結合の影響も考慮する必要がある。また、n 層の表面には導電率の違う櫛形電極が局所的に形成されているため、櫛形電極の影響も加味する必要がある。

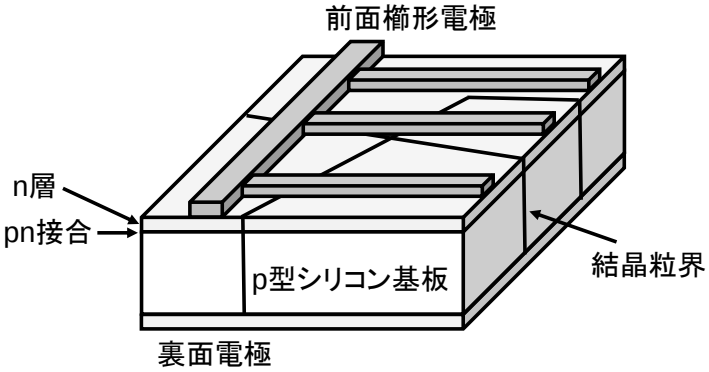


図 2.7　多結晶シリコン太陽電池の構造模式図

太陽電池に、バンドギャップ以上のエネルギーを持つ光子を照射すると、式(2.3)に従って、太陽電池内部に侵入するにしたがって光強度が減衰する。典型的な太陽電池では、数 100 μm の厚さの p 型シリコン基板の表面に 1 μm 以下の n 型層が形成されている。したがって、表 2.1 に示したように、シリコンに対する侵入深さが 0.16 μm となる 405 nm の波長のレーザを照射すると、光子は n 型層内で吸収されることになるが、侵入深さが 1.2 mm の 1065 nm のレーザを照射すると、n 型層ではほとんど吸収されずに、p 型基板中での吸収が支配的となる。光子が太陽電池に吸収され、電子 - 正孔対が生成されると、式(2.9)、式(2.10)に示したように、拡散距離程度まで拡散し再結合して消滅する。ただし、拡散距離以内に pn 接合の空乏層があると、電子 - 正孔対が分離され、pn 接合を横切る方向に電流が流れる。p 層側には正孔が、n 層側には電子が蓄積され、pn 接合による内部電界を減じるような電界が加わる。

太陽電池の場合にも、実際のデバイス構造やパラメータに合わせた数値計算が望ましいが、ここでは、現象の概念的理解のために、開放状態にある太陽電池を図 2.8 のように内部で閉回路を形成している簡単な等価回路に置き換えて考える。レーザを太陽電池の一部に照射した場合に、光子が照射されている部分には、電流源とダイオードが存在し、それ以

外の pn 接合の部分には、ダイオードのみ存在するとする。光照射部分からそれ以外のダイオードまでの経路は二通り考えられ、一つは、前面櫛形電極を通らず、太陽電池の n 層を通る場合、もう一つは、前面櫛形電極を通る場合である。それぞれの接続抵抗をbR、Rとする。

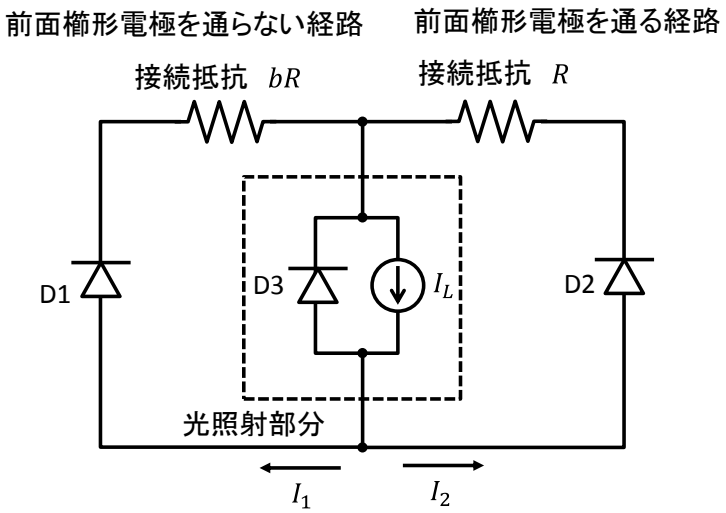


図 2.8　一部に光子を照射された太陽電池の等価回路

この回路を LTSpice (Linear Technology Corporation) によってシミュレーションした。その際のパラメータとして、$R = 0.1\,\Omega$、$b = 100$とし、I_1とI_2の光電流I_Lに対する依存性のグラフを図 2.9 に示す。このように、太陽電池における正味の電流のうち、n 層における電子電流は、主に前面櫛形電極を通る経路をとることがわかる。

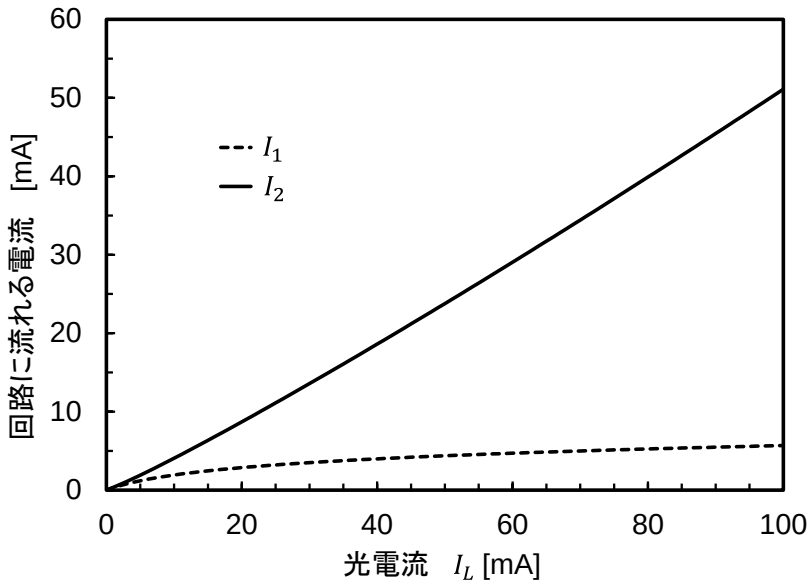


図 2.9　一部に光子を照射された太陽電池に流れる電流の光電流依存性

2.3　電流による磁場導出（順方向問題）

これまで、半導体試料におけるレーザ励起電流について考察してきた。ここでは、任意の電流分布から磁場分布を求める方法について述べる。微小な電流素片から生じる任意の位置での磁場分布は、ビオ・サバールの法則により与えられる。これを、電流経路で積分することにより、任意の電流分布$\mathbf{J}(\mathbf{r})$により生じる磁場分布$\mathbf{B}(\mathbf{r})$を一意に求めることができ、次式のように表される。

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}) = \frac{\mu_0}{4\pi}\int \frac{\mathbf{J}(\mathbf{r}') \times (\mathbf{r}-\mathbf{r}')}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|^3} d^3\mathbf{r}' \tag{2.17}$$

μ_0は真空の透磁率である。ここで、

$$\mathbf{G}(\mathbf{r}-\mathbf{r}') = \frac{\mu_0}{4\pi}\frac{(\mathbf{r}-\mathbf{r}')}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|^3} \tag{2.18}$$

とすると、式(2.17)は次のように$\mathbf{J}(\mathbf{r})$と$\mathbf{G}(\mathbf{r})$の畳み込み積分の形で表すことができる。

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}) = \int \mathbf{J}(\mathbf{r}') \times \mathbf{G}(\mathbf{r}-\mathbf{r}') d^3\mathbf{r}' \tag{2.19}$$

畳み込み積分をフーリエ変換すると次式のように、単純な積の形で書くことができ、計算上便利である。

$$\mathbf{b}(\mathbf{k}) = \mathbf{j}(\mathbf{k}) \cdot \mathbf{g}(\mathbf{k}) \tag{2.20}$$

ここまでは、一般的な形で数式を見てきたが、本研究では、電流平面からdだけ離れた平面で、磁場のz成分を測定しているので、式(2.17)を磁場のz成分についてのみ記述してみると、次のように、J_xとJ_yに依存し、J_zに依存しない式となる。

$$B_z(x,y,z) = \frac{\mu_0}{4\pi}\iiint \frac{(y-y')\cdot J_x(x',y',z') - (x-x')\cdot J_y(x',y',z')}{\{(x-x')^2+(y-y')^2+(z-z')^2\}^{3/2}} dx'dy'dz' \tag{2.21}$$

ここで、試料は$z'=0$のにあり、$z=d$の平面における磁場を考える。さらに、J_xとJ_yの厚さ方向（z 方向）に関しては$z'=0$面において、平均値で代表させることにし、z方向の依存性はないものとする。そうすると、zに依存しない次式のような形に書ける。ここで、試料の厚さをtと置いた。

$$B_z(x,y,d) = \frac{\mu_0 t}{4\pi}\iint \frac{(y-y')\cdot J_x(x',y') - (x-x')\cdot J_y(x',y')}{\{(x-x')^2+(y-y')^2+d^2\}^{3/2}} dx'dy' \tag{2.22}$$

ここで、次のような関数を定義する。

$$G_x(x-x',y-y',d) = \frac{(x-x')}{\{(x-x')^2+(y-y')^2+d^2\}^{3/2}} \tag{2.23}$$

$$G_y(x-x',y-y',d) = \frac{(y-y')}{\{(x-x')^2+(y-y')^2+d^2\}^{3/2}} \tag{2.24}$$

これらを、式(2.22)に代入すると、

$$B_z(x,y,d) = (G_y * J_x) - (G_x * J_y) \tag{2.25}$$

となり、$B_z(x,y,z)$は、二つの畳み込み積分の重ねあわせとなっていることがわかる。ここで、$G_x(x,y,d)$や$G_y(x,y,d)$の分布を確認しておく。$d = 0.002$ [m]とすると、この関数は、図 2.10 のように、原点を中心に、正と負のピークのある分布をもっている。

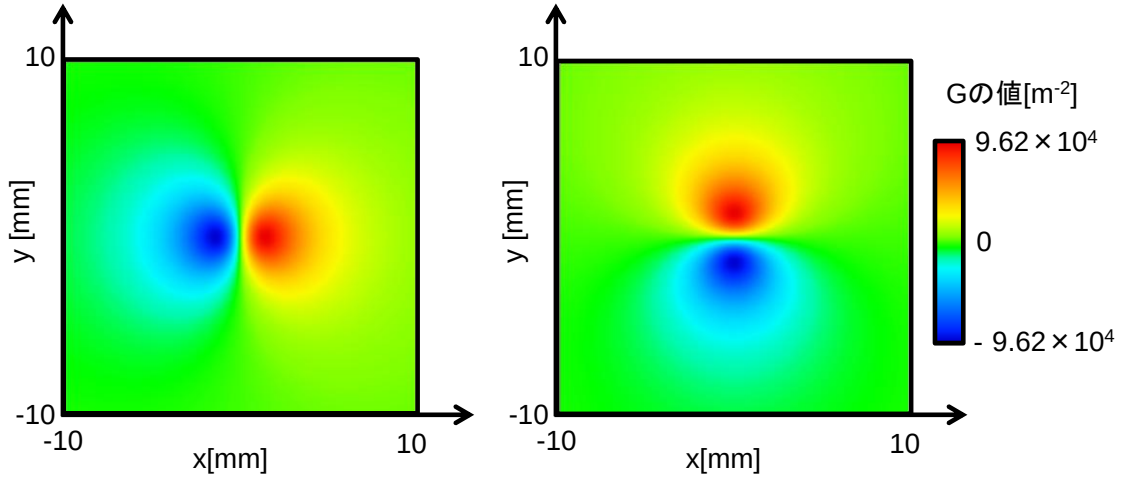


図 2.10　典型的なG_x（左図）とG_y（右図）の分布図（d＝2 mm）

式(2.25)をフーリエ変換すると、次式のように、それぞれのフーリエ変換の掛け算の差となる。

$$b_z(k_x,k_y,z) = g_y(k_x,k_y,z)\cdot j_x(k_x,k_y,0) - g_x(k_x,k_y,z)\cdot j_y(k_x,k_y,0) \tag{2.26}$$

このように、フーリエ変換を行うことで、計算を簡単に行うことができる。任意の電流分布から磁場分布を得るには、電流データを二次元フーリエ変換し、周波数領域で式(2.26)を用いて、磁場スペクトル$b_z(k_x,k_y,z)$を計算し、これを逆二次元 FFT することで、$B_z(x,y,d)$を得ることができる。例として、ある一点から扇形状に電流が流れ出す図 2.11 のような電流分布を考える。扇形の角度を 0°から 360°まで 45°刻みで変化させている。このときの磁場分布は、これまで述べてきた方法で求めると、図 2.12 のようになる。ここで、扇の角度が 180°以下場合の磁場分布と、欠けた部分の角度が 180°以下になるときの磁場分布が似ていることがわかる。よく見比べてみると、180°以上の扇形の場合は、欠けたところに逆向きの電流が流れている磁場分布と同じであることがわかる。また、360°のときは、全方向に電流が流れていくにもかかわらず、磁場は観察されないことがわかる。このように、電流の分布の仕方によっては、磁場が打ち消されてしまうため、磁場情報から元の電流分布を得ることはできない。

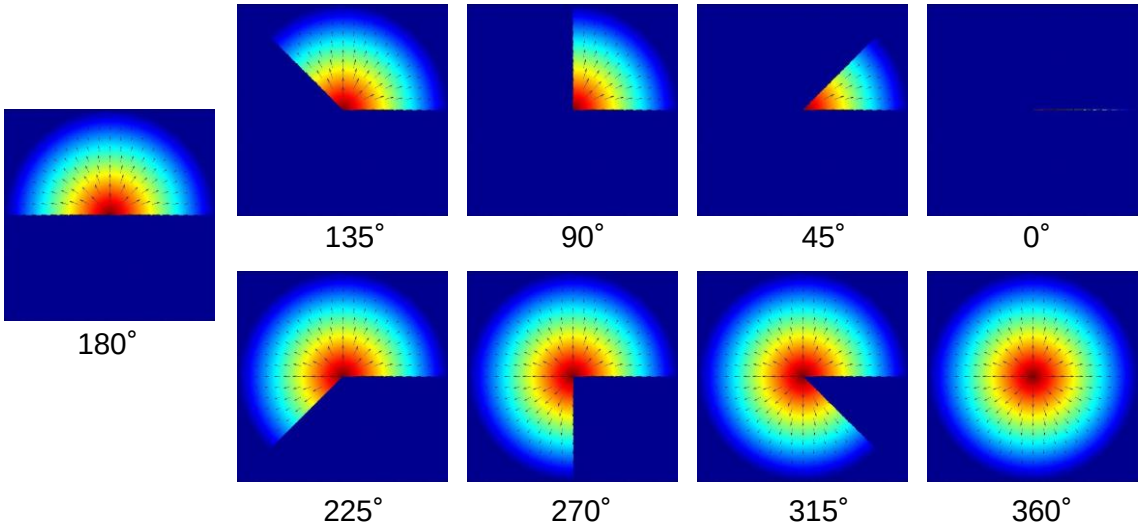


図 2.11　扇形電流による磁場分布

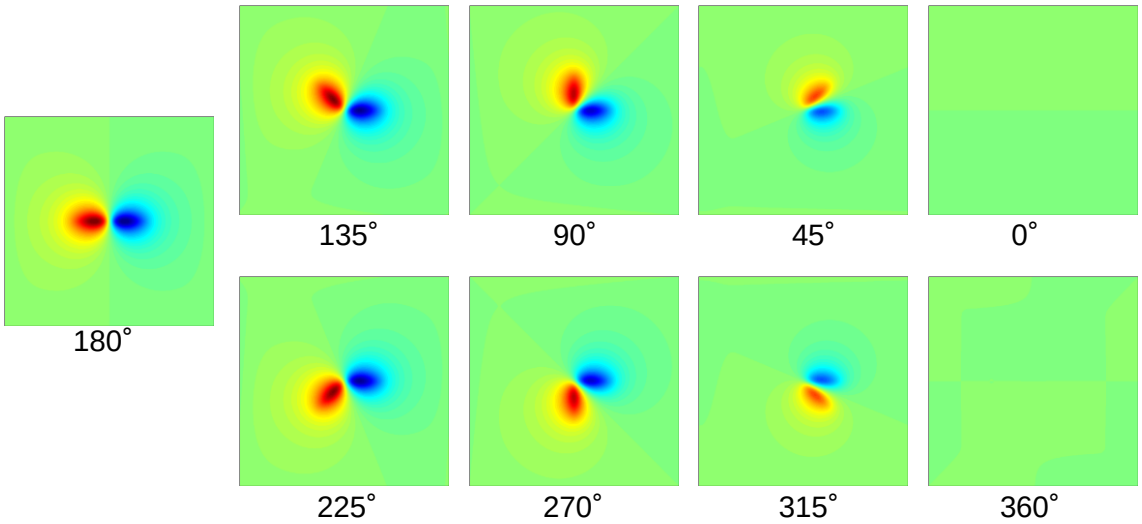


図 2.12　扇形電流による磁場分布

2.4　SQUID による磁場測定原理

SQUID は、超伝導特有の現象である磁束量子化とジョセフソン効果を応用した磁気センサである。以下に SQUID の原理について簡単に述べる。SQUID は図 2.13 に示すように、超伝導リングに 1 つまたは 2 つのジョセフソン接合が入る構造になっている。それぞれの駆動原理から、接合が 1 つのものは RF-SQUID（Radio Frequency-SQUID）、接合が 2 つあるものは DC-SQUID（Direct Current-SQUID）と呼ばれている。本研究では、DC-SQUID を用いている。この DC-SQUID の電気的な特性を図 2.14 に示す。DC-SQUID に接合をま

たぐような電流を印加していくと、接合部分で超伝導が壊れ電圧が生じる。SQUID の臨界電流値は、外部印加磁束によって周期的に変調される。ここで、一定のバイアス電流を SQUID に印加している場合に、電圧の変化を外部印加磁束に対してプロットしたものを図 2.14(b)に示す。バイアス電流を印加することで、SQUID の電圧が外部印加磁束に対し、周期的に変動する。この周期の間隔は、磁束量子Φ_0（2.068×10^{-15} Wb）となっているため、SQUID を用いて高感度な磁場計測が可能となる。しかし、磁場計測のためには、磁場に対して線形な出力を得る必要がある。そのために用いられるのが、図 2.15 に示すような FLL（Flux Locked Loop）回路である。この回路は、SQUID に印加される磁束を一定に保つため、SQUID の電圧の変化を積分し、フィードバックコイルに電流を流している。このようにすることで、SQUID に印加される磁束を負帰還し、SQUID に印加される磁束を一定に保っている。したがって、外部印加磁束は、フィードバックコイルに流れる電流値と線形な関係になっているので、フィードバック抵抗で生じる電圧を測定することで、磁場に対し線形な出力が得られる。

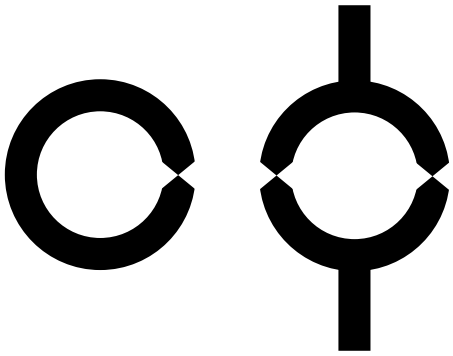


図 2.13　SQUID の構造

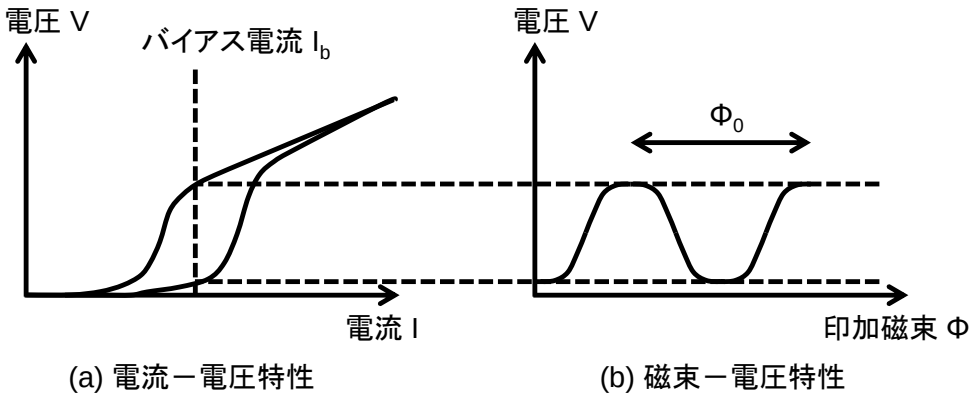


図 2.14　DC-SQUID の電気的特性

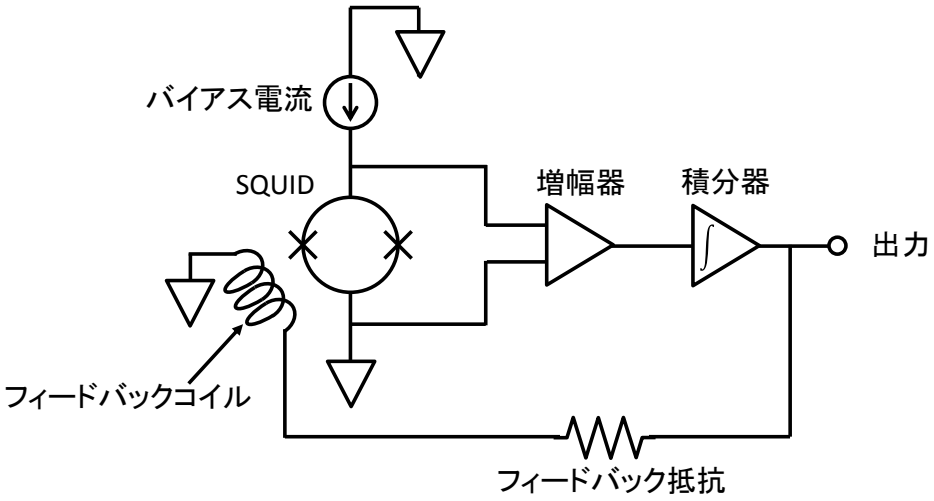


図 2.15　FLL 回路

2.5　取得磁場情報によるレーザ励起電流の解析

走査型 SQUID 顕微鏡によって得られた磁場像から、磁場の発生源となっている電流分布を得る方法について説明する。電流分布から磁場分布を得る方法については、2.3 章で述べたが、これは順方向問題であり、一意に解くことができる。しかし、磁場分布から電流分布を求めるのは、逆問題の一種であり、一意に解くことはできない。しかし、一般に逆問題は、拘束条件を加えることで近似的に解くことができる。本研究では、図 2.16 に示すように、薄い試料の試料面から、dだけ離れた水平面において、磁場の垂直成分の分布を得ている。つまり、垂直磁場成分のみの測定から、試料内に流れる電流を求めることになる。このような、2 次元磁場像から 2 次元電流像を得る手法は、Roth らが開発している[37]。

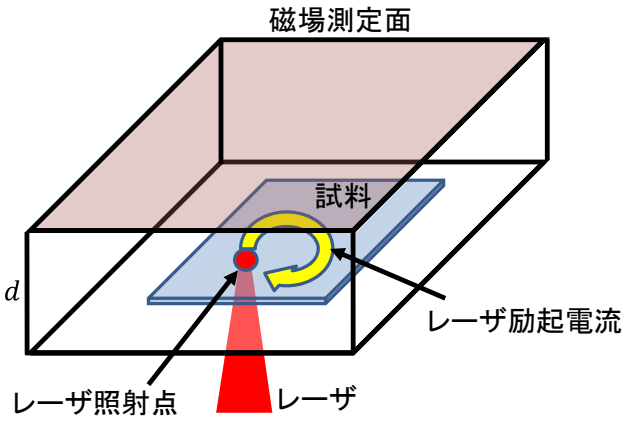


図 2.16　電流の存在する試料平面と磁場測定平面

磁場分布と電流分布に関する式は、式(2.26)で与えられる。しかし、与えられたb_zからは、j_xとj_yの関係のみ得られるだけでj_xとj_yを一意に解くことはできない。これを一意に解くために、拘束条件を与える。今、考えている系は、定常状態であり、電流も定常的に流れているものとする。したがって、電流の発散や消滅はないと考えると、次式が成り立つ。

$$\boldsymbol{\nabla} \cdot \boldsymbol{J} = 0 \tag{2.27}$$

ここで、$J_z = 0$とすると、

$$\frac{\partial J_x}{\partial x} + \frac{\partial J_y}{\partial y} = 0 \tag{2.28}$$

となる。これをフーリエ変換すると

$$-ik_x j_x(k_x, k_y) - ik_y j_y(k_x, k_y) = 0 \tag{2.29}$$

が得られる。式(2.26)と式(2.29)の連立方程式を解くことで、次式のようにb_zからj_xとj_yを一意に求めることができる。

$$j_x(k_x, k_y, z) = \frac{k_y}{k_y g_x(k_x, k_y, z) - k_x g_y(k_x, k_y, z)} b_z(k_x, k_y, z) \tag{2.30}$$

$$j_y(k_x, k_y, z) = \frac{k_x}{k_y g_x(k_x, k_y, z) - k_x g_y(k_x, k_y, z)} b_z(k_x, k_y, z) \tag{2.31}$$

最後に、j_xとj_yを逆 2 次元フーリエ変換することで、実空間の$J_x(x, y, 0)$と$J_y(x, y, 0)$を得ることができる。実際の計算手順は図 2.17 のようになる。まず、試料面から$z = d$だけ離れた平面において$B_z(x, y, d)$像を取得する。これを 2 次元 FFT し、スペクトル領域にて電流スペクトルを計算する。ただし、測定磁場像にはノイズが含まれているが、逆畳み込みの計算はハイパスフィルタに相当して、ノイズ成分を強調してしまうため、電流スペクトルがノイズに埋もれてしまう。そのため、ノイズを含む場合には、ローパスフィルタを通し、有意な電流スペクトルを得ることにした。これを逆 2 次元 FFT することで、電流像が得られる。

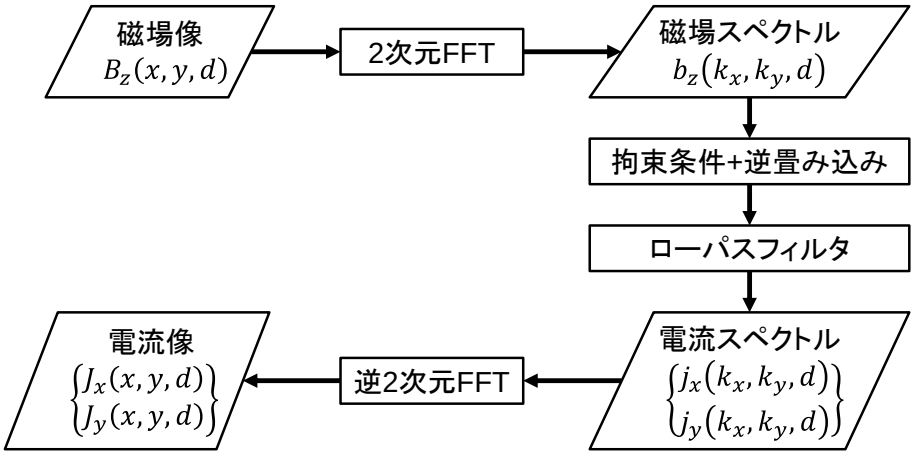


図 2.17　磁場像を電流像へ計算する手順

このアルゴリズムに従って、MATLAB を用いて磁場像 - 電流像変換プログラムを作成した。そのコードをリスト 2.1 に示す。ここで、A という変数に二次元磁場データが入っており、処理された電流像データは、C に出力されるようになっている。磁場像から電流像を求める際に重要となるのが、ローパスフィルタのカットオフ周波数の決定である。このプログラムでは kmax という変数で与えている。磁場像から電流像を求める際には、この kmax を調節し、有意な電流像が得られるようにしている。

なお、ノイズの含まれる磁場像から電流像を計算した場合、電流像の空間分解能は、磁場像に含まれるノイズと関係することが Chatraphorn らによって示されているので[11]、電流像の空間分解能を高くするためには、磁場像の SN 比を上げる工夫が必要である。

作成したプログラムの動作を確認するため、図 2.18(a)に示すような円電流を仮定し、式(2.26)を使って、図 2.18(b)に示す磁場像を計算により求めた。この磁場像は、順方向問題を解くことで得られた磁場像であり、ノイズが含まれないため、電流像を求める際に上述のローパスフィルタは不要である。拘束条件を満たし、ノイズのない場合については、元の電流分布を正確に求められるはずである。図 2.19 に図 2.18(b)の磁場像から求めた電流像を示す。図 2.18(a)の元の電流分布と一致している。

この計算の誤差を評価するために、次式で表される MSD（Mean-Square-Deviation）[37]を用いた。

$$\mathrm{MSD} = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}\left|\boldsymbol{J}(x,y) - \boldsymbol{J}_{\boldsymbol{image}}(x,y)\right|^2 dxdy}{\int_{-\infty}^{+\infty}\int_{-\infty}^{+\infty}|\boldsymbol{J}(x,y)|^2 dxdy} \tag{2.32}$$

MSDとは、元の電流像$\boldsymbol{J}(x,y)$と、磁場像から求めた電流像$\boldsymbol{J}_{\boldsymbol{image}}(x,y)$のピクセルごとの差の二乗和を元の電流像の二乗和で規格化したものである。$\boldsymbol{J}(x,y) = \boldsymbol{J}_{\boldsymbol{image}}(x,y)$ならば、$\mathrm{MSD} = 0$となり、誤差があるほど、MSDは大きくなる。例えば、$\boldsymbol{J}_{\boldsymbol{image}}(x,y) = 0$ならば、$\mathrm{MSD} = 1$となる。今回の場合は、$\mathrm{MSD} = 8 \times 10^{-12}$となり、プログラムの有効性を確認することができた。

```
t=1e-6; d=2e-3; dx=50e-6; dy=50e-6; kmax=0.05/2/dx;
su01=size(A,2); su02=size(A,1); su03=2^ceil(log2(su01)); su04=2^ceil(log2(su02));
B=zeros(su04,su03); B(1:su02,1:su01)=A;
su0=4*pi()*10^-7;   su1=size(B,2); su2=size(B,1);
su3=-su1/2*dx:dx:(su1/2-1)*dx;   su4=-su2/2*dy:dy:(su2/2-1)*dy;
su3=ones(su2,1)*su3;   su4=su4'*ones(1,su1);
su5=su4./(su3.^2+su4.^2+d^2).^1.5;     su6=-su3./(su3.^2+su4.^2+d^2).^1.5;
su5=fft2(su5);   su6=fft2(su6);   clear su3 su4;
su7=fft2(B);   su8=1/su1/dx;   su9=1/su2/dy;
su8=[0:su8:(su1/2)*su8,(su1/2-1)*(-su8):su8:-su8];
su9=[0:su9:(su2/2)*su9,(su2/2-1)*(-su9):su9:-su9];
su8=ones(su2,1)*su8;       su9=su9'*ones(1,su1);
Cx=4*pi()/(su0*t)*(su9.*su7)./(su9.*su5-su8.*su6);       Cx(1,1)=0;
Cy=-4*pi()/(su0*t)*(su8.*su7)./(su9.*su5-su8.*su6);     Cy(1,1)=0;
clear su7 su5 su6;
su10=(su8.^2+su9.^2).^0.5;
su11=sign(fix(kmax./su10));   su12=kmax*(ones(su2,su1)-su11);
su11=su11.*su10+su12;
clear su10 su12 su8 su9;
su13=0.5+0.5*cos(pi*su11./kmax);
Cx=su13.*Cx;   Cy=su13.*Cy;
clear su13 su11;
Cx=real(ifft2(Cx))/dx/dy;     Cy=real(ifft2(Cy))/dx/dy;
Cx=[Cx(su2/2+1:end,su1/2+1:end) Cx(su2/2+1:end,1:su1/2); Cx(1:su2/2,su1/2+1:end) →
Cx(1:su2/2,1:su1/2)];
Cy=[Cy(su2/2+1:end,su1/2+1:end) Cy(su2/2+1:end,1:su1/2); Cy(1:su2/2,su1/2+1:end) →
Cy(1:su2/2,1:su1/2)];
Cx=Cx(1:su02, 1:su01);   Cy=Cy(1:su02,1:su01);
clear a b su01 su02;
```

リスト 2.1　MATLAB を用いた磁場像 - 電流像変換プログラム

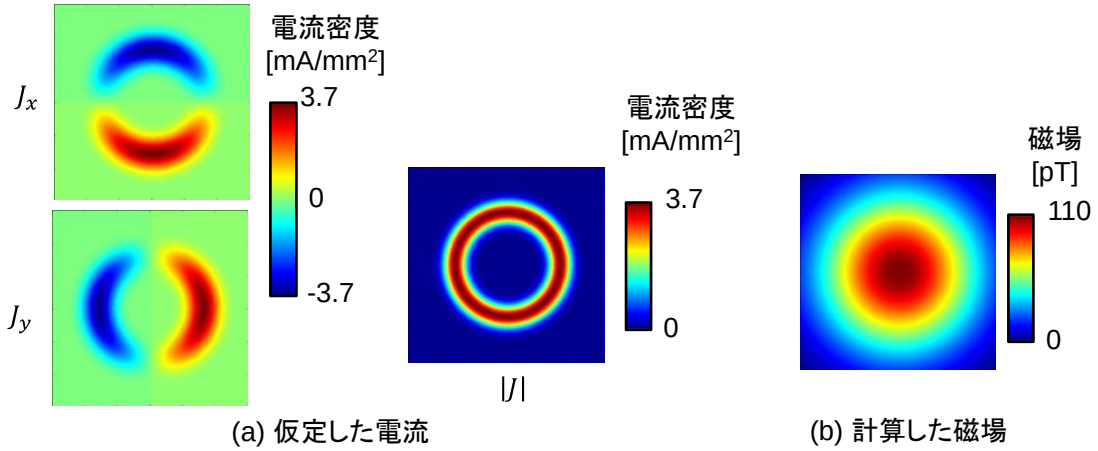


図 2.18　仮定した電流分布と求めた磁場像

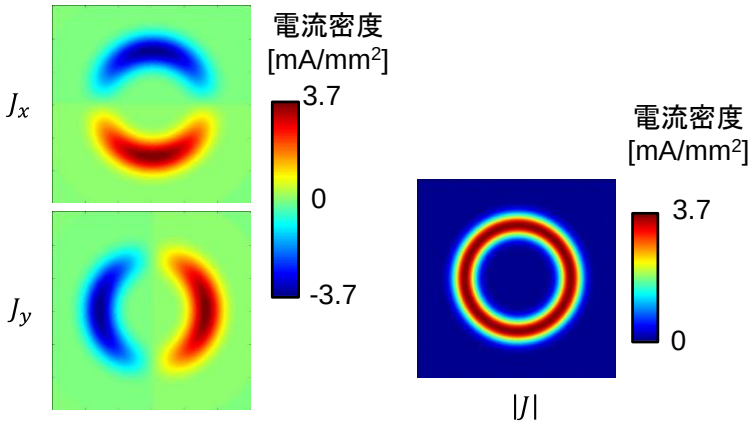


図 2.19　磁場像から求められた電流像

2.6　まとめ

本章では、半導体試料にレーザを局所的に照射した場合に試料内部で流れる電流について考察を行った。等価回路に置き換えて考察した結果、pn 接合など内部電界のある不均一な半導体試料においては、内部で閉回路電流が流れることを説明した。太陽電池においては、受光面側の電子電流が抵抗の低い前面櫛形電極を通る経路を取ることについて等価回路をシミュレーションすることで説明した。

また、任意の電流分布から磁場分布を得る方法について述べ、その例として扇形に発散する電流の磁場を計算した。扇の角度が 180°以上の場合の磁場分布は、扇の欠けたところに逆向きの電流が流れている場合の磁場分布と同じなった。この場合のように、磁場分布から電流分布を正確に求められない場合もあることを示した。さらに、SQUID による磁場測定原理について簡単に述べたのち、ノイズの含まれる磁場像から、電流分布を推定する方法について述べた。

第3章　レーザ SQUID 顕微鏡の開発

本研究では、大気中、室温下にある試料に対し高分解能で磁場分布を得るため、ニードルプローブ付走査型 SQUID 顕微鏡を開発した。さらに、レーザ照射装置を付加することで、レーザ SQUID 顕微鏡を開発した。レーザ照射光学系に関しては、従来から用いられてきたレーザ走査法と新たにレーザ固定法の二種類の系の開発を行った。レーザ固定法は、レーザ走査法で得られる磁気画像の意味を明らかにするうえで必要な手法である。ここでは、開発したレーザ SQUID 顕微鏡について説明したのち、SN 比改善のためにロックインアンプを使用することを検討し、最後に、測定から得られた画像の処理方法について述べる。

3.1　装置構成

第 2 章では、外部回路と接続されていない開放状態の半導体試料に局所的に光子を照射したときに、pn 接合などの内部電界が存在すれば、試料内部で閉じた電流が流れることを示した。レーザ SQUID 顕微鏡では、この電流によって生じる磁場を測定することになる。最初に開発されたレーザ SQUID 顕微鏡は、レーザ照射点と SQUID の位置関係を固定し、試料のみを走査する方法が用いられた。試料とレーザの関係に着目すると、試料上をレーザが走査することから、本論文ではこの方法をレーザ走査法と呼んでいる。この方法により、試料の内部電界の面内分布を観察することができる[26,44-45]。また、太陽電池の場合には、レーザ走査法で測定すると、太陽電池の変換効率の面内分布や、電流経路の変化が観察されることが予想される。このレーザ走査法のレーザ SQUID 顕微鏡の構成は図 3.1 のようになっている。機能別にみると、半導体試料に対しレーザを照射するための光学系、半導体内部で流れるレーザ励起電流によって生じる磁場を捉えるための SQUID、SQUID の出力を処理するための信号処理回路、試料走査機構、およびデータ記憶装置からなっている。

最近になって、二川らは、LSI の欠陥検査のためにレーザを試料に固定し、SQUID を走査することで試料に生じる磁場分布を得る方法を開発した[36]。本論文では、この手法をレーザ走査法と対比させ、レーザ固定法と呼んでいる。レーザ固定法では、レーザを試料の特定の場所に固定し、その場所で励起されて試料内を流れる電流から生じる磁場分布を走査型 SQUID 顕微鏡で捉える。さらに、得られた磁場像に対し、2.5 章で述べた手法を用いて逆問題を解くことで、試料内で流れる電流経路を推定することができる。つまり、この手法でレーザ励起電流の経路の解析を行うことができる。5 章でも述べるが、レーザ走査法で得られる磁場像を解析するためには、レーザ励起電流の経路を明らかにする必要があり、レーザ固定法が必要であった。レーザ固定法のレーザ SQUID 顕微鏡の装置構成を図 3.3 に示す。二川らは、SQUID を走査する機構を開発したが、SQUID には冷却装置が付随して

いて SQUID を走査することは、試料を走査する場合よりも装置が大がかりとなる。また、SQUID を走査すると、環境磁場の変化も拾うことになる。レーザを変調すれば、レーザ励起電流に依存する信号のみを取り出すことはできるが、環境磁場の変動は SQUID の安定的動作の観点から好ましくない。そこで、レーザ固定法において SQUID を固定した状態で測定を行うために、我々は、光ファイバを用いて試料にレーザを固定し、試料ごと走査する手法を新たに構築した。図 3.3 にその構成を示す。レーザ光学系の部分がレーザ走査法と異なる。3.2 章以降で各構成要素について詳しくみていく。

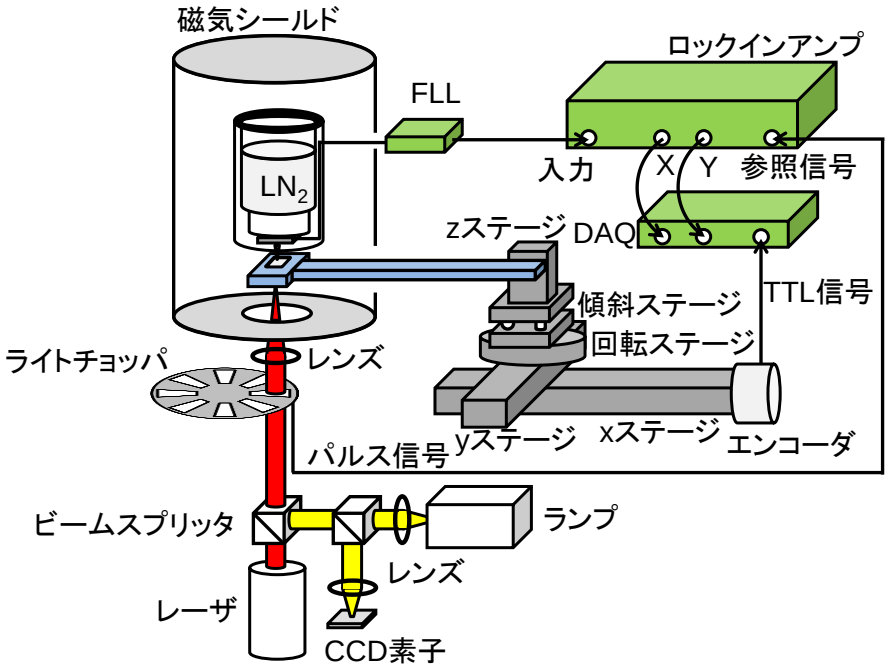


図 3.1　レーザ SQUID 顕微鏡（レーザ走査法）の構成

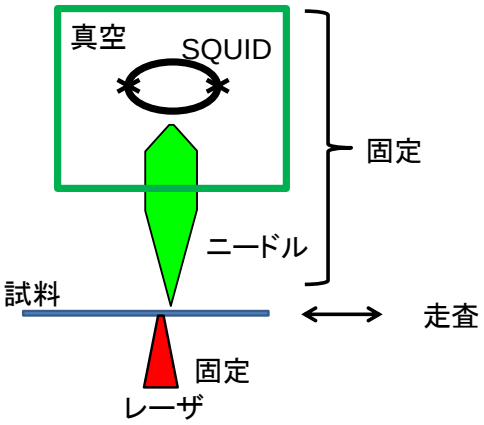


図 3.2　レーザ走査法の概念図。装置上は、SQUID、ニードル、レーザ光学系が固定され、試料のみが走査する。試料からみて、レーザ照射点は試料上を走査する。

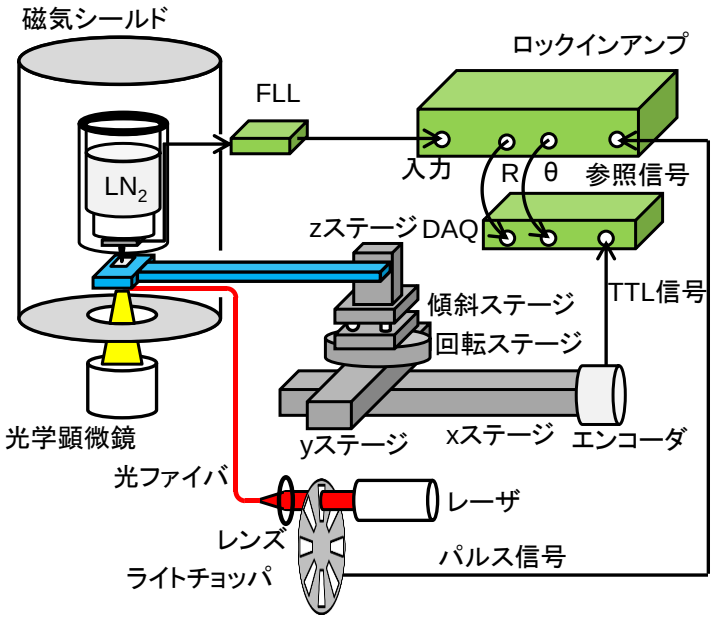


図 3.3　レーザ SQUID 顕微鏡（レーザ固定法）の構成

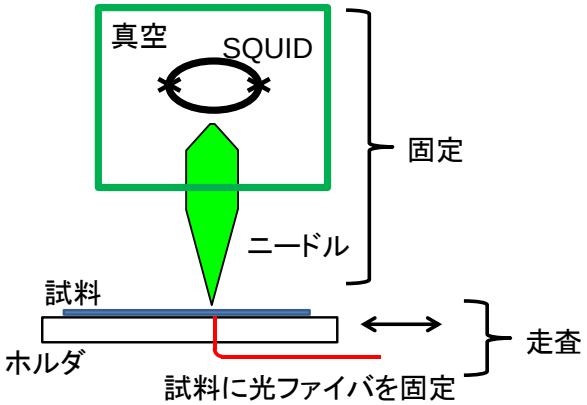


図 3.4　レーザ固定法の概念図。光ファイバが試料に取り付けられ、試料ごと走査する。試料からみてレーザ照射点は固定されている。

3.2　走査型 SQUID 顕微鏡の開発

本研究の 1 つ目の目的は、大気中・室温下の試料に対し、高い空間分解能で磁場像を得ることができる走査型 SQUID 顕微鏡を開発することである。本研究では、ニードルプローブを用いることでそれを達成した。ここでは、ニードルプローブ付走査型 SQUID 顕微鏡の開発について述べる。まず、ニードルからの磁場を効率よく捉えるために、SQUID のピックアップループサイズについて検討を行った。さらに、SQUID の設計・作製・評価について説明し、サンプル走査機構や制御プログラムについても述べる。

3.2.1　SQUID のピックアップループサイズ効果とニードル

ニードルとは、軟磁性材料（78 パーマロイ）を針状に加工した磁気プローブである。ニードルは、SQUID とサンプルの間に配置し、ニードルの鋭い先端で試料の磁場分布を捉え、透磁率の高さを生かして、先端でとらえられた磁束を SQUID に伝える。したがって、空間分解能は、ニードル先端径で決まることになり、SQUID の大きさには依存しないと予想される。ここでは、ニードルから SQUID への磁束伝達係数について検討した。

最初に、市販されていたワッシャ型 SQUID とニードルとの磁束伝達係数について調べた。ワッシャ型 SQUID とは、図 3.5 のように、超伝導薄膜の中央に微小な SQUID ループを作成したもので、SQUID ループ以外の超伝導薄膜の部分には、磁束を SQUID ループに集める磁束集中板の役割もある。まず、ワッシャ型 SQUID のモデルを静磁場シミュレータ Opera-3d（アナライザー：TOSCA）を用いて作成した。作成したモデルを図 3.5 に示す。黄緑色の部分が超伝導薄膜で、比透磁率を無視できる値に設定している。なお、黒い部分は真空である。Opera-3d は、有限要素法を用いており、有限要素のサイズ（メッシュサイズ）がシミュレーションの精度と計算時間を左右する。メッシュサイズは、磁場の変化を再現できるようなサイズまで小さくする必要があり、SQUID ループ付近などは小さく、ワッシャ部分では大きくとった。その様子を図 3.6 に示す。

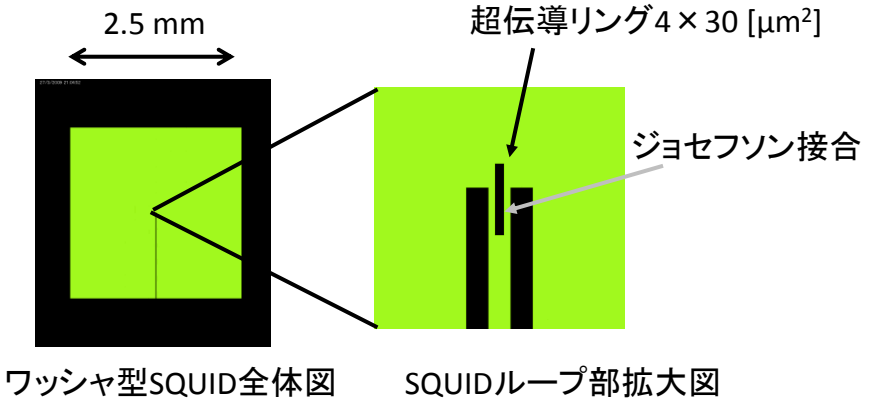


図 3.5　ワッシャ型 SQUID の静磁場シミュレーションモデル

作成したワッシャ型 SQUID のシミュレーションモデルの近くにニードルを配置し、ニードルの先端から入れた磁束が SQUID ループに入る様子をシミュレーションにより確認し、磁束伝達係数を求めた。ここでは図 3.7 のように、3 種類の磁束伝達係数について求めた。1 つ目は、ニードル下部に印加された磁束が、ニードル上端面まで伝えられる割合でこれを C_1 とした。2 つ目は、ニードル上端面から SQUID ループに入る磁束の割合でこれを C_2 とした。3 つ目は、ニードル下部に印加した磁束が SQUID ループに入る割合で、これを C_3 とした。また、シミュレーションは、図 3.8 のように、ニードルの太さとニードルと SQUID

