

令和 4 年 6 月 8 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2020～2021

課題番号：20K20887

研究課題名（和文）二交流法を用いた安価なホール効果測定装置の開発

研究課題名（英文）Development of inexpensive Hall effects measurement system using two-AC method

研究代表者

吉松 公平（Yoshimatsu, Kohei）

東北大学・多元物質科学研究所・講師

研究者番号：30711030

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：二交流ホール効果測定を実現するため装置設計を行った。ネオジウム永久磁石をステッピングモータにより回転させ、安価に交流磁場生成を実現した。最大周波数として100 Hzを実現し、高速な交流磁場生成を達成した。市販のGaAsホール素子を用いてロックイン検出により二交流シグナルを確認し、理論式通りのホール電圧出力を明らかにした。典型的な酸化物半導体である酸化亜鉛を用い、ホールバー試料を用いた二交流ホール効果測定をデモンストレーションした。その結果、二交流ホール効果測定と従来の直流ホール効果測定で同程度のホール電圧が検出され、本手法と装置で安価で高感度なホール効果測定が可能なることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ホール効果測定は、半導体などの電子材料の電子物性を明らかにする重要な測定手法である。ホール効果測定には磁場の印加が不可欠であるが、高いS/N比を得るには強磁場が必要となる。しかし、高磁場印可には高価な超伝導磁石や液体ヘリウムの冷媒が必要となる。そのため、安価で高感度なホール効果測定法の開発が望まれている。本研究では、永久磁石とステッピングモータにより生成した交流磁場と交流電流印加により2つの周波数が重なったホール電圧をロックイン検出するに交流ホール効果測定法を提案し装置開発を行った。安価で冷媒不要の特徴ながら高感度な測定を実現し、電子物性評価の新たな手法開発として重要な成果である。

研究成果の概要（英文）：I first constructed the two-AC Hall-effect measurement system. Using the inexpensive Neodymium permanent magnets and stepping motors, the AC magnetic field can be generated with the maximum frequency of as high as 100 Hz. The generation of the two AC signals was revealed from the lock-in detection, indicating the ideal output of two AC Hall voltage. Then, I demonstrated the two AC Hall-effect measurements with a typical oxide semiconductor of zinc oxide. I found that the similar Hall voltages were obtained from the two AC and usual DC Hall-effect measurements. These results indicate that the present two-AC Hall-effect measurement system is high sensitive and inexpensive technique to determine the electronic properties of materials.

研究分野：薄膜表面界面物性

キーワード：ホール効果測定 電子材料 装置開発 交流測定 ロックイン検出

### 1. 研究開始当初の背景

キャリア密度と移動度は電子材料の最重要パラメータである。ホール効果測定はこれら物性値を決定するほぼ唯一の手法として確立されている[1]。ホール効果測定の原理は非常に単純に記述されるが、実際には試料と装置の両面で問題があるため測定は簡単ではない。正確なホール電圧 ( $V_H$ ) 測定のため、試料はホールバー形状に加工する。それでも微細加工の限界から電極の非対称配置に起因する抵抗電圧 ( $\Delta V$ ) が生じ、 $\Delta V \gg V_H$  となるとホール電圧が抵抗電圧に埋もれてしまう。多くの場合、大きな印可磁場でホール電圧を増大して解決する。しかしそのためには、非常に高価な超伝導磁石が必要となる。そこで近年、低磁場で高感度なホール電圧測定を達成する交流磁場ホール効果測定法が開発されている[2]。しかし、電極の非対称配置による抵抗電圧の問題は残されており、試料と装置の問題は解決できたとは言えない。そのため、安価で高感度なホール効果測定法の開発が望まれている。

### 2. 研究の目的

そこで本研究では安価な二交流ホール効果測定法を考案・装置設計し、試料と装置の両問題を解決する。磁場に加え電流にも交流を用いることから二交流法と呼ぶ。二交流法ではホール電圧の周波数は電流・磁場の周波数の和と差に対応する。一方、抵抗電圧は交流電流と同一の周波数となる。よって和差周波数をロックイン検出すると純粋なホール電圧を取り出すことができる。本研究では、交流電磁石の代替として永久磁石を高速回転させ、数十 Hz の高速な交流磁場転換を達成する。またネオジム磁石の採用で、常伝導磁石に匹敵する強磁場を可能とする。