との距離を変化させて行った。図 3.9 に、1 つのシミュレーション結果の一例を示す。緑色の円柱がニードルで、その下部にコイルを配置し、ニードルに磁束を印加した。ワッシャ型 SQUID をニードル上端から s（Space）だけ離しておき、その時の磁場ベクトルを表示させた。SQUID ループ付近を拡大してみると、ワッシャ部分が磁束集中板の役割を果たしていることがわかる。この一つのシミュレーション結果から、3 種類の磁束伝達係数を調べ、ニードルの太さ d（diameter）と SQUID とニードルとの距離 s に対する依存性を図 3.10 にまとめた。この結果から、ワッシャ型 SQUID の場合、最終的な磁束伝達係数 C_3 が 0.1% 以下となり、非常に低い値となることがわかった。

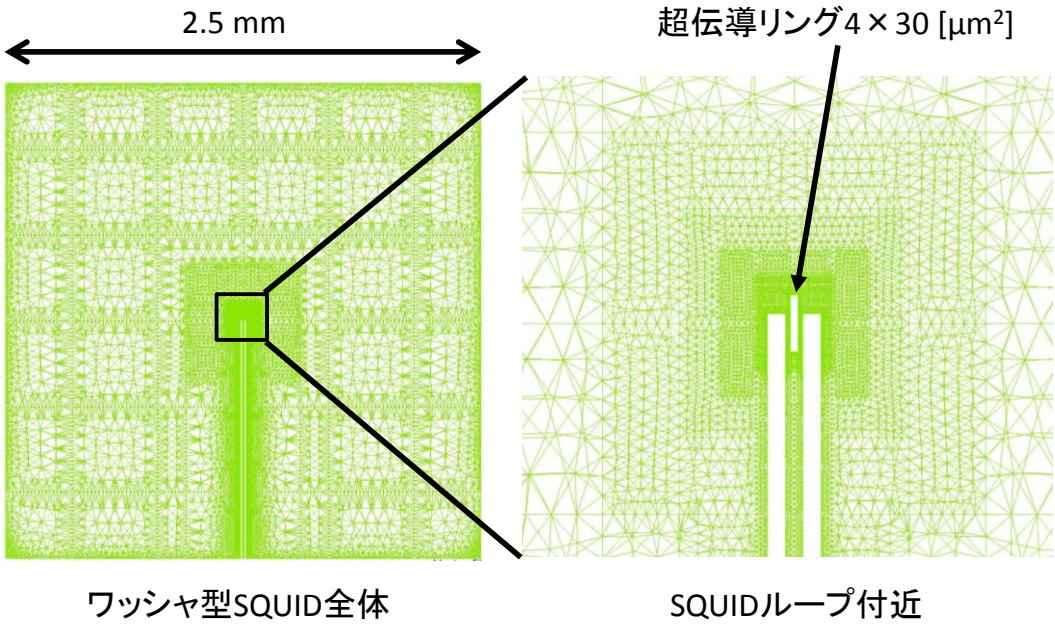


図 3.6　ワッシャ型 SQUID を要素に分けた様子

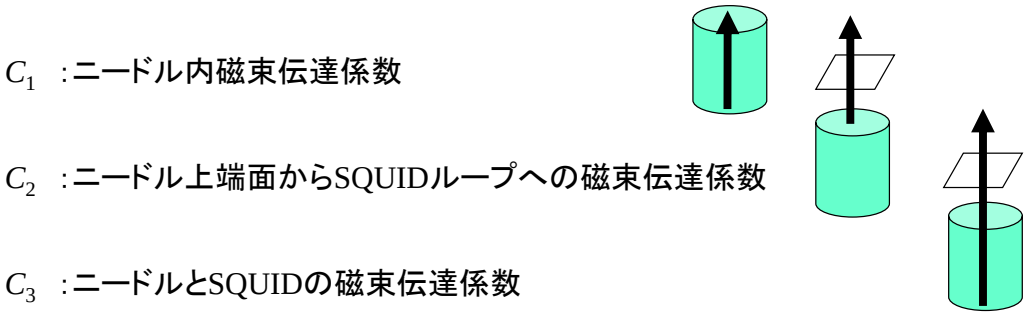


図 3.7　シミュレーションにより調べた項目

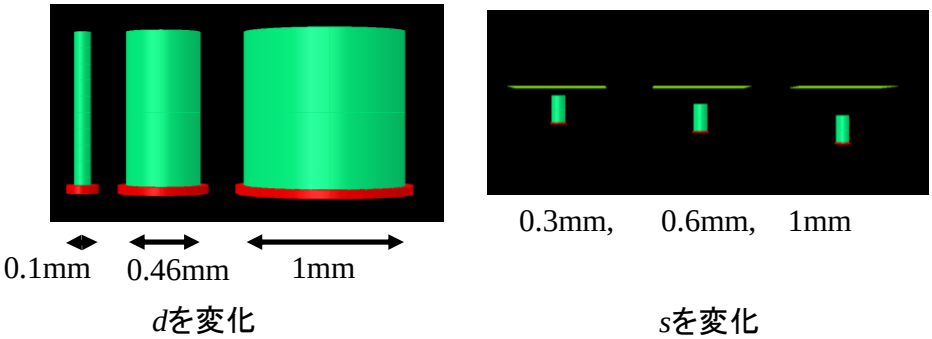


図 3.8　変化させたパラメータ（ワッシャ型 SQUID）

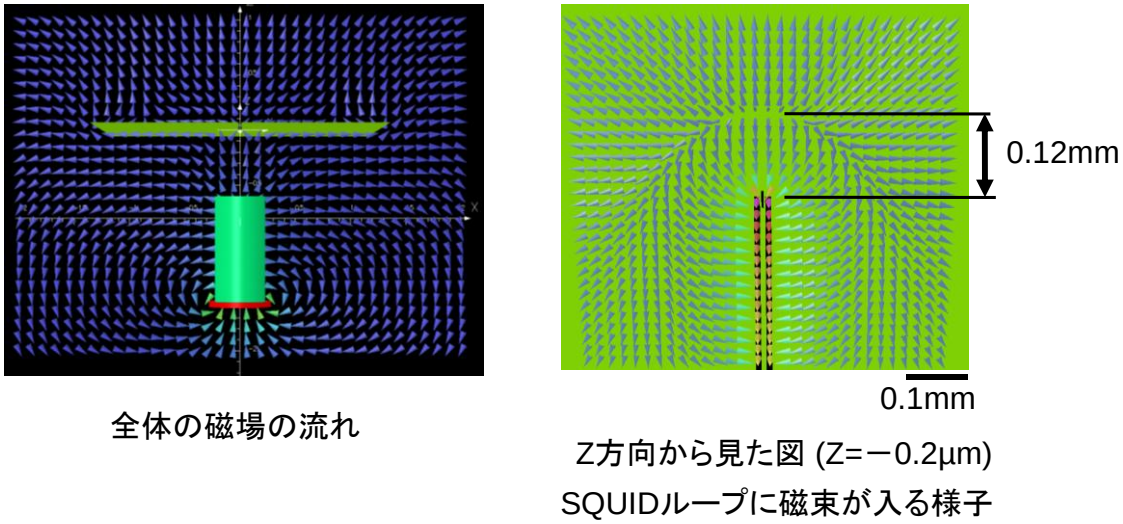


図 3.9　ワッシャ型 SQUID のシミュレーション結果の一例

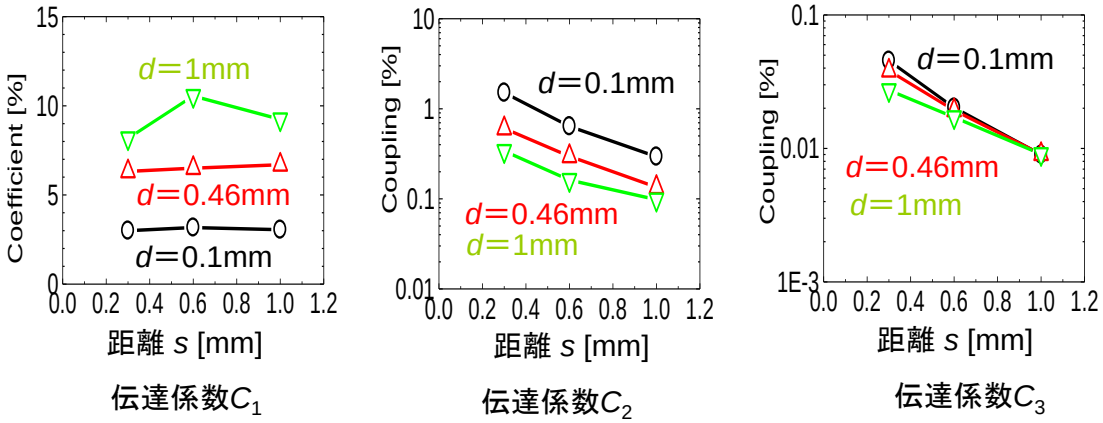
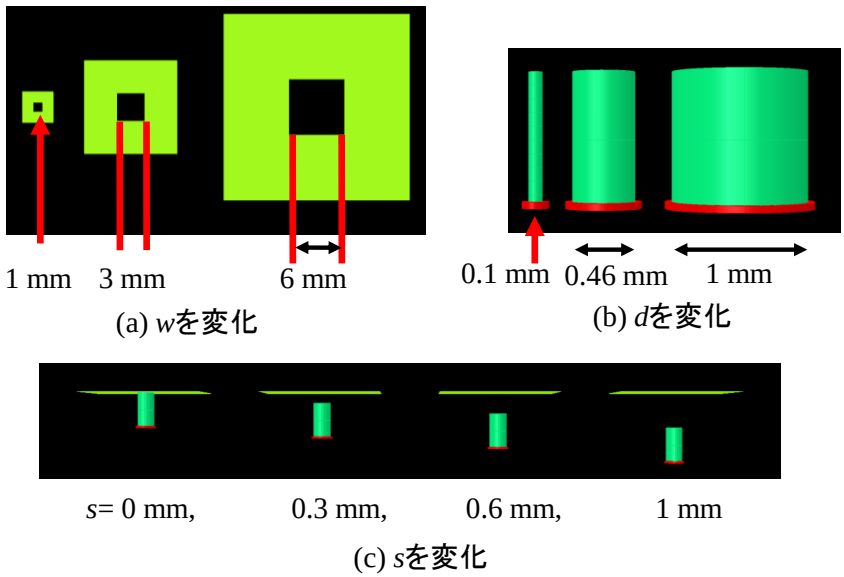


図 3.10　ワッシャ型 SQUID のシミュレーション結果

磁束伝達係数を改善するために、ワッシャ型の SQUID ではなく、SQUID にピックアップループが結合したタイプである直接連結型 SQUID の使用を考え、そのピックアップループサイズについての検討を行った。最適化のために、図 3.11 に示すパラメータを変化させた。ピックアップループの内径 w（width）を 1 mm、3 mm、6 mm と変化させた。また、ニードルの直径やニードルと SQUID との距離も変化させ、それぞれの組み合わせについて C_1、C_2、C_3 の 3 種類の磁束伝達係数について調べた。



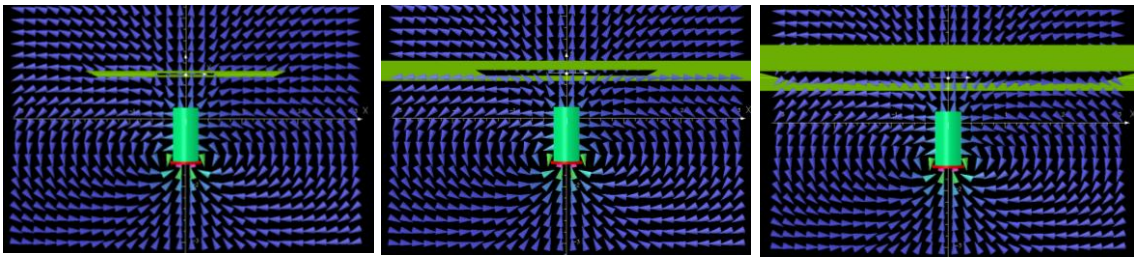
(a) wを変化　(b) dを変化

(c) sを変化

図 3.11　変更したパラメータ

図 3.12 に、シミュレーション結果の一例を示す。ここではピックアップループサイズを変化させた場合について示している。通常、直接連結型 SQUID では、ピックアップループサイズが大きい方が、磁場感度が高くなるが、ニードルに結合させている場合については、図 3.12(c)のようにピックアップループサイズが大きすぎると、ニードル上端から出た磁場がループ内で折り返し、ループに鎖交する正味の磁束が減少してしまう現象が見られた。したがって、最適なループサイズが存在することになる。図 3.13 と図 3.14 にそれぞれ伝達係数 C_1、C_2 に関するパラメータ依存性をまとめた。ワッシャ型 SQUID の場合と同様に、C_1 はニードルが太い方が、大きくなる傾向が見られた。しかし、C_2 は、ワッシャ型 SQUID の場合とは大きく異なり、100 倍以上、結合率が上昇している。ニードル上面から出る磁束で規格化している C_2 が 100%を超えているのは、ニードル上面から出る磁束だけでなく、ニードル側面から出ていく磁束の一部もピックアップループに入っていることを意味している。図 3.15 に、最終的な伝達係数である C_3 に関するパラメータ依存性についてまとめた。C_2 がワッシャ型 SQUID の時と比べて、100 倍以上になったため、C_3 もそれに伴い大きくなっている。また、ワッシャ型と違い、ニードルが太いと伝達係数が高くなる傾向が見られた。この結果から、ニードルが太く、ニードルとピックアップループとの距離は近い方

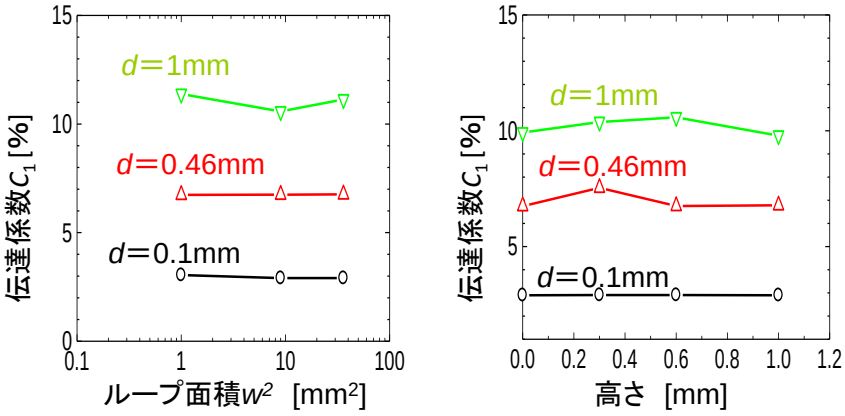
が、C_3の値が高くなることがわかった。また、d = 0.46 mm, s = 0.6 mm の場合については、ピックアップループの内径が 3 mm 程度が最適であることがわかった。



(a) w=1 mm　(b) w=3 mm　(c) w=6 mm

図 3.12　シミュレーション結果の一例

ここで、ニードルの形状に関して考察を加える。ニードル下端に入った磁束がニードル内部を通ってニードル上部まで伝達される割合 C_1は、ニードルが太い方が高くなった。一方、磁束がニードル上部からピックアップループに入る割合 C_2は、ニードルが細い方が高い。また、ニードルプローブ付走査型 SQUID 顕微鏡の空間分解能は、ニードル下端の先端径で決まる。これらのことを勘案した結果、ニードル下端を鋭く、ニードルの中間は太く、ニードル上端を細くしたニードルを設計した。これを図 3.16 に示す。ここで、ニードル下端の先端径は 0.1 mm とした。ニードルを使わない走査型 SQUID 顕微鏡の場合、SQUID のピックアップループサイズは、試料と SQUID 間距離と同程度にするが、これをニードルプローブ付走査型 SQUID に適用すると、ニードル先端径を試料とニードル間距離と同程度にすればよい。本研究での主な測定試料は、多結晶シリコン太陽電池であり、試料の厚さは、0.2~0.3 mm 程度であった。レーザは試料表面に照射し、ニードルは試料裏側に配置したため、最もレーザ励起電流が流れるレーザ照射点からニードル先端までは試料の厚みの分だけ離れてしまう。そのため、ニードル先端径を試料の厚さ程度の 0.1 mm とした。



ピックアップループ内の面積w^2に対する依存性 (s = 0.6 mm)　ニードルとSQUIDとの距離sに対する依存性 (w = 3 mm)

図 3.13　伝達係数 C_1のパラメータ依存性

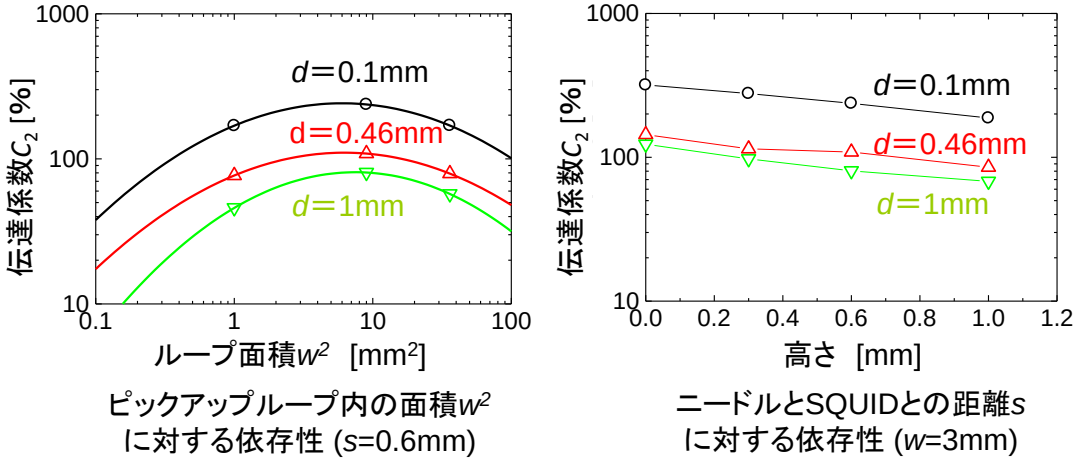


図 3.14　伝達係数 C_2 のパラメータ依存性

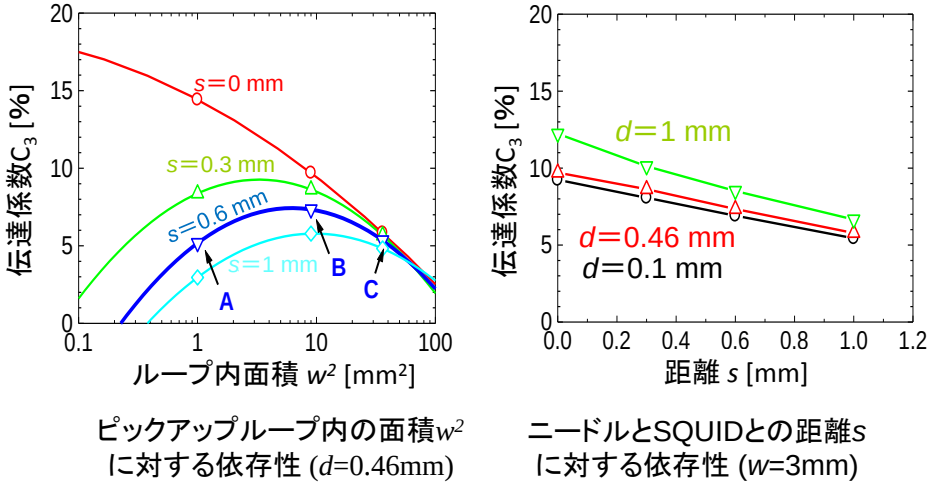


図 3.15　伝達係数 C_3 のパラメータ依存性

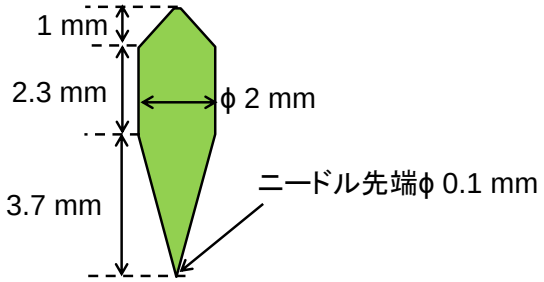


図 3.16　実験で使用したニードルの形状（断面図）

3.2.2　SQUID の設計・作製・評価

3.2.1 章で、ニードルの直径 $d = 0.46$ mm、ニードルと SQUID との距離 $s = 0.6$ mm の場合については、ピックアップループの内径が 3 mm 程度が最適であったので、内径が 3 mm となる直接連結型 SQUID を設計した。それを図 3.17 に示す。直接連結型 SQUID では、図 3.18 に示すように、ピックアップループで磁場を電流に変換し、その電流を SQUID ループの一部を使って磁場に変換することで、SQUID に磁場を伝える形になっている。

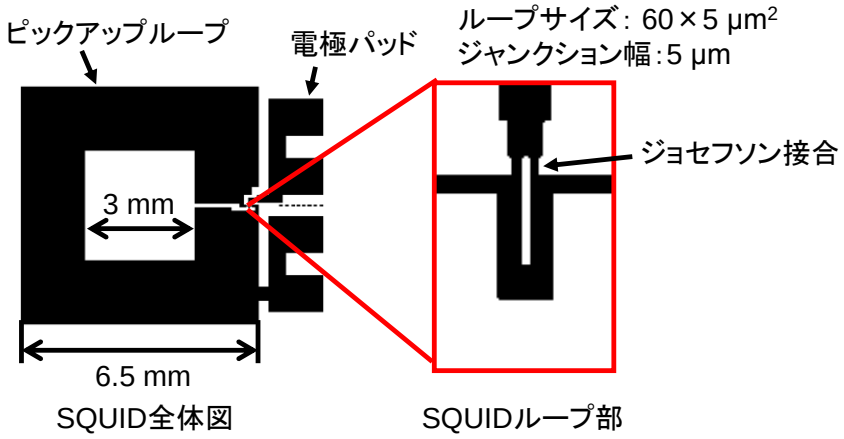


図 3.17　設計した直接連結型 SQUID

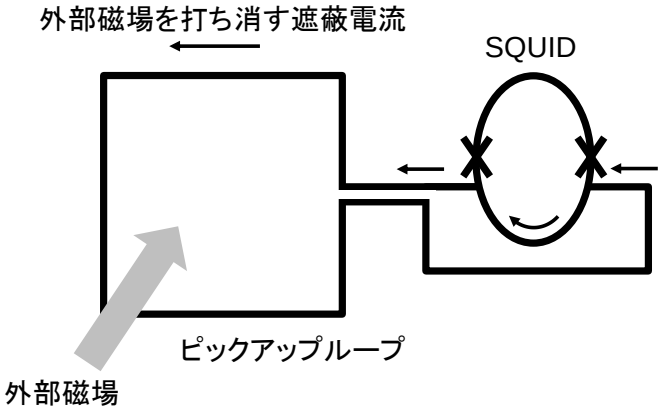


図 3.18　直接連結型 SQUID の動作概念図

この SQUID は、$SrTiO_3$ バイクリスタル基板に $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 高温超伝導薄膜をパルスレーザ蒸着法によりエピタキシャル成長させ、図 3.17 のパターンに微細加工することで作製した。さらに、電極部分に Au を蒸着した。

作製した SQUID を、デュワーに実装した。デュワーとは、液体窒素の保持のための真空断熱を利用した容器で、ここでは SQUID を冷却保持用に図 3.19 のような構造となっている。SQUID は、液体窒素によって冷却するためにサファイアロッドの先端に取り付け、

SQUID の周囲を真空とした。このデュワー内には、SQUID を駆動するための配線が施してあり、その配線と SQUID の電極を接続した様子を図 3.20 に示す。デュワーの窓と SQUID との距離は調整できるようになっており、図 3.21 のように、SQUID とデュワーの窓に貫通させたニードルをできるだけ近づけた。

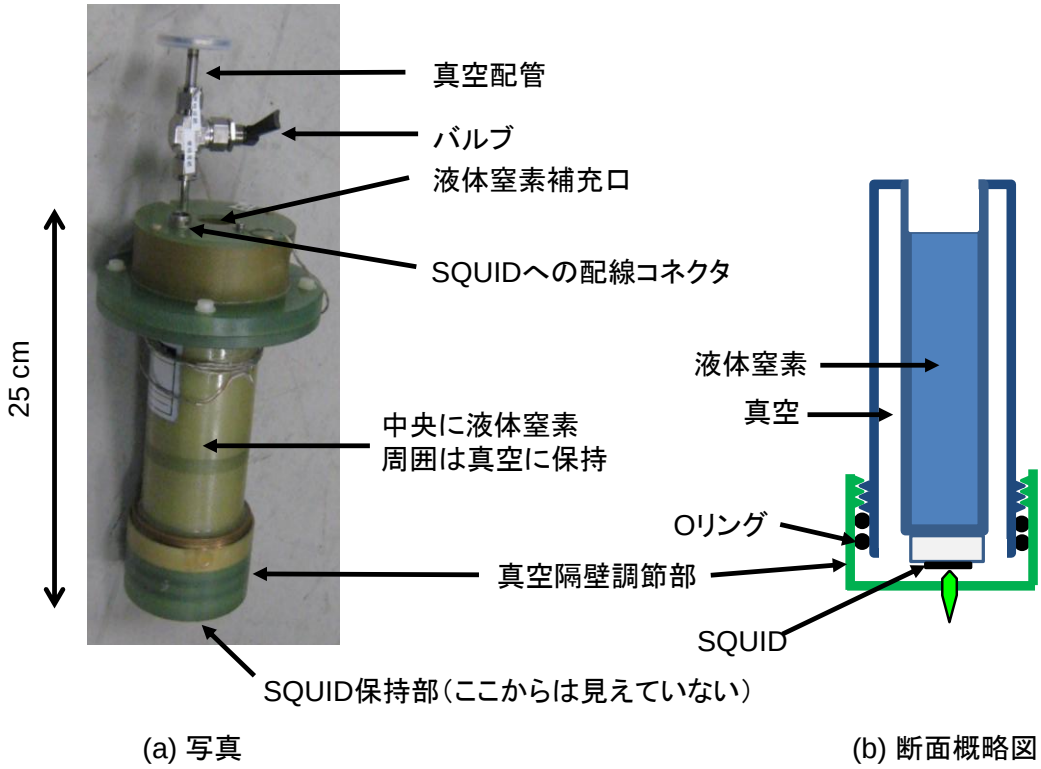


図 3.19　デュワーの構造と写真

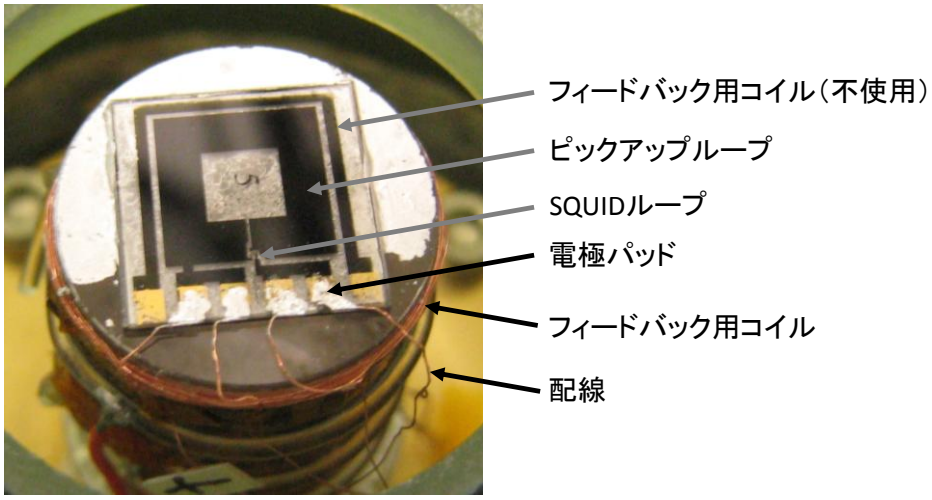


図 3.20　直接連結型 SQUID へ配線を接続した様子

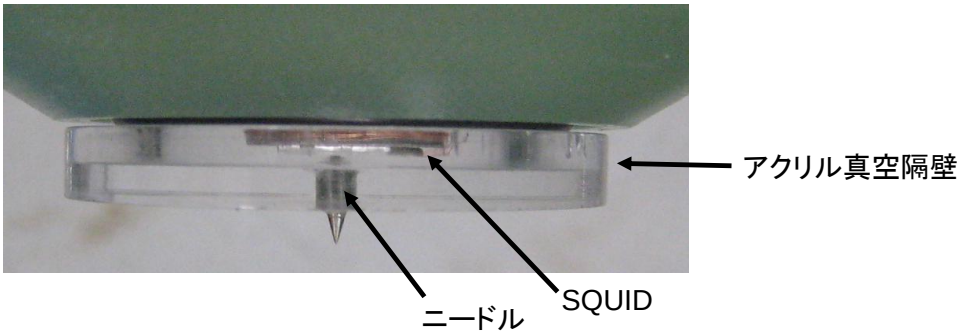


図 3.21　ニードルを SQUID に近づけた様子

このようにして作製し、実装した SQUID に対し、臨界電流値、磁場 - 電圧特性の変調振幅、ノイズ、磁場換算係数の評価を行った。まず、図 3.22 に、作製した SQUID の電流 - 電圧特性と磁場 - 電圧特性を示す。このグラフから、SQUID の臨界電流値 I_C が 53 μA、磁場 - 電圧特性の変調振幅 V_{pp} が 20.6 μV であることがわかる。変調振幅としては、典型的な DC-SQUID で得られている程度の V_{pp} が得られた。また、有効面積は、0.12 mm² であった。

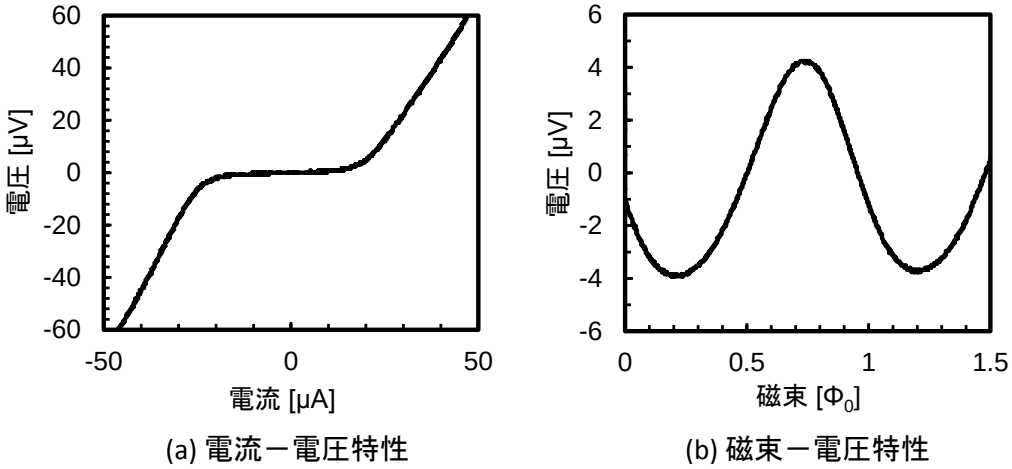


図 3.22　作製した SQUID の電流 - 電圧特性と磁束 - 電圧特性

この SQUID を FLL 回路（PFL-100、STAR Cryoelectronics）により駆動し、磁場に対して線形な出力を得た。

図 3.23 に、作製した SQUID にニードルを付加した様子を示す。ニードルが SQUID の中心に位置するように調整してある。このニードルを付加した SQUID は、図 3.24 に示すような、3 重のパーマロイ磁気シールドボックスの中に設置した。

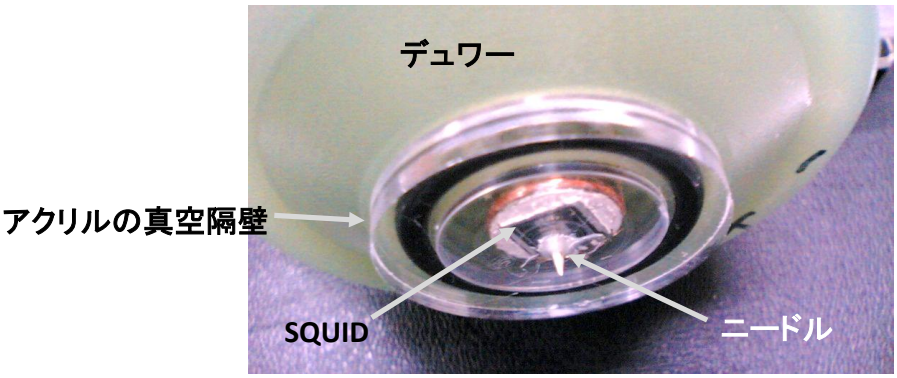


図 3.23　SQUID にニードルを付加した様子

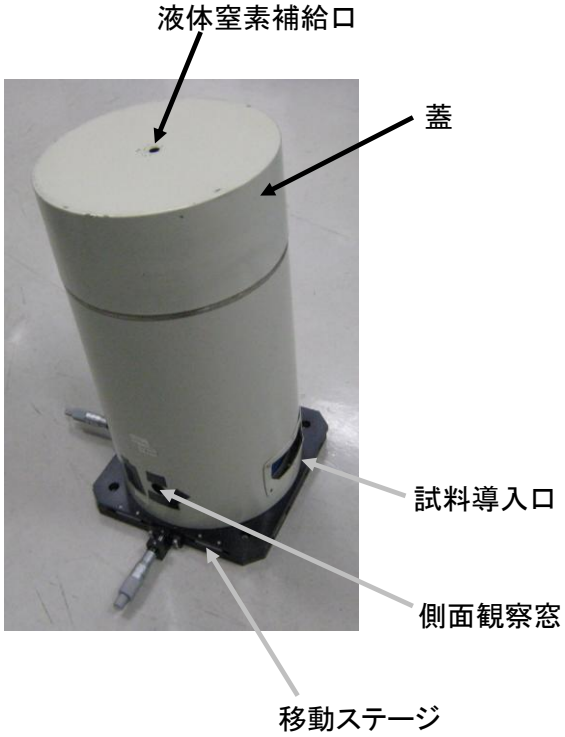


図 3.24　3 重パーマロイ磁気シールド

高温超伝導 SQUID は 1 pT 程度以下の磁場分解能があり、通常の環境下では、数 10 μT 程度の地磁気や数 10 nT 程度の都市磁気雑音があるため、高感度な測定には適さない。そこで、一般に SQUID を用いた磁気測定では磁気シールドが用いられる。この磁気シールドの磁気ノイズ遮蔽効果についてフラックスゲートを用いて評価した。フラックスゲートは、サブナノテスラ程度の感度を有しており、特に大きな 60 Hz や 180 Hz のノイズ評価のために用いた。実験室内の同じ場所においてノイズを測定し、磁気シールドがない場合と磁気シールドを用いた場合で比較した。それをに示す。このグラフから、磁気シールドにより磁気ノイズが、60 Hz の場合 1/200、180 Hz の場合 1/1000 程度に減衰していることがわか

った。高周波ほど同じ厚さの金属に対し侵入深さが減少するため、遮蔽性能が高くなったと考えられる。

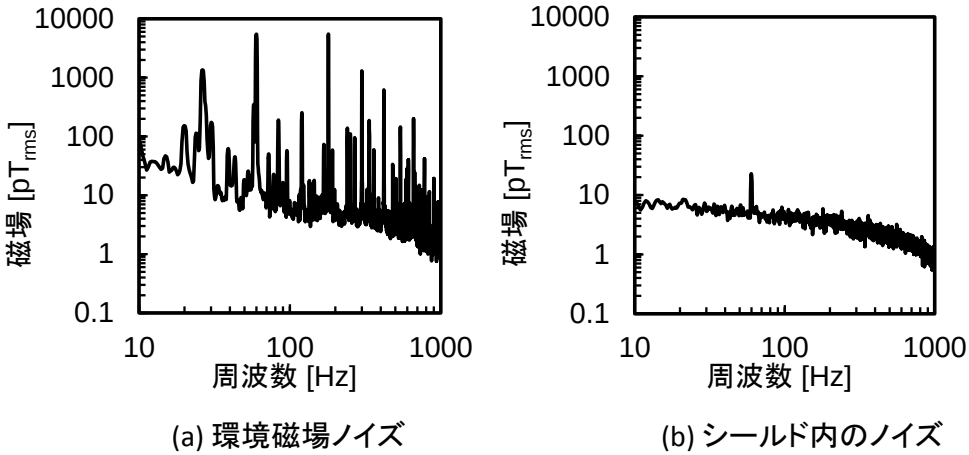


図 3.25　磁気シールドの遮蔽率評価

実際の測定は、この 3 重磁気シールド内で行った。この環境でシステムノイズの評価を行った。ノイズの評価は、ベクトルシグナルアナライザ（89441A、アジレント・テクノロジー株式会社）を用い、FLL 回路の出力に含まれるノイズスペクトルを評価した。図 3.26 にその結果を示す。1 kHz のノイズは、128 μVrms/Hz$^{1/2}$ であった。これは、電圧ノイズであり、磁場ノイズに換算する必要がある。そのためには、電圧 - 磁場換算係数を知る必要があり、図 3.27 に示すような測定系を用いて評価した。このとき、ヘルムホルツコイルを用い、ある周波数で均一な磁場を発生させて、印加した磁場の値を、FLL 回路の応答の振幅で割ることで、電圧 - 磁場換算係数を得ることができる。周波数を変えて計測を行い、周波数に対して電圧 - 磁場換算係数をプロットした結果を図 3.28 に示す。高周波側で、換算係数が変化しているのは、FLL 回路の特性の影響である。このグラフから、1 kHz での電圧 - 磁場換算係数は、4.88 nT/V と求めることができた。これにより、1 kHz での磁場ノイズは、0.62 pT$_{rms}$/Hz $^{1/2}$ と計算された。

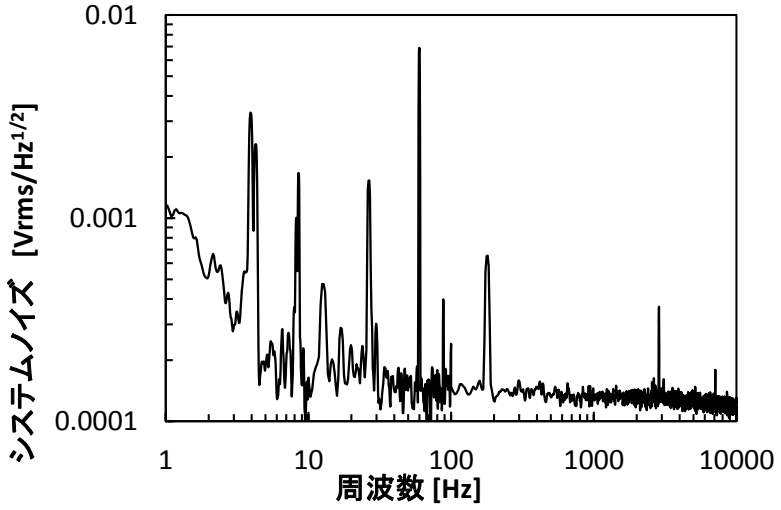


図 3.26　磁場測定システムのノイズスペクトル

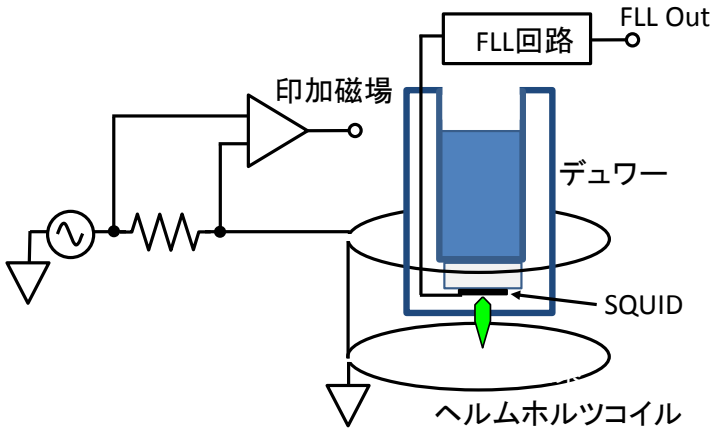


図 3.27　電圧 - 磁場換算係数の評価系

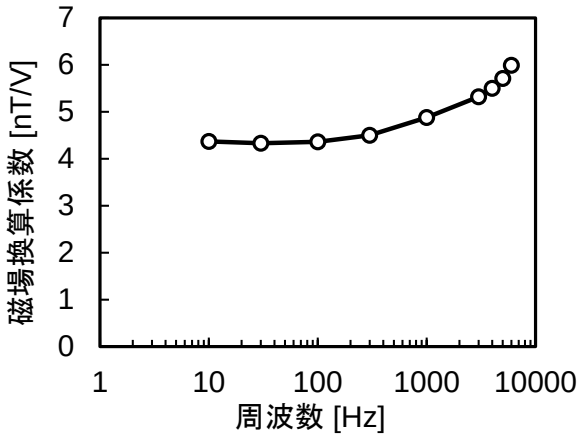


図 3.28　磁場換算係数の周波数特性

3.2.3　サンプル走査機構

サンプル走査機構概略図を図 3.29 に示す。走査機構に要求される役割としては、サンプルを保持すること、走査すること、位置情報を得ることの 3 つある。サンプル保持に関して、保持するためのステージは非磁性のものである必要がある。また、たわみがないような剛性も必要であるが、走査時の負担を減らすため軽量である必要もある。そのため、アクリルを使用して図 3.30 に示すようなサンプルステージを作成した。サンプル保持部には、穴が開いており、サンプルの下からレーザを照射できるようになっている。サンプルだけを磁気シールドの中に入れ、他の走査機構は磁気シールドの外に置くためこのように、ステージの腕が長くなっている。

サンプルステージの端は図 3.31 のような姿勢補正部に固定した。この姿勢補正部は、z ステージ、傾斜ステージ、回転ステージからなっている。それぞれ、サンプルの高さ、傾き、回転角度を補正できるようになっている。レーザ SQUID 顕微鏡では、レーザを集光してサンプル上を走査させるので、サンプルが傾いているとレンズとサンプルとの距離が変化し、レーザスポットサイズが変化してしまい、測定結果に影響を及ぼしてしまう。それを避けるため、試料の傾き補正は重要な機能である。回転ステージは、サンプルの測定範囲の再現性を上げるために取り付けた。一度測定を行った試料を再度測定する場合に、試料の取り付け方によって試料が若干回転してしまうため、この回転を補正し、測定範囲の再現性を高めている。

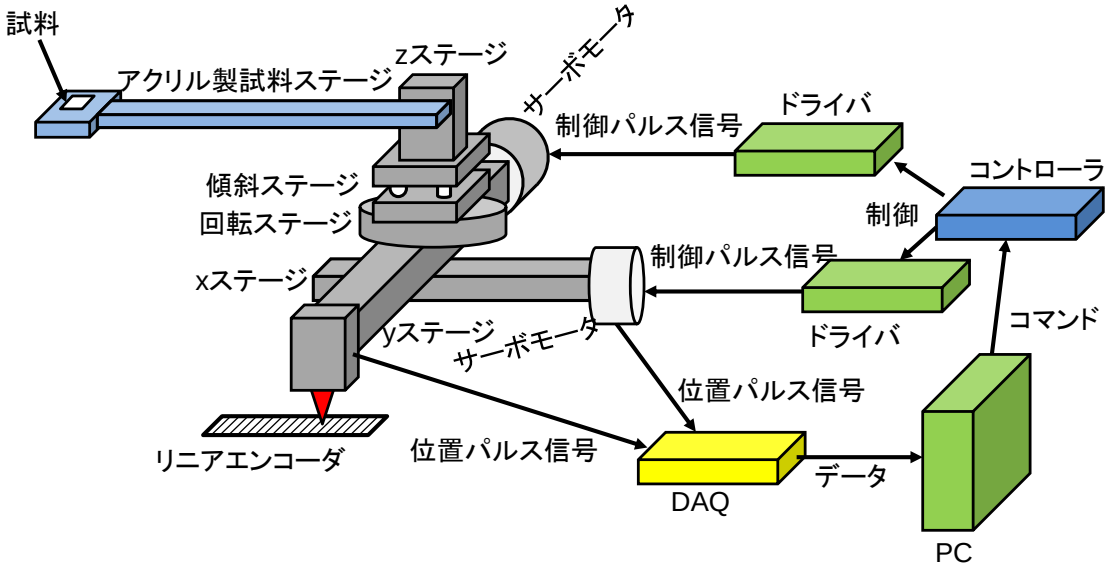


図 3.29　サンプル走査機構概略図

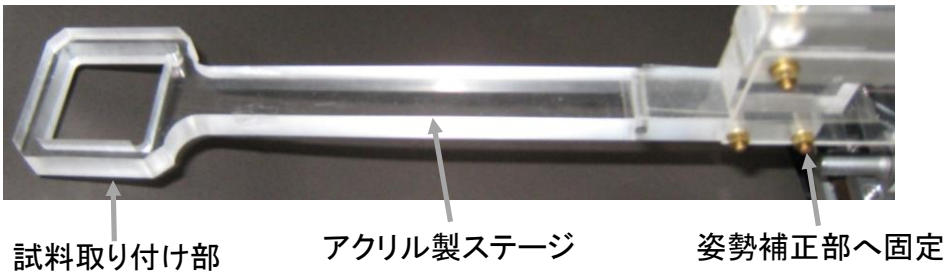


図 3.30　サンプルステージ

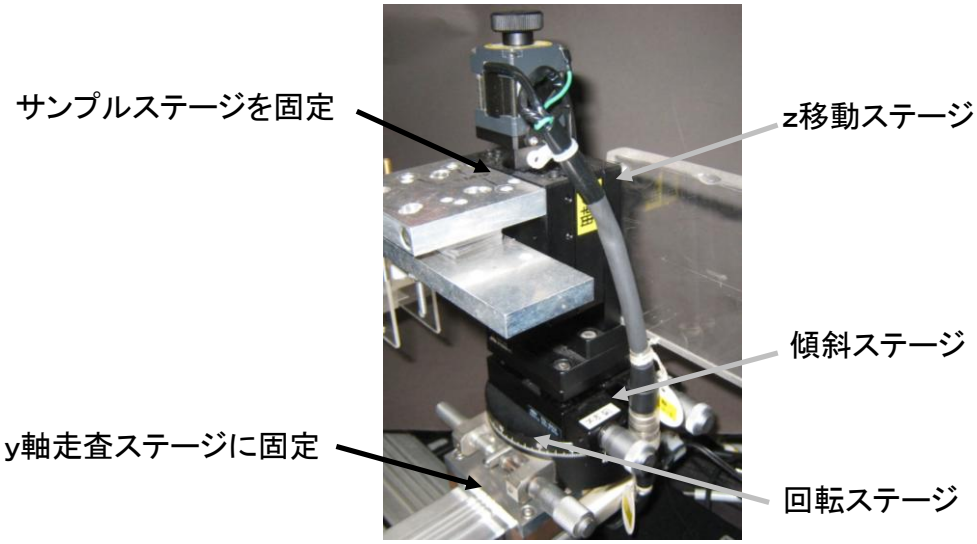


図 3.31　姿勢補正部

姿勢補正部は、xy 走査ステージ（CTU50F/40FAE079、日本トムソン）に固定されている。この xy 走査ステージの仕様を表 3.1 にまとめた。xy 走査ステージは、RS-232C により、PC で制御できるようにした。走査の際には、PC からコマンドを送って、一方向に走査させ、その際、走査ステージのエンコーダの信号を DAQ に送ることで、ステージの位置に合わせてデータを取得できるようにした。xy ステージのエンコーダの位置精度は、表 3.1 の通りだが、x 方向に関しては、リニアエンコーダ（ML-20、キャノン株式会社）をつけることで、0.4 μm の精度で、位置情報を得ることをできるようにした。高精細な画像を得るときには、x 方向に関しては、リニアエンコーダから位置情報を得るようにした。

表 3.1　xy 走査ステージの仕様

走査方向	最大走査距離	位置精度	走査速度範囲
x	30 cm	2.5 μm	125～12375 μm/sec
y	9 cm	1 μm	25～2475 μm/sec

3.2.4　制御プログラム

ここでの制御は、主に xy 走査ステージの制御のことである。その制御プログラムは LabVIEW により作成した。制御フローチャートは図 3.32 のように、測定全体の流れと、測定・データ保存作業の流れに分けられる。このフローチャートには、手作業の作業も含まれ、LabVIEW を用いない作業もある。LabVIEW は作業をしやすくするために適宜用いた。また、測定・データ保存作業は、判断も含めすべての作業を LabVIEW でプログラミングして行った。

手作業を含む、全体的な流れを説明する。最初に、xy 走査ステージの初期化のため、機械接点を用いた原点復帰を行い、ステージの座標を初期化する。これは、図 3.33 のような LabVEIW プログラムを用いている。次に、手作業にて、ニードルを含めた磁気シールド全体を動かして、ニードル先端をレーザ照射点に一致させ、その時のニードルの位置を磁気シールドのステージの座標で読み取る。そして、ステージを磁気シールド内に設定された計測 Home へ移動させる。この計測 Home は、磁気シールドのおおよそ中央あたりに来るように設定しているが厳密なものではない。サンプルをレーザ光学系の試料観察装置にて確認できるようになったら、次は、ステージを動かしながら、姿勢補正を行う。これは、ステージを±x 方向に動かしながら、光学系の焦点がずれないように、x 方向の傾きを補正し、次に、ステージを± y 方向に動かしながら y 方向の傾きを補正する。さらに、サンプルが回転していたら回転も補正する。姿勢制御部の調整は手作業だが、LabVIEW では、この作業の効率化のために、図 3.34 のように、指定された座標へ移動する機能、現在座標を取得する機能、指定された方向へ移動する機能を用意した。次の位置確認作業では、サンプルに別途定めた 2 か所の基準点の位置を確認する作業である。測定では、この 2 か所の基準点の座標をもとに、測定範囲を決定しているため、この基準点は、測定範囲の再現性を確保するために必要である。この基準点の位置決めは 10 μm の精度で行っている。そして、その基準点の座標をもとに、計測上パラメータを入力する際に原点となる座標を決定し、相対原点としている。その次に、図 3.35 に示すような、計測・データ保存のための LabVIEW プログラムに、計測パラメータを入力する。ここでの座標は、相対原点を原点にとった座標となっている。計測パラメータとしては、測定範囲の座標、走査方向、走査速度、サンプリング間隔、チャンネル数がある。計測・データ保存が終われば、ステージを Home へ移動させて計測が終了する。

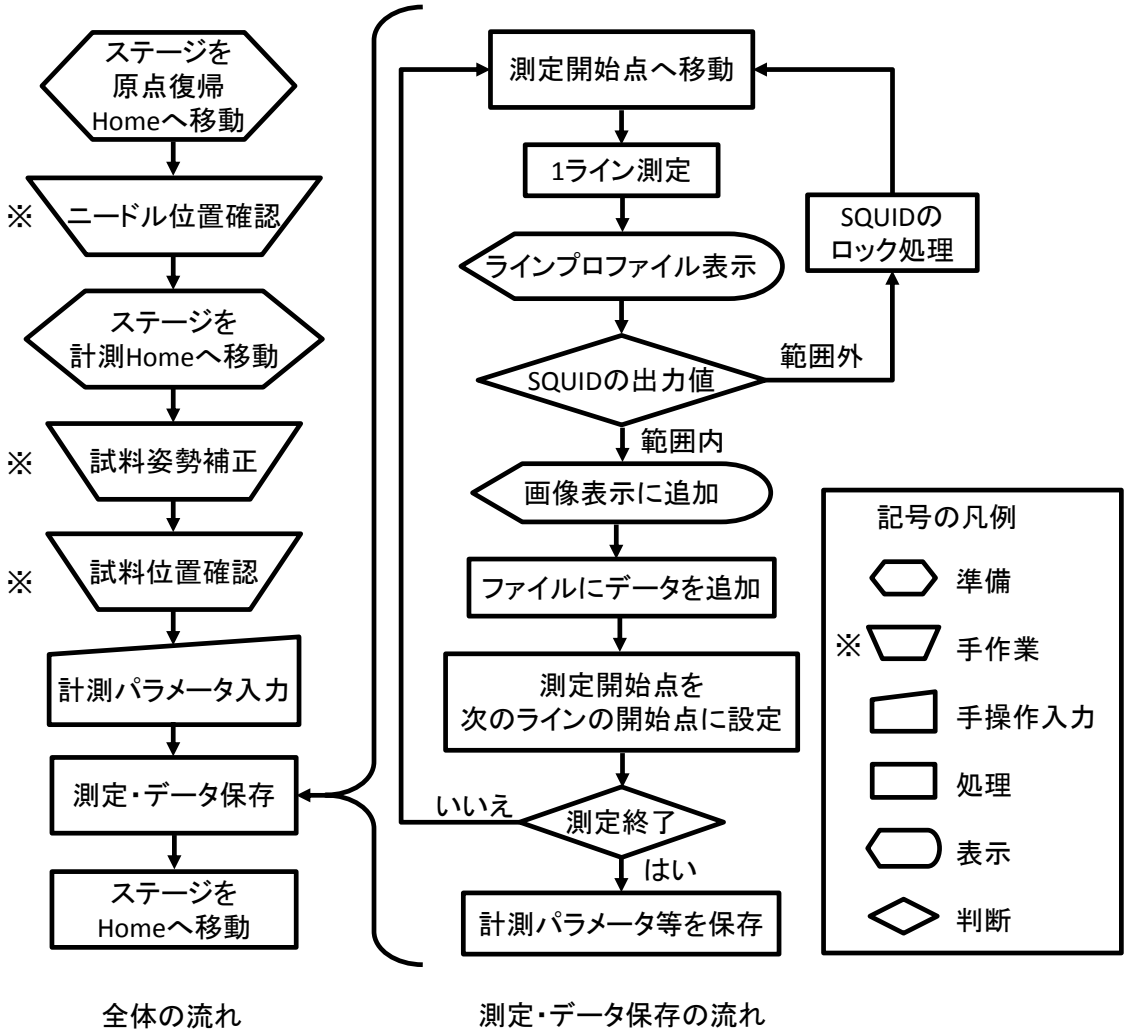


図 3.32　制御フローチャート

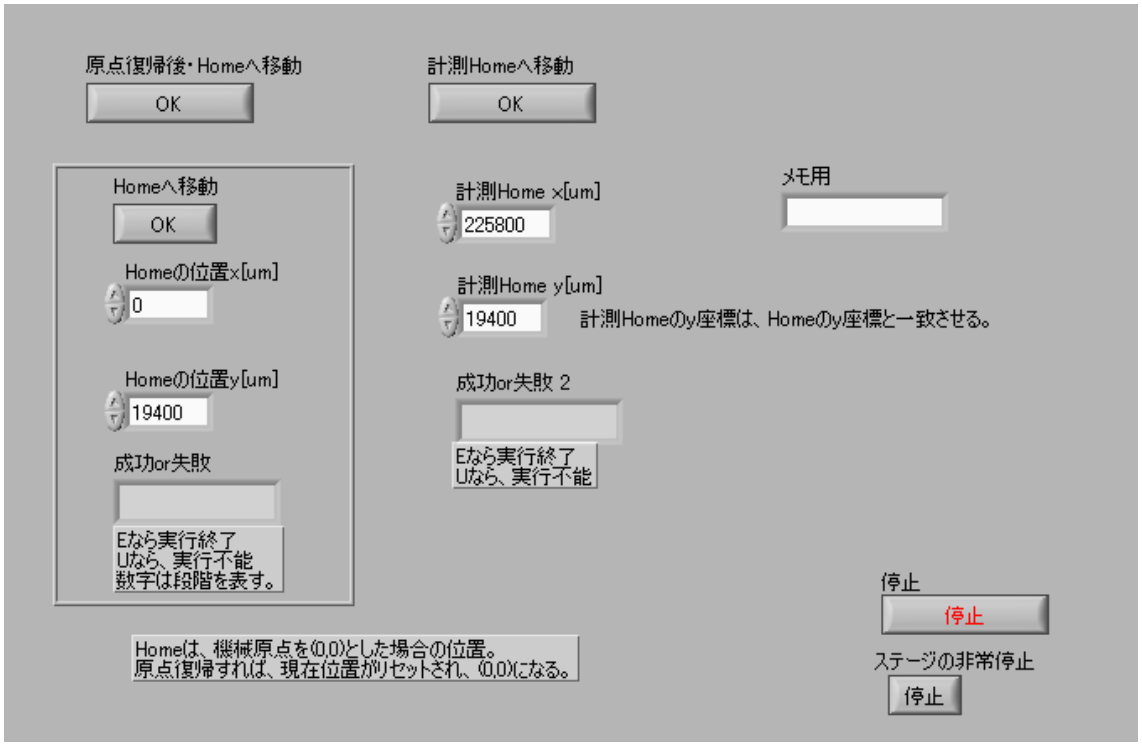


図 3.33　原点復帰・計測 Home へ移動する際の LabVIEW プログラムのフロントパネル

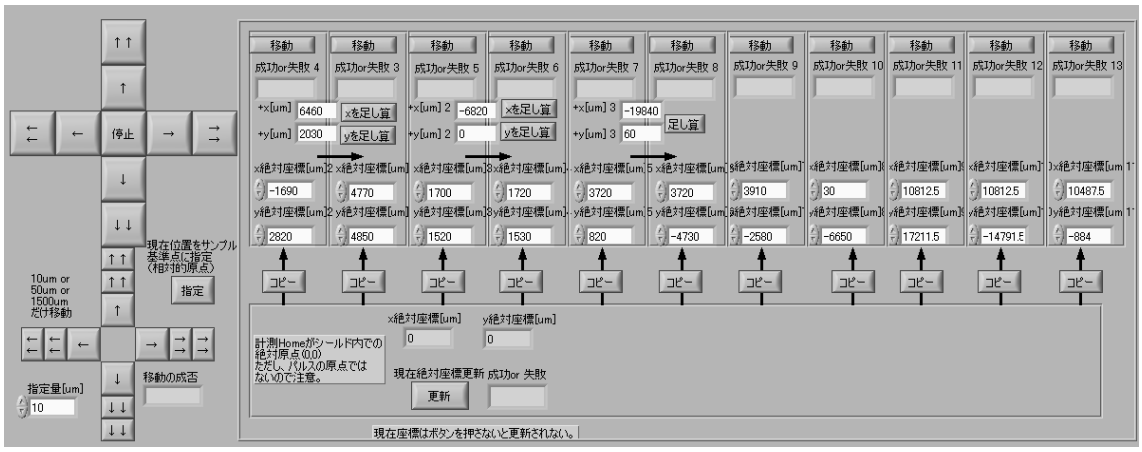


図 3.34　サンプル姿勢補正・位置確認する際の LabVIEW プログラムのフロントパネル

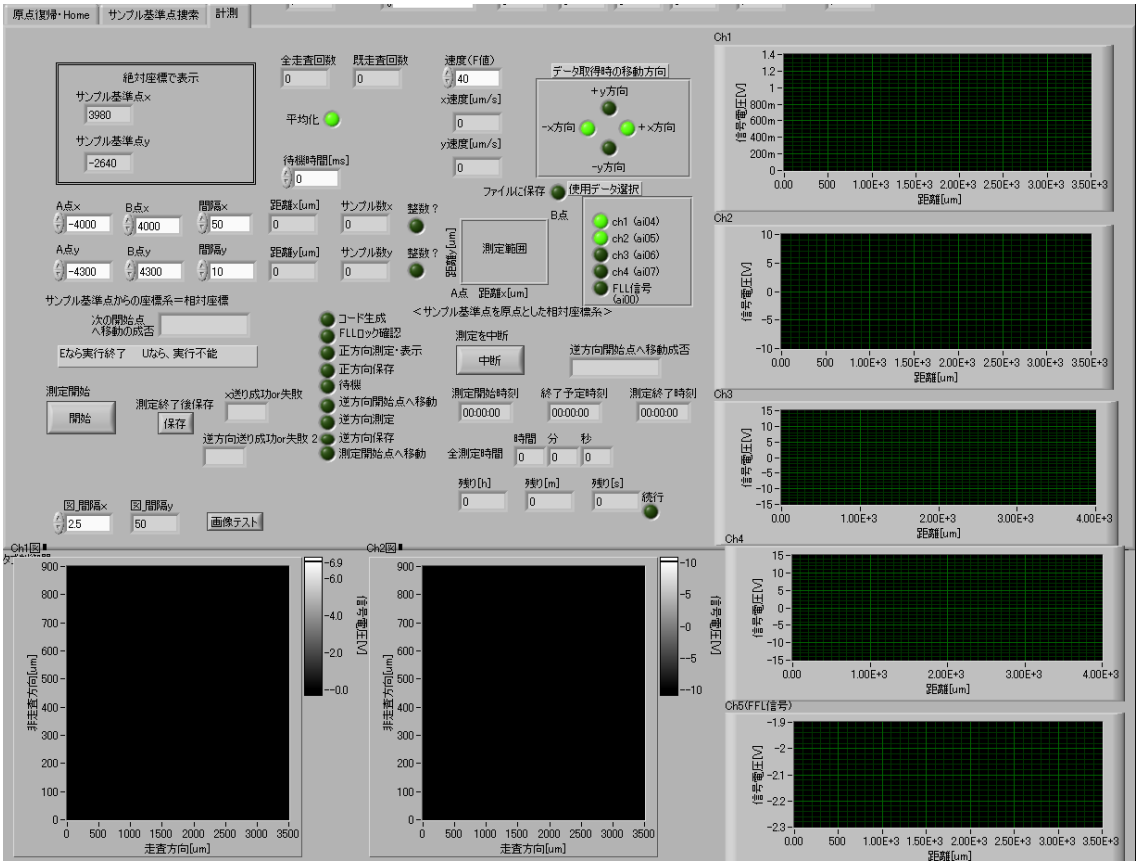


図 3.35　計測・データ保存する際の LabVIEW プログラムのフロントパネル

次に、測定・データ保存部分について述べる。測定パラメータが設定され、測定開始されると、図 3.32 の測定・データ保存の流れにあるような手順に従って、測定終了まですべて自動で処理が行われる。LabVIEW プログラムでは、測定開始時に、測定パラメータの入力が行われ、測定開始点の座標が計算される。測定は 1 ラインずつ行い、1 ライン測定するごとにラインプロファイルを表示させている。ここで、ステージが 1 往復する毎に SQUID の出力値が範囲内に入っているかどうかを判定している。これは、測定中に SQUID の出力値が、外部環境磁場などによりゆっくりとドリフトしていき、最終的に飽和してしまうことがある。レーザを変調し、その周波数成分のみを抽出するので、オフセットレベルが変化しても問題ないが、飽和してしまうと変調振幅もゼロになってしまうので、問題であった。このとき、SQUID に印加される磁場が常に同じになるように FLL 回路でフィードバックしているが、磁場のロック点の変更を行えば、FLL 回路の出力値の飽和を解消することができる。ここでは、±7 V の範囲外になる場合に、SQUID のロックをかけなおして、再度同じ測定を行うような手順とした。この機能は、特に長時間にわたる測定で有効であった。SQUID の出力値が正常範囲なら、ラインプロファイルを画像表示領域に追加し、ファイルに取得データを追加する。さらに、次の測定開始点を計算し、これが、測定範囲内

であれば、これまでの手順を繰り返し、測定範囲を超えれば、測定終了となる。最後に、設定された計測パラメータや測定時間などを記録し、測定を完了する。

3.3　光学系の開発

3.1 章で述べたように、本研究では二種類の光学系を用いている。試料にレーザを直接集光するレーザ走査法の光学系と、光ファイバにレーザを導入し光ファイバのもう一方の端を試料に押し当てて固定するレーザ固定法の光学系である。それぞれの光学系の開発について述べる。

3.3.1　レーザ走査法の光学系

光学系の役割としては、二つある。一つは、レーザを対物レンズで絞って試料に照射することで、もう一つは、3.2 章でも述べたように試料の位置決めや傾き補正のために試料を観察し、位置を特定することである。これら両方の役割を果たすために、レーザ光学系には、レーザを絞る光学系と同時に、レーザの絞り具合や試料を観察するための試料観察装置も必要である。また、レーザ SQUID 顕微鏡による測定で、試料に対して波長依存性を調べる際には、波長の違うレーザに交換することが必要で、できだけ柔軟性をもたせることも重要である。1 つの波長に特化した光学系を組むこともできるが、その場合には波長を変えるたびに光学系も組み替える必要が生じる。本研究では幅広い波長に対応できるように柔軟な光学系を目指した。

まず、レーザを絞る光学系について検討していく。レーザとは、波長と位相がそろったコヒーレントな光で、通常の光を使用する場合に比べて小さい領域に絞ることができる。レーザが最低次モード（TEM_{00}）で発振している場合には、ビームの強度分布は次式のように、中心からの距離rが、ビーム半径wのところで、ピーク値I_0の$1/e^2$になるような分布をしている[48]。

$$I(r) = I_0 \exp\left(-\frac{2r^2}{w}\right) \tag{3.1}$$

このような分布を持ったレーザがx方向に伝搬する場合、ビーム半径$w(x)$について、次式が成り立つ。ここで、$x = 0$において最小ビーム半径w_0となる。ここで、λはレーザの波長で、nは伝搬空間の屈折率である。

$$w(x) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{\lambda x}{\pi n w_0^2}\right)^2} \tag{3.2}$$

高次横モードが含まれる場合、横モードの品質を表す量としてM^2因子と呼ばれる特性量がある。これは、高次横モードがあると、ビーム半径が最低次モードの場合に比べて、M倍に

なることで定義されている。高次横モードを含む場合の最小ビーム半径を、$\Omega_0 = Mw_0$とすると、ビーム半径$\Omega(x)$は、式(3.2)を変形して次のように書ける。

$$\Omega(x) = \Omega_0 \sqrt{1 + \left(\frac{M^2 \lambda x}{\pi n \Omega_0^2}\right)^2} \tag{3.3}$$

ガウシアンビームを焦点距離Fの理想的な凸レンズにより集光する場合を考えると、その最小スポット半径は、次式のようになる[49]。

$$w_0 = \left(\frac{2\lambda}{\pi}\right)\left(\frac{F}{D}\right) \tag{3.4}$$

ここで、Dは、レンズ前のビームの直径である。焦点深度 DOF（Depth of Focus）は、

$$\mathrm{DOF} = \left(\frac{8\lambda}{\pi}\right)\left(\frac{F}{D}\right)^2 \tag{3.5}$$

となる。つまり、w_0を小さくするためにFを小さくし、Dを大きくした場合には、必ず、焦点深度も小さくなるという関係がある。焦点深度が浅いと、試料と光学系との距離のわずかな変動がスポットサイズを大きく変動させてしまうので、スポットサイズを小さくすることも重要だが、実験上はある程度の焦点深度を確保することも必要である。ガウシアンビームは、ビームウエストから遠くなると発散角で発散するようになるが、この発散角θとスポットサイズは、次式のような関係がある[48]。

$$\theta = \frac{\lambda}{\pi w_0} \tag{3.6}$$

つまり、w_0を小さくすると、発散角θが大きくなる関係にある。対物レンズの開口径は限られているので、発散角を大きく取るには、試料と対物レンズを近づける必要があるが、レザ SQUID 顕微鏡では、試料の保持具のため、対物レンズはむしろ離れている方が望ましく、発散角はあまり大きくはできない。

以上で述べてきた条件の中で、比較的広い範囲の波長特性を持った対物レンズ（M Plan Apo NIR ×10/0.26 ∞/0 f = 20、株式会社ミツトヨ）を選定した。この対物レンズを使うことで、理論的には、405 nm の $M^2 < 1.3$、$D = 1.25 \pm 0.25$ mm のレーザを、最小スポットサイズ 8.2 μm に絞ることが可能となる。また、この対物レンズは、図 3.36 のように 400 nm ～1800 nm の広い範囲において、50%以上の透過率がある。

ここまでで、レーザを絞る光学系について述べてきた。次に、レーザの絞り具合や試料表面の観察のための試料観察装置について述べる。試料観察のために、顕微鏡光学系を設計した。この光学系は、レーザ集光の対物レンズを共用するために、無限補正光学系とした。無限補正光学系では、対物レンズと結像レンズの二つのレンズを使用し、試料の像を CCD 素子上に結ばせる。この二つのレンズ間では、疑似平行光となっており、適切な光学素子を間に挟むことができる。また、二つのレンズ間距離はある程度の設計余裕度がある。このレンズの間にビームスプリッターを入れることで、他の光学系の経路を使うこともで

きる。図 3.37 に、光学系の設計概念図を示す。レーザを対物レンズで集光して試料に照射するが、レーザと対物レンズとの間にビームスプリッターを入れ、さらに、もう一つのビームスプリッターで、CCD 素子への光路と試料照射用の光源用の光路を確保した。このビームスプリッターは、幅広い波長のレーザに使用できるように、非偏光ビームスプリッターを用いていた。非偏光ビームスプリッターの透過率の波長依存性を図 3.38 に示す。400 nm～700 nm の幅広い波長に対し p 偏光の透過率が 70%台と、高くなっている。また、p 偏光と s 偏光を合わせた透過率は 40%台となっている。また、CCD カメラ（BS-41L、ビットラン株式会社）の波長特性は図 3.39 であった。

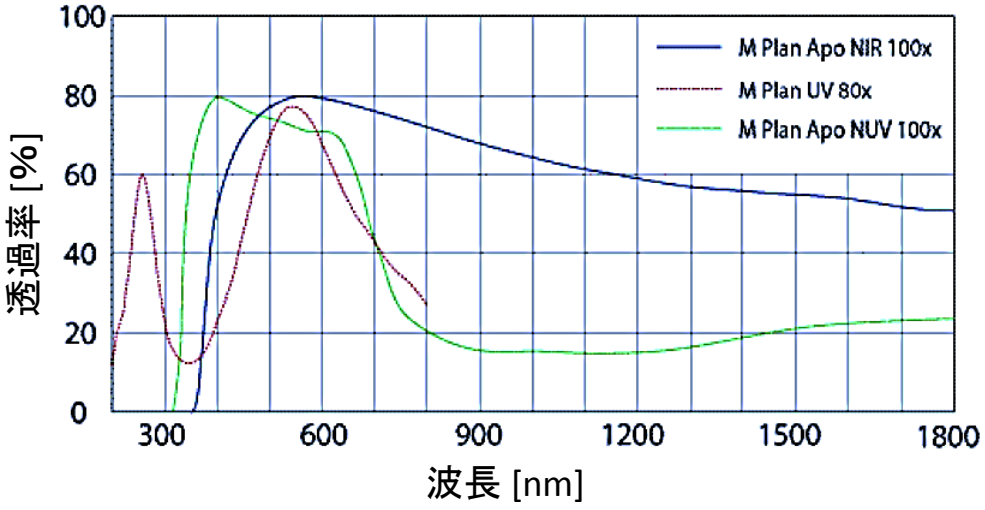


図 3.36　対物レンズの透過特性の波長依存性

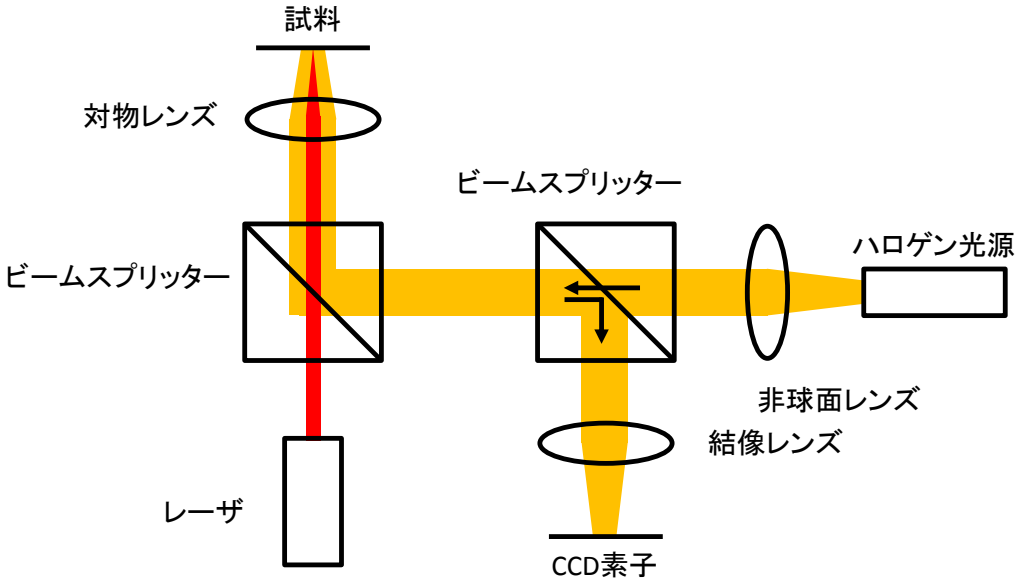


図 3.37　レーザ走査法での光学系の設計概念図

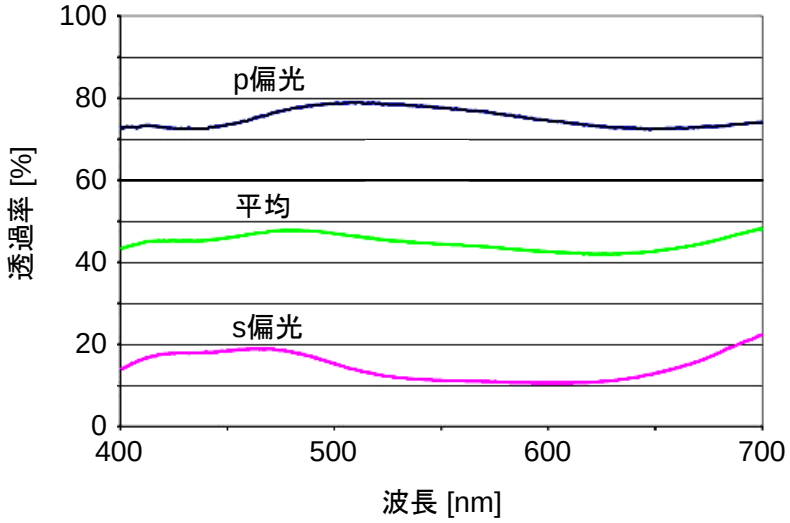


図 3.38　非偏光ビームスプリッターの透過特性の波長依存性

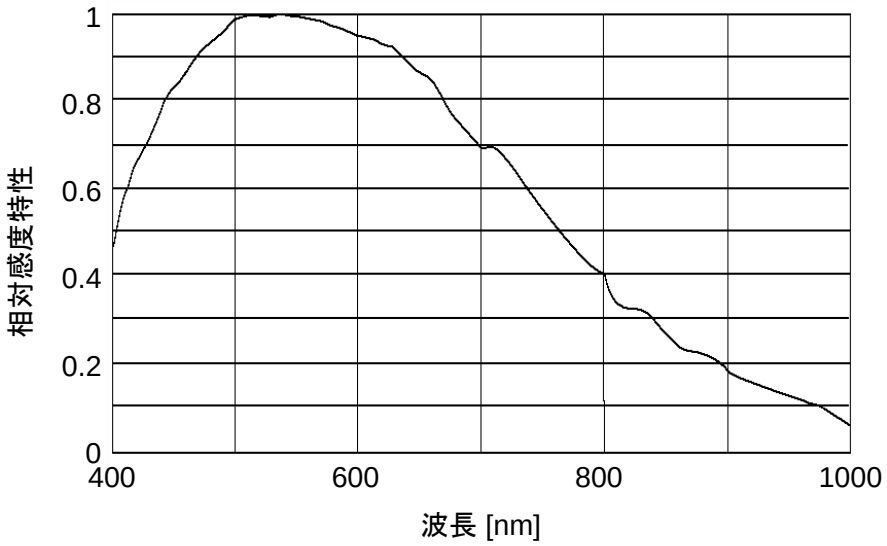


図 3.39　CCD カメラの波長特性

実際の光学系の設計図を図 3.40 に示す。この設計図には、780 nm のレーザ（AlGaAs、シグマ光機株式会社）も書き込んである。このレーザは、CW 発振であったので、レーザとビームスプリッターの間に、ライトチョッパ（5584A、株式会社エヌエフ回路設計ブロック）を挿入できるように隙間を空けた。実際に開発した光学系を図 3.41 に示す。使用したレーザの偏光特性は、図 3.42 のようになっているので、非偏光ビームスプリッターの偏光特性を考え、最もよく透過する向きにレーザを設置した。また、CCD 素子から対物レンズまでは、すべて C マウント規格のホルダや鏡筒を使用した。

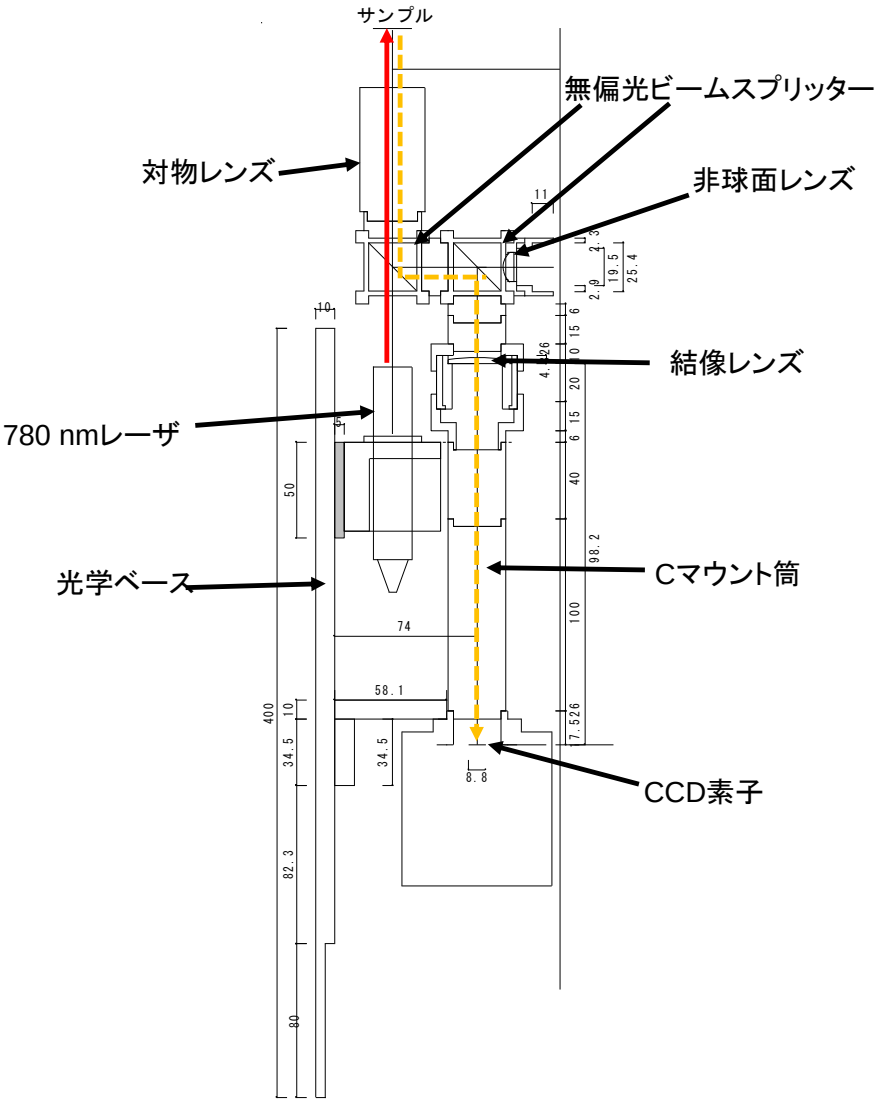


図 3.40　レーザ走査法の光学系設計図（レーザ波長＝780 nm）

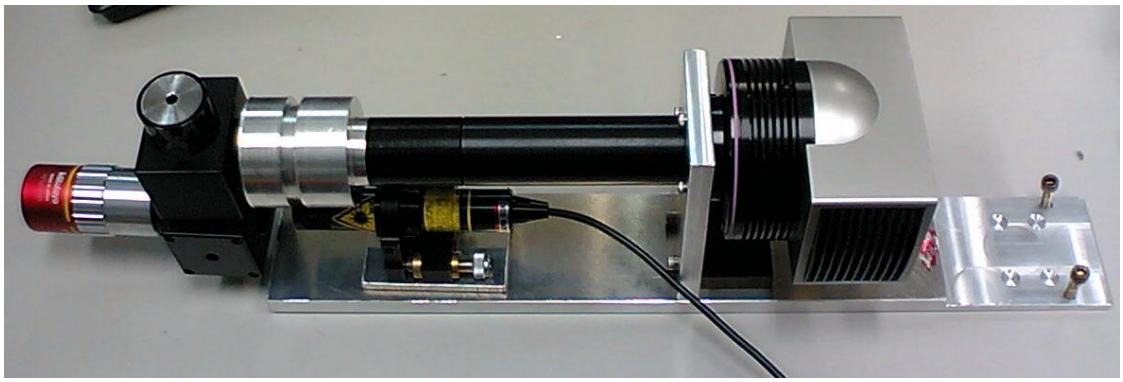


図 3.41　開発したレーザ走査法の光学系（レーザ波長＝780 nm）

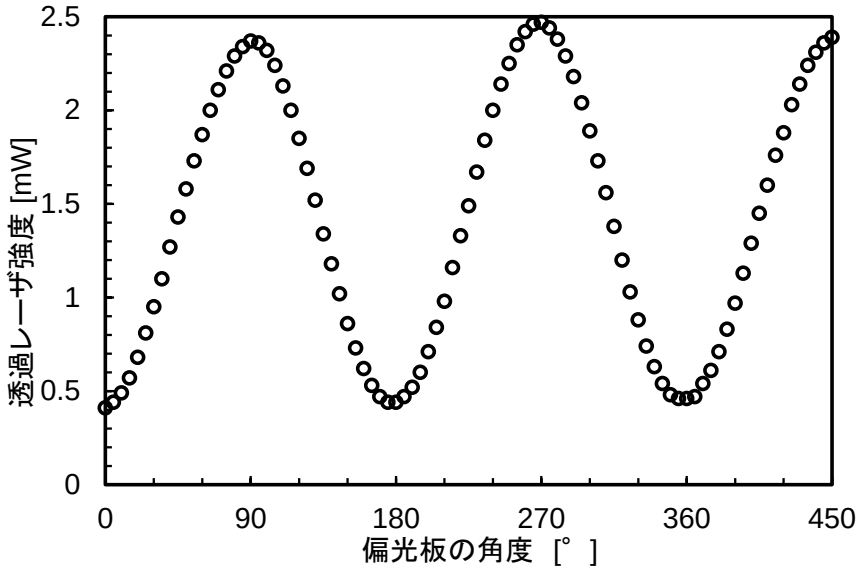


図 3.42　レーザの偏光特性

405 nm のレーザ（PhoxX 405-60、Omicron-Laserage Laserprodukte GmbH）には変調機能が内蔵されており、ライトチョッパは不要であるので、図 3.43 のように、ライトチョッパの分のスペースをなくした。実際に開発した光学系を図 3.44 に示す。このように、レーザを取り換えることを可能とした。光学系全体は、z 方向に移動することができるが、この移動量を把握するため、図 3.45 のようにダイヤルゲージを取り付けてある。このようにすることで、ニードル先端とサンプル表面との距離を測定することができる。つまり、ニードルに焦点を合わせたときから、試料に焦点を合わせたときの光学系の移動量でニードルと試料表面との距離を知ることができる。

図 3.37 と同様にして 1065 nm のレーザを用いた光学系を浜松ホトニクスが作製した。それを図 3.46 に示す。この光学系は、除振台に固定されていて、光学ベースごと z 方向に移動することで、試料に焦点を合わせられるようになっている。光学系の z 移動機構を流用し、図 3.47 のように光学系を固定することで、z 方向の移動を可能にした。

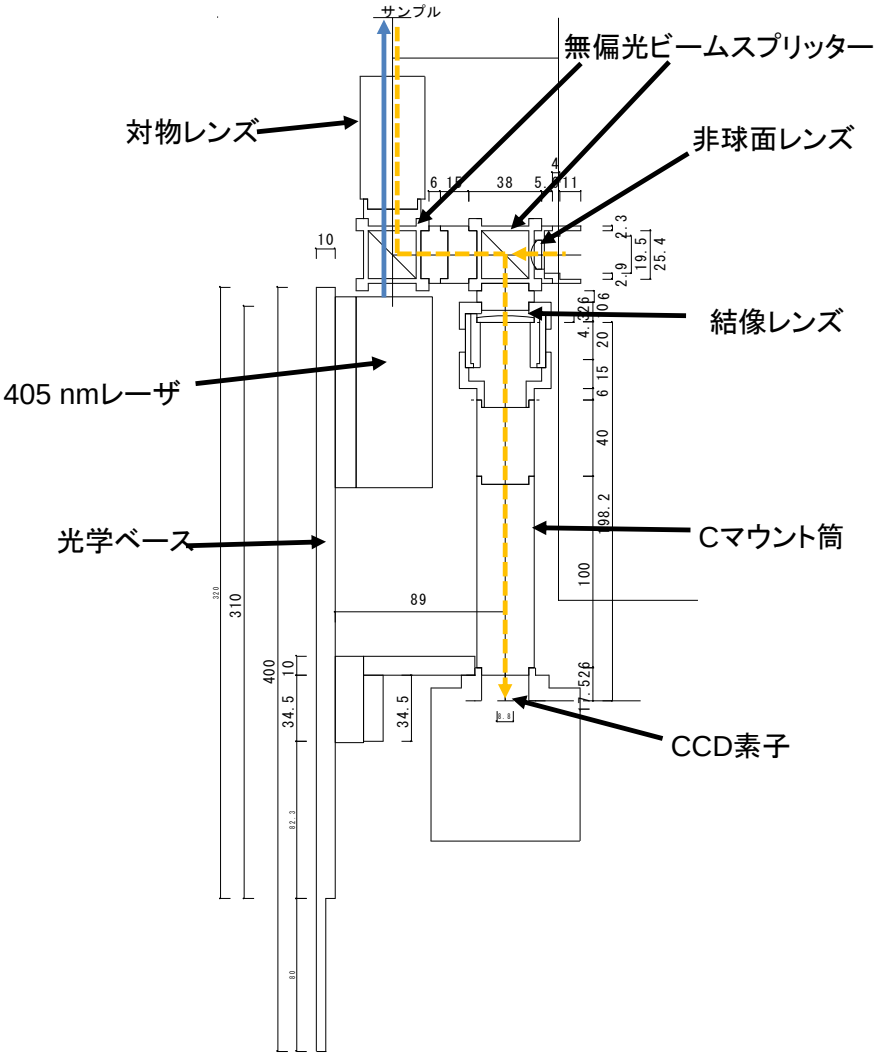


図 3.43　レーザ走査法の光学系設計図（レーザ波長＝405 nm）

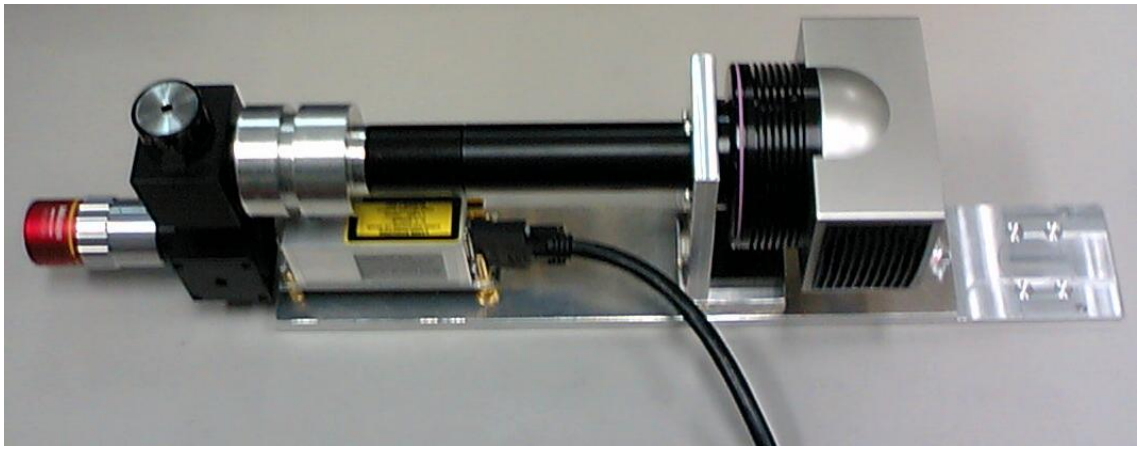


図 3.44　開発したレーザ走査法の光学系（レーザ波長＝405 nm）

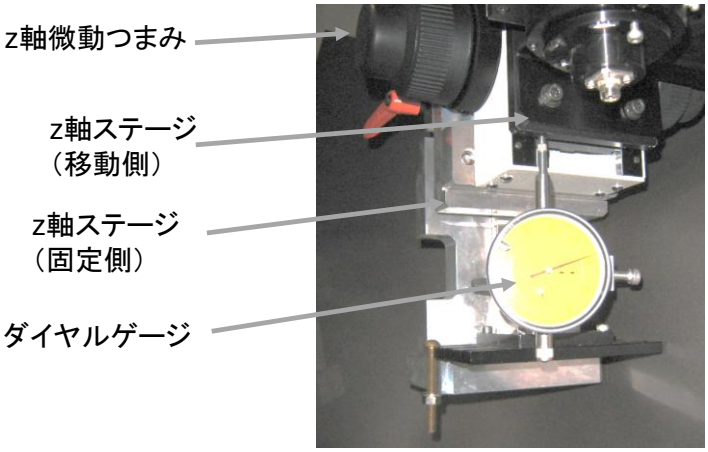


図 3.45　z 方向の移動量測定のためのダイヤルゲージ

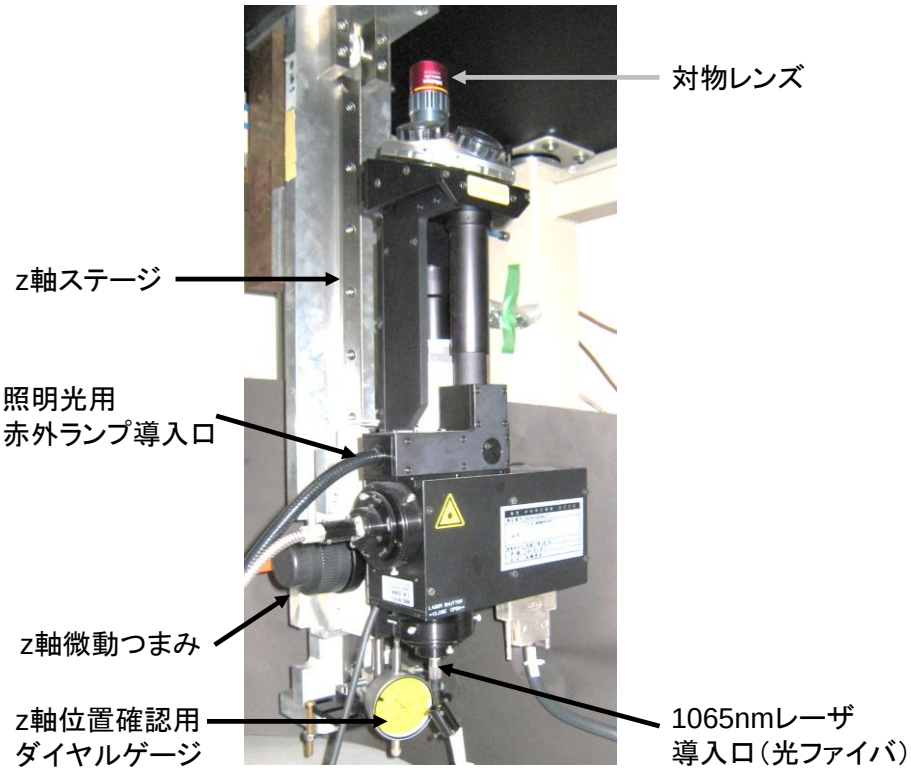


図 3.46　1065 nm レーザを用いた光学系

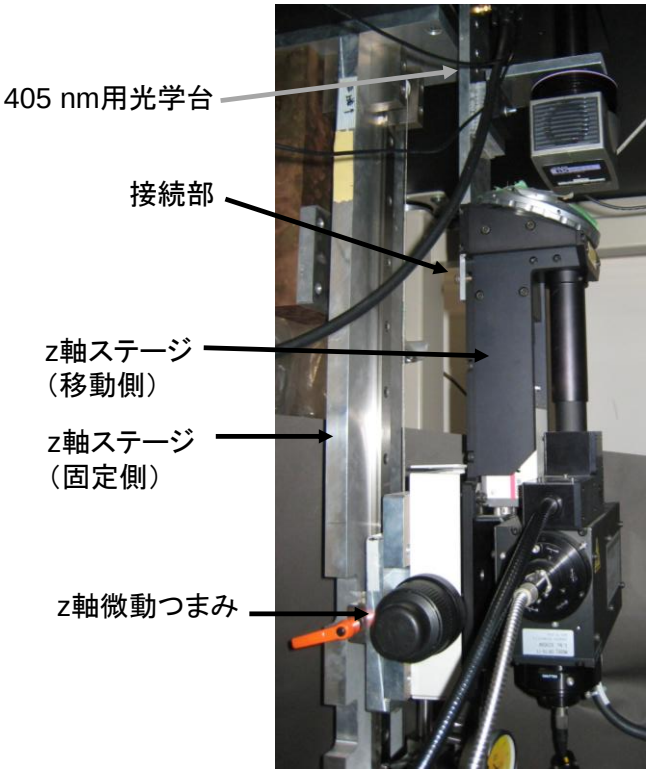


図 3.47　z 軸ステージに 450 nm の光学系を固定

3.3.2　レーザ固定法の光学系

レーザ SQUID 顕微鏡は、開発当初から、レーザ走査法の光学系となっていたが、二川らがレーザ固定法に対応したレーザ SQUID 顕微鏡を開発している[36]。この手法を用いて、LSI 検査において、欠陥の特定が行われているが、この手法は、レーザ励起電流の分布を計測する手法にも発展でき、レーザ SQUID 顕微鏡の新たな用途を生み出すものであると考えられる。二川らは、レーザを試料に集光し、SQUID を走査する方法を採用していた。このようにすることで、試料の任意の位置にレーザを小さなスポット径で絞ることができる。しかし、SQUID には、冷却機構が付随しており、試料を動かすよりも走査機構が大がかりとなる。また、SQUID を磁気シールドの中であっても動かすと、ノイズを拾う原因ともなるので、SQUID を動かさない方法が望ましい。そこで、新たに光ファイバを用いる方法を構築した。具体的には、レーザを光ファイバに導入し、その光ファイバの先端を試料の特定の場所に固定するという方法を採用した。光ファイバは十分に軽いので、走査機構は試料を走査できる能力があれば十分である。また、レーザ照射領域が光ファイバの径程度にできる。今回は、ミリメートルのスケールの太陽電池の検査を念頭に、光ファイバの直径を 0.25 mm とした。図 3.48 にレーザ固定法の光学系概略図を示す。レーザをライトチョッパで変調し、対物レンズ（MPlan 20/0.35、株式会社ニコン）を用いて光ファイバに集光し、光ファイバの端を試料ホルダに空けた穴に差し込むことで、試料にレーザを照射した。そ

の様子を図 3.49 に示す。この場合にも、試料表面の観察装置は必要であり、3.3.1 章の浜松ホトニクスが作製した系を使用した。

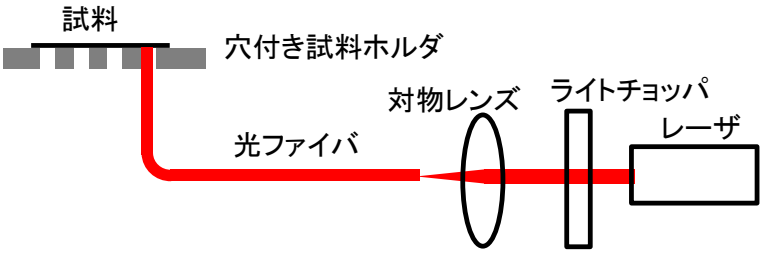


図 3.48　レーザ固定法の光学系概略図

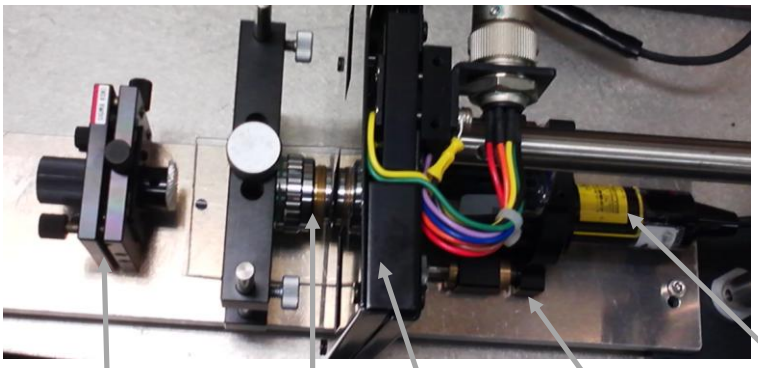


図 3.49　レーザ固定法の光学系写真

3.4　ロックインアンプによる SN 比の改善

レーザを変調し、磁気信号からロックインアンプを使ってレーザ励起に相関のある成分のみを抽出して、SN 比の改善を行う場合、磁気信号がレーザの強度変化に追随している必要がある。ここでは、試料のレーザに対する応答を確認するため、レーザ ON と OFF を瞬時に行い、その際の太陽電池の開放電圧の時間変化について調べた。405 nm のレーザについて調べた結果を図 3.50 に示す。レーザを照射した際の太陽電池の開放電圧が、レーザを OFF することで減衰するが、10%まで減衰する時間は図 3.50 より、300 μs であり、1 kHz 程度の変調は可能であることがわかった。また、図 3.50 から、レーザを OFF したときよりも、ON する時の方が、開放電圧の安定までに要する時間が短くなっている。

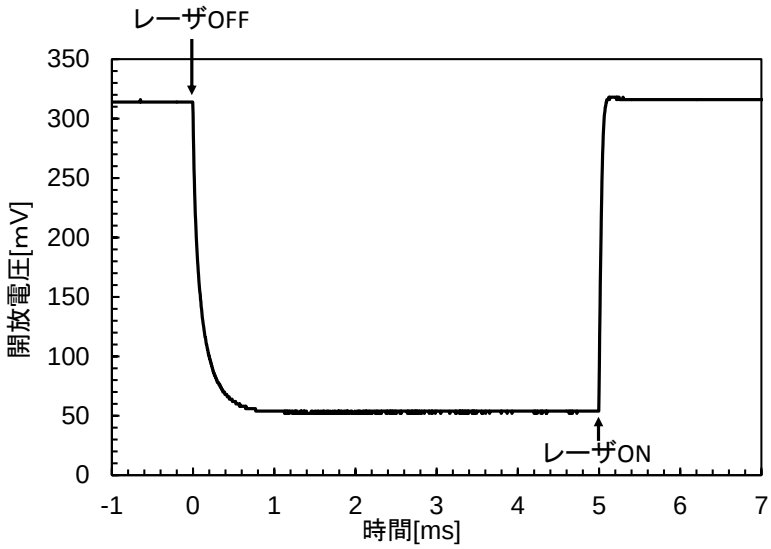


図 3.50　レーザを OFF/ON した時の太陽電池の開放電圧の変化

レーザ強度を変調することにより、それに同期して磁気信号が変調される場合には、ロックインアンプを用いることで、信号の SN 比を向上させることができる。他に、レーザを変調することの利点としては、オフセットの除去が可能な点である。通常の走査型 SQUID 磁気顕微鏡では、測定磁気信号に含まれるオフセットを取り除けないため、磁気信号の強度変化については測定できるが、絶対的な磁場強度については知ることができない。しかし、レーザを照射することで磁場が生成される場合には、レーザを変調して磁気信号を変調させ、磁気信号の振幅を測定することにより、オフセットを完全に取り除くことが可能となり、レーザに起因する磁場強度について評価することができる。

ロックインアンプは、参照信号周波数の基準信号を測定信号と掛け合わせ、基準信号と同じ周波数成分を DC へダウンコンバージョンし、狭帯域のローパスフィルタを掛けることで、基準信号と同じ周波数成分の強度を出力するものである。ノイズは、ローパスフィルタの帯域幅を狭めるほど減らすことができ、ロックインアンプの等価雑音帯域幅B_Nは、時定数τによって次式による関係で決まる。ここでは、減衰傾度を 24 dB/oct の場合を示している。

$$B_N[\mathrm{Hz}] = \frac{1}{32 \times \tau[\mathrm{sec}]} \tag{3.7}$$

電圧ノイズV_nが周波数によらず一定の場合には、ロックインアンプから出力される信号の実効値V_mと、B_Nの関係は次式のようになっている。

$$V_m = V_n \times \sqrt{B_N} \tag{3.8}$$

従って、ノイズを 1/10 にするには、時定数を 100 倍にする必要がある。したがって、時定数τを大きくするほど、ロックインアンプの等価雑音帯域幅を狭めることができる。ここで、

ロックインアンプの帯域制限フィルタのステップ応答は次式で表されるように、時定数や減衰傾度に依存する。

$$y(t) = 1 - \left\{ \sum_{n=1}^{m} \frac{t^{n-1}}{\tau^{n-1}(n-1)!} \right\} \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \tag{3.9}$$

ここで、m = 1、2、3、4 は、それぞれ、減衰傾度 6、12、18、24 dB/oct に対応している。従って、時定数τを大きくするほど、応答時間が長くなってしまい、1 画素あたりの測定に最低限必要な時間が長くなることを意味する。式(3.9)より、ロックインアンプの出力が最終的な応答の 90%に達するまでに、6.7τの時間を要する。

従って、測定の際には、走査速度を遅くし、1 点の測定時間を長く取る必要がある。図 3.51 に、ロックインアンプを用いた効果を示す。ロックインアンプを用いることで、SN 比が上がると同時に、オフセットノイズもなくすことができることが示されている。(a)のロックインアンプ不使用時には、オフセットそそろえるために、データの右端がゼロとなるような処理を加えているが、それでも、1 ラインスキャンする間にオフセットが変動するので、ラインが見えている。それに対し、(b)のロックインアンプを使用した場合には、ノイズが見えない程度まで低減されている。

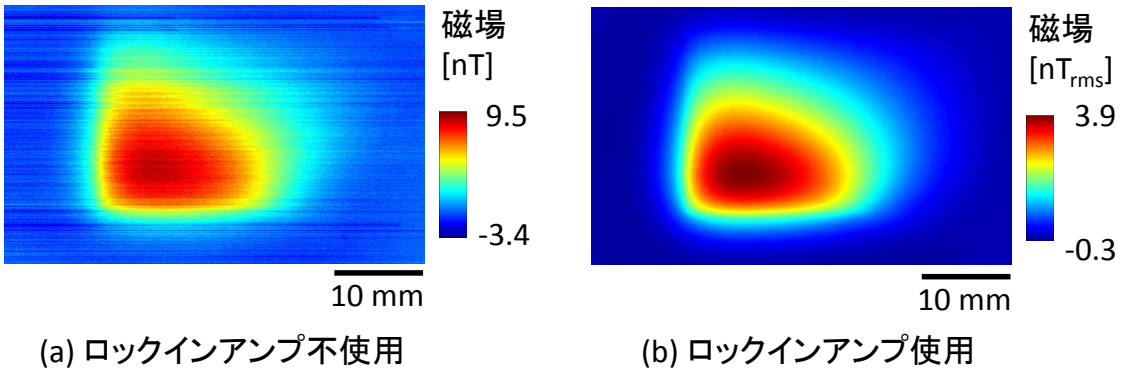


図 3.51　ロックインアンプによる SN 比の改善例

走査範囲が狭く、もともとの SN 比がそれほど低くはない場合については、時定数を小さくし、走査速度をに十分に遅くすることでロックインアンプによる平均化を無視できる。例えば、時定数を 1 ms にし、走査速度を 0.5 mm/sec にすると、平均化時間6.7τ分進む距離は、3.35 μm となり、4 μm の測定間隔であれば、ロックインアンプの平均化を無視することができる。一方で、走査速度が広く、ノイズが多い場合には、時定数を大きく取る必要があるにもかかわらず、走査範囲が広いため走査速度を上げざるを得なくなる。例えば、時定数を 100 ms にし、走査速度を 5 mm/sec にすると、平均化時間6.7τの間に試料が進む距離は、3.35 mm であり、50 μm の測定間隔だと 67 ピクセルにわたって、平均化の影響が出てしまう。そのような場合には、信号がロックインアンプの応答関数で畳み込まれてしまう形になる。ロックインアンプの応答関数は、図 3.52 に示すような測定系を用いて、

正弦波のパルスを入力し、ロックインアンプの出力を記録することで得ることができる。そのようにして得たロックインアンプのインパルス応答関数は図 3.53 のように、時間遅れ系の関数となっている。このグラフの縦軸は$1/\tau$で規格化し、横軸はτで規格化している。

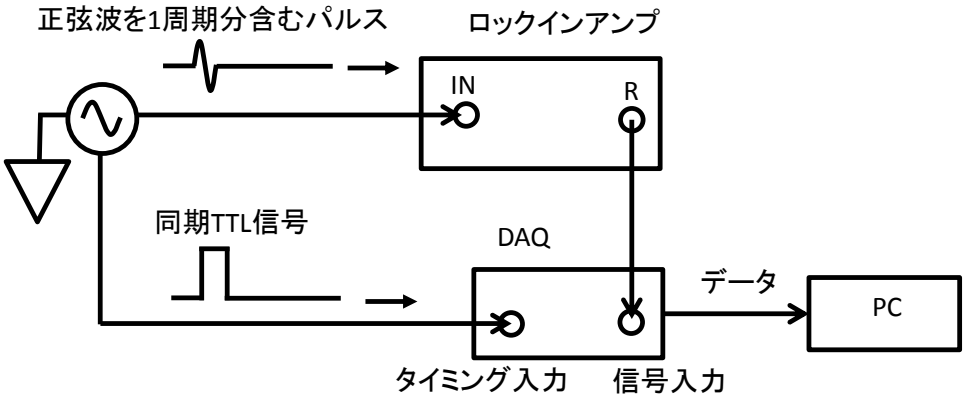


図 3.52　ロックインアンプのインパルス応答関数の測定系

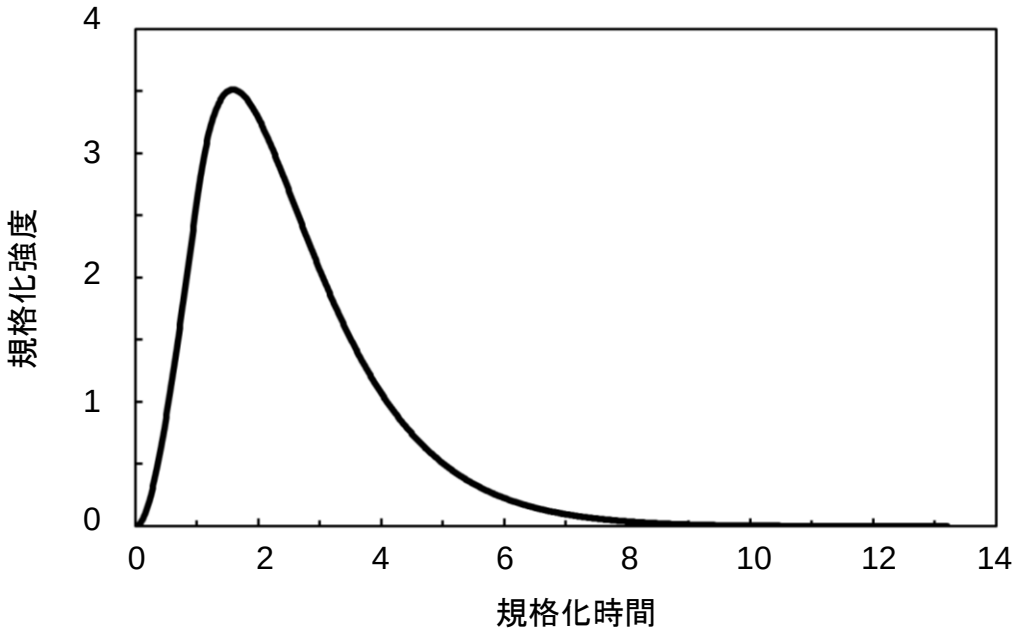


図 3.53　ロックインアンプの応答関数

離散時間信号のロックインアンプの応答関数を$R(t)$、信号を$S(t)$、畳み込まれた信号を$C(t)$とすると、離散時間信号の畳み込みは次式で表される[50]。

$$C = R * S = \sum_{k=1}^{N} S_{j-k} R_k \tag{3.10}$$

畳み込みは、スペクトル領域ではそれぞれを別々に FFT したものの単純な積の形にかけるので、式(3.7)は次のようになる。

$$c_k = s_k r_k \tag{3.11}$$

ここで、真の信号s_kを得るためには、次式のように畳み込まれた信号をロックインアンプの応答関数で除すればよい。

$$s_k = \frac{c_k}{r_k} \tag{3.12}$$

さらに、これを逆 FFT することで、元の信号$S(t)$を得ることができる。ただし、これは、数学上の話であって、実際にはノイズが入っており、数学的に正しくても、その結果は、ノイズに埋もれる場合がある。したがって、ノイズ成分除去のために、ローパスフィルタを掛けることで、元の信号$S(t)$に近いものを得ることができる。この処理は、リスト 3.1 に示すように、MATLAB を用いてプログラミングした。

このプログラムにおいては、あらかじめ、変数 outou にロックインアンプの規格化された応答関数を格納しておく。変数 A に処理するデータを入れると、C に処理後のデータが出力される仕組みである。往復するスキャンデータを処理するために、最初に、A を時間軸順に並び替えておく。

このプログラムを利用して、実際にロックインアンプによる遅れを補償した例を図 3.54 に示す。この測定結果では、走査ラインごとに方向が＋x 方向と－x 方向に互い違いのデータであったため、(a)に示すように、ラインごとに、遅れの方向が異なる。これを、補償したものを(b)に示す。うまく補正できていることがわかる。これは、空間周波数の低い磁場分布であったが、空間周波数の高いものも含まれる磁場分布の場合には、カットオフ周波数を低くすると影響が出てくる。これを図 3.55 に示す。空間周波数の高い磁場分布を含む場合には、この方法に頼るには限界があることがわかる。その場合には、走査速度を落とさざるを得ない。

```
dx=25e-6;  tau=0.3;  vel=0.5e-3;  kmax=0.5/2/dx;
de00=A;  de00(2:2:end,:)=A(2:2:end,end:-1:1);    A=de00;    clear de00;
de11=[outou(:,1)*(tau*vel), outou(:,2)*dx/(tau*vel)];
de12=(0:dx:de11(end,1))';        de16=zeros(length(de12),1);
for de13=1:length(de12);
    [de15,de14]=max(1./(de12(de13)-de11(:,1)));      de16(de13)=de14;
end
clear de13 de14 de15;
de17=de16+1;    de11=[de11; de11(end,1)+de11(2,1), 0];
de18=[de12, (de11(de16,2).*(de11(de17,1)-de12)+de11(de17,2)   →
.*(de12-de11(de16,1)))./(de11(de17,1)-de11(de16,1))];
clear de11 de12 de16 de17;
de21=size(de18,1);    de22=size(A,2);
if de21<=de22;    de23=2^(ceil(log2(de22))+1);
else              de23=2^(ceil(log2(de21))+1);   end;
clear de21 de22;
de24=[de18(:,2);zeros(de23-size(de18,1),1)];          clear de18;
de26=[A,zeros(size(A,1),de23-size(A,2))];
de27=fft(de24);  de28=fft(de26')';        clear de24 de26;
de31=1/de23/dx;    de32=[0:de31:(de23/2)*de31,(de23/2-1)*(-de31):de31:-de31];
clear de31 de23 b;
de41=ones(size(A,1),1)*de27';              clear de27;
de42=de28./de41;     clear de28 de41;    de51=abs(de32);
de52=sign(fix(kmax./de51));     clear de51;      de53=1-de52;
de54=de32.*de52+kmax*de53;                  clear de32 de52 de53;
de55=0.5+0.5*cos(pi*de54./kmax);          clear de54;
de56=ones(size(de42,1),1)*de55.*de42;  clear de42 de55;
de61=real(ifft(de56')');                  clear de56;
de62=de61(:,1:size(A,2))*10;               clear de61 A;
C=de62;  C(2:2:end,:)=de62(2:2:end,end:-1:1);     clear de62;
```

リスト 3.1　ロックインアンプの遅れ補償プログラム

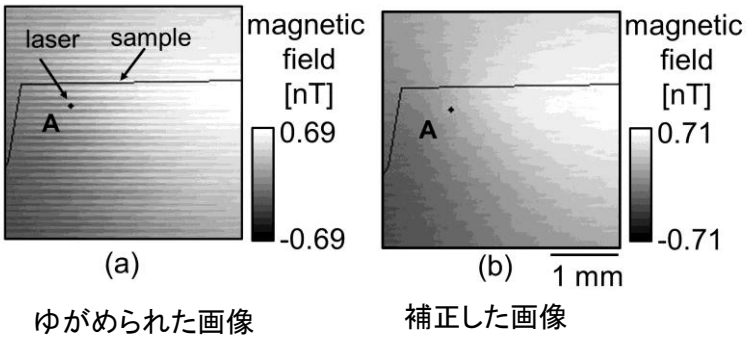


図 3.54　ロックインアンプによる影響を補償

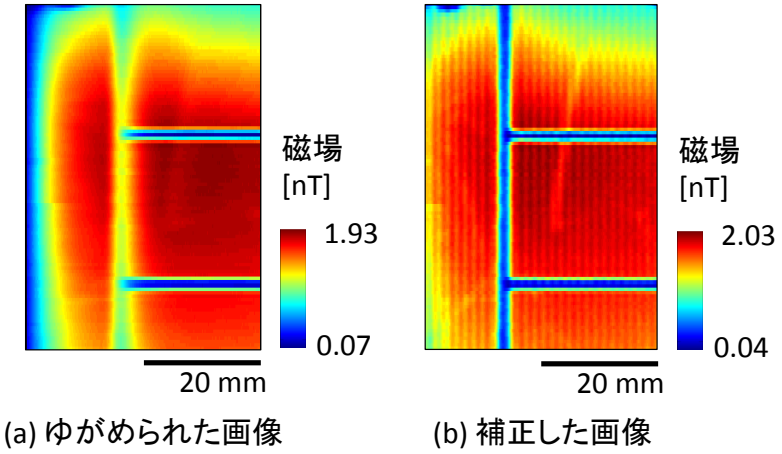


図 3.55　ロックインアンプによる影響を補償（高空間周波数を含む場合）

3.5　画像処理法

ここでは、レーザ SQUID 顕微鏡の画像処理法についてまとめる。これまでも適宜 MATLAB を用いた処理について述べてきたが、ここでは、その処理の全体の中での位置づけなどについても述べる。MATLAB は、行列計算のために開発された高級言語であり、C 言語に比べてコード数や記述する時間が 1/10 程度になる利点がある[51]。また、行列の演算や参照、行列計算が簡単にできるため、画像処理に向いた言語である。ただし、for 文などの制御文は C 言語ほど高速ではないので、なるべく for 文を使わずに、行列計算で処理する工夫が必要である。本研究では、画像処理をすべて MATLAB のプログラムにより処理した。

大まかな流れとしては、データを読み込んで各種処理を行い磁場像を得て、さらに電流推定を行う場合には、磁場像から逆問題を解くことにより、電流像を得てこれら磁場像や電流像を画像として保存する。磁場像を得るまでの処理は、ロックインアンプを使用した場合としない場合で異なる。まず、ロックインアンプを使用しない場合の磁場データを得

るまでの処理を図 3.56 に示す。測定データは csv ファイルに保存されており、これを MATLAB に行列として読み込む。このデータは、電圧値であり、電圧 - 磁場換算係数を乗することで、磁場に変換する。もし、アンプなどを使用した場合には、その増幅率も加味する。ロックインアンプを使わない場合には、磁場データには、オフセットノイズが必ず存在する。そのオフセット除去処理としては、磁場がゼロとなる所をゼロにするように全体に補正をかける。太陽電池の場合、レーザが表面電極に照射されても、電流は生じず、磁場は生じないので、表面電極を含む範囲を測定した場合には、電極部分の磁場がゼロとなるような補正を行う。また、測定時に試料のある範囲を超えて測定した場合には、試料のない部分のデータがゼロとなるように処理する。レーザ SQUID 顕微鏡としてではなく、走査型 SQUID 顕微鏡として、試料に元々存在する磁場分布を測定した場合には、この処理ができないので、絶対磁場の測定にはならない。1 ラインごとの平均値がゼロとなるように 1 ラインずつオフセットを調整するような処理は可能であるが、そのような処理の磁場像は、低空間周波成分も失われており、元の磁場分布とは異なったものになる。しかし、走査型 SQUID 磁気顕微鏡画像の処理の場合には、磁場の絶対値よりも磁場の分布の様子を知る目的のために、低空間周波数成分を除去することもある。

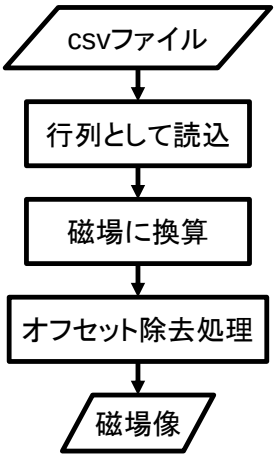
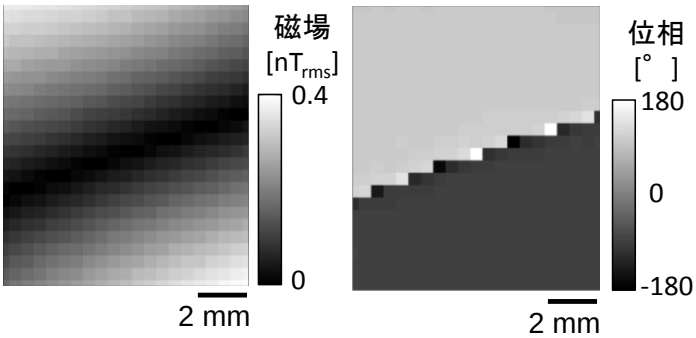


図 3.56　磁場データを得るまでの処理の流れ（ロックインアンプを使わない場合）

次に、ロックインアンプを使用する場合の画像処理法について述べる。ロックインアンプを使用することにより、レーザ変調周波数以外の周波数を持つ環境ノイズを取り除くことができる。しかし、レーザ変調周波数と全く同じ周波数を持つノイズは、取り除くことはできない。たとえば、レーザを変調するための装置から生じるノイズがそれにあたる。本研究では、ライトチョッパを用いてレーザを変調したが、ライトチョッパを磁気シールドの直下に配置したため、ライトチョッパの駆動モータやフォトダイオードの信号線などから生じる磁場が SQUID で検出されていた。これは、ライトチョッパをシールドから十分遠ざけることで回避できる。しかし、本研究で使用したライトチョッパから生じる磁気信

号強度は時間的に変化しなかったため、データ処理で取り除けると判断し、ライトチョッパを磁気シールド直下に配置した構成とした。ただし、ライトチョッパから生じる磁気信号は、SQUID との位置関係が変わると変化する。ライトチョッパから生じる磁場分布を図 3.57 に示す。この磁場分布は、ライトチョッパを ON 状態、レーザを OFF 状態で測定し、ライトチョッパに対し、SQUID を磁気シールドごと移動させることで得た。図 3.57 (b)では、中央付近を斜めに横切るように、位相が 180°変化する境界があり、この境界を境に磁気信号の位相が反転している。レーザ SQUID 顕微鏡の測定中は、試料のみが走査し、SQUID とライトチョッパの位置関係は変わらないので、ライトチョッパからの磁気信号は一定に保たれる。このような、レーザ励起と関係ないが、周波数がレーザ変調周波数と同じで、その信号強度が時間的に変動しない磁気信号をレーザ SQUID 顕微鏡画像から取り除くため、図 3.58(a)に示すような処理を行った。



(a) 磁場強度(R)画像　　(b) 位相(θ)画像

図 3.57　ライトチョッパによる磁場分布

ここでロックインアンプから出力されるデータについて確認しておく。デジタルロックインアンプからは、参照信号と同じ周波数を持つ信号の強度$R_{out}(t)$と位相$\theta_{out}(t)$の組で出力するか、参照信号と同じ周波数を持つ信号の内、参照信号と同じ位相を持つ成分$X_{out}(t)$と参照信号と 90°ずれた位相を持つ成分$Y_{out}(t)$の組で出力する。どちらの組も同じ情報を含んでおり、それらの関係は、次式のようになっている。

$$X_{out}(t) = R_{out}(t)\cos\left(\theta_{out}(t)\right) \tag{3.13}$$

$$Y_{out}(t) = R_{out}(t)\sin\left(\theta_{out}(t)\right) \tag{3.14}$$

ロックインアンプに位相が一定で、強度が時間的に変化する信号$S(t) = R_S(t)\sin(\omega t + \alpha)$と、同じ周波数で強度や位相が変化しない信号$N(t) = R_N \sin(\omega t + \beta)$の足しあわせが入力されたとする。これを$I(t)$とすると、次式のように書ける。

$$\begin{aligned} I(t) &= S(t) + N(t) \\ &= R_S(t)\sin(\omega t + \alpha) + R_N \sin(\omega t + \beta) \end{aligned} \tag{3.15}$$

これを、XとYの表記に改めると次式のようになる。

$$I(t) = X_S(t)\sin(\omega t) + Y_S(t)\sin\left(\omega t + \frac{\pi}{2}\right) + X_N\sin(\omega t) + Y_N\sin\left(\omega t + \frac{\pi}{2}\right)$$
$$= (X_S(t) + X_N)\sin(\omega t) + (Y_S(t) + Y_N)\sin\left(\omega t + \frac{\pi}{2}\right) \tag{3.16}$$

その場合に、ロックインアンプから出力されるのは、

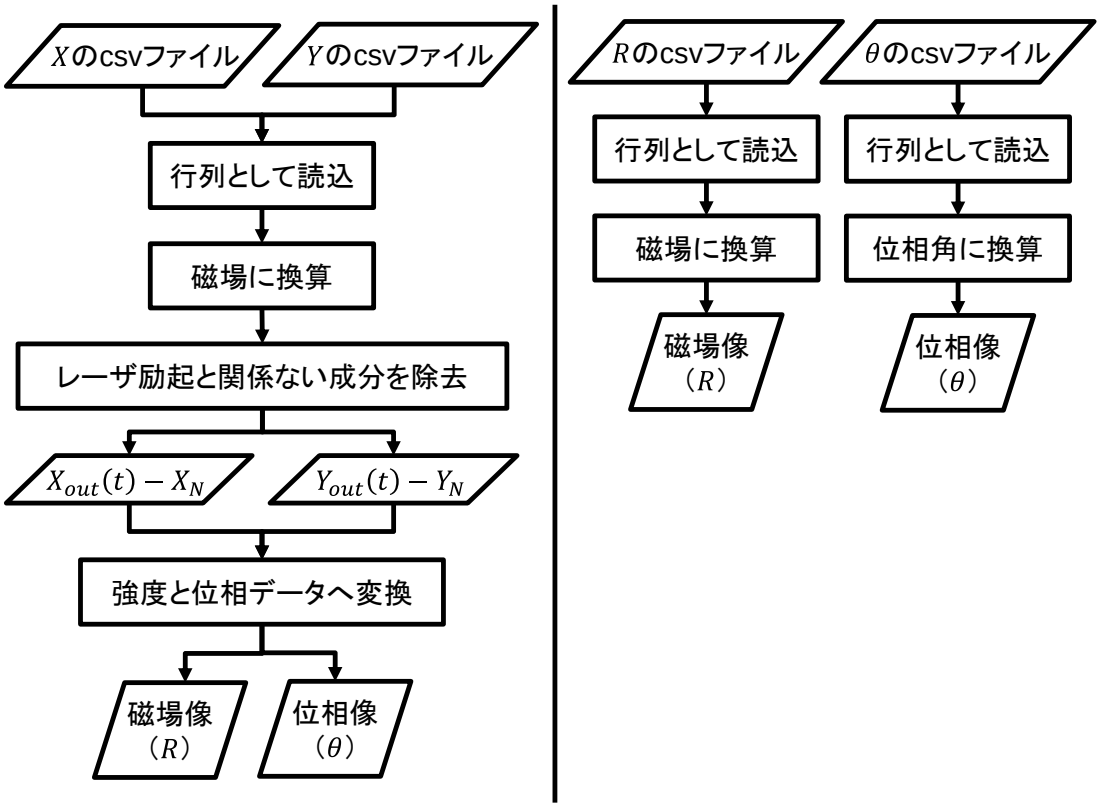
$$X_{out}(t) = X_S(t) + X_N \tag{3.17}$$

$$Y_{out}(t) = Y_S(t) + Y_N \tag{3.18}$$

となり、単純な加算となっている。したがって、時間的に変動する信号成分を得るには、次式のようにロックインアンプの出力$X_{out}(t)$, $Y_{out}(t)$ から時間的に変動しない信号を引けばよい。

$$X_S(t) = X_{out}(t) - X_N \tag{3.19}$$

$$Y_S(t) = Y_{out}(t) - Y_N \tag{3.20}$$



(a) レーザ励起と関係ない成分が含まれる場合　　(b) レーザ励起磁気信号のみの場合

図 3.58　磁場データを得るまでの処理前半（ロックインアンプを使う場合）

時間的に変動する信号のXとYのデータが得られたら、次式に従って、Rとθに変換する。

$$R_S(t) = \sqrt{X_S(t)^2 + Y_S(t)^2} \tag{3.21}$$

$$\theta_S(t) = \tan^{-1}\frac{Y_S(t)}{X_S(t)} \tag{3.22}$$

ライトチョッパからの磁気信号が混入しない場合には、図 3.58(b)のように、ロックインアンプからRとθの情報を出力させ、その電圧情報を MATLAB で磁場と位相情報に変換して、Rとθのデータを得るので、処理が短縮される。

図 3.58 の処理で得たRとθのデータから、磁場データを得るまでの処理を図 3.59 に示す。位相の調整では、信号と基準信号のずれを表す位相αが重要である。θのデータが 0°あるいは 180°になるようにαを調整すればよく、調整が必要なときには現在のθの値分をαからを差し引くように調整すればよい。ただ、θにもノイズがあり、そのノイズは測定範囲全体で均一ではない。測定範囲全体で最適なαを決めるには、αを変えながら、Rとθのデータから、$R\cos(\theta+\alpha)$と$R\sin(\theta+\alpha)$を求め、$R\sin(\theta+\alpha) \approx 0$となり、かつ$R\cos(\theta+\alpha)$だけが有意な値を持つように調整を行えばよい。このように調整した$R\cos(\theta+\alpha)$が磁場データとなる。ただし、ロックインアンプの時定数 τ に対し、1 点のサンプリング時間を十分長く取れない場合には、ロックインアンプの応答関数で信号が畳み込まれて出力され、遅れが生じる。しかし、3.4 章で述べた手法により、ロックインアンプによる遅れを補償し、より正確な磁場データを得ることができる。レーザ走査法では、この磁場データが最終的なデータとなるが、レーザ固定法では、磁場データから電流データを推定する作業が可能である。図 3.60 に、磁場データから電流データへの推定変換処理手順を示す。レーザ走査法で得た画像では試料の形状がはっきりわかるが、レーザ固定法による測定で得た画像ではわからないので、試料の位置や電極の配置、レーザ照射位置などを磁場データおよび電流像データに表示させる処理も追加した。この処理により、適宜、試料の位置等を表示させた画像を保存できるようにした。この処理では、試料の形状や電極に関する座標、レーザ照射位置に関する位置座標を事前の測定から取得しておき、その座標データに基づいて情報を付加する処理を行っている。

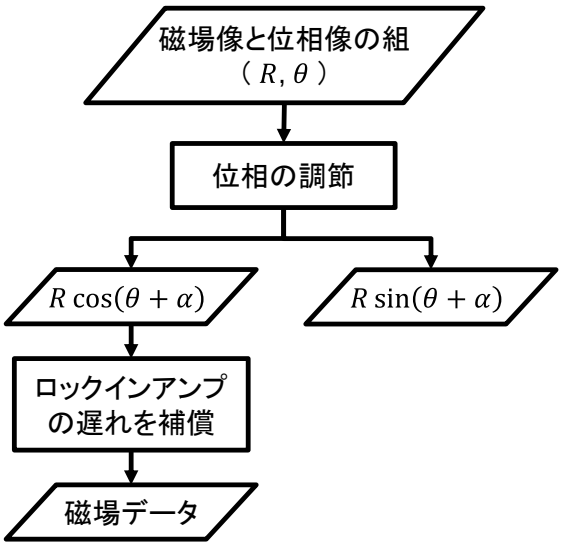


図 3.59　磁場データを得るまでの処理後半（ロックインアンプを使う場合）

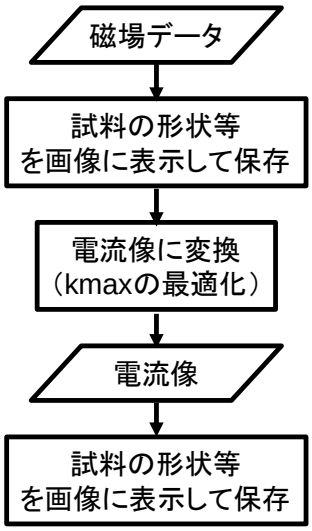


図 3.60　磁場データを得てからの処理

3.6　まとめ

第 3 章では、レーザ SQUID 顕微鏡装置構成について機能別に説明した。まず、全体構成について述べたのち、大気中、室温下にある試料に対し高空間分解能で磁場分布を得るためニードル付走査型 SQUID 顕微鏡部分の開発について述べた。

その際に、ニードルと SQUID のピックアップループとの結合に関して、ピックアップループの内径依存性等を電磁シミュレータ Opera-3d により調べ内径が 3 mm の時に結合率が高くなることを示した。その際に、ニードルの太さと伝達係数に関して得た知見を参考に、

ニードルを設計した。空間分解能を決めるニードルの先端径については、試料の厚み程度の、0.1 mm 程度とした。

電磁シミュレーションで得られた結果に基づき、直接連結型 SQUID の設計・作製・評価を行い、I_C＝53 μA、磁場 - 電圧特性の変調振幅 V_{pp}＝20.6 μV の素子を得た。SQUID を冷却保持用のデュワーに実装し、さらに環境ノイズ低減のため、3 重磁気シールドボックス内に設置したところ、システムノイズは、0.62 $pT_{rms}/Hz^{1/2}$ となった。さらに、サンプル走査機構や制御プログラムを開発し、ニードル付走査型 SQUID 顕微鏡を開発した。

次に、レーザ光学系を開発した。レーザ走査法とレーザ固定法による光学系を開発し、400 nm～780 nm 程度までは十分に使える光学系を開発した。1065 nm の光学系も別途用意し、405 nm、780 nm、1065 nm の 3 つの波長でレーザ SQUID 顕微鏡を開発できた。

レーザ励起磁場は、レーザによって変調でき、ロックインアンプを用いれば、SN 比を大幅に改善することができる。また、環境ノイズの除去も行えることから、ロックインアンプの使用を検討し、ロックインアンプを使用した場合に、ノイズが低減できることを示した。しかし、1 点のサンプリング時間がロックインアンプの時定数よりも十分に長くない場合には、ロックインアンプにより信号に遅れが生じるが、それは、ロックインアンプの応答関数で逆畳み込み処理を行えば、補正できることを示した。

最後に、レーザ SQUID 顕微鏡で得られる磁気画像の処理方法についてまとめた。

第4章　レーザ SQUID 顕微鏡の基本的性能評価

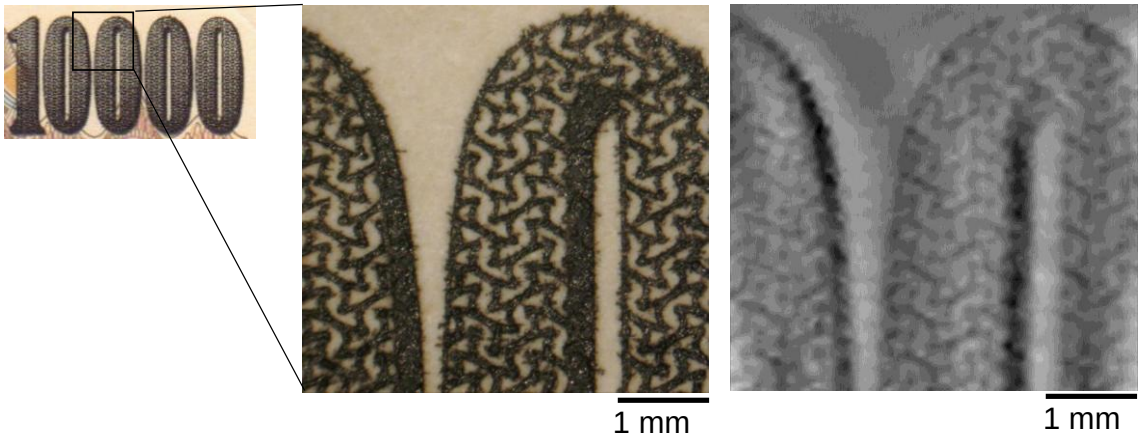
開発したレーザ SQUID 顕微鏡の基本的な性能評価をまとめた。最初に、走査型 SQUID 顕微鏡機能について確認したのち、レーザ SQUID 顕微鏡のレーザの特性や空間分解能についてまとめ、最後に各種サンプルを探索的に測定した結果について述べる。

4.1　走査型 SQUID 顕微鏡機能の評価

本研究では、大気中・室温下の試料に対し、高空間分解能な磁場像が得られるように、ニードル付走査型 SQUID 顕微鏡を開発した。3.2.1 章で設計したニードルの先端径は 0.1 mm であり、その程度の空間分解能が得られることが期待される。分解能を評価するために、細かい磁場分布のある紙幣を試料として測定を行った。

まず、紙幣を 1.3 T の磁石の間を通すことで垂直方向に磁化させた。磁化の方向としては、紙幣の裏側が N 極、表側が S 極となっている。SQUID の極性は、N 極に対しプラスの信号、S 極に対しマイナスの信号となるので、紙幣の磁気インクを SQUID で観察すると、磁気インク部分の信号がマイナス側に出ることになる。

図 4.1(a)にあるような、一万円札の表側右上の数字の部分を測定した。測定パラメータは表 4.1 のようになっている。その結果を、図 4.1(b)に示す。このデータは磁場の絶対値を表しているものではなく、低空間周波数成分をデジタル処理で取り除き、磁気インクの模様を見やすくしたものである。この磁気インクの幅はおよそ 0.1 mm であり、磁気像も同様な模様を識別できることから、分解能として 0.1 mm 程度あることがわかる。



(a) 紙幣の一部の光学顕微鏡像　　(b) 磁場像

図 4.1　測定した一万円札と磁気像

表 4.1　測定パラメータ

測定範囲	測定間隔		走査速度
	x	y	
4650×4950 μm²	0.4 μm	50 μm	0.5 mm/sec

次に、ミアンダラインに電流を流した時に生じる磁場分布の測定を行った。図 4.2 に、測定を行ったミアンダラインの形を示す。線幅が 0.3 mm で、線と線の間の空白部分については、左側の 10 本が 0.5 mm の空白で、右側の 12 本が 0.3 mm の空白を空けて並んでいる。このミアンダラインの中央部を右から左に横切るようにラインスキャンした。これは、紙幣の残留磁気の測定とは異なり、流す電流を変調することで、磁場を変調させることができ、ロックインアンプを用いて、電流に関係のある磁場のみを得ることができる。図 4.3 に実験で得たラインスキャンデータを示す。実験では、ミアンダラインによる周期的な磁場が捉えられている。

ニードルは、ミアンダラインから 20 μm 程度離れているだけであるので、本来であれば、ミアンダラインの線の端付近に鋭いピークがみられるはずであるが、そうなってはいない。そこで、実験データを理論式にフィッティングさせることを検討した。y軸に沿ってy方向へ流れる直線電流から生じる磁場は次式のように表せる。

$$B_z(x,y,z) = -\frac{\mu_0 I}{2\pi}\frac{x}{x^2+z^2} \tag{4.1}$$

ミアンダラインを直線電流が並んでいるものと近似し、その直線電流は$z=0$のxy平面に存在してy方向に並んでいるものとする。k番目の直線電流のx座標を$x=x_k$とし、奇数番目はy方向へ流れ、偶数番目は、$-$y方向に流れているとすると、磁場のz成分は、次式のように書ける。

$$B_z(x,y,z) = \frac{\mu_0 I}{2\pi}\sum_{k=1}^{n}(-1)^k\frac{x-x_k}{(x-x_k)^2+z^2} \tag{4.2}$$

この式を用いて、経験則的になるが、$z=1$ mmと$z=7$ mmの場合の理論的なラインスキャンデータに適当な係数を掛けて足しあわせると実験データに近づけられた。それを、図 4.4 に示す。その時足しあわせる前の各磁場分布もグラフに示してある。このことから、SQUID でとらえる磁場分布が、ニードル先端の磁場分布だけではなく、SQUID 付近でも磁場分布も捉えられ、両者の合算となっているといえる。このように、ニードルを使用することで、空間分解能を高くすることができるが、ニードルと SQUID によって磁場分布が畳み込まれると考えられ、正確な磁場分布の評価にはニードルと SQUID の応答関数を知る必要があり、解析が難しくなっている原因の一つである。

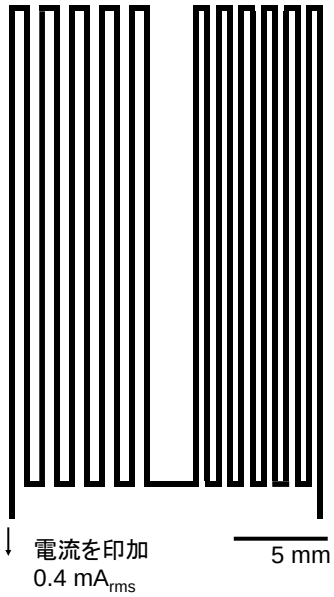


図 4.2　測定したミアンダライン

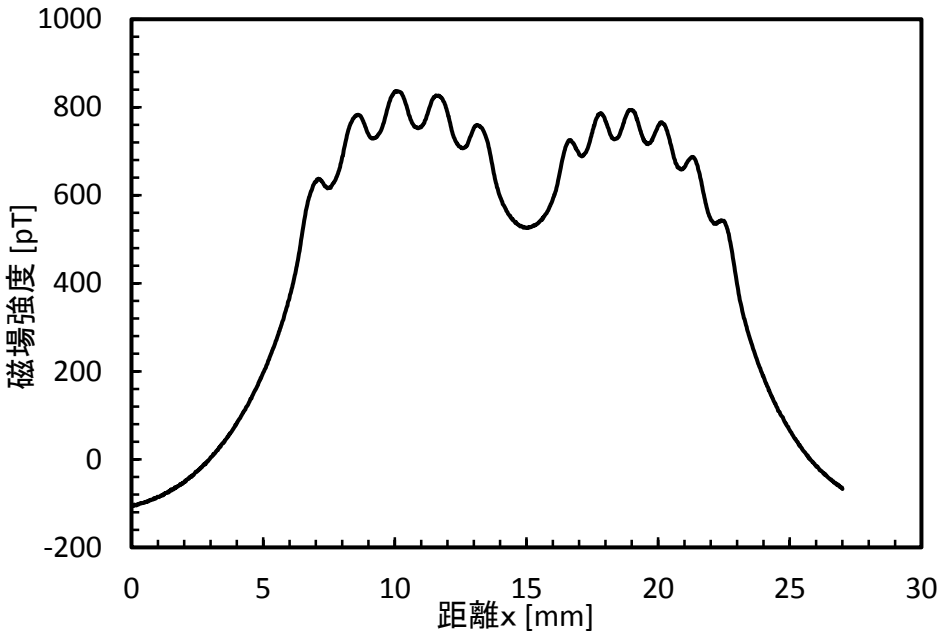


図 4.3　ミアンダラインを横切るラインスキャンデータ（電流値 0.4 mA$_{rms}$）

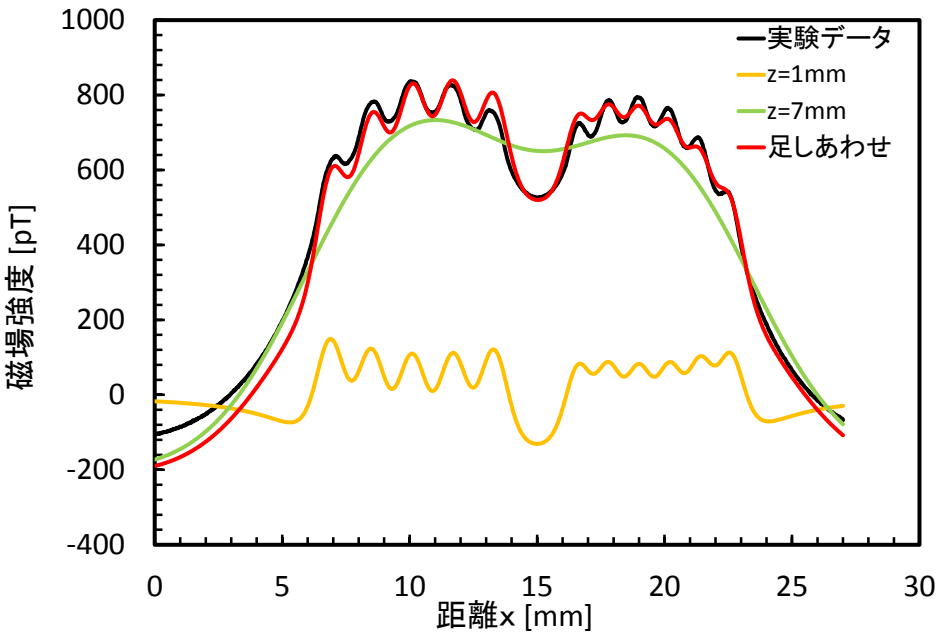


図 4.4　ミアンダラインを横切るラインスキャンデータ

4.2　使用したレーザの特性

ここでは、測定上重要な、レーザの変調波形とスポットサイズの確認を行った。変調波形は、ロックインアンプを使用して得たデータを単位換算する際に重要である。ロックインアンプでは、信号の実効値V_{rms}が測定されるが、変調波形が正弦波ならば、実効値V_{rms}とpeak-to-peak 値$V_{\mathrm{p-p}}$との関係は、$V_{\mathrm{p-p}} = 2\sqrt{2}V_{\mathrm{rms}}$である。一方、変調波形が方形波の場合には、$V_{\mathrm{p-p}} = 2V_{\mathrm{rms}}$であり、三角波では、$V_{\mathrm{p-p}} = 2\sqrt{3}V_{\mathrm{rms}}$となる。レーザの変調波形は、サンプルの位置にフォトメータ（Digital Photometer、Industrial Fiber Optics, Inc.）を固定し、レーザを変調させたときの、フォトメータの出力を記録した。

レーザスポットサイズは、レーザ SQUID 顕微鏡の空間分解能を決めるので、その値を知ることは重要である。スポットサイズの評価は、ナイフエッジ法を用いた。これは、光パワーメータにレーザが照射させて、レーザのビームサイズを測定したい位置において、レーザ光を横切るように、平らな薄い遮蔽物を挿入すると、パワーメータの出力値が遮蔽された分だけ減少することを利用している。その変化の最小値と最大値を 0 と 1 に規格化し、規格化したパワーが 0.9 から 0.1 に変化するまでに遮蔽物が移動した量をlとすると、レーザビームサイズは、次式で表される。ここで、ビームサイズとは、レーザの強度が中心に比べて、$1/e^2$になる直径である。

$$\phi = 1.561 \times l \tag{4.3}$$

ただし、高次横モードが含まれる場合には、規格化パワーが 0.84 から 0.16 に変化するまでの遮蔽物の移動量lを測定することで、次式で求まる。

$$\phi = 2 \times l \tag{4.4}$$

実験的には、フォトメータのセンサ部の一部をアルミ箔で隠しておき、アルミ箔部分にレーザを集光する。そして、レーザスポット全てが、センサ部に照射されるまで動かすことでレーザ光強度の変化を測定した。

405 nm のレーザ（PhoxX 405-60、60mW、Omicron-Laserage Laserprodukte GmbH）の 1 kHz での変調波形は、図 4.5 のように、方形波であった。このレーザには、アナログ変調機能（DC～3 MHz）やデジタル変調機能（DC～180 MHz）が内蔵されているが、これらの変調機能を使う場合には、出力レベルを最低にしても、0.17 mW のレーザが出力されている状態であり、低パワーの出力時には消光比が低くなってしまう。そのため、LD（Laser Diode）の駆動回路の電源を OFF できる Enable 変調（DC～150 kHz）を使うことにしたため、方形波となった。図 4.5 では、1 kHz での変調波形を示している。方形波の場合、その実効値は、最大値の半分で表される。

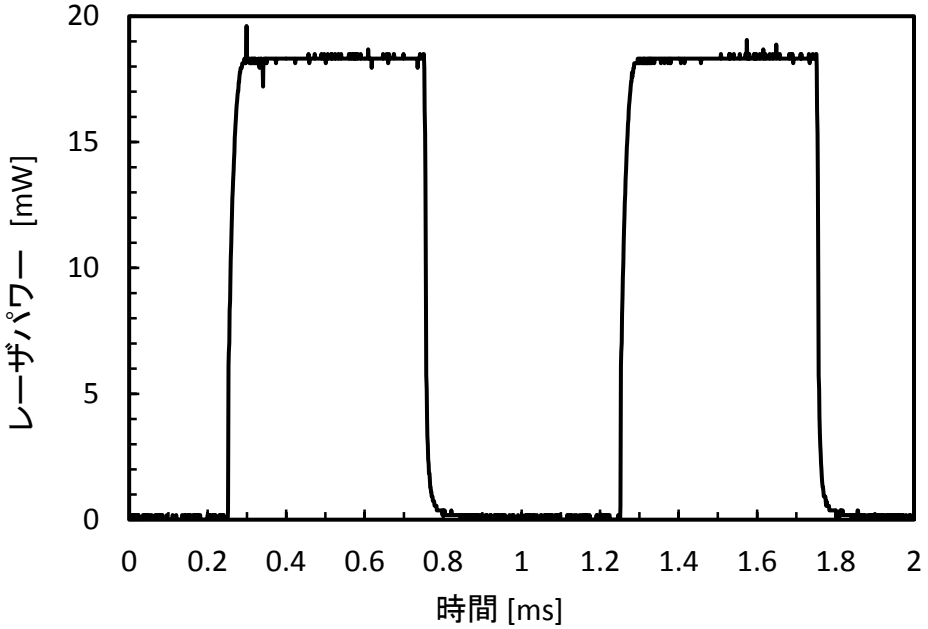


図 4.5　405 nm のレーザの変調波形

図 4.6 に、ナイフエッジ法によるレーザパワーの変化を示す。規格化レーザパワーが 0.1 から 0.9 になるまでの移動量を測定し、式(4.3)に代入することで、レーザスポットサイズ ϕ ＝14 μm を得た。780 nm レーザの場合には、ライトチョッパにより 1 kHz で変調したが、図 4.7 のような三角波となった。

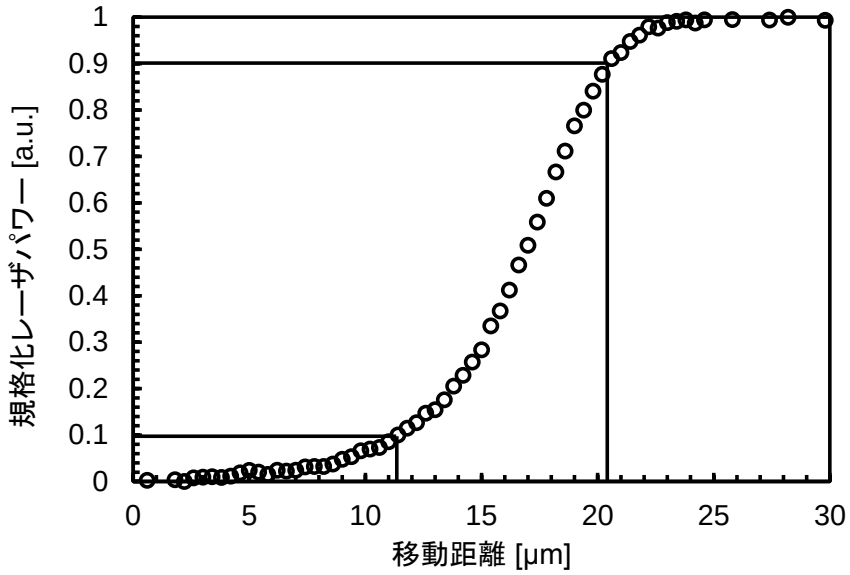


図 4.6　405 nm のレーザのスポットサイズ評価（ナイフエッジ法の波形）

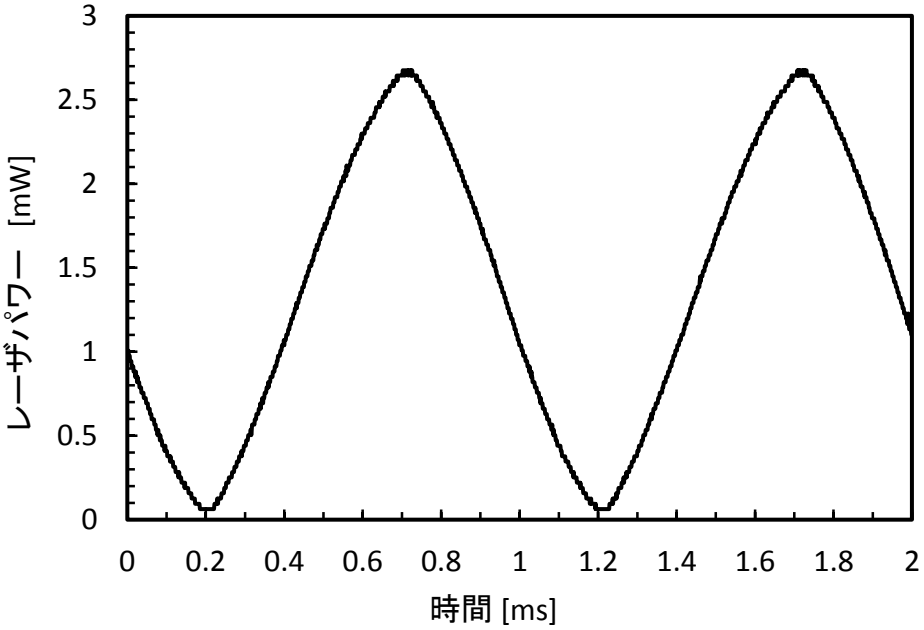


図 4.7　780 nm のレーザの変調波形

三角波になるのは、ビームサイズがライトチョッパの開口部の幅程度あるためである。780 nm のレーザのナイフエッジ法による波形を図 4.8 に示す。使用したレーザには高次横モードが含まれているため、レーザスポットサイズは、式(4.4)を用いて計算したところ、20 μm であった。

1065 nm レーザについては、変調波形は正弦波となっている。レーザスポットサイズを式(4.3)により計算すると、15 μm であった。

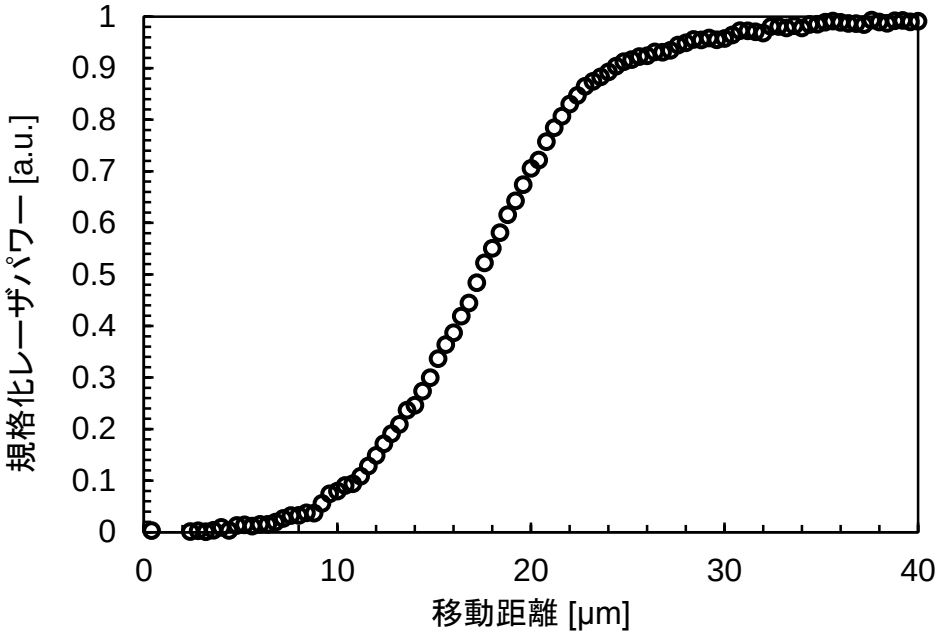


図 4.8　780 nm のレーザのスポットサイズ評価（ナイフエッジ法の波形）

4.3　空間分解能の評価

本研究では、レーザ走査法とレーザ固定法の 2 つの走査手法でのレーザ SQUID 顕微鏡を開発した。このうち、レーザ固定法では、レーザ照射点が試料に固定され、定常状態にあるので、試料内での電流経路や電流強度が測定の間、変化しない。この定常状態にある電流分布から生じる磁場分布を測定するので、空間分解能は、走査型 SQUID 顕微鏡と同様に、ニードル先端から試料間距離あるいは、ニードル先端径で決まると考えられる。4.1 章で述べたように、紙幣の磁気インクの 0.1 mm 程度の模様を確認でき、ミアンダラインに関しては、0.6 mm 間隔のピークを確認できている。レーザ固定法では、得られた磁気像を電流像に変換するが、電流像の空間分解能は、磁気像に含まれるノイズによっても制限される[11,38]。

一方で、レーザ走査法の空間分解能は、SQUID のピックアップループサイズや、試料と SQUID 間距離に依存せず、レーザスポットサイズで決まると考えられてきた[27]。ただし、レーザスポットサイズの他にも、得られる磁気画像の空間分解能には、キャリア拡散長やレーザの侵入深さなどの影響を受ける[43]。これは、レーザ励起によって生じる電子 - 正孔対の拡散領域が、本質的な観測範囲であるためである。拡散長や侵入深さは試料によって変化し、個々の場合について空間分解能を考慮する必要がある。

ここでは、レーザ走査法における、レーザスポットサイズに依存する空間分解能の評価のために、多結晶シリコン太陽電池の微細なテクスチャ構造の測定を行った。テクスチャ構造によって、レーザが反射され、角度によっては、反射率が変化することで、太陽電池

内に生じる電流強度が変化すると考えた。1065 nm の場合、レーザスポット径は 15 μm 程度であったので、この程度の分解能が期待できる。図 4.9 に測定した太陽電池を示す。レーザ SQUID 顕微鏡による測定範囲は、420×470 μm² と狭い領域の測定であり、太陽電池や電極の構造に比べて小さいので、この範囲内では、レーザ照射位置の変化に伴う電流経路の変化も少なく、単に光の反射率の変化に伴う電流強度の変動によって、磁場が変化すると考えられる。

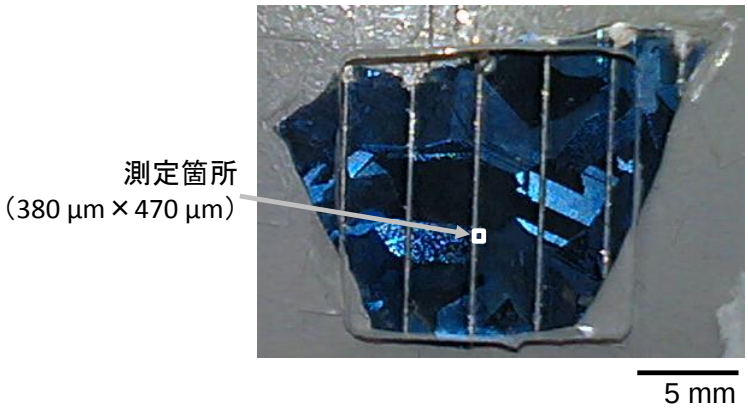
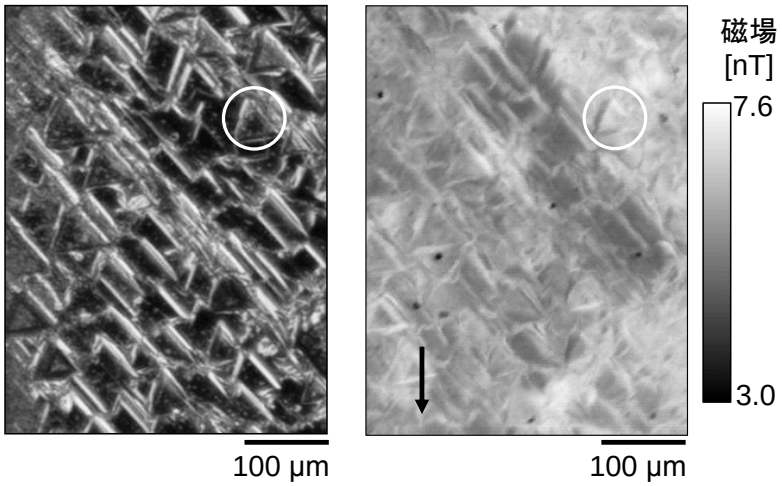


図 4.9　測定した多結晶シリコン太陽電池（アクリル製試料ホルダに固定してある）

今回は、ロックインアンプの影響をなくすため、ロックインアンプは使用せず、レーザの変調も行わなかった。その代り、測定範囲に太陽電池の電極部分を含めて、電極部分での磁場強度がゼロになるようにラインごとにオフセットの調整を行った。オフセットの調整を行い、画像から電極部分を省いた測定結果を、図 4.10(b)に示す。測定パラメータは、表 4.2 のようになっている。図中の丸印の箇所に示したように、磁場像が図 4.10(a)のテクスチャ構造を反映したものになっており、10 μm の線幅の構造が観察できた。



(a) 光学顕微鏡写真　　(b) 磁場像

図 4.10　多結晶シリコン太陽電池の測定結果。矢印で示した方向にスキャンしたラインスキャンデータを図 4.11 に示した。

表 4.2　高分解能なレーザ SQUID 顕微鏡画像測定時の測定パラメータ

レーザ		走査速度	測定間隔	
波長	パワー		x	y
1065 nm	5 mW（CW）	0.5 mm/sec	0.4 μm	1 μm

空間分解能の評価のために、図 4.10(b)において矢印で示したところのラインスキャンデータを取得した結果を図 4.11 に示す。三角形の構造の辺の部分の磁場データの半値幅が 5.5 μm であった。これは、ナイフエッジ法によって評価したレーザスポットサイズの直径が 15 μm であったので、その半分以下になっている。レーザスポットサイズは、レーザの強度が$1/e^2$になる範囲で定義されているが、ここでレーザ SQUID 顕微鏡の空間分解能は、ラインスキャンデータのピークの半値幅で定義したので、異なったのだと考えられる。

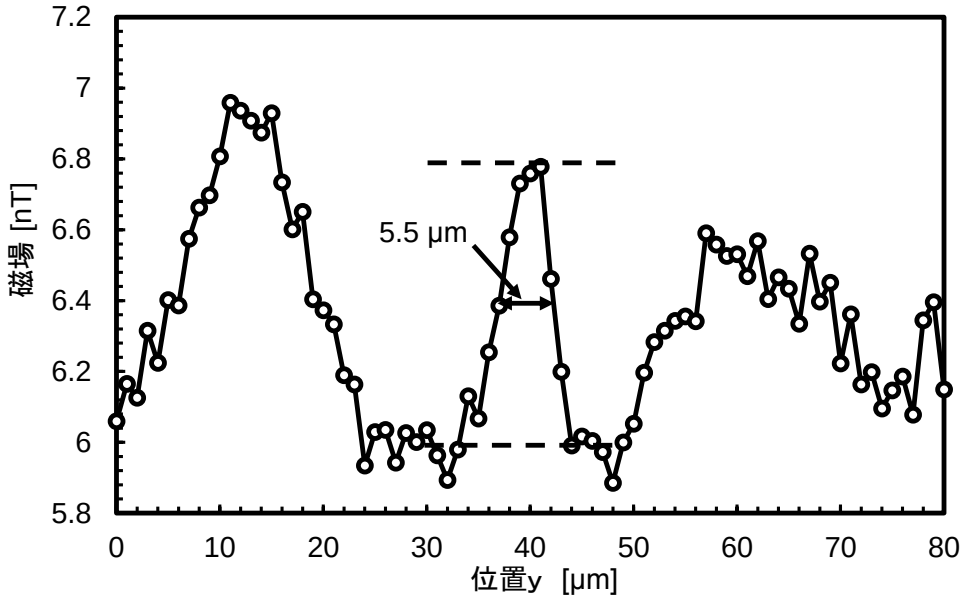


図 4.11　レーザ SQUID 顕微鏡の空間分解能

4.4　各種サンプルの探索実験

開発したレーザ SQUID 顕微鏡で評価できる試料を調べるため、いくつかサンプルを探索的に測定した。ここでは、開発したレーザ SQUID 顕微鏡（レーザ走査法）を用いて測定した際に課題があった多結晶シリコン基板、GaAs 基板、アモルファス太陽電池について述べる。また、課題を克服するためにどうすべきか検討した。

多結晶シリコン基板については、Beyer らがレーザ SQUID 顕微鏡を用いて評価を行っている[33, 45, 49]。Beyer らは、675 nm のレーザを用い、試料に対して水平方向の磁場を 2 mm の高さで取得し、その際、結晶粒界の両側で極値を持つ磁気信号が得られ、その信号レベルは、12 pT 程度であったと報告している。

開発したレーザ SQUID 顕微鏡を用いて、結晶粒界で生じる磁場を捉えるために、測定した多結晶シリコン基板（高純度科学研究所、Si 柱状晶 P 型ドープ、純度 99.999%、10×10×1 mm^3）を図 4.12(a)に示す。この多結晶シリコン基板の中央付近を表 4.3 に示したパラメータにより測定した。その際、ニードルはレーザの直上に配置した。その結果を図 4.12(b)に示す。SQUID の感度が悪いことが主因で、ノイズのみの信号であり、有意な磁場分布は得られなかった。多結晶シリコン基板の評価のためには、ニードルをレーザ直上からずらすことや、波長を短いものにして、表面での吸収率を上げるなど、引き続き検討が必要である。

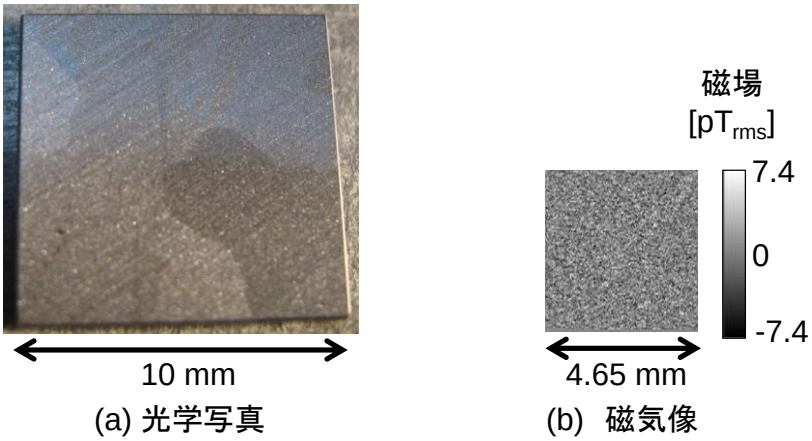


図 4.12　多結晶シリコン基板とその測定結果

表 4.3　多結晶シリコン基板の測定パラメータ

レーザ			ロックインアンプ	測定間隔		走査速度
波長	パワー	変調周波数	時定数	x	y	
1065 nm	34 mW	100 Hz	30 ms	0.4 µm	50 µm	2.5 mm/sec

GaAs 基板についても検討を行った。GaAs 基板に対しては定電圧を印加し、測定を行った。プリント基板の中央部に穴を空けて、左右で電気的なコンタクトをとれるホルダを用意した。GaAs 基板の両端を銀ペーストで接触・固定した。さらに、電圧を印加するため導線を配置した。図 4.13 に示した光学顕微鏡像で左側に電圧源を接続し、右側を接地した。20V の定電圧をかけて測定した。ニードル先端は、試料表面から高さ 80 µm のところを、レーザ照射点直上および、y 方向に±2 mm ずらした 3 つの位置で測定した。表 4.4 に測定パラメータを示す。測定結果を図 4.13 に示す。図 4.13 の光学顕微鏡像で観測された結晶粒界の一部がレーザ SQUID 顕微鏡像で反映されていると思われる。今回の測定では、電圧を印加し、電流の流れる方向を制限している。これは結晶粒界の一部には内部電界が存在するところがあり、レーザ照射により生成されたキャリアが内部電界で分離され、外部電界で伝導キャリアとして増加するため電流が増加したと考えられる。しかし、電圧印加を行わないと、磁気信号は検出できなかった。GaAs 基板の非接触評価のためには、GaAs 基板内でのレーザ励起電流について引き続き検討が必要である。

表 4.4　GaAs 基板の測定パラメータ

レーザ			ロックインアンプ	測定間隔		走査速度
波長	パワー	変調周波数	時定数	x	y	
405 nm	15 mW	1 kHz	10 ms	2.5 µm	10 µm	5 mm/sec

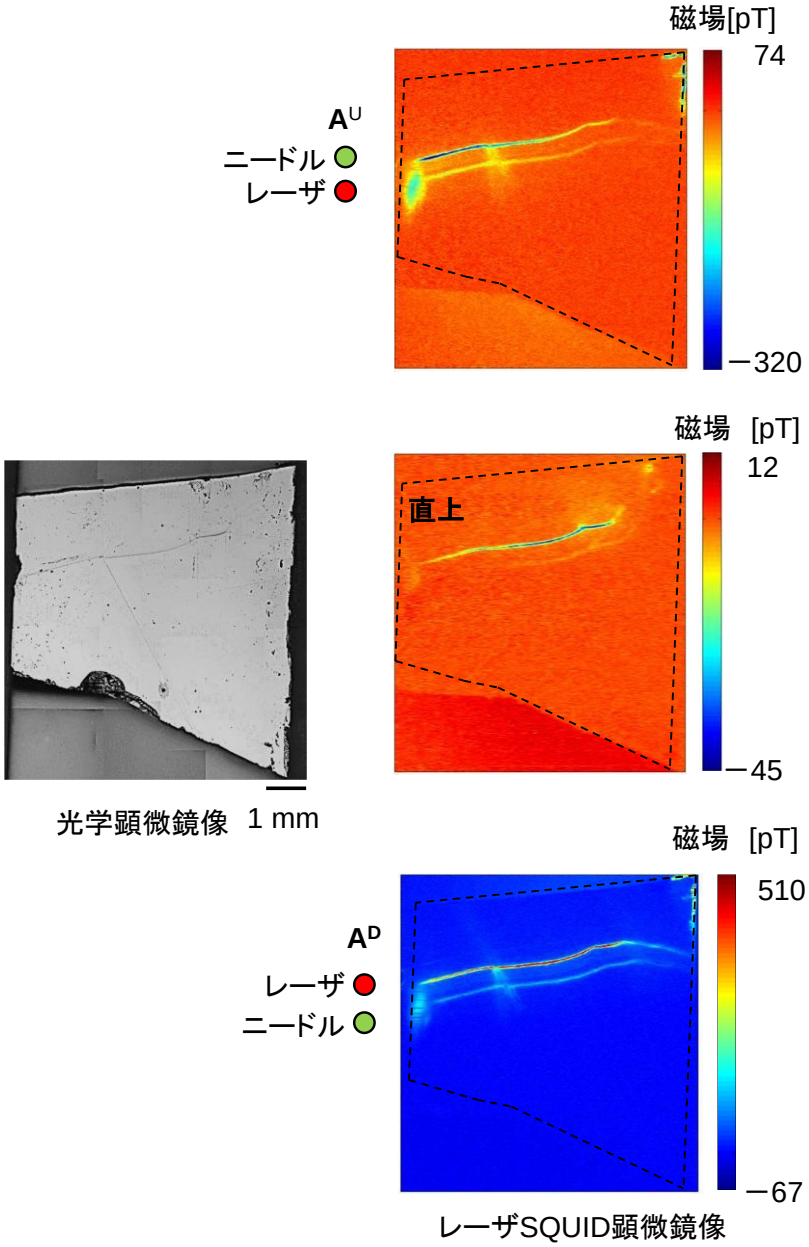


図 4.13　GaAs 基板の光学顕微鏡像とレーザ SQUID 顕微鏡像（レーザ走査法）

アモルファス太陽電池（SINONAR 製、SS-5520、55×20×1.1 [mm³]）については、図 4.14 に示すように、裏側にある電極パッドの間を導線で短絡して測定を行った。ニードル先端は、レーザ照射点から高さ 0.4 mm のところで、レーザの直上および、x または y 方向に±0.4 mm ずらして測定を行っている。その結果を図 4.15 と図 4.16 に示す。それぞれ、図 4.14 の（A）と（B）に対応する部分であるが、光学顕微鏡像も、位置を見比べるために再掲している。短絡しているため、アモルファスシリコン太陽電池の pn 接合部分にレーザ

が照射されると電流が流れ、それによって磁場が生じる。電流経路が同じであれば、電流強度の評価になるが、磁場強度がプラス側に出る部分とマイナス側に出る部分があり、電流経路が異なることが示唆されている。アモルファスシリコン太陽電池の評価のためには、磁場生成機構の理解が必要である。また、非接触評価のときには、短絡させるのではなく、開放状態に対する評価法の検討が必要である。

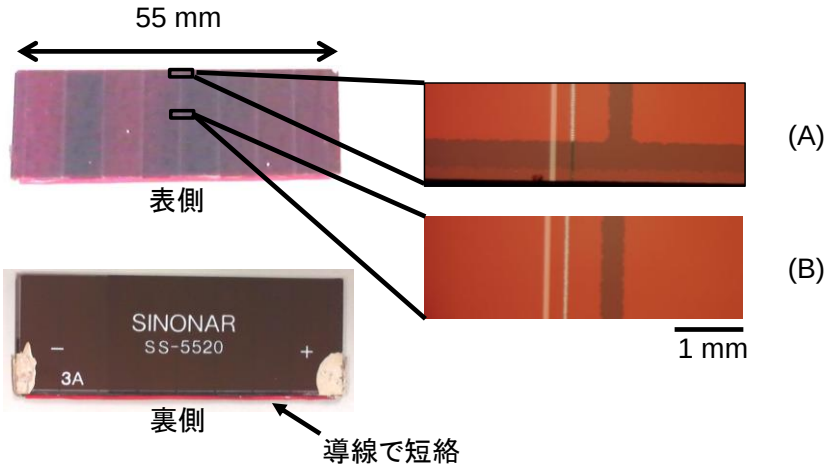


図 4.14　測定したアモルファス太陽電池の光学像

表 4.5　アモルファス太陽電池の測定パラメータ

レーザ			ロックインアンプ	測定間隔		走査速度
波長	パワー	変調周波数	時定数	x	y	
405 nm	10 mW	100 Hz	10 ms	0.4 μm	25 μm	0.5 mm/sec

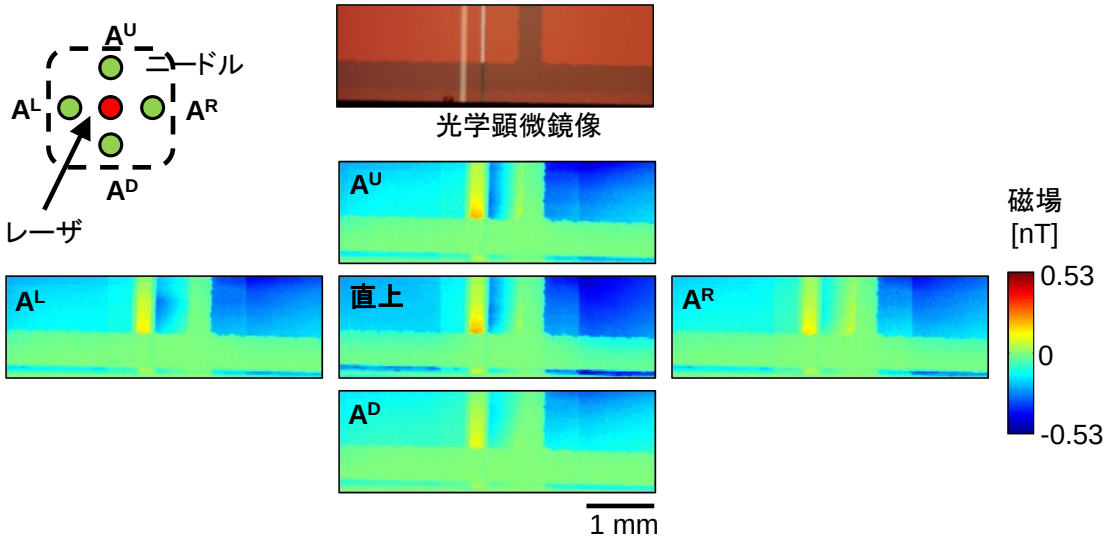


図 4.15　アモルファス太陽電池の（A）部分のレーザ SQUID 顕微鏡画像（レーザ走査法）

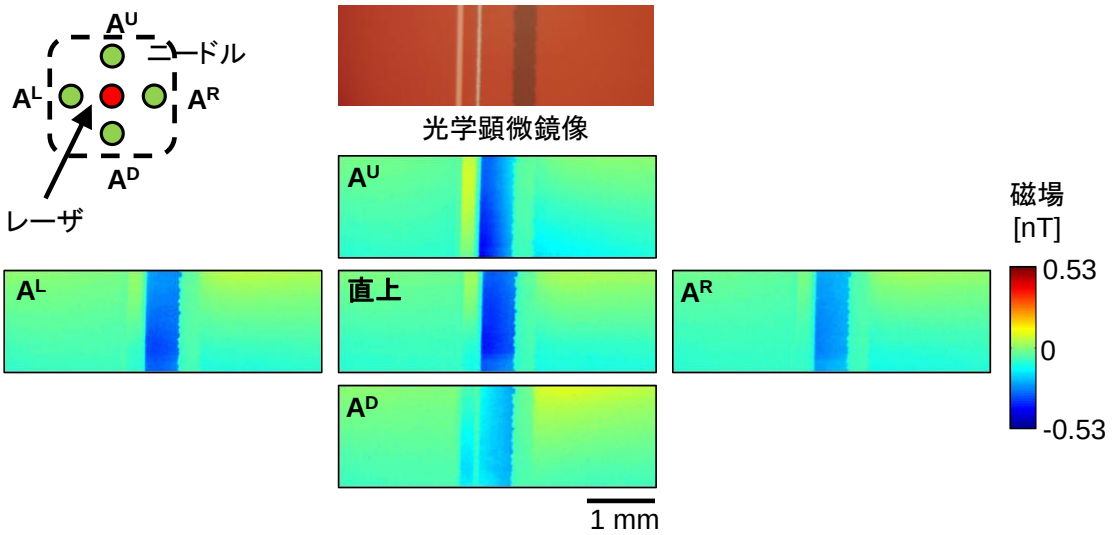


図 4.16　アモルファス太陽電池の（B）部分のレーザ SQUID 顕微鏡画像（レーザ走査法）

4.5　まとめ

開発したレーザ SQUID 顕微鏡の基本的な性能評価をまとめた。最初に、走査型 SQUID 顕微鏡の空間分解能について確認するため、紙幣の磁気インクによる磁場分布の観察を行い、0.1 mm 幅の磁気インクを確認できることを確かめた。また、ミアンダラインに電流を流すことで生じる磁場分布を測定し、電流の磁場分布は、ニードルの応答関数で畳み込まれていることが示唆され、その影響を除くには応答関数を知ることが必要である。

さらに、レーザ光学系の変調波形やスポットサイズの確認も行った。変調波形は、405 nm のレーザは方形波、780 nm のレーザは三角波、1065 nm のレーザで正弦波になっていた。スポットサイズは、405 nm のレーザで、14 µm、780 nm のレーザで、20 µm、1065 nm のレーザで 15 µm であった。

レーザ SQUID 顕微鏡の空間分解能を、多結晶シリコン太陽電池の微細なテクスチャ構造を測定することで、評価した。半値幅での評価で、5.5 µm を得た。レーザ強度がスポットサイズ内で強度分布を持つため、レーザスポットサイズよりも小さくなったと考えられる。

最後に、多結晶シリコン太陽電池以外の試料の検討を行った。p 型ドープの多結晶シリコン基板を測定しても、有意な磁気信号は得られなかった。今後、ニードルをレーザ直上からずらすことや、波長を変更するなど引き続き検討が必要である。

GaAs 基板については、外部から電圧を加えた状態で、線状の模様が観察されたが、引き続き検討が必要である。

アモルファス太陽電池については、短絡状態のとき、磁場が生じることが確認できたが、引き続き非接触で行うための検討が必要である。

第5章　レーザ SQUID 顕微鏡の多結晶シリコン太陽電池への適用

多結晶シリコン太陽電池は太陽電池生産量の約半分を占めるが、単結晶シリコン太陽電池に比べて、結晶粒界での損失によりエネルギー変換効率が劣るとされる。したがって、多結晶シリコン太陽電池の評価においては、変換効率の面内分布の評価が重要となる。本研究では開発したレーザ SQUID 顕微鏡を用いて、多結晶シリコン太陽電池の非接触評価の検討を行った。

5.1　波長依存性

シリコンの室温でのバンドギャップは、式(2.2)より 1.12 eV であり、これに相当するエネルギーを持つ光子の波長は式(2.1)より 1100 nm で、これ以下の波長を用いれば、シリコンにおいて電子を伝導帯に励起することができる。今回、405 nm、780 nm、1065 nm の 3 つの波長のレーザを用意した。それぞれの波長に対するシリコンに対する光の侵入深さは、0.16 μm、8 μm、12 mm であり、電子 - 正孔対が生成する深さを変えることができ、異なる深さでの情報が得られることが期待できる。

測定に用いた多結晶シリコン太陽電池試料の光学像を図 5.1 に示す。写真はレーザ SQUID 顕微鏡の測定で得られる画像と合わせるため上下反転させている。全体の大きさは、23 mm×30 mm で、シリコン部分の厚さは 0.27 mm である。裏側は金属電極で覆われているが、その厚さは、0.02～0.13 mm とばらつきがある。この試料の表側をグランドとし、裏側に対して電圧を印加すると、図 5.2 のような電圧 - 電流特性が得られた。これから、p 型シリコン基板表面に n 型層がドープされた構造であることがわかった。

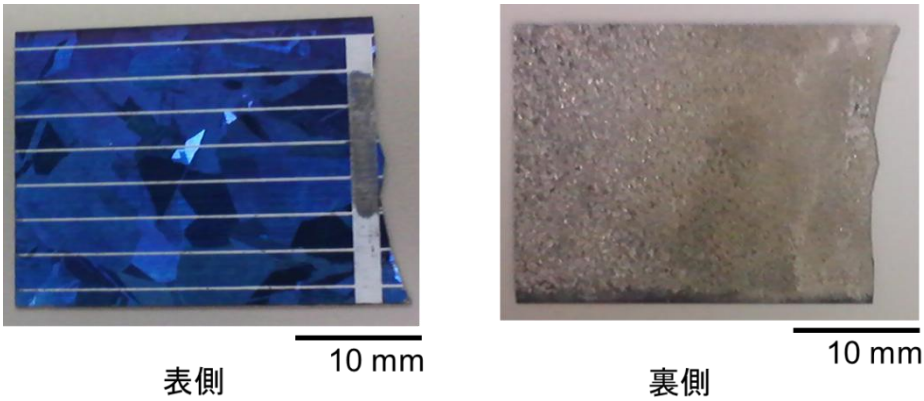


図 5.1　測定試料に用いた多結晶シリコン太陽電池の光学像（上下反転させている）

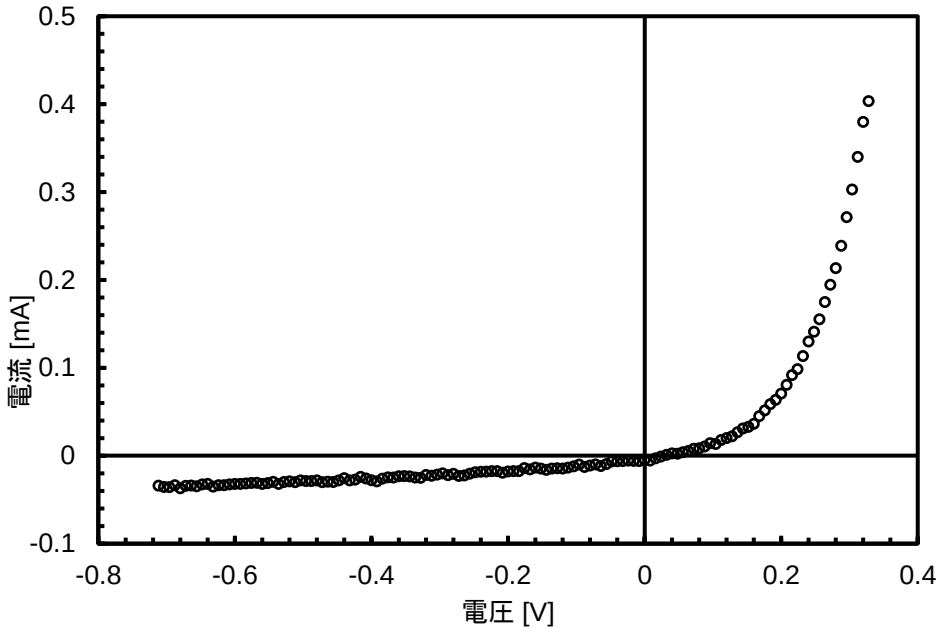


図 5.2　測定に用いた多結晶シリコン太陽電池の電圧 - 電流特性（暗状態）

測定系は、図 3.1 に示したレーザ走査法を用いた。レーザは、前述の 3 つの波長を用い、3.0×2.6 mm² の範囲を測定した。太陽電池の表側にレーザを照射し、裏側にニードルを近づけ、SQUID で磁場を測定した。太陽電池は開放状態で、外部回路とは接続を行わず測定した。レーザ照射点とニードルとの位置関係を図 5.3 に示す。

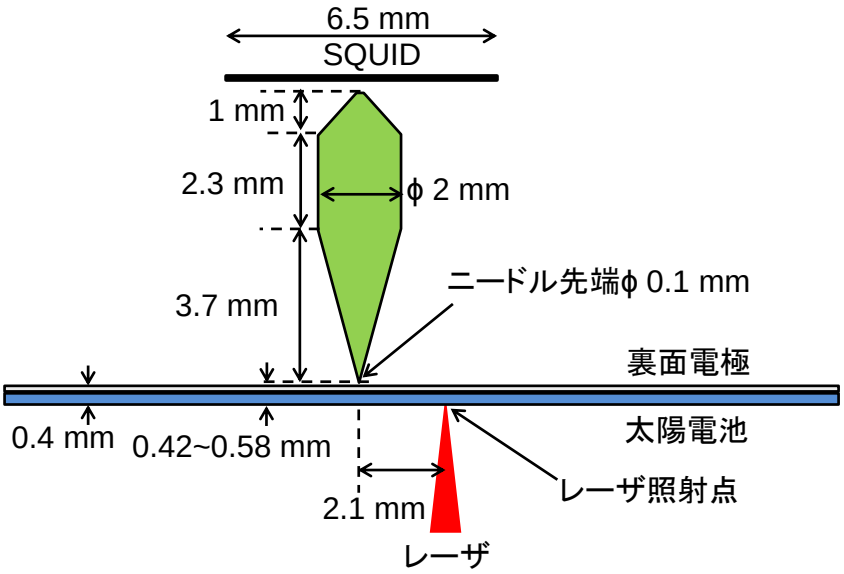


図 5.3　ニードルとレーザ照射点との位置関係

ニードルの先端は、試料裏面の上方向に 0.42～0.58 mm だけ離し、さらに、レーザ照射点に対し－y 方向に、2.1 mm ずらした。このときの測定パラメータを表 5.1 にまとめる。

表 5.1　レーザ SQUID 顕微鏡の測定パラメータ

レーザ波長		405 nm	780 nm	1065 nm
レーザパワー		2 mW	2 mW	2 mW
レーザスポットサイズ		14 μm	20 μm	15 μm
1 秒あたりの光子数		4.1×10^{15} 個	7.9×10^{15} 個	1.1×10^{16} 個
レーザ変調波形		方形波(digital 変調)	三角波	正弦波
周波数		1 kHz	1 kHz	1 kHz
高さ		0.58 mm	0.42 mm	0.43 mm
ロックインアンプ時定数		1 ms	1 ms	1 ms
走査速度		0.5 mm/sec	0.5 mm/sec	0.5 mm/sec
測定間隔	x	0.4 μm	10 μm	0.4 μm
	y	10 μm	0.4 μm	40 μm
ロックインアンプ位相		–2°	76°	–22°

なお、今回の測定では、ロックインアンプの時定数を 1 ms に抑えて、レーザスポットが移動する時間の 28~40 ms よりも十分短く設定し、ロックインアンプの遅れを無視できるようにしたので、3.4 章で述べた、ロックインアンプの遅れの補償は行っていない。また、この測定では、ロックインアンプの位相を測定時に調整した上で、X の出力を測定しているため、3.5 章で述べた、データ処理段階での位相の調整も不要であった。しかし、ライトチョッパのオフセットノイズの除去ができないため、データには、最大でも 0.2 nT 程度の一定のオフセットが含まれている。

図 5.4 に、測定した太陽電池の光学像と、レーザ SQUID 顕微鏡像を示す。波長を変えることで、太陽電池から得られるレーザ SQUID 顕微鏡画像が大きく変わっていることがわかる。

波長が 405 nm の時には、表面の凹凸の影響を受けたような像となっている。太陽電池表面には、基板を切断した時に生じたとみられる凹凸が存在する。図 5.4 の光学像では、それが、横方向にまっすぐ伸びる筋として見られる。これは、405 nm を用いて測定したレーザ SQUID 顕微鏡画像にもみられ、表面形状が影響していることがわかる。405 nm の光子のシリコンに対する侵入深さが 0.16 μm なので、1 μm 以下程度の表面の n 層で光子が吸収され、n 層中で電子 - 正孔対が生成されるが、ここで生成された電子 - 正孔対は、表面とごく近いため、電子 - 正孔対が pn 接合まで到達して分離されるまでの間に、表面で再結合してしまうものが多く、この画像は、表面再結合速度の面内分布をみていると考えられる。

波長を 780 nm としたときのレーザ SQUID 顕微鏡画像を光学像と比べると、結晶粒界上で磁場強度が低下していることがわかる。また、結晶内部にも、光学像では確認できない部分で磁場強度が低下している部分がある。これは、結晶粒内部に、亜粒界などの再結合サイトが存在するためだと考えられる。780 nm の光子の侵入深さは 8 μm であり、電子 - 正孔対の生成は、主に p 型基板で生じる。このため、電子 - 正孔対が pn 接合で分離されるまでに、内部に再結合サイトがあると、電子 - 正孔対が消滅してしまうため、電流が流れず、磁場強度が低下したと考えられる。

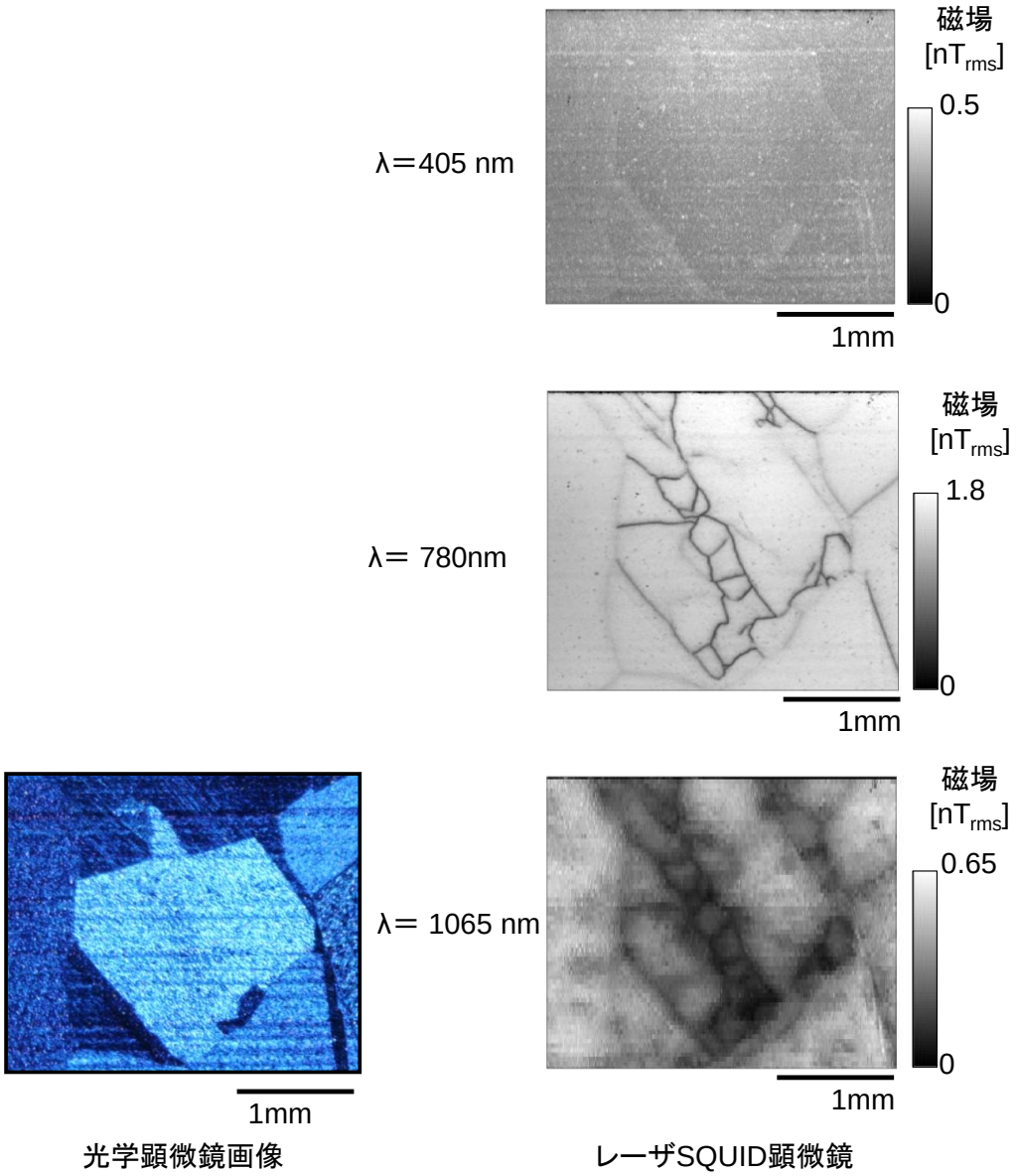


図 5.4　多結晶シリコン太陽電池をレーザ SQUID 顕微鏡で測定した場合のレーザ波長依存性

レーザ波長が 1065 nm のレーザを用いた場合には、780 nm を用いた場合に比べ、磁場強度が低下する箇所の線幅が太くなっている。これは、1065 nm の光子のシリコンに対する侵入深さが 1.2 mm であり、p 型基板の奥までレーザが侵入し、pn 接合から離れたところでも電子 - 正孔対を生成し、p 型基板中の電子が pn 接合に到達するまでに、横方向に広がってしまうため、レーザ照射点から若干離れたところに欠陥があったとしても、拡散した電子が再結合により消滅してしまうため、pn 接合で分離され電流に寄与する電子が少なくなってしまうためと考えられる。また、780 nm のレーザを使用した際には見られなかった、しみのような模様も見られる。これは、基板裏面など、基板の深い箇所の再結合サイトの影響と考えられる。

結論として、レーザ SQUID 顕微鏡により、多結晶シリコン太陽電池を、波長を変えて測定すると、侵入深さに応じた深さに存在する欠陥の情報を得ることができた。

5.2　磁場像に対する計測パラメータの影響

レーザ SQUID 顕微鏡（レーザ走査法）の、波長以外の測定条件を変更した場合の影響をまとめた。レーザの変調周波数、レーザ以外の外乱光の有無、レーザパワーに着目し、レーザ SQUID 顕微鏡画像に与える影響について調べた。

レーザの変調周波数の変化に対する、レーザ SQUID 顕微鏡画像の変化を調べるために、レーザ変調周波数を CW(0 Hz)、10 Hz、100 Hz、1 kHz と変え、その変調周波数でロックイン検出した磁気信号から得たレーザ SQUID 顕微鏡画像を比較した。変調する際は、完全にレーザを ON／OFF できるようにするため、レーザドライバ回路の電源を ON／OFF させる Enable 変調を用いた。その他のパラメータを表 5.2 に示す。このようにして得たレーザの変調周波数依存性を図 5.5 に示す。

表 5.2　測定パラメータ（レーザ変調周波数の依存性検討時）

レーザ		走査速度	測定間隔		ロックインアンプ
波長	パワー		x	y	時定数
405 nm	10 mW	0.5 mm/sec	0.4 μm	10 μm	10 ms

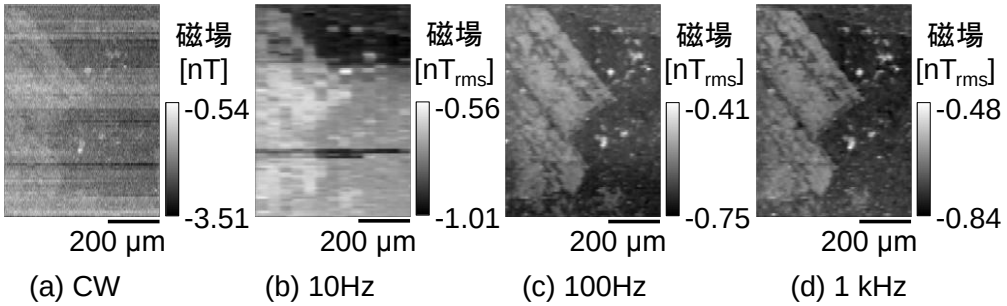


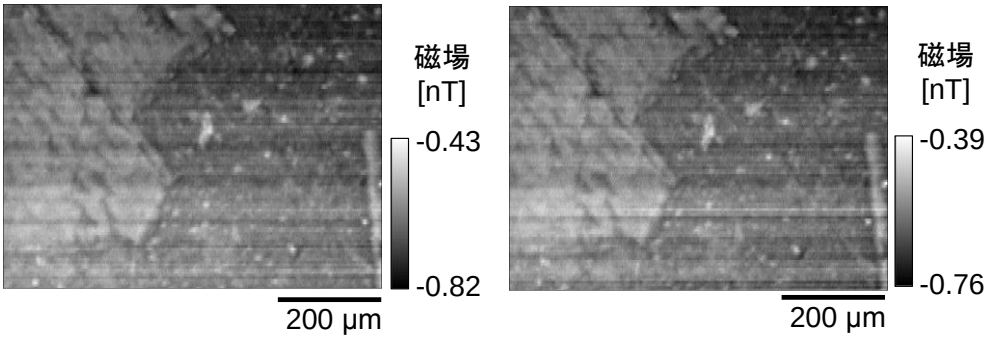
図 5.5　多結晶シリコン太陽電池のレーザ SQUID 顕微鏡画像のレーザ変調周波数依存性

100 Hz と 1 kHz で取得した画像がほぼ一致している。レーザを連続波（CW）としたときは、100 Hz や 1 kHz のときよりも、ノイズが多く含まれており、ロックイン検出する方が SN 比の向上ができる。10 Hz のときに、走査方向に平均化されるように画像が歪んでいるが、これは、空間分解能を決めるレーザスポットサイズ分の距離を移動するのにかかる時間が 28 ms であったのに対し、レーザの変調周期の方が 100 ms と長かったため、ロックイン検出によって、平均化されるためである。これを避けるには、レーザスポットサイズ分の測定時間を変調周期よりも長く取るために、走査速度を遅くして、測定時間を長くするか、変調周波数を上げる必要がある。走査速度を遅くすると、測定に時間がかかり実用上問題があるので、試料のレーザによって誘起される磁場がレーザの変調周波数に追随する範囲で、変調周波数を上げることが望ましい。

次に、レーザ以外に、外乱光が照射された場合について調べた。ハロゲンランプ（LS-100F、株式会社住田光学ガラス）を使用し、サンプル上の直径 5~6 mm 程度のレーザスポットに対して広い領域にバイアス光（0.5 mW/cm^2）を連続照射して測定を行った。まず、レーザを変調せずに、CW で測定を行った。その他の測定パラメータを表 5.3 に示す。外乱光ありとなしで測定した結果を図 5.6 に示す。画像には現れていないが、測定の際には、太陽電池の電極部分を測定範囲に含めており、走査ラインごとに、太陽電池の電極上の信号がゼロになるように画像のオフセットを調整している。このようにすることで、外乱光によって励起された一定の磁気信号を取り除き、レーザによる磁場成分のみにする工夫をした。しかし、外乱光を照射することによって、磁場強度の絶対値が 8~10%程度低下する傾向が見られた。

表 5.3　測定パラメータ（レーザを変調せず、バイアス光の影響検討時）

レーザ		走査速度	測定間隔		ニードルの位置
波長	パワー		x	y	[mm]
405 nm	30 mW	0.5 mm/sec	0.4 μm	5 μm	(3.0, 0.0, 0.43)



(a) バイアス光なし　　(b) バイアス光あり

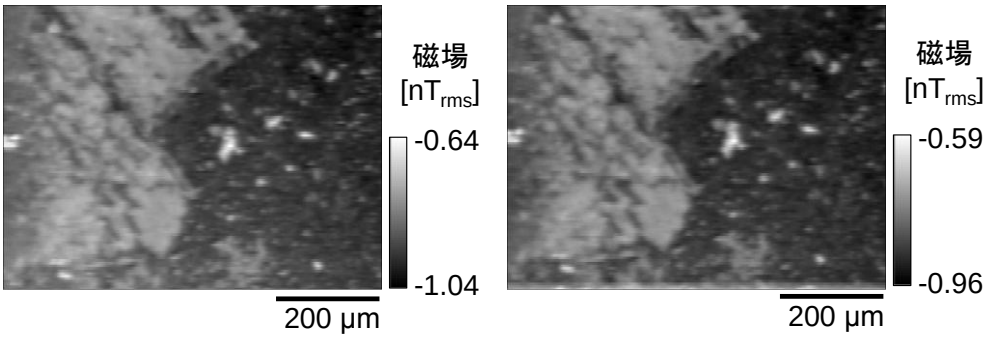
図 5.6　レーザ光以外のバイアス光による影響（レーザ光も CW）

次に、レーザを 100 Hz で変調させ、ロックイン検出した場合について、外乱光の影響について調べた。その際のパラメータを表 5.4 に、測定結果を図 5.7 に示す。レーザを変調し、ロックイン検出により、SQUID で検出される磁場信号のうち、レーザと相関のある信号のみが抽出されるので、連続波（CW）の外乱光によって誘起される磁気信号は除去できると考えられる。しかし、レーザ光を CW で照射したときと同様に、磁場強度の絶対値が 8 % 程度低下していることが確認された。

どちらの場合も外乱光によって、画像の磁場強度が低下することが確認されたが、これは、外乱光によって、ある程度キャリアが励起されていることにより、レーザを照射することによるキャリアの増加が、外乱光がない場合よりも減るためだと考えられる。このことは、2.4 章で説明した、太陽電池の等価回路において、内部に流れる閉回路電流に対する光電流の依存性から説明することができる。

表 5.4　測定パラメータ（レーザは変調し、バイアス光の影響検討時）

レーザ		走査速度	測定間隔		ロックインアンプ	ニードルの位置
波長	パワー		x	y	時定数	[mm]
405 nm	10 mW	0.5 mm/sec	0.4 μm	5 μm	10 ms	(0.0, 0.0, 0.43)



(a) バイアス光なし　　(b) バイアス光あり

図 5.7　レーザ光以外のバイアス光による影響（レーザ光は 100 Hz で変調）

次に、レーザパワー依存性を調べた。レーザは 100 Hz で Enable 変調し、ロックイン検出を行った。その他の測定パラメータを表 5.5 に示す。図 5.8 にレーザパワー依存性を示す。磁場強度がレーザパワーに従って強くなったが、画像の変化は見られなかった。横に筋状にみられるコントラスト変化は、測定中に混入したノイズである。磁場強度の変化を詳しく調べるため、走査をせずに試料上の 1 点にレーザを照射したまま、磁場強度のレーザパワー依存性を調べた。その測定結果を図 5.9 に示す。レーザ励起磁場に対するレーザパワーの依存性は、非線形であることがわかった。これは、外乱光の影響を調べたときにも述べたが、2.2 章にあるように、開放状態の太陽電池では、レーザ励起電流が内部抵抗の影響のため、光電流に対して線形に増加しないためだと考えられる。

表 5.5　測定パラメータ（レーザパワー依存性検討時）

レーザ波長	測定間隔		走査速度	ロックインアンプ時定数	ニードルの位置 [mm]
	x	y			
405 nm	0.4 μm	5 μm	0.5 mm/sec	10 ms	(0.0, 0.0, 0.43)

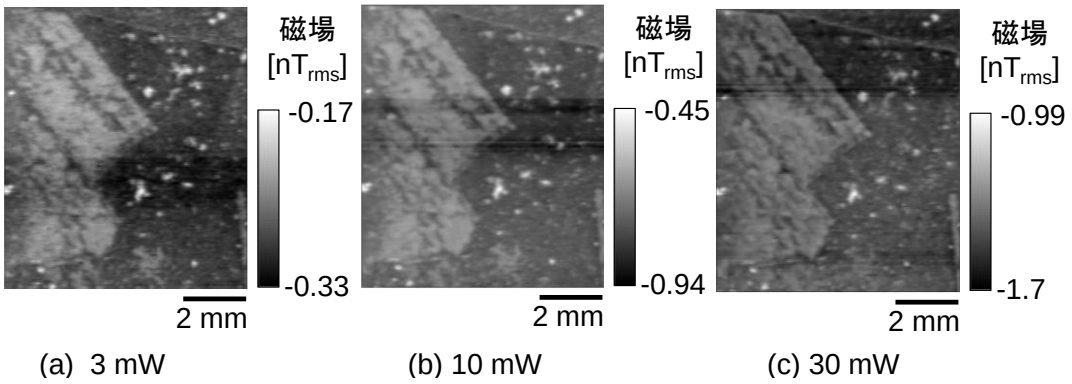


図 5.8　多結晶シリコン太陽電池のレーザ SQUID 顕微鏡画像のレーザパワー依存性

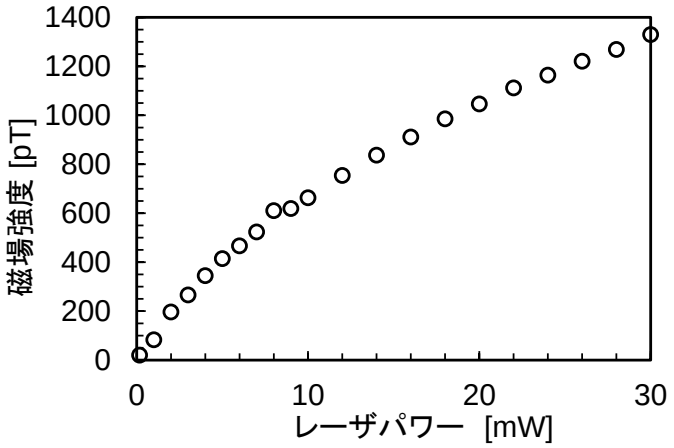


図 5.9　磁場強度のレーザパワー依存性

5.3　磁場測定位置の影響

レーザ SQUID 顕微鏡におけるレーザ走査法では、レーザ照射点に対し、磁場測定位置を固定して、試料を走査することで、試料の光応答特性が画像化される。しかし、レーザ励起磁場は、レーザによって誘起された電流分布に応じて変化する。レーザ走査法では、レーザ励起磁場分布の内、特定の 1 点の磁場を測定しているに過ぎない。試料を走査しレーザ照射点が移動すると、それに伴いレーザによって誘起された電流分布が変化し、レーザ励起磁場分布も変化する。したがって、レーザ照射点に対する磁場の測定位置を選定することが重要になる。仮に、レーザ照射点に直線の電流素片が存在すると、垂直磁場成分の分布はビオ・サバールの法則より、図 5.10 のように、電流の両側で反転した分布になる。その際は、電流の直上で、垂直磁場成分はゼロで、磁場測定位置を電流の軸から横にずらさないと電流によって生じる垂直磁場を測定できないことになる。また、ずらす方向や距離によって、磁場の極性や大きさも変化する。したがって、レーザ照射点で電流が流れるという仮定に立つと、レーザ照射点からずれた最低 2 か所以上の箇所での磁場測定が必要となる。

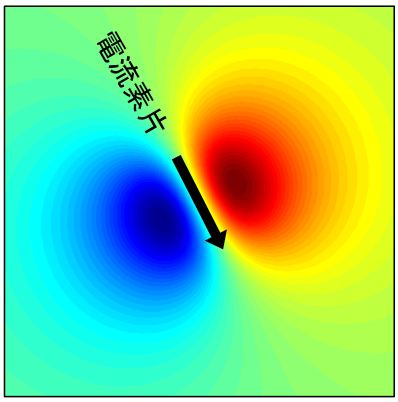


図 5.10　電流素片によって生じる磁場の垂直成分の分布

そこで、多結晶シリコン太陽電池試料に対し、磁場測定位置を変えて測定したレーザ SQUID 顕微鏡画像の変化を調べた。まず電極のある試料で、電極の間の領域を測定した。表 5.6 に測定パラメータを、図 5.11 に磁場測定位置の影響を測定したレーザ SQUID 顕微鏡画像を示す。ニードルの位置をレーザの直上を中心にして、中心位置および XY 方向へ 3 mm ずつずらした位置の計 5 か所にニードルを配置し測定した。磁場測定位置が変化すると、磁場強度が異なった画像が得られた。ニードルを X 方向にずらした(3 mm, 0 mm)の位置に置いた時に、絶対磁場強度が最も強くなっている。また、レーザの直上でも磁場が生じているので、電流はレーザ照射点を通らない領域にも流れていることが示される。レーザ SQUID 顕微鏡では、このように、同じ試料でも、磁場測定位置が異なるだけで、磁場強度の異なる画像が得られる。

次に、電極のない部分を切り出した太陽電池試料に対して、ニードルの位置をレーザ照射点から、2.1 mm ずつ XY 方向にずらして測定を行った。その際の測定パラメータは表 5.7 のように設定した。そのときの、測定試料の光学像と測定結果を図 5.12(a)と(b)にそれぞれ示す。図 5.12(b)の A、B、C、D はそれぞれ、ニードルを＋ｙ、－ｘ、＋ｘ、－ｙ方向に 2.1 mm ずらした場合のレーザ SQUID 顕微鏡画像（レーザ走査法）である。このときも、4 枚の画像を見比べると、同じ試料であっても、磁場測定箇所が異なると、強度の全く異なる画像となっていることがわかる。

表 5.6　測定パラメータ（磁場測定位置の検討時）

レーザ		走査速度	測定間隔	
波長	パワー		x	y
405 nm	30 mW（CW）	0.5 mm/sec	0.4 μm	5 μm

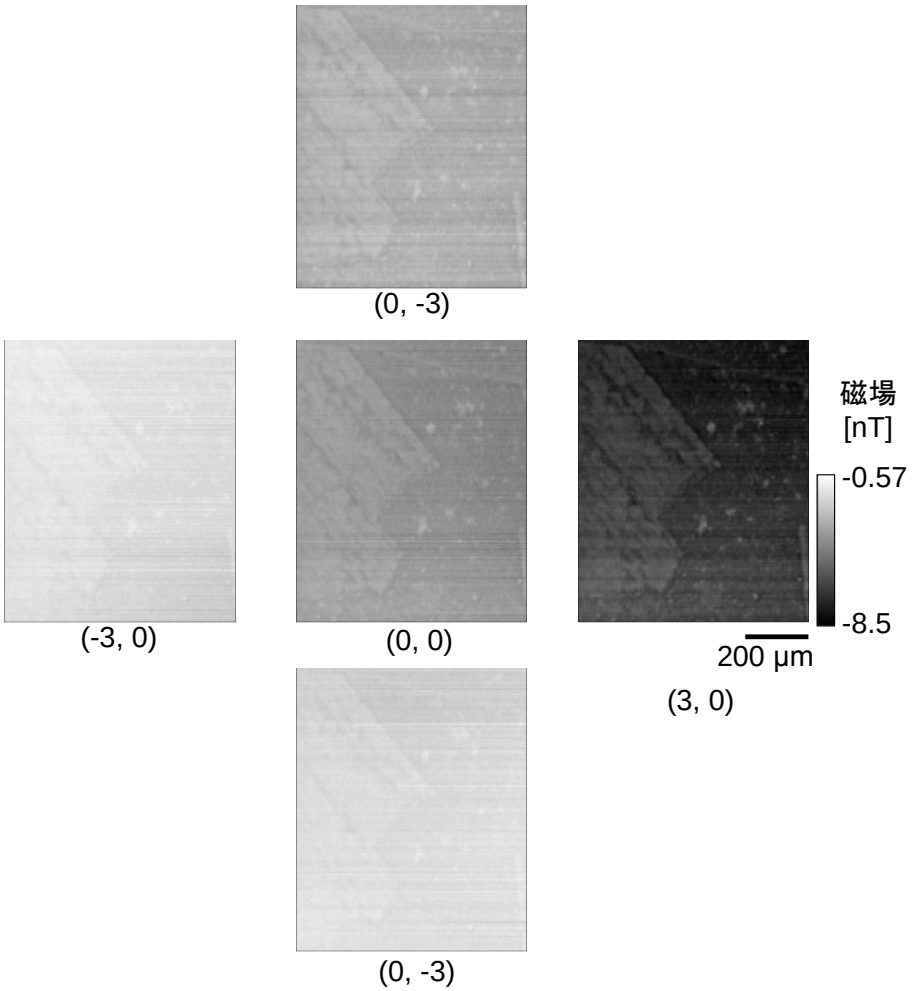
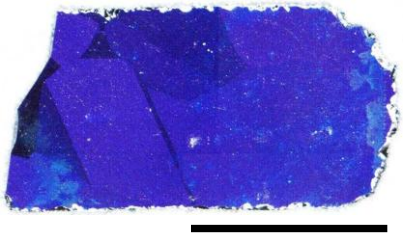


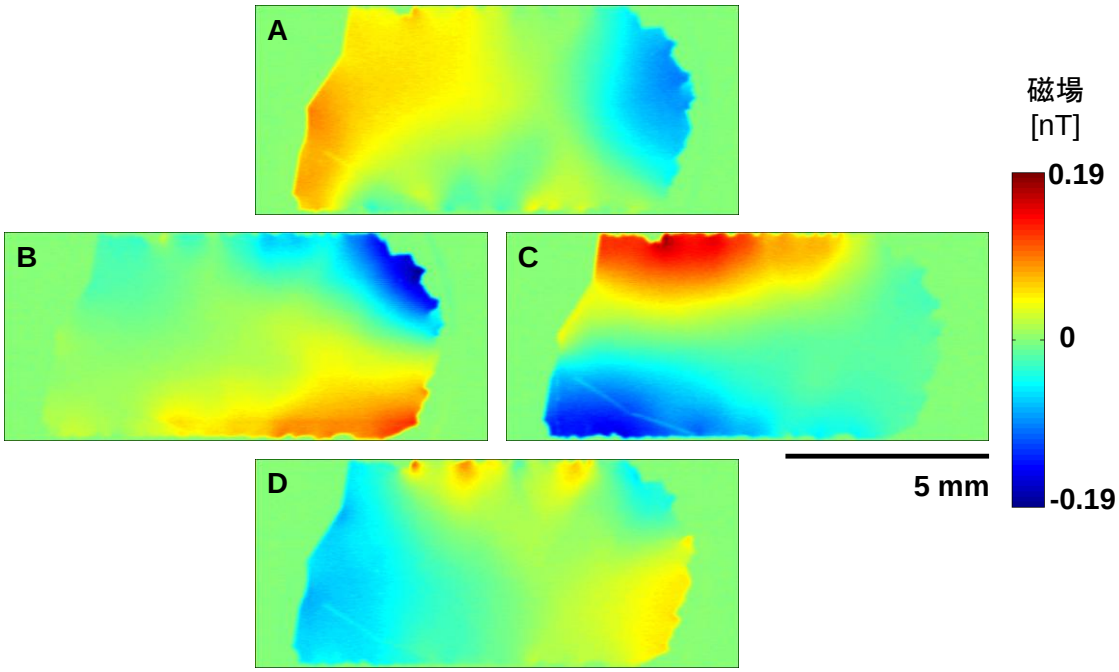
図 5.11　レーザ SQUID 顕微鏡における磁場測定位置の影響

表 5.7　レーザ SQUID 顕微鏡の測定パラメータ

パラメータ		値
レーザ波長		780 nm
レーザパワー		1.9 mW
周波数		1 kHz
ロックインアンプ時定数		30 ms
走査速度		3 mm/sec
測定間隔	x	2.5 μm
	y	10 μm



(a) 電極のない多結晶シリコン太陽電池の光学像



(b) 電極のない多結晶シリコン太陽電池のレーザSQUID顕微鏡画像（レーザ走査法）

図 5.12　レーザ SQUID 顕微鏡における磁場測定位置の影響（電極のない試料）

これらの結果は、レーザ照射点からみた電流分布が一様でないために生じる。レーザ走査法によってレーザ照射点を走査すると、照射位置によって電流分布が変わると考えられる。

ビオ・サバールの法則から、磁場強度は、電流の位置と磁場測定箇所間の距離および電流強度に依存する。磁場強度は電流に対して比例関係にあるので、電流位置と磁場測定箇所との位置関係が固定されていれば、レーザ SQUID 顕微鏡で測定される磁場強度は、電流強度に比例したものになる。しかし、電流経路が変わると、磁場強度分布とを電流強度分布の相関がなくなり、関連づけることが難しくなってしまう。電流強度を議論するためには、電流の経路を明らかにする必要がある。

5.4　レーザ励起電流の解析

5.3 章では、レーザ SQUID 顕微鏡で得られる磁場強度の解析のために、レーザ励起電流の経路を知る必要性について述べた。レーザ励起電流についての情報を得るために検討した 3 つの手法について述べる。

5.4.1　2 点磁場を用いた解析

レーザ照射点で直線的な電流が流れると仮定した最も単純な場合については、2 か所の磁場情報から電流の方向や大きさを推定することができる[31]。

直線電流によって生じる磁場分布について考える。ビオ・サバールの法則を、無限直線電流の場合に当てはめると次式のように書ける。

$$B_\phi = \frac{\mu_0 I}{2\pi r} \tag{5.1}$$

ここで、B_ϕは、電流を中心とした円周方向の磁場強度で、rは、電流からの距離である。ここで、電流がy軸上を、y軸方向に流れているとした場合、磁場のz成分に関しては

$$B_z = \frac{\mu_0 I}{2\pi r}\frac{-x}{x^2+z^2} \tag{5.2}$$

となる。さらに、$z = d$ のxy平面上で、半径aの円周上における磁場を考える。円周上の、x軸からの角度をθとすると次式が成り立つ。

$$x = a\cos\theta \tag{5.3}$$

これを、式(5.2)に代入して、θとzと半径aに関する次式を得る。

$$B_z = \frac{\mu_0 I}{2\pi}\frac{-a\cos\theta}{a^2\cos^2\theta + z^2} \tag{5.4}$$

$a \ll z$の場合には、次式のようにθに関して余弦関数で近似できる。

$$B_z \approx -\frac{\mu_0 I}{2\pi}\frac{a\cos\theta}{z^2} \tag{5.5}$$

今、y軸方向に流れる電流を考えていたが、磁場測定位置を$(a,0,z)$と$(0,a,z)$に固定し、図5.13 に示すように、逆に、直線電流がx軸からθの角度で、xy平面内を流れる場合については、式(5.5)を参考に次式のように書ける。

$$B_z(a,0,z) \approx -\frac{\mu_0 I}{2\pi}\frac{a\sin\theta}{z^2} \tag{5.6}$$

$$B_z(0,a,z) \approx \frac{\mu_0 I}{2\pi}\frac{a\cos\theta}{z^2} \tag{5.7}$$

ここで、$B_z(a,0,z)$と$B_z(0,a,z)$を得た場合には、電流の流れる方向θと電流強度Iが一意に解けることがわかる。ただし、$a \ll z$の場合は、B_zも小さくなってしまい、ノイズに埋もれてしまうため、現実的ではない。したがって、実験上は、余弦関数の近似からずれてしまうが、ある程度大きくaを設定し磁場を測定し、近似的に解いている。

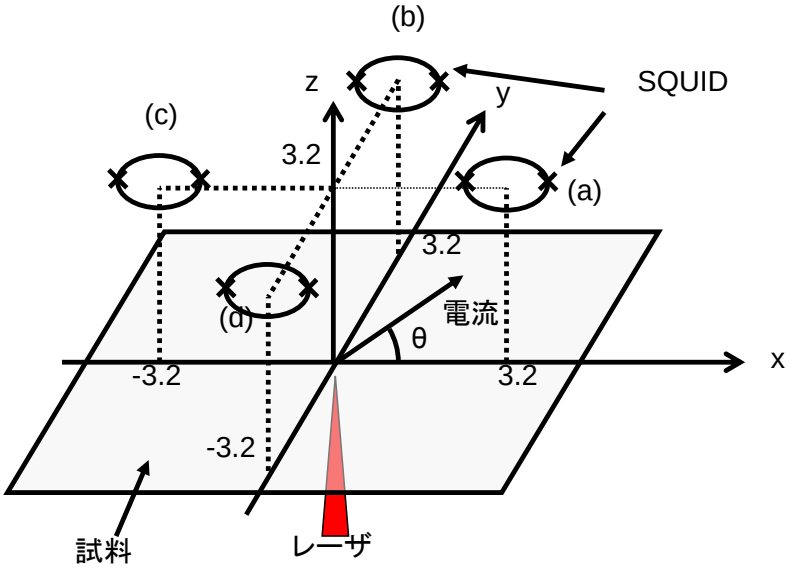
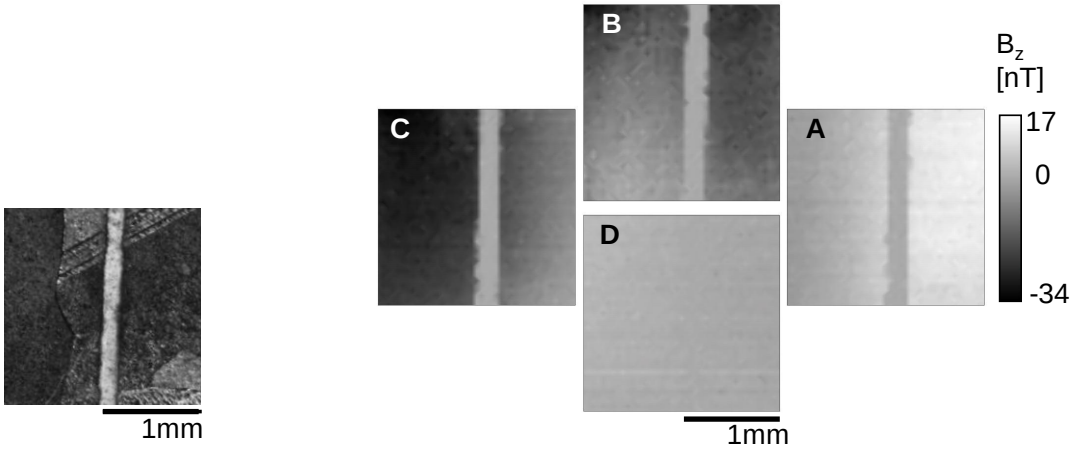


図 5.13　ニードルとレーザ照射点の位置関係

図 5.14(a)に示すような多結晶シリコン太陽電池の一部を測定した。中央に縦に入っている筋は、太陽電池の表面電極部分である。大きさ 10×20 mm² の試料のうち測定範囲は、2×2 mm² の範囲とした。表 5.8 に示すようなパラメータによりレーザ SQUID 顕微鏡（レーザ走査法）画像を取得した結果を図 5.14(b)に示す。



(a) 光学顕微鏡像　　(b) レーザSQUID顕微鏡画像

図 5.14　測定した多結晶シリコン太陽電池の光学像とレーザ SQUID 顕微鏡画像

表 5.8　測定パラメータ

レーザ		走査速度	測定間隔	
波長	パワー		x	y
1065 nm	15 mW（CW）	2.5 mm/sec	50 µm	50 µm

この測定では、ニードルを使用せず、1 mm 角のワッシャ型 DC-SQUID を用いた。図 5.13 に示したように、その際の SQUID の位置を 3.2 mm ずつずらしている。レーザ SQUID 顕微鏡では、レーザ励起磁場を測定しており、太陽電池の電極部分にレーザが照射されたときには磁場が生じないので、レーザ SQUID 顕微鏡画像でも電極部分の磁場がゼロになっている。この A、B、C、D の 4 枚のレーザ SQUID 顕微鏡画像を、に示すような組み合わせにより、電流ベクトルのI_x成分またはI_y成分の画像として扱い、用いるレーザ SQUID 顕微鏡画像の組み合わせを変えて、電流ベクトル図を(1)～(4)の 4 通り作成した。これら 4 つの電流ベクトル図は、レーザ照射点で直線電流が流れた場合に、その電流の大きさと方向を表すものであり、4 枚とも同様になるはずである。しかし、電流ベクトル推定結果は、図 5.15 のように、電流ベクトルが 4 枚とも同じになる箇所は見当たらない結果となった。

表 5.9　電流ベクトル成分への磁場成分の割り当て

電流ベクトル図	I_x成分	I_y成分
(1)	B	−A
(2)	B	C
(3)	−D	C
(4)	−D	−A

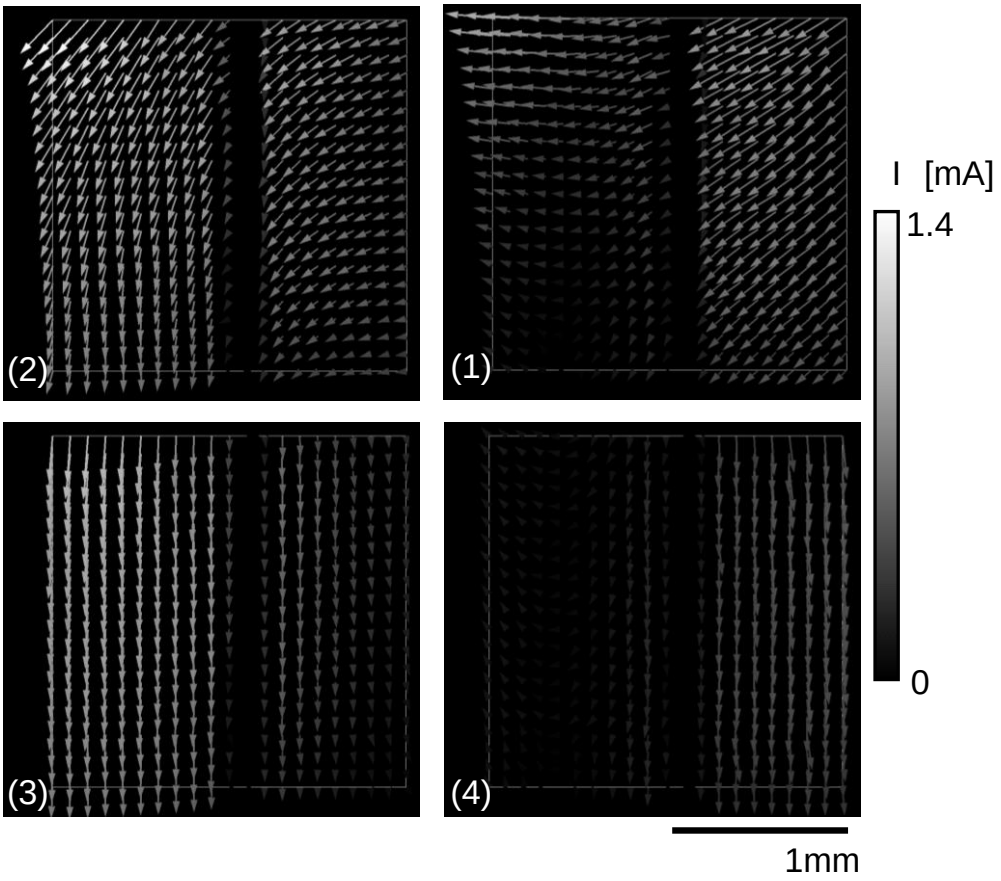


図 5.15　電流ベクトル推定結果

これは、レーザ励起電流がレーザ照射点を中心に直線状に流れるという前提に無理があるためだと考えられ、太陽電池に対しては、2 点磁場を用いた解析では十分な精度で電流経路を推定できないことがわかった。

5.4.2　8 点磁場を用いた解析

2 点磁場を用いた解析は、レーザ照射点に電流が存在し、レーザ照射点を通る直線の方向にしか電流が流れないという前提の時に使用できる。この前提は、表面電極のある太陽電池の場合には、適切ではない。表面電極のある太陽電池のように、レーザ照射点以外の箇所で電流が流れる場合には、その前提が成り立たないので、レーザ照射点での電流のみを抽出する処理が必要である。原点でy方向に流れる直線電流から生じる磁場のz方向成分を$z = d$の位置でx方向にラインスキャンしたときに得られる磁場の計算結果を図 5.16(a)に示す。

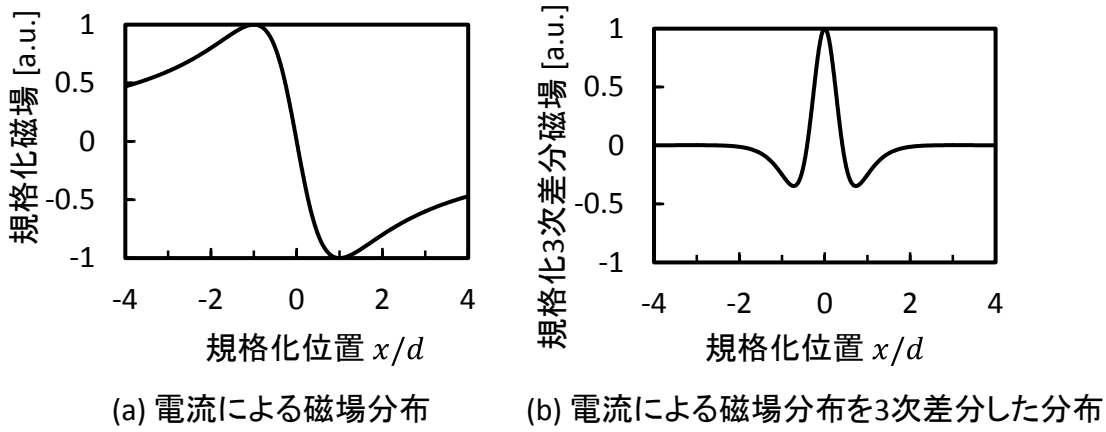


図 5.16　直線電流の磁場分布

磁場は、$x = 0$でゼロとなり、$x = \pm d$の場合に極大値を取ることがわかる。この計算結果に対しxの 3 次差分を行ったものを、図 5.16(b)に示す。3 次差分を行うと、電流のある$x = 0$の位置で値が最大となり、直線電流から離れると、急速にゼロに近づく。したがって、磁場分布を 3 次差分することで、電流から離れたところの磁場成分を取り除くことができ、電流に相関のある磁場分布を推定できる可能性がある。

レーザ照射点での電流を推定するために、レーザ照射点近傍の磁場を 3 次差分し、レーザ照射点での電流ベクトルを得ることを試みた。ここで、ニードルの位置は図 5.17 に示すように変えて、レーザ SQUID 顕微鏡画像を取得した。レーザ走査法では、レーザがサンプル上を走査しているので、この画像の各ピクセルには、レーザがその位置に照射された場合の磁場強度がプロットされている。ニードルの位置を変えて同様な画像を取得した場合には、その画像の同じ位置の画素に対して、磁場測定位置を変えたことになる。x方向に関する 3 次差分は次式のように定義した。$h = 0.6$mmとし、差分の方向に関しては、x方向、y方向、x軸を 45°ずらした方向、x軸を－45°ずらした方向の計 4 方向を検討した。

$$\frac{\Delta^3 B_z(x,y,z)}{\Delta x^3} = \frac{B_z\left(x+\frac{3}{2}h,y\right) - 3B_z\left(x+\frac{1}{2}h,y\right) + 3B_z\left(x-\frac{1}{2}h,y\right) - B_z\left(x-\frac{3}{2}h,y\right)}{h^3} \tag{5.8}$$

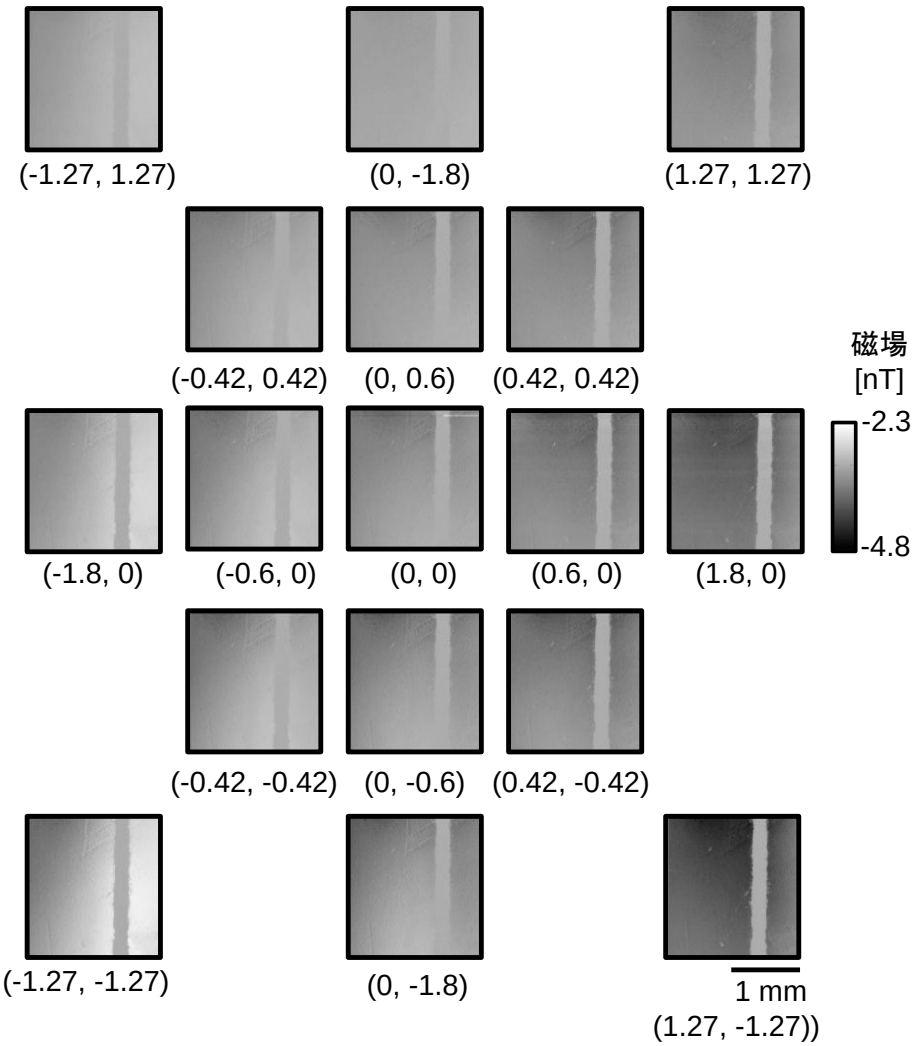
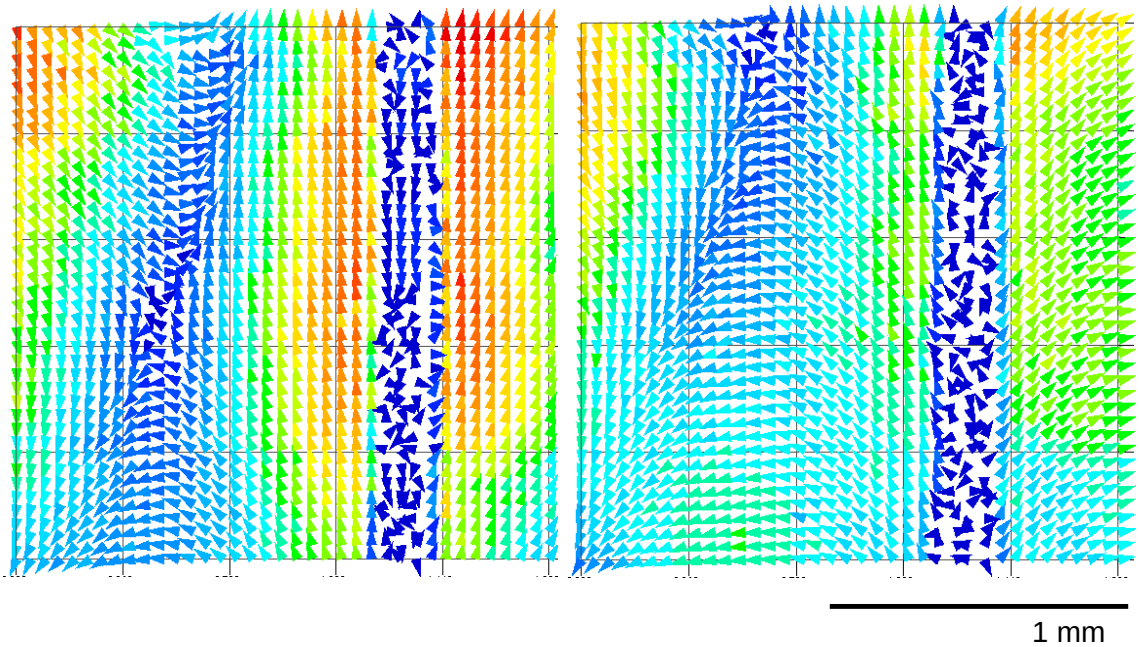


図 5.17　ニードルの位置を変化させたときのレーザ SQUID 顕微鏡画像

x方向とy方向への 3 次差分データを表 5.10 に示すように、電流ベクトル成分に割り当てて画像の各点における電流ベクトルを推定した。その結果を図 5.18 に示す。2 点での磁場情報からの推定では、図 5.15 のように、磁場測定位置の組み合わせを変えると、推定される電流ベクトルが大きく異なってしまったが、3 次差分により、8 点の磁場情報から 1 個の電流ベクトルを推定する手法により、磁場測定位置の組み合わせを変えたときの、違いが小さくなることが示された。しかし、推定される電流ベクトルが全く同じではなく、8 点の磁場情報を使用しても、精度には限界があると考えられる。

表 5.10　電流ベクトル成分への 3 次差分データの割り当て

I_x成分	I_y成分
$-\dfrac{\Delta^3 B_z(x,y,z)}{\Delta y^3}$	$\dfrac{\Delta^3 B_z(x,y,z)}{\Delta x^3}$



(a) x方向とy方向のデータから推定　　(b) (a)と45°ずれた方向のデータから推定

図 5.18　3 次差分による電流推定結果

5.4.3　磁場像を用いた解析

2.5 章で述べたように、磁場像から電流像を求めれば、最も確からしい結果が得られるが、レーザ照射点 1 点につき試料全域の磁場分布を得るため、たくさんのレーザ照射点での電流ベクトルを求めるには大変時間がかかる。しかし、電流の経路を知るためには、有効な手法であるので、多結晶シリコン太陽電池への適用を検討した。

これまで用いてきたレーザ走査法では、試料の欠陥を観察することができるが、電流経路については知ることができない。レーザ走査法によって得られる磁気画像の理解のためには、電流経路の理解が必要であり、そのために、レーザ固定法を用いて試料内での電流経路を調べた。

まず、電流経路を推定できているか調べるために、表面フィンガー電極の一部を裏面の電極と短絡させ、磁場像から得られる電流像の変化を調べた。図 5.19 に、測定した多結晶シリコン太陽電池の光学像を示す。表面に櫛形に電極がついている。丸印の箇所にレーザを固定し、レーザ固定法によりレーザ照射点を固定して磁場分布を測定した。測定パラメータを表 5.11 に示す。また、ここでは、3.5 章で述べたような画像処理を行っている。磁場データを得たのち、2.5 章で説明した電流像計算プログラムを用いて、電流像を計算した。その結果を、図 5.20 に示す。

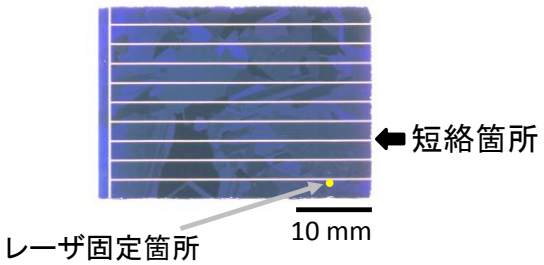


図 5.19　測定した多結晶シリコン太陽電池の光学像

表 5.11　レーザ SQUID 顕微鏡の測定パラメータ

パラメータ		値
レーザ波長		780 nm
レーザパワー		0.5~1 mW
周波数		1 kHz
ロックインアンプ時定数		30 ms
走査速度		10 mm/sec
測定間隔	x	50 μm
	y	50 μm

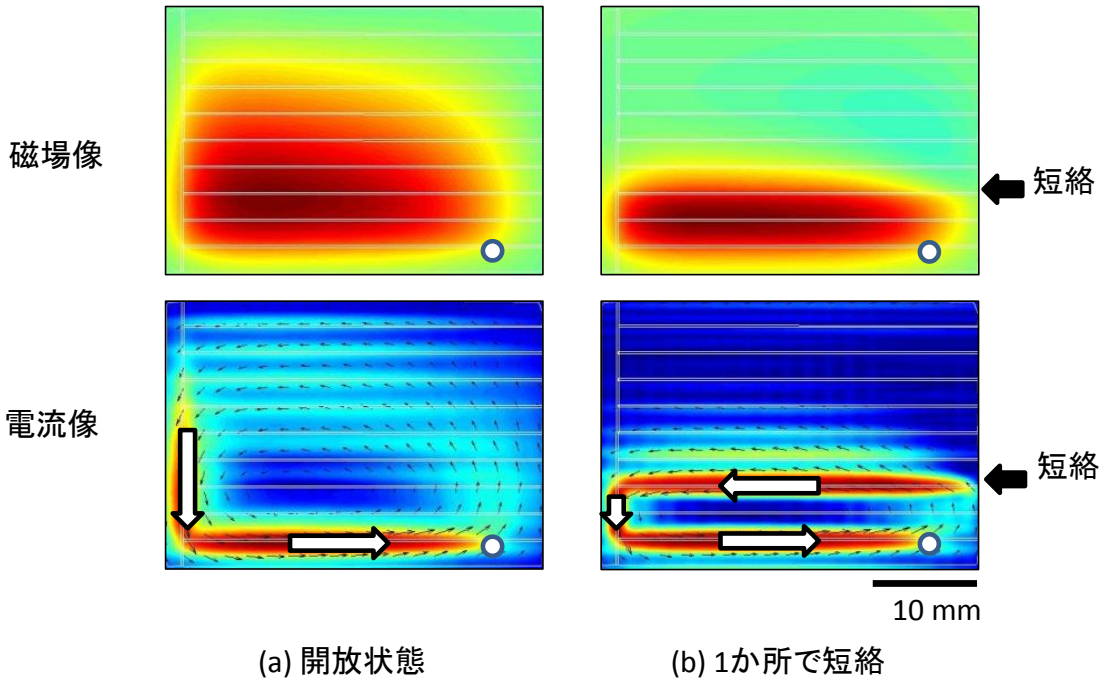


図 5.20　表面櫛形電極のある試料

測定した磁場像に関しては、開放状態と短絡状態で、磁場分布が異なっている。この磁場分布をもとに電流を計算すると、図 5.20 の下段に示すように、計算された。開放状態の場合には、レーザ照射点から最も近い電極上で電流密度が高くなっている。表面表面電極を裏面電極に短絡した場合には、短絡箇所まで、電極に沿って流れる電流が推定され、電流推定結果として妥当なものとなった。この試料では、レーザ照射点ではなく、表面電極上で最も電流密度が高くなり、レーザ照射点以外の箇所でのレーザ励起電流による磁場が支配的だと考えられる。

5.4.4　解析結果の比較

水平面内で流れる電流から少し離れた面内で磁場の垂直方向成分を測定する手法では、電流の直上で磁場がゼロとなるため、磁場測定位置を電流の直上からずらす必要がある。このため、ある位置での磁場強度は、広範囲の電流からの寄与があり、磁場と電流とを 1 対 1 に対応づけることができず、5.4.1 章で説明した 2 点磁場を用いた解析方法では、レーザ照射点以外のところにも流れる電流があるために、推定結果が不適切となったと考えられる。そこで、5.4.2 章で説明したように、8 点で磁場を測定し、それらの 3 次差分を行うことにより、レーザ照射点付近の電流から生じる磁場成分を抽出し、電流ベクトルの推定の検討を行った。その結果、2 点磁場を用いた解析結果よりも、誤差が小さくなったと考えられるが、この解析方法も、直線的な電流を想定しているため、精度に限界がある。しかし、試料の全体にわたって、各点にレーザを照射したときの電流ベクトルをおおよそ推定することができ、簡便である。最後に 5.4.3 章で説明した、レーザ固定法により取得した磁場像を電流像に変換した結果は、磁場情報を用いた解析として最も確からしい結果が得られている。しかし、試料の特定の 1 点にレーザを照射したときの電流しかわからないので、試料のいろいろな箇所での電流ベクトルを知りたい場合には各点での磁場像を測定する必要があり、労力を要する。しかし、この手法を用いれば、レーザ照射点周辺も含めたレーザ励起電流分布の解析を行うことができ、有用であることを示した。

5.5　表面電極の影響

太陽電池表面には、表面抵抗を抑えて、効率的に電流を取り出すための電極が存在する。2.2 章では、太陽電池表面にそのような抵抗の低い場所があると、内部閉回路を流れる際にも抵抗の低い場所に集中して流れることが観測された。ここでは、太陽電池における内部閉回路電流が表面電極によってどのように変化するかを調べるため、レーザ固定法の光学系を使用して、試料上のある一点にレーザを固定した場合に生じる磁場分布を測定し、2.5 章で述べた手法を用いて電流を推定した。表面電極の影響を調べるために、図 5.21 に示すような、多結晶シリコン太陽電池を用意した。この試料から、切断機を使用して、電極の

ない部分、フィンガー電極が独立に 2 本ある部分、櫛形に電極がつながっている部分の 3 種類を切り出し、それぞれのレーザ励起電流分布を調べた。

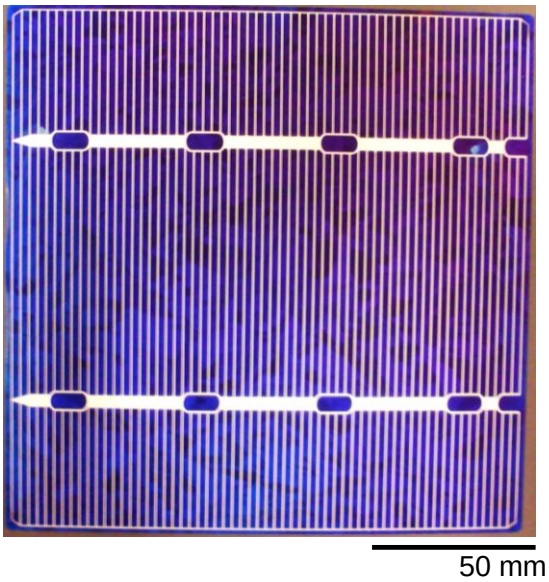


図 5.21　多結晶シリコン太陽電池全体写真

5.5.1　表面電極がない試料の測定結果

まず、表面に電極がない試料に対し測定を行い、流れる電流を推定した。図 5.22 に多結晶シリコン太陽電池から電極のない部分のみを切り出した試料を示す。これをレーザ固定法により測定した。その際の測定パラメータを表 5.12 に示す。この試料の 22 か所にレーザを固定し測定したレーザ励起磁場像を図 5.23 に示す。図には磁場像に試料の形状とレーザ固定位置を付記してある。このデータから、レーザを試料の端に近づけると、磁場強度が強くなる傾向がみられ、各画像においてレーザ照射点から数 mm 程度離れたところが磁場強度の最も強い箇所となった。

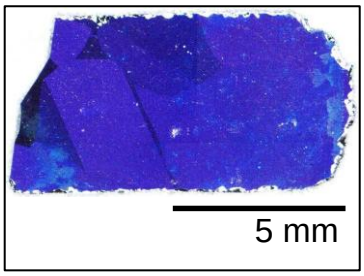


図 5.22　多結晶シリコン太陽電池の表面電極がない部分を切り出した試料の光学像

表 5.12　レーザ SQUID 顕微鏡の測定パラメータ

パラメータ		値
レーザ波長		780 nm
レーザパワー		1 mW
周波数		1 kHz
ロックインアンプ時定数		30~300 ms
走査速度		0.5~5 mm/sec
測定間隔	x	25~50 μm
	y	50 μm

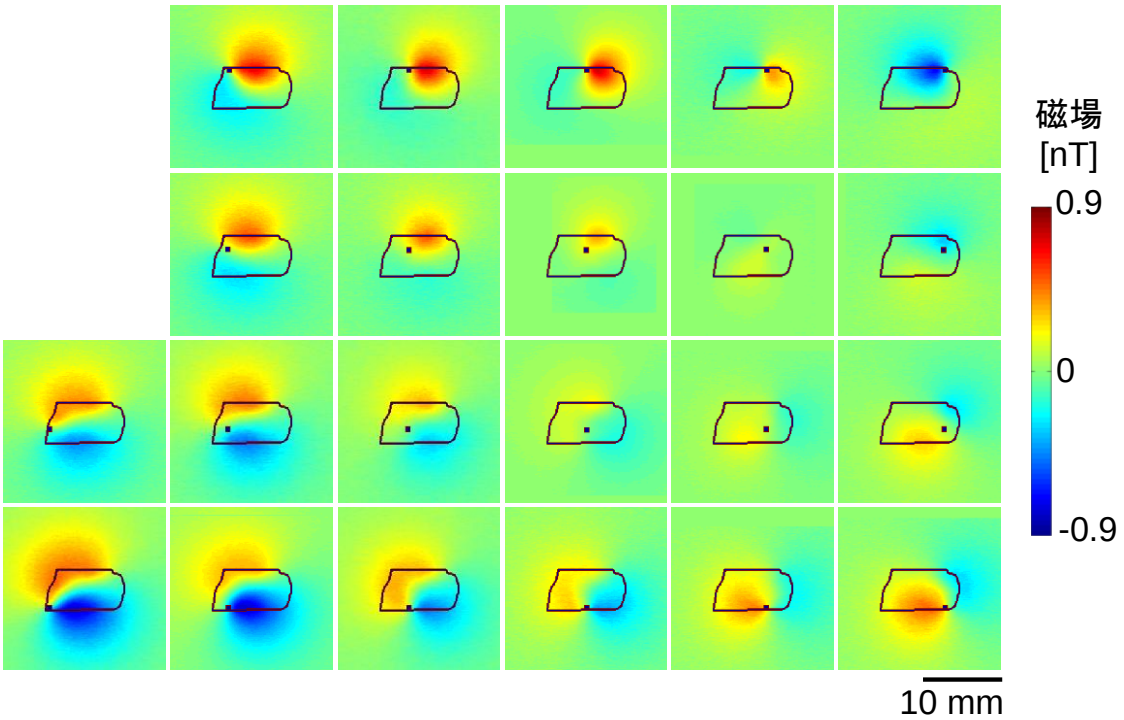


図 5.23　表面電極のない試料におけるレーザ励起磁場分布

図 5.23 の磁場像から電流分布を計算した。計算を行う際には、2.5 章で説明した電流推定プログラムに、試料の厚さの t、電流平面と磁場測定平面との距離の d、ローパスフィルタのカットオフ周波数の kmax を指定する必要があり、ここでは、$t = 1$ μm、$d = 0.35$ mm、kmax = 1 mm^{-1} とした。その計算結果を図 5.24 と図 5.25 に分けて示す。これらの結果から、表面電極のない試料では、次の 3 つのことがいえる。1 つ目はレーザ照射点近傍で電流密度がもっとも高くなること。2 つ目は、電流がレーザ照射点から試料中心に向けて流ており、レーザ照射点が中心部に近くなるにつれてには電流強度が低下すること。3 つ目は、電流は単純な直線状とは限らないことである。

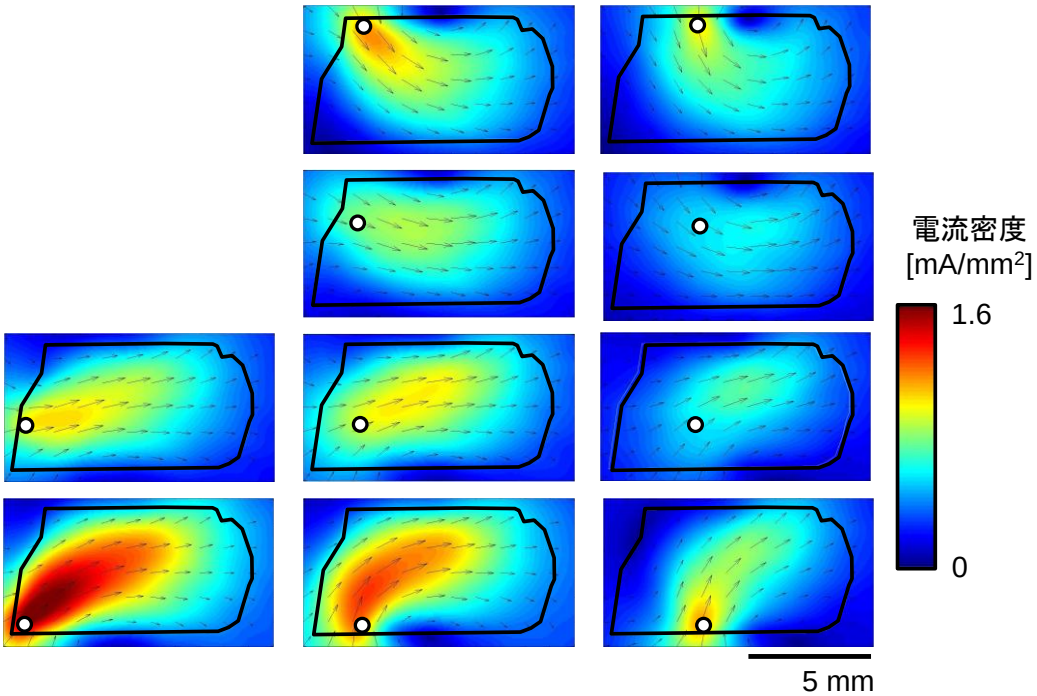


図 5.24　図 5.23 から磁場解析により求めた表面電極のない試料におけるレーザ励起不均一電流成分の分布（中心より左側に照射）

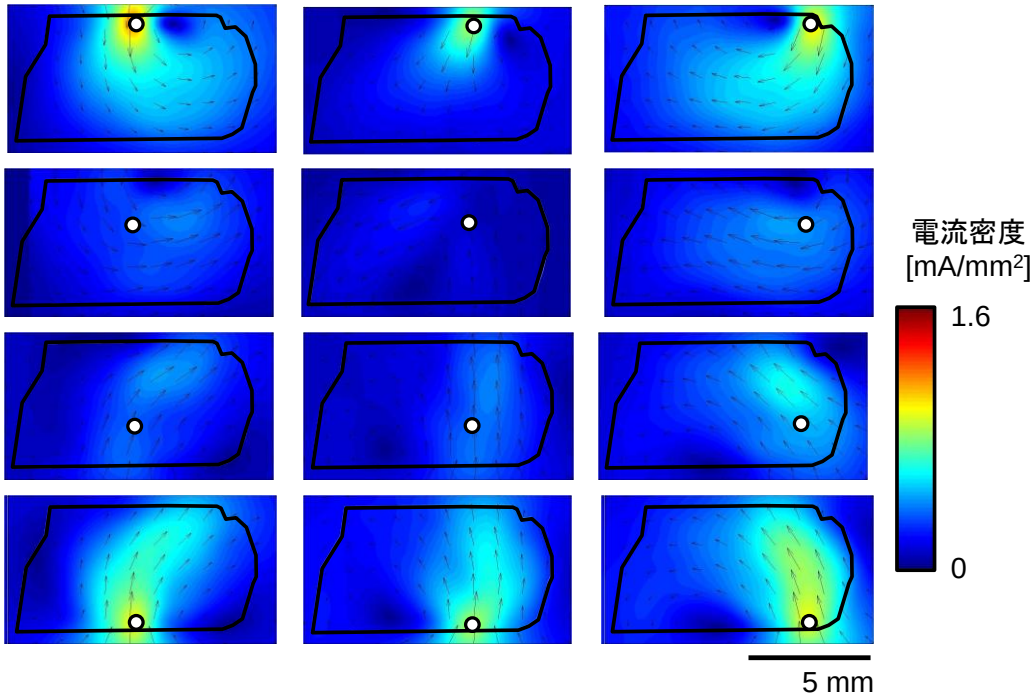


図 5.25　図 5.23 から磁場解析により求めた表面電極のない試料におけるレーザ励起不均一電流成分の分布（中心とその右側に照射）

ただし、今回推定した電流分布は、電子と正孔の両方が電流に寄与した正味の差電流のうち非対称（不均一）な電流成分が推定されたのであり、実際の電子あるいは正孔が寄与した電流成分を個別に推定できたわけではないことに注意が必要である。しかし、このようにレーザ SQUID 顕微鏡において、レーザ固定法による磁場の非接触測定から、レーザ照射に伴う正味の電流のうち不均一な電流成分の分布を推定できる。

5.5.2　フィンガー電極のある試料の測定結果

抵抗の低い経路が太陽電池にある場合には、電流は抵抗の低い経路を通る経路をとることを 2.2 章で示した。それを実験的に確かめるため、図 5.26 のように、フィンガー電極のある部分の太陽電池を測定し、その電流経路を推定した。この試料には、独立した 2 本の電極があった。表 5.13 に示した測定パラメータを用いて、レーザ固定法で測定し、レーザ励起磁場を測定した。その結果を図 5.27 に示す。磁場分布は、試料の中央あたりで極値を持つような分布となっており、レーザ照射位置を図 5.27 に示すように移動させると、磁場分布の極性が反転した。この磁場分布から、先ほどと同様にして電流分布を推定した結果を図 5.28 に示す。レーザ照射点に近い方の電極に沿う方向で、電流密度が最大になることがわかった。この電流の方向に注目すると、その方向はレーザ照射点に流れ込む方向であった。太陽電池表面は n 層であり、その伝導キャリアは電子であるので、この電流分布は電子電流による寄与だと考えられる。電子は n 層中を拡散して広がるより、照射点近くの電極に吸い寄せられて、抵抗が低い電極づたいに流れたと考えられる。これ以外にも、電流密度が高い領域がもう一つある。しかし、この電流分布と表面電極との相関性は少なく、電流の向きがレーザ照射点から流れ出ていく方向なので、この領域の電流分布は、試料内部の p 型基板で正孔が拡散した結果、電流に寄与した成分だと考えられる。以上から、表面電極があることによって電子電流と正孔電流が独立して見えた結果、環状になって流れる電流分布が推定されたと考えられる。

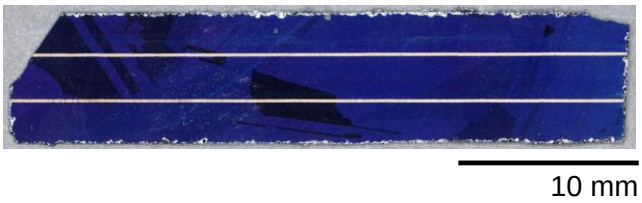


図 5.26　多結晶シリコン太陽電池のフィンガー電極のある部分を切り出した試料の光学像

表 5.13　フィンガー電極のついた試料の測定パラメータ

パラメータ		値
レーザ波長		780 nm
レーザパワー		1 mW
周波数		1 kHz
ロックインアンプ時定数		300 ms
走査速度		3 mm/sec
測定間隔	x	12.5 μm
	y	50 μm

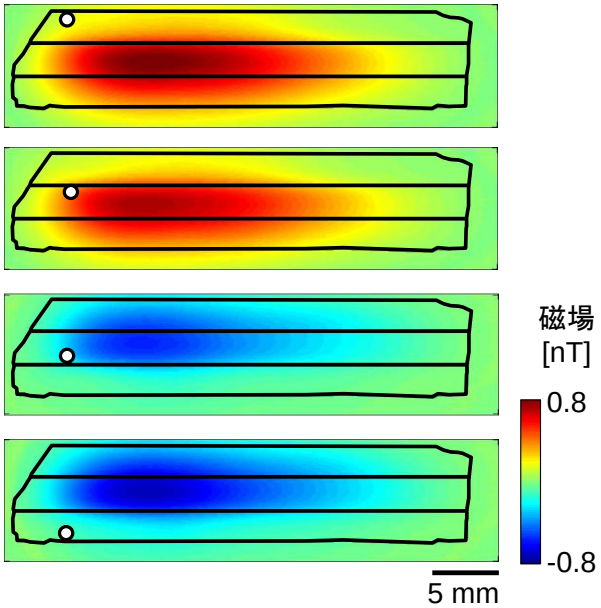


図 5.27　フィンガー電極のある試料のレーザ励起磁場。レーザ照射位置を白丸で示す。

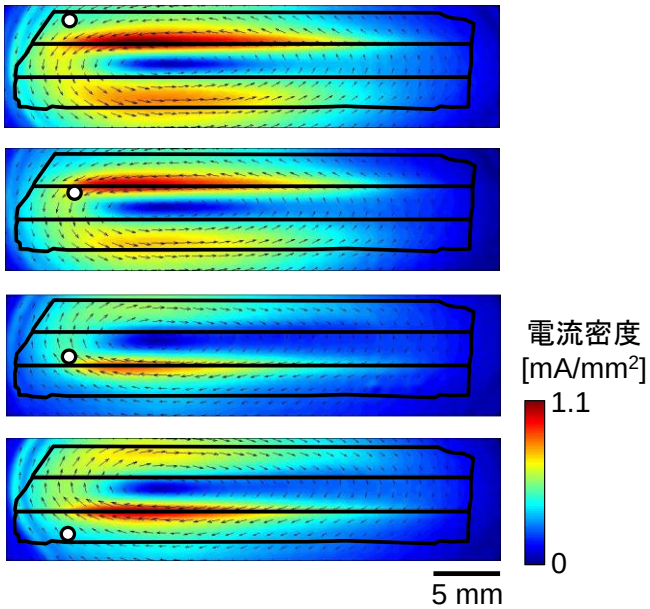


図 5.28　フィンガー電極のある試料のレーザ励起電流推定結果

5.5.3　櫛形電極のある試料の測定結果

太陽電池上において、発生したキャリアの電子が電極づたいにどのように流れるかを調べるため、図 5.29 に示すように、多結晶シリコン太陽電池から櫛形に表面電極のある部分を切り出した。複数のフィンガー電極同士が、1 本のバス電極で互いにつながっている。この試料においてレーザ固定法でレーザを照射する位置を変えて、どのような変化が生じるかを調べた。ここで、3 通りの場合に分けて、レーザ照射位置の依存性を調べた。1 つ目は、電極と電極との間でレーザ照射位置を横切る方向に移動させた場合、2 つ目は、レーザ照射位置とバス電極間の距離を変えた場合、3 つ目は、バス電極に沿って照射位置を変えた場合とした。

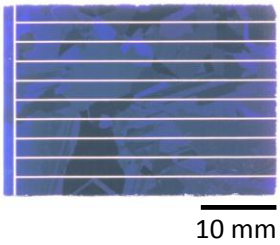


図 5.29　櫛形に表面電極のある多結晶シリコン太陽電池の光学像

図 5.30 に、レーザ照射位置を電極と電極の間で、電極を横切る方向に移動させた場合の結果として、レーザ励起磁場分布像と推定電流像を示す。図 5.30 の上部に、レーザ照射点を拡大した概略図のように、レーザ照射点が上側の電極に近いとき、電極間の中央部、下側の電極に近いときの 3 か所を比較した。磁場強度は、電極間の中央部にレーザを照射し

た場合に低下しており、磁場分布は、レーザ照射点というよりむしろバス電極に近い側に偏っている。また、レーザ照射点を中心軸として上下で、磁場が反転している。

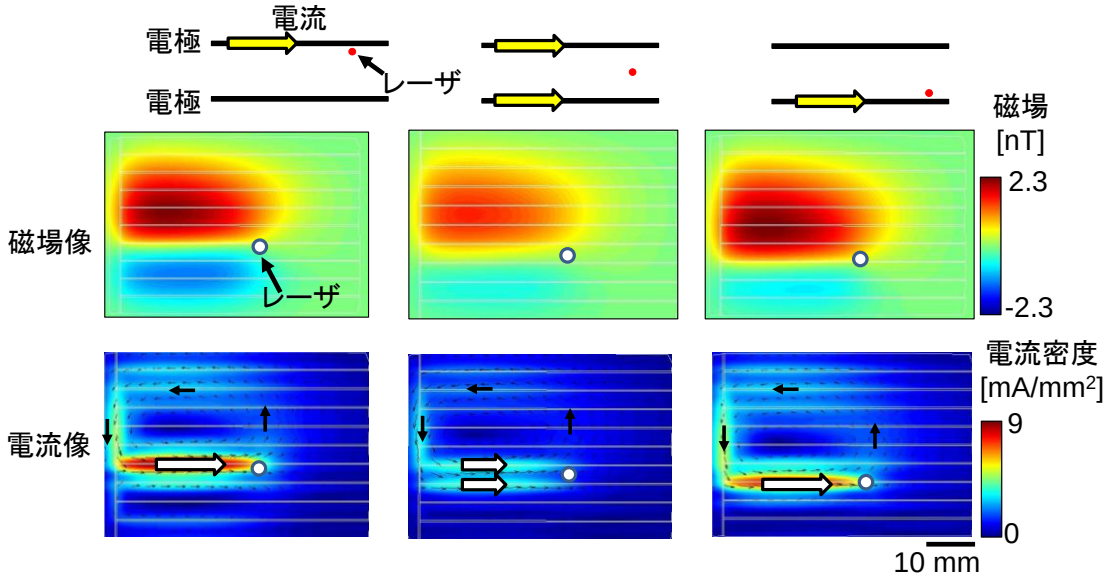


図 5.30　櫛形電極のある試料のレーザ励起磁場と推定電流分布（電極の間の位置依存性）

図 5.30 の最下段に、各磁場分布から電流を推定した結果を示す。これから、レーザ照射点に近い電極上に沿うように、レーザ照射点からバス電極の間の領域およびバス電極上の電流密度が高くなった。レーザ照射点を電極間の中央にした場合は、照射点に隣接する上下二本の電極に分かれて電流が流れている様子が推定された。電流の向きは、レーザ照射点に向かう方向に向いており、レーザ照射点から流れ出て電極づたいに流れる電子が寄与していると考えられる。また、電流密度はレーザ照射点とバス電極の間で最も高かったことが観察されている。先ほど 5.5.2 章でも述べたように、電子が拡散する際に、n 層中よりも抵抗の低い電極を通ったのだと考えられる。

次に、レーザ照射点とバス電極との間の距離を変えた場合について説明する。測定結果を図 5.31 に示す。これより、磁場分布はバス電極との間隔に依存して広がる傾向が見られた。図中の丸印は、レーザ照射位置で、図中の黒線は、電極の配置を表している。これらから電流推定した結果を図 5.32 に示す。レーザをバス電極近傍に照射した場合には、バス電極に沿うように電流密度が高くなっている。バス電極からレーザ照射点を遠ざけていっても、バス電極の分布はほとんど変わらず、照射点近傍からバス電極に至る範囲の電極上に電流が分布しており、レーザ照射点で発生した電子がバス電極に向かって流れていると考えられる。このように、櫛形に電極がある場合には、発生したキャリアの電子はレーザ照射点から最も近い電極づたいに流れ、全体のフィンガー電極の接続先のバス電極に至って、すべてのフィンガー電極へと広がっていると考えられる。

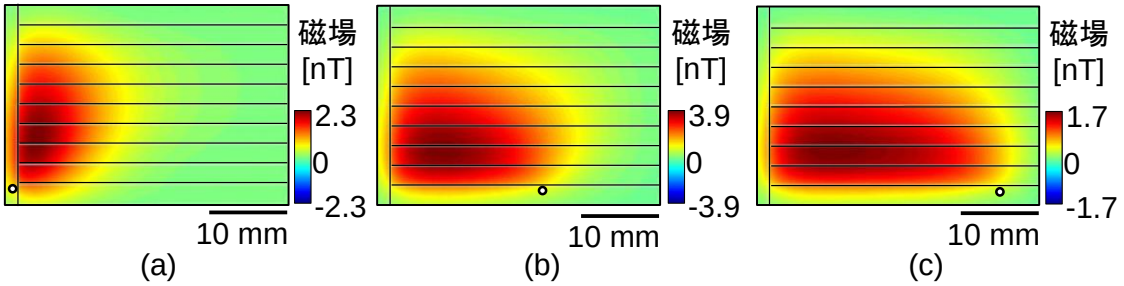


図 5.31　櫛形電極のある試料のレーザ励起磁場（バス電極からの距離依存性）。丸印の箇所にレーザを照射している。黒線は櫛形電極を表している。

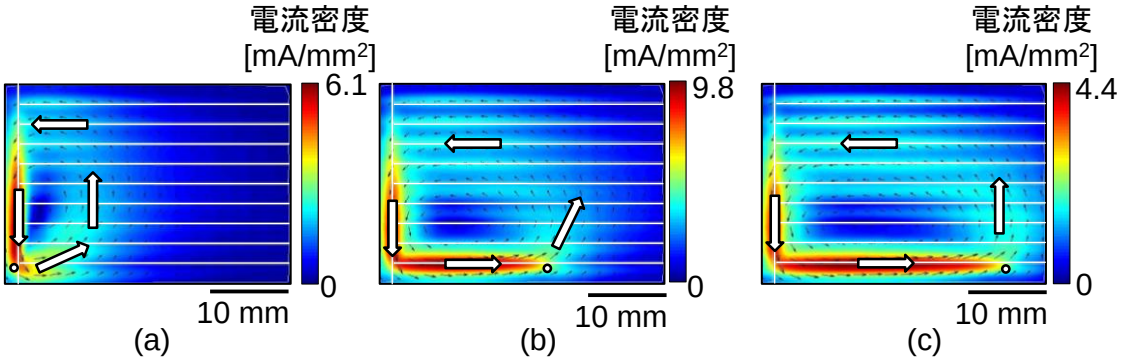


図 5.32　櫛形電極のある試料の推定レーザ励起電流分布（バス電極からの距離依存性）。丸印の箇所にレーザを照射している。白線は櫛形電極を表している。

最後に、バス電極沿いにレーザ照射位置を変えた場合について述べる。測定した磁場分布と推定電流分布を図 5.33 に示す。磁場分布は試料外にはほとんど見られず、試料上に分布していた。レーザ照射点をバス電極左横の位置で上方から下方に移動させた場合、生じる磁場分布の極性が変化した。分布の傾向としては、レーザ照射点よりも上側では“＋”、レーザ照射点よりも下側では“－”の磁場が分布している。

推定された電流分布を図 5.33(b)に示すが、図 5.33(a)の磁場分布の周囲を周回するような電流分布となっている。電子電流は、バス電極につながるフィンガー電極がカバーする面積が広い方へ流れていく傾向が読み取れる。したがって、レーザ照射位置が試料の上側だと電流は下方向に、試料の下側だと電流は上方向に流れる。電子はバス電極に沿って流れた後、フィンガー電極に入り試料全面へ広がり、やがて正孔と再結合して消滅する。消滅した正孔を補充するために、レーザ照射点を起点に正孔電流が広がっていると考えられるが、正孔電流は p 型基板を流れるので、その経路は表面の櫛形電極の影響を受けていないと考えられる。このため、全体としては電子電流と正孔電流により、試料内部でに閉じた環状電流が生じていると考えられる。

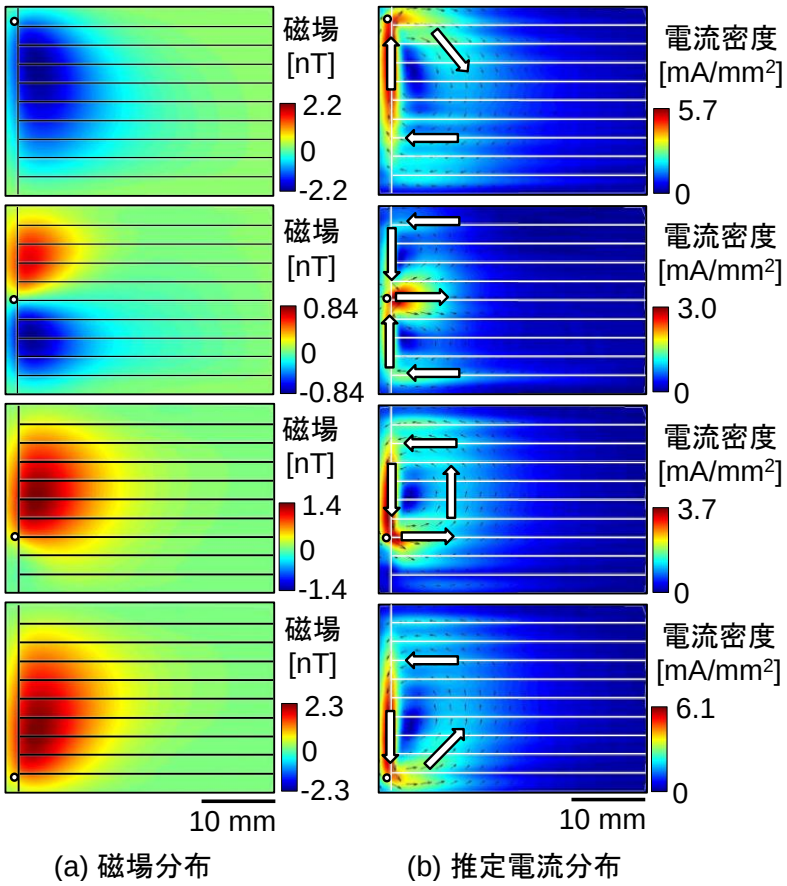


図 5.33　櫛形電極のある試料のレーザ励起磁場分布と推定電流分布（バス電極沿いの位置依存性)。丸印の箇所にレーザを照射している。櫛形電極も表示させている。

5.5.4　まとめ

5.5 章では、多結晶シリコン太陽電池の表面電極が電流経路に及ぼす影響を調べるために、表面電極のない場合、独立した 2 本のフィンガー電極がある場合、櫛形に表面電極が存在する場合について、レーザ固定法により磁場分布を測定し、磁場分布から電流分布の推定を行った。その結果、表面電極のない場合では、レーザを試料の端付近に照射すると、試料内部に向かって広がる電流分布が推定された。この場合の特徴として、電流密度がレーザ照射点近傍で高く、直線的ではないことがわかった。

次に、フィンガー電極や櫛形電極のある場合について調べると、電極がない場合と大きく異なる結果が得られた。電極がある場合には、電流密度はレーザ照射点から最も近い電極上で最も高くなり、電極に沿って流れることが示された。また、櫛形状に電極のある試料においては、電子が電極上を、電極のカバーする面積が広い方に向かって流れていく傾向があることがわかった。この様子を図 5.34 と図 5.35 を使って説明する。図 5.34 に示すように、レーザが太陽電池に照射されると、レーザの侵入深さ程度の深さまで電子 - 正孔対が生成され、pn 接合によって電子は n 層に集められる。正孔は裏面電極の電子と再結合

する。このようなキャリアの動きによって、n 層は負に、裏面電極は正に帯電し、pn 接合の内臓電界を打ち消すような電界が生じる。pn 接合の内臓電界が打ち消されると n 層の電子が裏面電極まで拡散する確率が大きくなる。定常状態においては、図 5.34 のように、レーザ照射点で生成された電子が n 層へ流れ、その後、n 層から裏面電極へ移動し、レーザ照射により生成された正孔と再結合して消滅すると考えられる。表面電極の影響を考えるため、図 5.35 のように、複数あるフィンガー電極の内の 1 本のフィンガー電極の近くにレーザを照射した場合についてキャリアの流れについて考えてみる。n 層に着目すると、図 5.35(a)に示すように、レーザ照射点で生成された電子が、最も近くの電極に入ったあと、電極を通って n 層全面に拡散していくと考えられる。この場合、電子の通る経路は、電極の形状に従う。また、レーザ照射点とバス電極との間が最も電流密度が高くなる。図 5.34 のように、pn 接合の内臓電界が打ち消されると n 層から裏面電極へ電子が移動するので、n 層を流れる電子は少しずつ減少していく。一方で、裏面電極では、図 5.35(b)に示すように、レーザ照射位置付近で、電子が正孔と再結合して電子密度が低下するため、周囲から電子が供給されるが、その電子は、表面の n 層全面から供給される。裏面電極では、導電率が均一なため、電子はまっすぐにレーザ照射位置へ向けて流れると考えられる。

このように、太陽電池においては、表面電極の配置によって電流経路が変化することが示された。ただし、ここで議論してきた電流分布は、あくまで逆問題として磁場から電流分布を推定したにすぎず、しかも測定された磁場は電子と正孔を合わせた正味の電流のうち不均一な成分からの寄与であり、推測した電流分布も不均一な電流成分のみということになる。必ずしもすべての電子や正孔がここで述べたような経路を取って流れたことを立証したわけではないことを付言しておく。

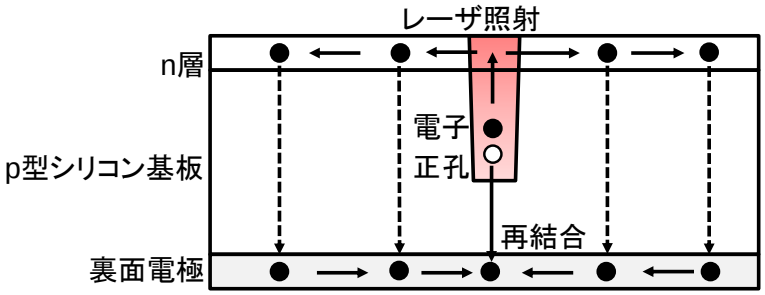
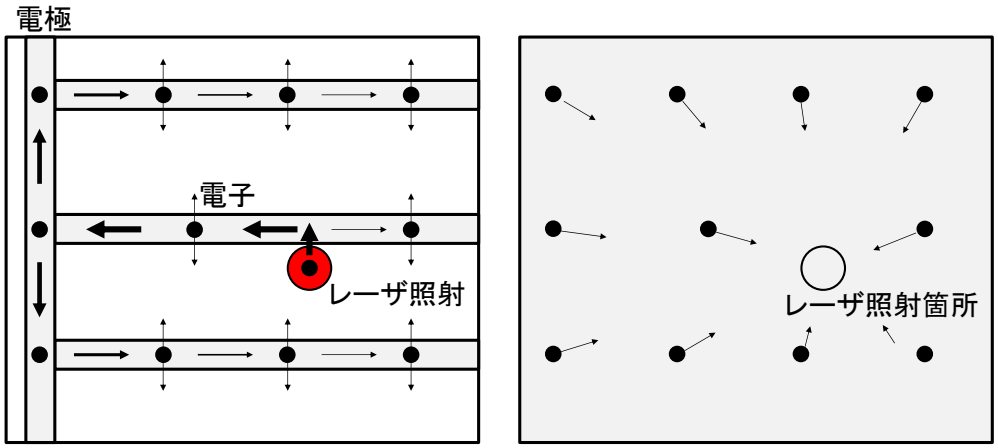


図 5.34　太陽電池内でのキャリアの動き（断面図）



(a) n層での電子の動き　　(b) 裏面電極での電子の動き

図 5.35　太陽電池の n 層内でのキャリアの動き

5.6　電気的接触を要する LBIC 法との比較

太陽電池の局所的エネルギー変換効率の評価に LBIC（Laser Beam Induced Current）がある[49, 51-61]。名称としては、OBIC（Optical Beam Induced Current）[63]や、MBIC（Monochromatic Beam Induced Current）[63-64]とも呼ばれることがある。また、同じ略語でも Light Beam Induced Current[66]と表記されることもあるが、これらはすべて同様な方法である。LBIC 法では、図 5.36 に示すように、レーザを走査させ、太陽電池の短絡電流をマッピングする。LBIC 法と、レーザ SQUID 顕微鏡との違いとしては、レーザ SQUID 顕微鏡では、試料内部での閉回路電流による磁場を測定するが、LBIC では、試料外部に出てくる電流を測定する。また、レーザ SQUID 顕微鏡で測定される磁場は、内部で流れる電流強度だけではなく、電流経路にも依存するが、LBIC では、経路への依存はなく、電流強度そのものを測定することができる。レーザ SQUID 顕微鏡においても、測定される磁場が電流経路にあまり依存しないような試料の測定では、電流強度に関する評価を行うことができ、LBIC と同様な評価が行えることを期待した。そのような試料としては、櫛形にフィンガー電極のある試料が考えられる。5.5 章の結果、櫛形に電極がある場合、レーザ照射点からすぐ近くの電極に一方向に電流が流れ、電流の流れる方向は変化しないためである。そこで、図 5.1 にある 5.1 章で用いたものと同じ試料を用いた。LBIC 法の測定系概略図を図 5.37 に示す。レーザ SQUID 顕微鏡装置の内、試料走査系、レーザ光学系は同じものを用いている。LBIC では、短絡電流を測定するので配線が必要である。接触抵抗による誤差を小さくするため、配線にはアルミ箔を用い、導電性ペーストでなるべく広い面積で太陽電池の電極部分に接着するようにした。その様子を図 5.38 に示す。この図では、表側を示しているが、裏側も同様に配線を行っている。アルミ箔は、さらに、ハンダにより同軸ケーブルに接続した。

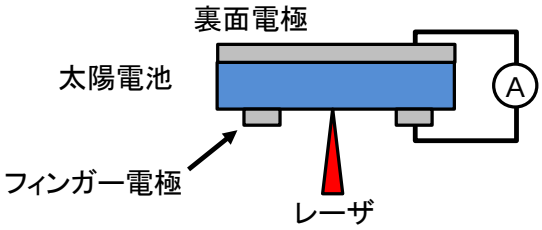


図 5.36　LBIC 概念図

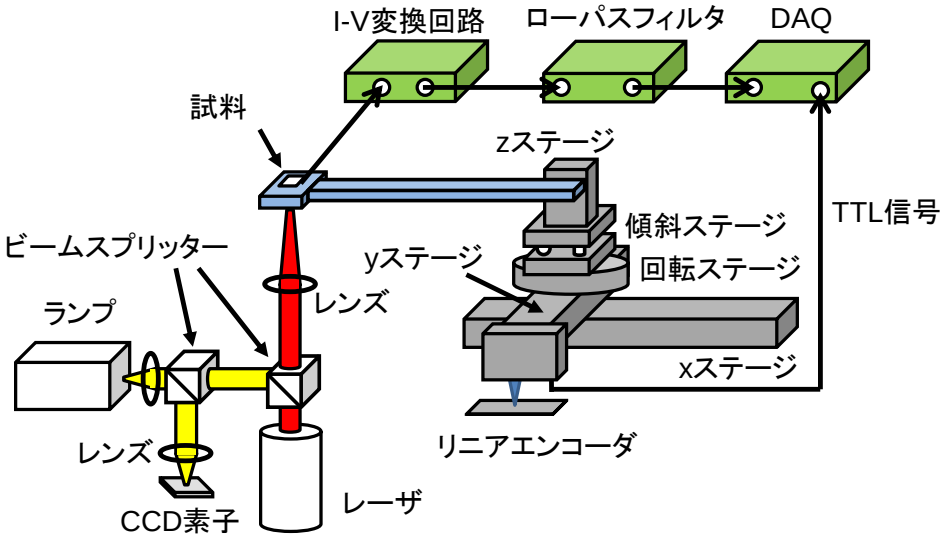


図 5.37　LBIC の測定系概略図

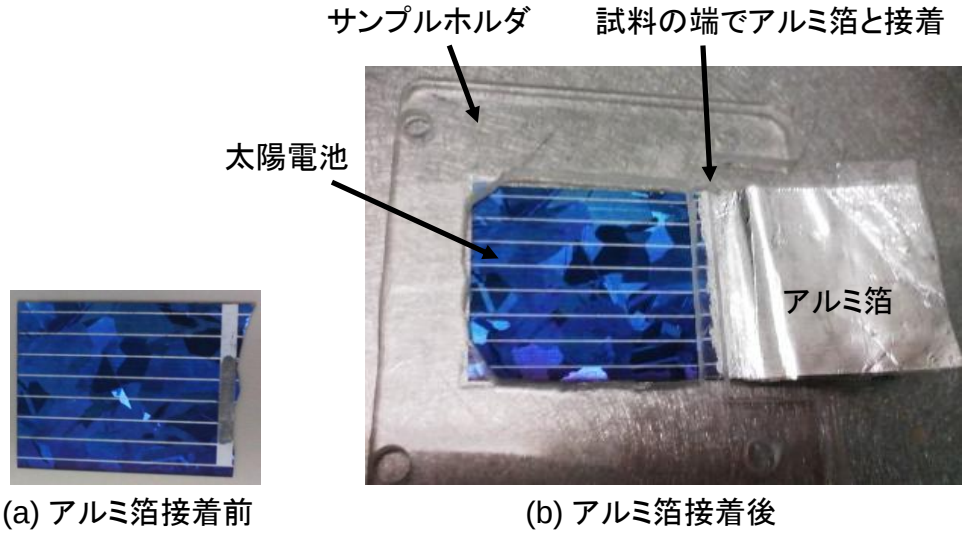


図 5.38　試料に配線した様子

LBIC 法では、十分な SN 比が得られたため、レーザによる変調は行っていない。測定の際には、太陽電池の表と裏の電極の間に流れる短絡電流を測定する必要があり、オペアンプを用いた簡単な I-V 変換回路を用いた。その回路図を図 5.39 に示す。この回路では、I-V 変換回路の後に、等倍の反転増幅器をつけて、前段で反転した信号を再度反転させることで、元に戻している。この回路の電流電圧特性は、次式のようになる。

$$V_{out}[V] = R1[\Omega] \times I_{in}[A] \tag{5.9}$$

R1 を変更することで、変換係数を決めることができる。今回は、最大 10 mA 程度を 1 V に増幅できるように、$R1 = 100\,\Omega$とした。この回路の電流電圧特性を図 5.40 に示す。0.3 mV のオフセットがあるため、微弱電流測定時にはその影響が無視できないが、0.01 mA 以上では、無視できるレベルとなっている。実際の測定では、1 mA 程度のレベルであったので、測定には問題ないレベルだと考えている。

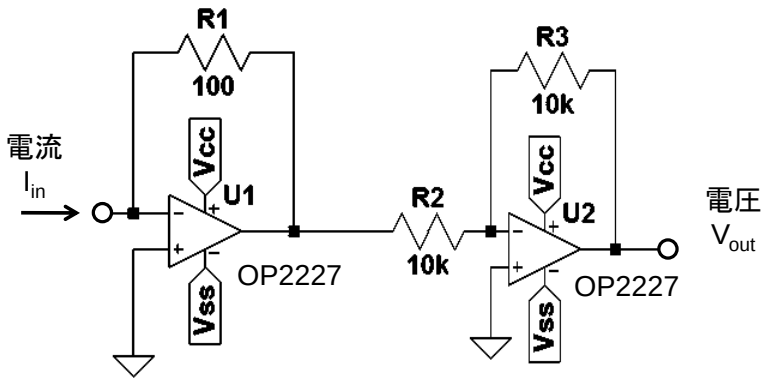


図 5.39　作製した I-V 変換回路

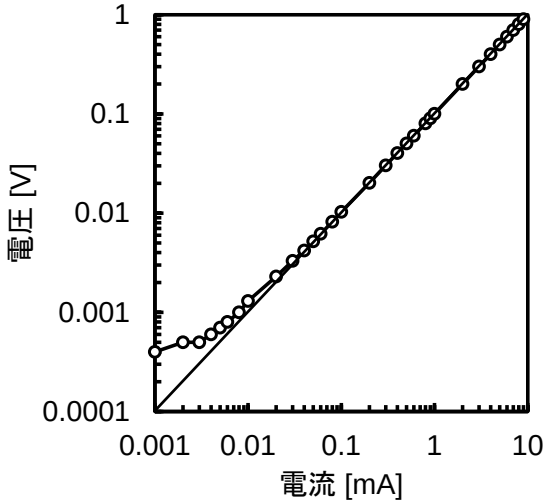


図 5.40　I-V 変換回路の電流 - 電圧特性

I-V 変換された信号はローパスフィルタを通して高周波のノイズを落とした。ローパスフィルタは、NF Electronic Instruments の 3625 Dual Channel Programmable Filter を用いている。DAQ のサンプリングは、試料走査と同期しているが、試料は、10 mm/sec の速度で走査させ、0.4 μm 間隔でリニアエンコーダからパルス信号が DAQ に入力され、DAQ ではこれと同期している。よって、DAQ のサンプリング周波数は 25 kHz になる。ローパスフィルタの設定では、このサンプリング周波数のナイキスト周波数となる 12.5 kHz をカットオフ周波数としている。測定に用いたレーザパワーは 2 mW とした。レーザの波長は、405 nm、780 nm、1065 nm の 3 種類を用いている。3 種類の波長での LBIC とレーザ SQUID 顕微鏡の測定との比較を図 5.41 に示す。

このレーザ SQUID 顕微鏡画像は、5.1 章の測定結果と同じ画像である。それぞれの波長で、LBIC とレーザ SQUID 顕微鏡画像を比べると、ほぼ一致した画像が得られていることがわかる。レーザ SQUID 顕微鏡で得られたように、LBIC でも、405 nm では見えなかった欠陥が、780 nm を使うと、明瞭に見え、1065 nm のレーザを使用すると、欠陥の線幅が太くなっている。このように、LBIC で評価されるような、欠陥の模様がレーザ SQUID 顕微鏡でも正確に捉えられているのは、レーザ SQUID 顕微鏡で測定した磁場が、pn 接合でキャリアが分離されて生じる電流と相関があるからである。ただし、レーザ SQUID 顕微鏡画像をよく見ると、若干の磁場オフセットの変動がみられ、電流の方向による影響も少なからずあることがわかる。しかし、LBIC は電気的配線を要するのに対し、レーザ SQUID 顕微鏡は非接触に欠陥を評価できることが示された。

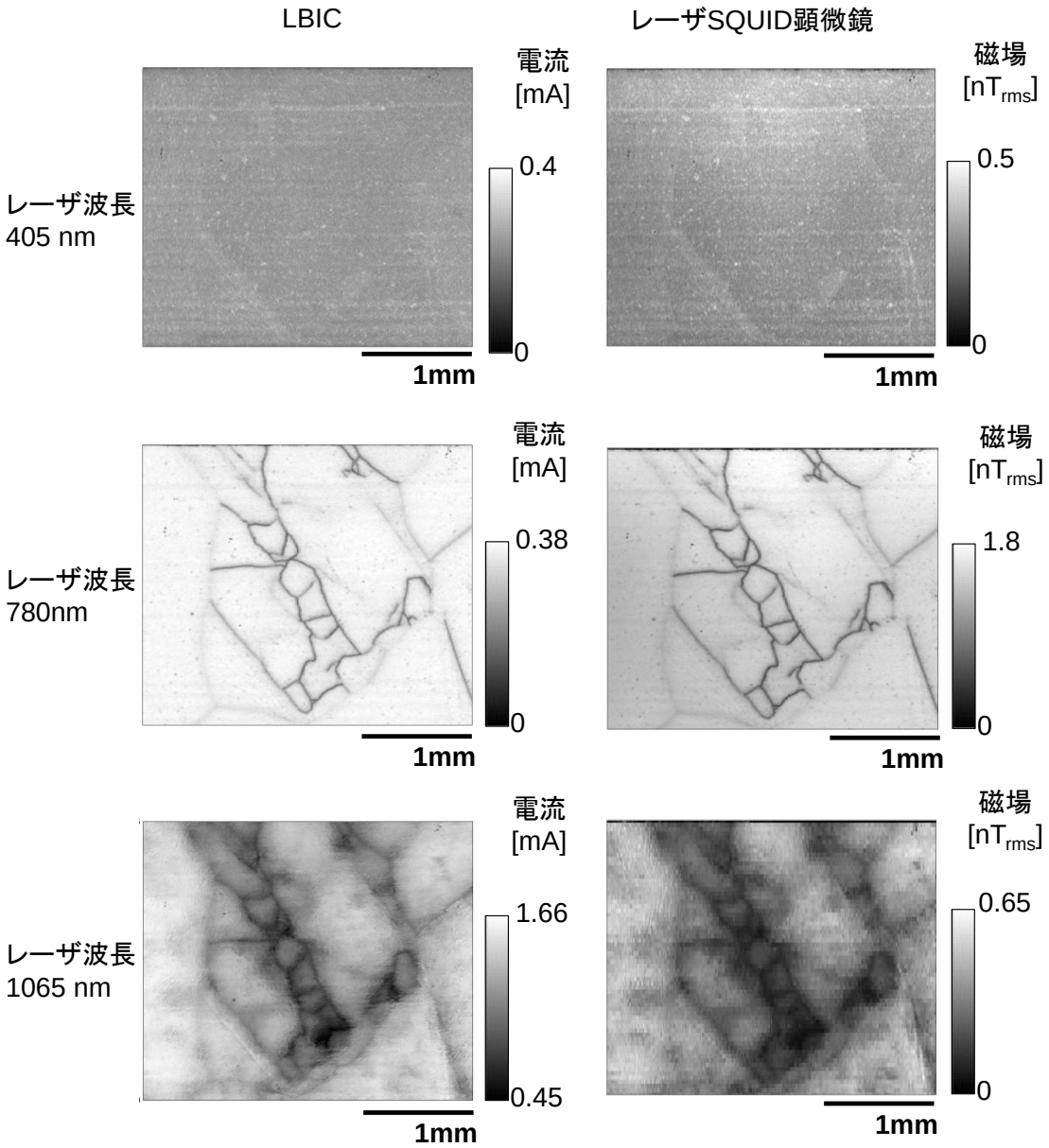


図 5.41　LBIC 像とレーザ SQUID 顕微鏡像との比較

今回、レーザ SQUID 顕微鏡画像が、LBIC の電流強度像とよく一致したことが示されたが、これは、走査に伴いレーザ照射位置が変化しても電流経路が測定範囲内であまり変化しなかったためだと考えられる。これは、測定範囲が狭いことや、櫛形に電極があったことが関係している。5.5 章で、櫛形電極がある場合には、フィンガー電極のある中央部にレーザを照射した場合、電子電流がバス電極に向かって流れることを示したように、今回の試料も、図 5.38(a)からもわかるように櫛形電極がある試料の中央部を測定したため、電子電流が右のバス電極に向かってほぼ一様に流れることになり、レーザ照射点の上側にニー

ドルがある配置ではマイナスの磁場が、下側ではプラスの磁場分布が測定されることになる。

図 5.42 と図 5.43 はそれぞれ 780 nm と 1065 nm を使用して、ニードルの位置をレーザ照射点から 2.1 mm±x と±y 方向へずらして取得したレーザ走査法による、レーザ SQUID 顕微鏡画像である。レーザ照射点より＋y 側でマイナスの磁場で、−y 側でプラスの磁場となっており、バス電極に向かって電子電流が流れていることが裏付けられた。

この結果から、レーザ SQUID 顕微鏡を用いて櫛形に電極がついている太陽電池を検査する場合には、磁場強度が電流強度に比例する関係が得られ、LBIC と同様の結果を非接触に得られることが示された。本研究では、櫛形電極を用いたが、櫛形電極でなくても、電子電流と正孔電流の経路を分離し、電流経路を固定する方法があれば、内部に流れる電流強度の評価が可能になると考えられる。

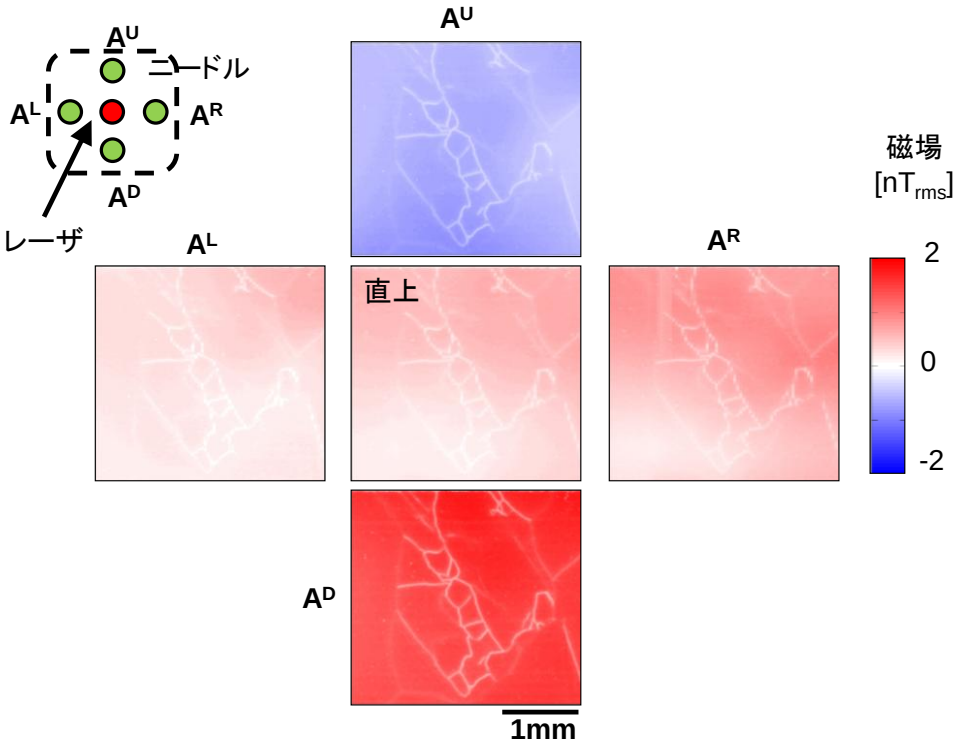


図 5.42　780 nm を使用したときのレーザ SQUID 顕微鏡のニードルの位置依存性

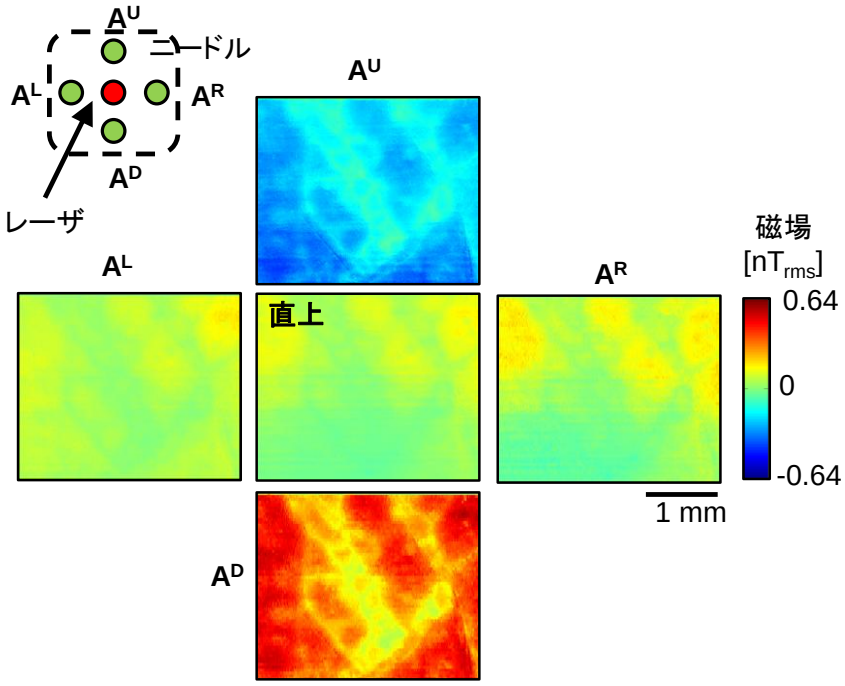


図 5.43　1065 nm を使用したときのレーザ SQUID 顕微鏡のニードルの位置依存性

5.7　まとめ

本章では、開発したレーザ SQUID 顕微鏡を多結晶シリコン太陽電池の評価に用いるための検討を行った。最初にレーザの波長依存性について検討した。波長を変えることで、試料に対する光の吸収係数が変化し、光の侵入深さが変化する。侵入深さが変化することで、電子 - 正孔対が生成される深さが変わり、深さに依存する欠陥が測定されたと考えている。次に、波長以外の計測パラメータの検討を行った。変調周波数の依存性を調べた結果から、走査時に空間分解能を決めるレーザスポットサイズの距離を移動するのに要する時間はレーザ変調周期よりも十分長く取る必要性が示された。また、レーザ（10~30 mW）以外に外乱光（0.5 mW/cm^2）を照射した場合には、外乱光がない場合に比べて、磁気信号強度が8~10%程度低下した。これは、試料内部の閉回路電流が光照射に比例しないことから説明した。

レーザ走査法における磁場測定位置の影響を測定したところ、得られたレーザ SQUID 顕微鏡画像の磁場強度や磁場分布が、磁場測定位置によって全く異なる結果となった。これは、走査によりレーザ照射位置が変化すると、電流経路が変わることを意味する。そこで、レーザ走査法で得られる磁場強度の意味を詳しく議論するためには、電流経路を明らかにすることが重要である。

レーザ励起電流の解析法として、3 つの手法を検討した。そのうち、8 点磁場を用いた解析法では、ニードルの位置を変えてレーザ走査法によりレーザ SQUID 顕微鏡画像を 8 回

取得する必要があったが、画像の各点のレーザ照射点における電流の方向をおおよそ推定することができた。また、レーザ固定法によりレーザを 1 点に固定して得た磁場像から電流分布を推定する手法を用いると、多結晶太陽電池の電流分布として妥当な結果が得られることがわかった。この手法では、試料の 1 点にレーザを照射したときの電流分布を調べるために磁場像を取得する必要があり、多くの箇所でのレーザ励起電流ベクトルを調べるときには労力を要する。しかし、この手法により、試料全体の電流分布を推定することができた。

一般に、多結晶シリコン太陽電池には、表面に電極が存在するので、この表面電極の影響についてレーザ固定法を用いて評価した。電極がない試料では、レーザ励起電流はレーザ照射点付近が最も強く、試料内部に向かって分布した。一方、電極がある試料では、レーザ照射点に最も近い表面電極に沿って電流密度が大きくなる結果が得られ、レーザ照射点から電子が表面電極に吸い寄せられ、電極を伝って試料全面へ配分されるように流れることが示唆された。

最後に、電気的接触を要する LBIC 法との比較を行った。その結果、405 nm、780 nm、1065 nm のどの波長を用いても、レーザ SQUID 顕微鏡（レーザ走査法）と LBIC 法の画像がよく一致することを示した。ただし、この試料では櫛形電極が存在していたために、電流経路がレーザ照射によって大きく変わらず、結果として測定された磁場強度と電流強度とが比例関係にあったために、キャリアの発生効率に対応した画像が得られたのだと考えている。

第6章　結論

本論文では、大気中・室温下におかれた試料の磁場像を高空間分解能で得られる独自のレーザ SQUID 顕微鏡の開発、および、多結晶シリコン太陽電池の非接触評価をまとめた。以下に各章で得られた主要な結論を述べる。

第 2 章では、半導体試料にレーザを局所的に照射した場合に試料内部で流れる電流について考察を行った。等価回路に置き換えて考察した結果、pn 接合など内部電界のある不均一な半導体試料においては、内部で閉回路電流が流れることを説明した。また、太陽電池においては、受光面側の電子電流が抵抗の低い前面櫛形電極を通る経路を取ることについて等価回路をシミュレーションすることで説明した。また、ノイズの含まれる磁場情報から、磁場源に関する情報を得る方法について述べた。

第 3 章では、まず、大気中・室温下にある試料に対し高分解能で磁場分布を得るためニードルプローブ付走査型 SQUID 顕微鏡部分の開発を行った。ニードルと SQUID のピックアップループとの結合に関して、ピックアップループの内径依存性等を電磁シミュレータ Opera-3d により調べ内径が 3 mm の時に結合率が高くなることを示し、直接連結型 SQUID の設計・作製・評価を行い、I_C＝53 μA、磁場 - 電圧特性の変調振幅 V_{pp}＝20.6 μV の素子を得た。また、電磁シミュレーションで得られた結果を参考に、先端径が 0.1 mm のニードルを作成した。SQUID を冷却保持用のデュワーに実装し、ニードルをその直下の真空隔壁に設置した。さらに環境ノイズ低減のため、3 重磁気シールドボックス内にデュワーを設置したところ、システムノイズは、0.62 $pT_{rms}/Hz^{1/2}$ となった。さらに、サンプル走査機構や制御プログラムを開発し、ニードル付走査型 SQUID 顕微鏡を開発した。次に、レーザ光学系を開発した。レーザ走査法とレーザ固定法による光学系を開発し、400 nm～780 nm 程度までは十分に使える光学系を開発した。1065 nm の光学系も別途用意し、405nm、780 nm、1065 nm の 3 つの波長でレーザ SQUID 顕微鏡を開発できた。さらに、SN 比向上のために、ロックインアンプの使用を検討し、ロックインアンプによる波形の歪みはロックインアンプの応答関数で逆畳み込み処理を行えば、補正できることを示した。最後に、レーザ SQUID 顕微鏡で得られる磁気画像の処理プログラムを、MATLAB を用いて開発した。

第 4 章では、開発したレーザ SQUID 顕微鏡の基本的な性能評価を行った。最初に、走査型 SQUID 顕微鏡の空間分解能について調べ、0.1 mm 幅の磁気インクを確認できることを確かめた。レーザスポットサイズの確認を行い 405 nm のレーザで、14 μm、780 nm のレーザで、20 μm、1065 nm のレーザで 15 μm を得た。レーザ SQUID 顕微鏡の空間分解能を、多結晶シリコン太陽電池の微細なテクスチャ構造の半値幅で評価することで、5.5 μm となることがわかった。レーザスポットサイズよりも小さくなったのは、レーザ強度がスポットサイズ内で強度分布を持つためだと考えられる。最後に、多結晶シリコン太陽電池以外の試料の検討を行ったが、引き続き検討が必要であった。

第 5 章では、開発したレーザ SQUID 顕微鏡を多結晶シリコン太陽電池の評価に用いるための検討を行った。レーザ波長を変えることで、試料に対する光の侵入深さが変化し、深さに応じた欠陥を観察することができた。また、ある 1 点にレーザを照射した場合に生じる磁場強度のレーザパワー依存性を調べた結果、レーザパワーに対し非線形な特性となった。これにより、内部閉回路電流強度がレーザパワーに対し非線形の依存性があることが示された。レーザ走査法において、磁場測定位置を変えると、磁場強度や磁場分布が全く異なる結果となり、レーザ走査法で得られる磁場強度について議論するためには、電流経路を明らかにしておく必要性が示された。そこで、レーザ固定法によりレーザを 1 点に固定して得た磁場分布から電流を推定する手法を用いて、多結晶シリコン太陽電池に流れる電流の解析を行った。その結果、多結晶シリコン太陽電池に、表面電極がない場合には、レーザ励起電流はレーザ照射点付近で最も強く、試料内部へ流れる傾向があった。また、電流は直線状ではなく、試料の形状に応じて曲がっていることも示された。電極がある場合については、表面の n 層内の電子電流がレーザ照射点に近い電極に沿って試料全面へ配分されるように流れることが示された。最後に、電気的接触を要する LBIC 法との比較を行った。その結果、405 nm、780 nm、1065 nm のどの波長を用いても、レーザ SQUID 顕微鏡（レーザ走査法）と LBIC 法の画像がよく一致することが示された。ただし、これは、電流経路が櫛形電極によって固定されていたために、レーザ SQUID 顕微鏡で得られる磁場強度と電流強度とが比例関係になっていたためだと考えられた。櫛形電極以外に、電流経路を固定する方法があれば、内部に流れるレーザ励起電流強度の評価を磁場測定により実現できると考えられる。

本研究で開発したレーザ SQUID 顕微鏡により、大気・室温下の試料に対して、レーザ走査法では結晶粒界等の欠陥検査を、レーザ固定法ではレーザ励起電流の解析を行うことができた。

謝辞

本研究を行うにあたり、多くの御指導、御教示を賜りました指導教員である糸﨑秀夫教授に深く感謝の意を表します。

本論文作成にあたって、幅広い視点から貴重なご指導とご助言を賜りました岡本博明教授、高井幹夫教授、仙台高等専門学校　林忠之准教授に心より感謝の意を表します。

大阪大学大学院在学中に御指導、御教示を賜りました占部伸二教授、岡村康行教授、北川勝浩教授、酒井朗教授、白石誠司教授、永妻忠夫教授に心より感謝の意を表します。

本研究を進める上で数多くの御助言、御協力を頂きました赤羽英夫准教授、宮戸祐治助教、渡邉騎通特任研究員に心より感謝いたします。

シャープ株式会社　中村京太郎氏には、多結晶シリコン太陽電池サンプルを頂きました。心より感謝いたします。

物質・材料研究機構　主任研究員　立木実氏には、レーザ SQUID 顕微鏡装置や関連装置をお借りしました。心より感謝いたします。

浜松ホトニクス株式会社　松本徹氏には、1065 nm のレーザ光学系を製作していただきました。心より感謝いたします。

住友電気工業株式会社　永石竜起氏には SQUID 実装技術に関して御指導いただきました。心より感謝いたします。

滋賀県立大学　作田健教授には、大阪大学の准教授在任中、多くの御助言、御教示を賜りました。深く感謝いたします。

産業技術短期大学　藤井龍彦教授には、超伝導薄膜作製に関して多くの御助言、御教示を賜りました。深く感謝いたします。

産業技術短期大学　牧哲朗講師には、大阪大学の助教在任中、博士前期課程および博士後期課程 2 年次までの間、丁寧に御指導いただきました。深く感謝いたします。

中国科学院上海微系統与信息枝術研究所　孔祥燕氏には、大阪大学の特任研究員在任中に SQUID の作製に関してご協力を頂きました。深く感謝いたします。

神代万亀夫　元技術専門職員には電子回路の作製に関して御指導いただきました。心より感謝いたします。

同じ研究グループで共に協力しながら研究を進めた佐野文哉氏、島田允康氏、油谷昭範氏、沖本卓也氏、呉松沙織氏、丹羽順一氏、大谷幸太郎氏、日野隆志氏に心から感謝いたします。

研究を円滑に進められるよう御助力いただいた藤野夏菜子秘書、長谷川明香秘書に深く感謝いたします。

博士後期課程において経済的なご援助を頂きました大阪大学グローバル COE プログラム「次世代電子デバイス教育研究開発拠点」に心より感謝いたします。

様々な面でご協力いただいた糸﨑研究室のすべてのスタッフ、学生、卒業生に心より感謝いたします。

最後に、本研究を遂行するに当たり心の支えとなりました父と母、妹に深く感謝します。

本論文は亡き祖父母に捧げます。

参考文献

[1] D. Choen, “Magnetoencephalography: Detection of the brain’s electrical activity with a superconducting magnetometer,” *Science*, vol. 175, pp. 664-666, Feb. 1971.

[2] D. Cohen, E. A. Edelsack, and J. E. Zimmerman, “Magnetocardiograms taken inside a shielded room with a superconducting point-contact magnetometer,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 16, p. 278, Apr. 1970.

[3] B. S. J. Deaver and W. S. Goree, “Some Techniques for Sensitive Magnetic Measurements Using Superconducting Circuits and Magnetic Shields,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 38, pp. 311-318, Mar. 1967.

[4] Y. S. Greenberg, “Application of superconducting quantum interference devices to nuclear magnetic resonance,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 70, pp. 175-222, Jan. 1998.

[5] R. Brain, G. Donaldson, S. Evanson, and G. Hayward, “Design and operation of SQUID-based planar gradiometers for NDTof ferromagnetic,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 23, pp. 473–476, Mar. 1987.

[6] A. D. Hibbs, R. E. Sager, D. W. Cox, T. H. Aukerman, T. A. Sage, and R. S. Landis, “A high-resolution magnetometer magnetic imaging system based on a SQUID,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 63, pp. 3652-3658, Jul. 1992.

[7] R. C. Black et al., “Magnetic microscopy using a liquid nitrogen cooled $YBa_2Cu_3O_7$ superconducting quantum interference device,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 62, pp. 2128-2130, Apr. 1993.

[8] J. R. Kirtley et al., “High-resolution scanning SQUID microscope,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 66, pp. 1138-1140, Feb. 1995.

[9] T. S. Lee, E. Dantsker, and J. Clarke, “High-transition temperature superconducting quantum interference device microscope,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 67, pp. 4208-4215, Dec. 1996.

[10] T. Morooka, S. Nakayama, A. Odawara, and K. Chinone, “Observation of Superconducting Device Using Magnetic Imaging System with a Micro-DC Superconducting Quantum Interference Device Magnetometer,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 38, p. L119-L122, Feb. 1999.

[11] S. Chatraphorn, E. F. Fleet, and F. C. Wellstood, “Relationship between spatial resolution and noise in scanning superconducting quantum interference device microscopy,” *J. Appl. Phys.*, vol. 92, pp. 4731-4740, Oct. 2002.

[12] Y. Martin and H. K. Wickramasinghe, “Magnetic imaging by ‘force microscopy’ with 1000 Å resolution,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 50, pp. 1455-1457, May. 1987.

[13] D. Saida, K. Tsutsui, Y. Wada, and T. Takahashi, “Quantitative current evaluation through magnetic field detection by magnetic force microscopy,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 44, pp. 1779-1784, Jul. 2008.

[14] T. Lee, Y. R. Chemla, E. Dantsker, and J. Clarke, “High-Tc SQUID microscope for room temperature samples,” *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, vol. 7, pp. 3147-3150, 1997.

[15] S. A. Gudoshnikov et al., “Magnetic flux guide for high-resolution SQUID microscope,” *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, vol. 11, pp. 219-222, Mar. 2001.

[16] S. I. Bondarenko, A. A. Shablo, P. P. Pavlov, and S. S. Perepelkin, “Ferromagnetic concentrator of a magnetic field for the planar HTSC SQUID,” *Physica C*, vol. 372-376, pp. 158-161, Aug. 2002.

[17] S. A. Gudoshnikov et al., “HTS scanning SQUID microscope with high spatial resolution for room temperature samples,” *Physica C*, vol. 372-376, pp. 166-169, Aug. 2002.

[18] S. A. Gudoshnikov et al., “Flux guide for high-Tc SQUID microscope with high spatial resolution,” *Physica C*, vol. 368, pp. 66-69, Mar. 2002.

[19] S. Tanaka, K. Matsuda, O. Yamazaki, M. Natsume, H. Ota, and T. Mizoguchi, “Development of high-T c SQUID microscope with flux guide,” *Supercond. Sci. Technol.*, vol. 15, pp. 146-149, Jan. 2002.

[20] H. Itozaki, T. Kondo, and T. Nagaishi, “HTS scanning SQUID microscope,” *Physica C*, vol. 392-396, pp. 1392-1395, Oct. 2003.

[21] T. Kondo, H. Itozaki, and R. Koetitz, “Evaluation of flux guide performance in a SQUID microscope,” *Supercond. Sci. Technol.*, vol. 16, pp. 1528-1530, Dec. 2003.

[22] B. Baek et al., “Investigation of a magnetic flux-guide for a HTS scanning superconducting quantum interference device microscope,” *Supercond. Sci. Technol.*, vol. 17, pp. 1022-1025, Aug. 2004.

[23] T. Hayashi, M. Tachiki, and H. Itozaki, “STM-SQUID probe microscope,” *Supercond. Sci. Technol.*, vol. 20, p. S374-S379, Nov. 2007.

[24] M. Tachiki, T. Hayashi, D. He, and H. Itozaki, “STM-SQUID Probe Microscope Based on an RF SQUID Magnetometer,” *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, vol. 19, pp. 874-877, Jun. 2009.

[25] N. Watanabe, T. Hayashi, M. Tachiki, D. He, and H. Itozaki, “Evaluation of an STM-SQUID probe microscope,” *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, vol. 21, pp. 420-423, Jun. 2011.

[26] J. Beyer, H. Matz, D. Drung, and T. Schurig, “Magnetic detection of photogenerated currents in semiconductor wafers using superconducting quantum interference devices,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 74, pp. 2863-2865, May 1999.

[27] M. Daibo, T. Kotaka, and A. Shikoda, “Photo-induced magnetic field imaging of p-n junction using a laser SQUID microscope,” *Physica C*, vol. 357-360, pp. 1483–1487, Aug. 2001.

[28] M. Daibo, A. Shikoda, and M. Yoshizawa, “Non-contact evaluation of semiconductors using a laser SQUID microscope,” *Physica C*, vol. 372-376, pp. 263-266, Aug. 2002.

[29] M. Daibo, T. Kikuchi, and M. Yoshizawa, “Minority carrier diffusion length measurements of semiconductors using a multiwavelength laser SQUID microscope,” *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, vol. 13, pp. 223-226, Jun. 2003.

[30] M. Daibo and D. Kamiwano, "Examination of Relationship Between Resistivity and Photocurrent Induced Magnetic Field in Silicon Wafers Using Laser SQUID," *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, vol. 15, pp. 684-687, Jun. 2005.

[31] M. Daibo, D. Kamiwano, T. Kurosawa, M. Yoshizawa, and N. Tayama, "Ultraviolet Laser SQUID Microscope for GaN Blue Light Emitting Diode Testing," *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. 43, pp. 1262-1265, Jun. 2006.

[32] K. Nikawa, "Laser-SQUID microscopy as a novel tool for inspection, monitoring and analysis of LSI-chip-defects: Nondestructive and non-electrical-contact technique," *IEICE Trans. Electron.*, vol. E85-C, pp. 746-751, Mar. 2002.

[33] J. Beyer, Q. Zhong, and T. Schurig, "Noninvasive investigation of defects in multicrystalline silicon and photovoltaic devices by photomagnetic detection using superconducting quantum interference device magnetometers," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 77, pp. 3107-3109, Nov. 2000.

[34] M. Daibo, "レーザーSQUID 顕微鏡による半導体検査," *日本応用磁気学会誌*, vol. 29, no. 1, pp. 14–19, 2005.

[35] T. Schurig, J. Beyer, D. Drung, F. Ludwig, A. Ludge, and H. Riemann, "NDE of Semiconductor Samples and Photovoltaic Devices with High Spatial Resolution Utilizing SQUID Photoscanning," *IEICE Trans. Electron.*, vol. E85-C, pp. 665–669, Mar. 2002.

[36] K. Nikawa, S. Inoue, T. Nagaishi, T. Matsumoto, K. Miura, and K. Nakamae, "New Approach of Laser-SQUID Microscopy to LSI Failure Analysis," *IEICE Trans. Electron.*, vol. E92-C, pp. 327-333, Mar. 2009.

[37] B. J. Roth, N. G. Sepulveda, and J. P. Wikswo, "Using a magnetometer to image a two-dimensional current distribution," *J. Appl. Phys.*, vol. 65, pp. 361–372, Jan. 1989.

[38] S. Chatraphorn, E. F. Fleet, F. C. Wellstood, L. A. Knauss, and T. M. Eiles, "Scanning SQUID microscopy of integrated circuits," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 76, pp. 2304-2306, Apr. 2000.

[39] B. L. Anderson and R. L. Anderson（樺沢宇紀訳）, *半導体デバイスの基礎（上）≪半導体物性≫*. シュプリンガー・ジャパン, 2008, p. 112.

[40] W. C. Dash and R. Newman, "Intrinsic Optical Absorption in Single-Crystal Germanium and Silicon at 77°K and 300°K," *Phys. Rev.*, vol. 99, pp. 1151-1155, Aug. 1955.

[41] G. G. Macfarlane, T. P. Mclean, J. E. Quarrington, and V. Roberts, "Fine structure in the absorption-edge spectrum of Si," *Phys. Rev.*, vol. 111, pp. 1245-1254, Sep. 1958.

[42] S. M. Sze（南日康夫、川辺光夫、長谷川文夫訳）, *半導体デバイス（第２版）－基礎理論とプロセス技術－*. 産業図書, 2004.

[43] J. Beyer, "Photomagnetic investigations of grain boundaries in solar silicon," *Semicond. Sci. Technol.*, vol. 16, pp. 44-53, Jan. 2001.

[44] X. Kong, K. Kojima, K. Sakuta, and H. Itozaki, "Current vector distribution in semiconductor observed by laser SQUID microscope with needle," *Physica C*, vol. 463-465, pp. 1048–1051, May. 2007.

[45] K. Kojima, S. Suda, X. Kong, and H. Itozaki, "Non-destructive evaluation of semiconductor using laser SQUID microscope," *Physica C*, vol. 445-448, pp. 979–981, Aug. 2006.

[46] J. Beyer, T. Schurig, A. Lüdge, and H. Riemann, "SQUID-NDE of semiconductor samples with high spatial resolution," *Supercond. Sci. Technol.*, vol. 13, pp. 532-536, May. 2000.

[47] J. Beyer, D. Drung, and T. Schurig, "SQUID photoscanning: an imaging technique for NDE of semiconductor wafers and devices based on photomagnetic detection," *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, vol. 11, pp. 1162–1167, Mar. 2001.

[48] 日本分光学会編, *分光測定入門シリーズ第４巻 分光測定のためのレーザー入門*. 講談社, 2009.

[49] J. Martín, C. Fernández-Lorenzo, J. A. Poce-Fatou, and R. Alcántara, “A versatile computer-controlled high-resolution LBIC system,” *Prog. Photovolt: Res. Appl.*, vol. 12, pp. 283-295, Jun. 2004.

[50] W. H. Press, B. P. Flannery, S. A. Teukolsky, and W. T. Vetterling（丹慶勝市、奥村晴彦、佐藤俊郎、小林誠 訳）, *Numerical Recipies in C [日本語版] C 言語による数値計算レシピ*. 技術評論社, 1993.

[51] 奥田正浩, *誰でもわかる MATLBA —即戦力ツールブック—*. 培風館, 2006.

[52] J. D. Zook, “Effects of grain boundaries in polycrystalline solar cells,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 37, pp. 223–226, Jul. 1980.

[53] N. M. Thantsha, E. Q. B. Macabebe, F. J. Vorster, and E. E. van Dyk, “Opto-electronic analysis of silicon solar cells by LBIC investigations and current–voltage characterization,” *Physica B*, vol. 404, pp. 4445-4448, Dec. 2009.

[54] A. Sellami, M. Zagrouba, M. Bouaïcha, and B. Bessaïs, “Application of genetic algorithms for the extraction of electrical parameters of multicrystalline silicon,” *Meas. Sci. Technol.*, vol. 18, pp. 1472-1476, May. 2007.

[55] C. H. Seager, “The determination of grain-boundary recombination rates by scanned spot excitation methods,” *J. Appl. Phys.*, vol. 53, p. 5968, Aug. 1982.

[56] Y. Sayad, A. Kaminski, D. Blanc, A. Nouiri, and M. Lemiti, “Determination of diffusion length in photovoltaic crystalline silicon by modelisation of light beam induced current,” *Superlattices Microstruct.*, vol. 45, pp. 393-401, Apr. 2009.

[57] K. Nishioka, T. Yagi, Y. Uraoka, and T. Fuyuki, “Effect of hydrogen plasma treatment on grain boundaries in polycrystalline silicon solar cell evaluated by laser-beam-induced current,” *Sol. Energy Mater. Sol. Cells*, vol. 91, pp. 1-5, Jan. 2007.

[58] F. J. Navas, R. Alcántara, C. Fernández-Lorenzo, and J. Martín-Calleja, “High resolution laser beam induced current images under trichromatic laser radiation: approximation to the solar irradiation,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 81, p. 035108, Mar. 2010.

[59] B. Moralejo et al., “LBIC and Reflectance Mapping of Multicrystalline Si Solar Cells,” *J. Electron. Mater.*, vol. 39, pp. 663-670, Jun. 2010.

[60] W. Fang, K. Ito, and D. A. Redfern, “Parameter Identification for Semiconductor Diodes by LBIC Imaging,” *SIAM J. Appl. Math.*, vol. 62, pp. 2149-2174, Aug. 2002.

[61] C. Donolato, “Theory of beam induced current characterization of grain boundaries in polycrystalline solar cells,” *J. Appl. Phys.*, vol. 54, pp. 1314–1322, Mar. 1983.

[62] M. Bouaïcha, A. Karoui, and R. Bennaceur, “Consideration of Band Bending and Reduced Optical Transmittance at Grain Boundaries in LBIC Analysis,” *Phys. Stat. Sol. (a)*, vol. 175, pp. 561-567, Oct. 1999.

[63] T. Wilson and C. Sheppard, “Observations of dislocations and junction irregularities in bipolar transistors using the OBIC mode of the scanning optical microscope,” *Solid-State Electronics*, vol. 29, no. 11, pp. 1189-1194, Nov. 1986.

[64] R. Shimokawa and Y. Hayashi, “Characterization of High-Efficiency Cast-Si Solar Cell Wafers by MBIC Measurement,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 27, pp. 751-758, May. 1988.

[65] R. Shimokawa and Y. Hayashi, “Effect of localized grain boundaries in semicrystalline silicon solar cells,” *J. Appl. Phys.*, vol. 59, pp. 2571-2576, Apr. 1986.

[66] J. Marek, “Light-beam-induced current characterization of grain boundaries,” *J. Appl. Phys.*, vol. 55, p. 318, Jan. 1984.

発表論文リスト

査読付き発表論文

[1] X. Y. Kong, Y. Nakatani, A. Yutani, T. Maki, and H. Itozaki, "First-order high-*T*c SQUID gradiometer," *Physica C*, vol. 468, pp. 1946-1949, Sep. 2008.

[2] Y. Nakatani, T. Hayashi, and H. Itozaki, "Observation of Polycrystalline Solar Cell Using a Laser-SQUID Microscope," *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, vol. 21, pp. 416-419, Jun. 2011.

[3] Y. Nakatani, T. Hayashi, and H. Itozaki, "Laser-SQUID microscope for noncontact evaluation of solar cell," *Physica C*, vol. 471, pp. 1249-1252, May 2011.

[4] Y. Nakatani, T. Hayashi, Y. Miyato, and H. Itozaki, "SQUID microscopy of magnetic field induced in solar cell by laser spot irradiation," *Physics Procedia, (accepted)*.

[5] Y. Nakatani, T. Hayashi, Y. Miyato, and H. Itozaki, "Laser SQUID microscope for the evaluation of solar cell," *Physics Procedia, (submitted)*.

その他の発表論文

[1] 中谷悦啓, 孔祥燕, 牧哲朗, 林忠之, 糸﨑秀夫, "Laser-SQUID 顕微鏡を用いた多結晶太陽電池の電流ベクトル分布推定," *電子情報通信学会技術研究報告*, vol. 108, pp. 31–34, Jan. 2009.

[2] 牧哲朗, 孔祥燕, 中谷悦啓, 久保等, 阿部真之, 糸﨑秀夫, "YBCO/STO バイクリスタル結晶粒界の欠陥評価," *電子情報通信学会技術研究報告*, vol. 108, pp. 7-10, Jan. 2009.

[3] 牧哲朗, 孔祥燕, 中谷悦啓, 関天放, 久保等, 阿部真之, 糸﨑秀夫, "高温超伝導バイクリスタル結晶粒界接合の欠陥評価," *電子情報通信学会技術研究報告*, vol. 109, pp. 25-28, Jul. 2009.

[4] 関天放, 下中将之, 孔祥燕, 中谷悦啓, 牧哲朗, 糸﨑秀夫, “バイクリスタル基板を用いた RF-SQUID の製作及び評価,” *電子情報通信学会技術研究報告*, vol. 109, pp. 17-20, Jan. 2010.

[5] 中谷悦啓, 林忠之, 糸﨑秀夫, “太陽電池欠陥のレーザ SQUID による評価,” *電子情報通信学会技術研究報告*, vol. 110, pp. 23-28, Jan. 2011.

[6] 牧哲朗, 中谷悦啓, 久保等, 阿部真之, 糸﨑秀夫, “バイクリスタル基板で作製したジョセフソン接合の表面欠陥と電気特性,” *産業技術短期大学誌*, vol. 45, pp. 15-19, 2011.

国際会議

[1] T. Maki, X. Kong, Y. Nakatani, A. Yutani, and H. Itozaki, "Defects of grain-boundaries on bicrystal substrates," 20th International Symposium on Superconductivity, FDP-24, November 5-7, 2007, Tsukuba, Ibaraki, Japan.

[2] X. Y. Kong, Y. Nakatani, A. Yutani, T. Maki, and H. Itozaki, "First-order high Tc SQUID gradiometer," 20th International Symposium on Superconductivity, FDP-68, November 5-7, 2007, Tsukuba, Ibaraki, Japan.

[3] T. Maki, Y. Nakatani, X. Kong, A. Yutani, and H. Itozaki, "Observation of grain-boundary on bicrystal," 1st Global COE International Symposium Electronic Devices Innovation, S-8, January 21-22, 2008, Suita, Osaka, Japan.

[4] Y. Nakatani, T. Maki, X. Kong, A. Yutani, M. Abe, T. Matsuoka, and H. Itozaki, "Defects of YBCO grain-boundaries grown on bicrystal," 1st Global COE International Symposium Electronic Devices Innovation, P-3, January 21-22, 2008, Suita, Osaka, Japan.

[5] T. Maki, X. Kong, Y. Nakatani, H. Kubo, M. Abe, and H. Itozaki, "Evaluation of Defects at Grain-boundaries on SrTiO3 Bicrystals," 1st Global COE Student Conference on Innovative Electronic Topics, P-15, July 31 - August 1, 2008, Suita, Osaka, Japan.

[6] Y. Nakatani, X. Kong, T. Maki, T. Hayashi, and H. Itozaki, "Observation of polycrystalline solar cell by Laser-SQUID microscope," 1st Global COE Student

Conference on Innovative Electronic Topics, P-5, July 31 - August 1, 2008, Suita, Osaka, Japan.

[7] T. Maki, X. Kong, Y. Nakatani, H. Itozaki, H. Kubo, and M. Abe, "Evaluation of defects at bicrystal grain-boundary," 21st International Symposium on Superconductivity, FDP-19, October 27-29, 2008, Tsukuba, Ibaraki, Japan.

[8] Y. Nakatani, X. Kong, T. Maki, H. Itozaki, and T. Hayashi, "Laser-SQUID microscope evaluation of polycrystalline solar cell," 21st International Symposium on Superconductivity, FDP-52, October 27-29, 2008, Tsukuba, Ibaraki, Japan.

[9] T. Maki, X. Kong, Y. Nakatani, T. Guan, H. Kubo, M. Abe, and H. Itozaki, "Defects of HTS junction on grain-boundary of bicrystal," 12th International Superconductive Electronics Conference, TD-P18, June 16-19, 2009, Fukuoka, Fukuoka, Japan.

[10] Y. Nakatani, X. Kong, T. Maki, T. Hayashi, and H. Itozaki, "Laser-SQUID microscope for observing distribution of photocurrent," 12th International Superconductive Electronics Conference, SQ-P36, June 16-19, 2009, Fukuoka, Fukuoka, Japan.

[11] T. Maki, Y. Nakatani, X. Kong, T. Guan, H. Kubo, M. Abe, and H. Itozaki, "Defects of YBCO Junctions on STO Bicrystal," 22nd International Symposium on Superconductivity, FDP-25, November 2-4, 2009, Tsukuba, Ibaraki, Japan.

[12] Y. Nakatani, N. Watanabe, T. Hayashi, and H. Itozaki, "Noncontact electrical property evaluation of grain boundaries on polycrystalline solar cell using a laser-SQUID microscope," 2nd Global COE Student Conference on Innovative Electronic Topics, Po-42, July 28-29, 2010, Suita, Osaka, Japan.

[13] Y. Nakatani, K. Otani, X. Y. Kong, T. Maki, T. Hayashi, and H. Itozaki, "Observation of polycrystalline solar cell using a laser-SQUID microscope," 2010 Applied Superconductivity Conference, 3EP3C-04, August 1-6, 2010, Washington D.C., USA.

[14] Y. Nakatani, T. Hayashi, and H. Itozaki, "Laser-SQUID microscope for noncontact evaluation of solar cell," 23rd International Symposium on Superconductivity, FDP-40, November 1-3, 2010, Tsukuba, Ibaraki, Japan.

[15] Y. Nakatani, T. Hayashi, and H. Itozaki, "Laser SQUID microscope for the evaluation of solar cell," Superconductivity Centennial Conference, 4-EA-P41, September 18-23, 2011, The Hague, The Netherlands.

[16] Y. Nakatani, T. Hayashi, and H. Itozaki, "SQUID microscopy observation of magnetic field induced on solar cell by laser spot," 24th International Symposium on Superconductivity, FDP-43, October 24-26, 2011, Tokyo, Japan.

国内学会

[1] 牧哲朗，孔祥燕，中谷悦啓，油谷昭範，糸﨑秀夫，“バイクリスタル基板上に成長したYBCO 結晶粒界の欠陥評価，” 第 68 回応用物理学会学術講演会，6p-ZH-8，2007 年 9 月 4 日 - 8 日，北海道工業大学.

[2] 中谷悦啓，油谷昭範，孔祥燕，牧哲朗，糸﨑秀夫，“PLD 法による YBCO 薄膜の c 軸長と Tc との相関，” 第 55 回応用物理学関係連合講演会，27p-ZY-5，2008 年 3 月 27 日 - 30 日，日本大学.

[3] 牧哲朗，孔祥燕，中谷悦啓，油谷昭範，糸﨑秀夫，“バイクリスタル基板上に成長したYBCO 結晶粒界の欠陥評価（Ⅱ），” 第 55 回応用物理学関係連合講演会，27p-ZY-7，2008 年 3 月 27 日 - 30 日，日本大学.

[4] 中谷悦啓，孔祥燕，牧哲朗，林忠之，糸﨑秀夫，“Laser-SQUID 顕微鏡を用いた多結晶太陽電池の観察，” 第 69 回応用物理学会学術講演会，3p-ZM-5，2008 年 9 月 2 日 - 5 日，中部大学.

[5] 牧哲朗，孔祥燕，中谷悦啓，久保等，阿部真之，糸﨑秀夫，“SrTiO3 バイクリスタル結晶粒界の欠陥評価，” 第 69 回応用物理学会学術講演会，2p-ZM-5，2008 年 9 月 2 日 - 5 日，中部大学.

[6] 中谷悦啓，孔祥燕，糸﨑秀夫，“ニードル型 SQUID 顕微鏡におけるニードルと SQUID の結合係数，”第 56 回応用物理学関係連合講演会，30a-P19-15，2009 年 3 月 30 日 - 4 月 2 日，筑波大学.

[7] 牧哲朗，中谷悦啓，孔祥燕，関天放，久保等，阿部真之，糸﨑秀夫，“YBCO/STO バイクリスタル結晶粒界接合の欠陥評価，”第 70 回応用物理学会学術講演会，8a-P1-38，2009 年 9 月 8 日 - 11 日，富山大学.

[8] 中谷悦啓，大谷幸太郎，孔祥燕，牧哲朗，林忠之，糸﨑秀夫，“レーザ SQUID 顕微鏡による多結晶太陽電池評価，”第 57 回応用物理学関係連合講演会，19a-V-12，2010 年 3 月 17 日 - 20 日，東海大学.

[9] 牧哲朗, 中谷悦啓, 下中将之, 関天放, 孔祥燕, 久保等, 阿部真之, 糸﨑秀夫, “YBCO/STO バイクリスタル結晶粒界接合の電気特性評価，”第 57 回応用物理学関係連合講演会，19a-V-11，2010 年 3 月 17 日 - 20 日，東海大学.

[10] 中谷悦啓，林忠之，糸﨑秀夫，“レーザ SQUID 顕微鏡を用いた多結晶シリコン太陽電池の結晶粒界の非接触電気的特性評価，”電子情報通信学会 2010 年ソサイエティ大会, C-8-1, 2010 年 9 月 14 日 - 17 日，大阪府立大学.

[11] 中谷悦啓，林忠之，糸﨑秀夫，“多結晶シリコン太陽電池の局所的特性分布評価におけるレーザ SQUID 顕微鏡と LBIC 法の比較，”第 58 回応用物理学関係連合講演会, 25p-KJ-18, 2011 年 3 月 24 日－27 日，神奈川工科大学.

研究会等

[1] 中谷悦啓，油谷昭範，孔祥燕，牧哲朗，糸﨑秀夫，“PLD 法による YBCO 薄膜作製の酸素分圧依存性，”第 6 回低温工学・超伝導若手合同講演会，2007 年 12 月 11 日，大阪市立大学文化交流センター.

[2] 油谷昭範，中谷悦啓，牧哲朗，孔祥燕，糸﨑秀夫，“PLD 法による超伝導 YBCO 薄膜成膜の基板温度依存性，”第 6 回低温工学・超伝導若手合同講演会，2007 年 12 月 11 日，大阪市立大学文化交流センター.

[3] 中谷悦啓，孔祥燕，牧哲朗，林忠之，糸﨑秀夫，“Laser-SQUID 顕微鏡を用いた多結晶太陽電池の電流ベクトル分布推定，”超伝導エレクトロニクス研究会，2009 年 1 月 29 日，機械振興会館.

[4] 牧哲朗，孔祥燕，中谷悦啓，久保等，阿部真之，糸﨑秀夫，“YBCO／STO バイクリスタル結晶粒界の欠陥評価,”超伝導エレクトロニクス研究会，2009 年 1 月 29 日，機械振興会館.

[5] 牧哲朗，孔祥燕，中谷悦啓，関天放，久保等，阿部真之，糸﨑秀夫，“高温超伝導バイクリスタル結晶粒界接合の欠陥評価,”超伝導エレクトロニクス研究会, 2009 年 7 月 21 日，機械振興会館.

[6] 牧哲朗，中谷悦啓，関天放，孔祥燕，久保等，阿部真之，糸﨑秀夫，“YBCO バイクリスタル結晶粒界接合の欠陥と電気特性評価,”第 8 回低温工学･超伝導若手合同講演会, 2009 年 12 月 11 日，大阪市立大学文化交流センター.

[7] 関天放，下中将之，孔祥燕，中谷悦啓，牧哲朗， 糸﨑秀夫，“バイクリスタル基板を用いた RF-SQUID の製作及び評価,”超伝導エレクトロニクス研究会，2010 年 1 月 20 日，機械振興会館.

[8] 中谷悦啓，林忠之，糸﨑秀夫，“レーザ SQUID 顕微鏡を用いた多結晶太陽電池の非接触検査,”第 9 回低温工学・超伝導若手合同講演会，2010 年 12 月 10 日，大阪市立大学文化交流センター.

[9] 中谷悦啓，林忠之，糸﨑秀夫，“太陽電池欠陥のレーザ SQUID による評価,”超伝導エレクトロニクス研究会，2011 年 1 月 24 日，機械振興会館.