### 3. 研究の方法

#### (1) 二交流ホール効果測定法の原理

一般的な直流ホール効果測定では、ホール電圧 ( $V_H$ ) は以下の式(1)により決定される。

$$V_H = \frac{R_H I_x B_z}{t} \quad \text{式(1)}$$

ここで  $R_H$  はホール係数、 $I_x$  は印加電流、 $B_z$  は印加磁場、 $t$  は試料の膜厚である。この  $R_H$  からキャリア密度と移動度が求まる。式(1)は直流のホール効果測定におけるホール電圧であり、電流と磁場を別々の周波数を持つ交流とする二交流法では、式(1)は以下の式(2)となる。

$$V_H = \frac{R_H}{t} \times I_x \sin(2\pi f_I t) \times B_z \sin(2\pi f_B t) = \frac{R_H I_x B_z}{t} \times \frac{1}{2} \{ \cos 2\pi(f_I + f_B)t + \cos 2\pi(f_I - f_B)t \} \quad \text{式(2)}$$

ここで、 $f_I$  と  $f_B$  は試料に印加した交流電流と交流磁場の周波数である。上記式(2)から、二交流ホール効果測定法における交流ホール電圧シグナルは、印加した交流電流と交流磁場の周波数の和と差となる。一方で、抵抗電圧や磁場に由来するノイズは周波数が  $f_I$  や  $f_B$  でありホール電圧の周波数と異なる。よって式(2)の2つの周波数でロックイン検出を行うことで、抵抗電圧や磁場ノイズの影響を排除した純粋なホール電圧シグナルが測定可能となる。本研究では、永久磁石とステッピングモータの機械的回転により交流磁場生成を生成する安価なシステムを用い、二交流ホール効果装置を設計製作した。

#### (2) ZnO 薄膜の合成とホールバー形成

作製した二交流ホール効果測定装置を用い、典型的な酸化物半導体である酸化亜鉛 ( $ZnO$ ) 薄膜のホール効果測定を行なった[3]。ZnO 薄膜はアセチルアセトン亜鉛 [ $Zn(acac)_2$ ] のメタノール溶液を用いたディップ法により合成した。得られた多結晶 ZnO 薄膜へフォトリソグラフィと pH2 の HCl 溶液を用い

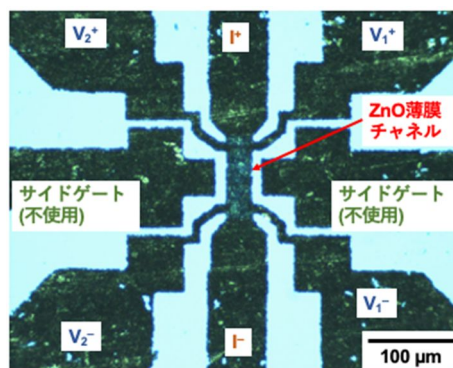


図 1. 本研究で作製したホール効果測定用の ZnO 微細試料の顕微鏡写真。

たウエットエッチングを行い、チャンネル長~150  $\mu\text{m}$  チャンネル幅~50  $\mu\text{m}$  のホールバーを作製した(図1)。スパッタ法で Au/Ti 電極を作製し、窒素ガス中の RTA により ZnO 薄膜とのオーミック接合を得た。

#### 4. 研究成果

##### (1) 二交流ホール効果測定装置の構築

図2に本研究で構築した二交流ホール効果測定装置の写真を示す。図2左の全体写真から、本装置は交流磁場を生成するマグネット部と、交流電流を印加する AC 電流ソース、交流のホール電圧を測定するロックインアンプ、ステッピングモータや試料配線をまとめた制御ラックから構成される。図2右上の写真から、マグネット部は測定試料をマウントするサンプルホルダと交流磁場を発生させるステッピングモータと永久磁石で構成されている。さらに図2右下の写真から、本装置はモータ動作を制御するリモコンも備えている。図2の装置をエレクトロニクスを除き自作し、二交流ホール効果測定装置とした。

図3に二交流ホール効果測定装置のサンプルホルダの拡大写真を示す。サンプルホルダは自作の PCB 基盤を用いて作製した。PLCC44 ピンのパッケージに試料をマウントし、MIL コネクタを介してエレクトロニクスへと接続する。サンプルホルダには2つの試料がマウント可能で、左には試料への印加磁場の大きさを決定する市販の GaAs ホール素子を装着し、右には測定試料を装着する。左右の試料はステッピングモータを中心とする円周上の 180° 向かいに配置され、常に同じ大きさの磁場が印加される仕組みである。

図4に二交流ホール効果測定装置のマグネット部の拡大写真を示す。ステッピングモータの回転中心に合わせ、同一円周上に8つのネオジウム永久磁石が N/S 極を交互にして並んでいる。ステッピングモータが回転することで、N/S 極のネオジウム磁石が交互に試料中心を通過し、試料へ擬似的な交流磁場を印加できる。ステッピングモータを 1000 pulses/1 回転と設定することで、250 pulses が交流磁場の 1 周期となる。他にも、磁場の大きさを変調するため、試料部とモータには手動の Z ステージを備えている。ステッピングモータに加え、AC 電流ソースとロックインアンプは全て LabVIEW により制御可能である。よって、以下の一連の(二交流)ホール効果測定は PC を用いて計測・解析を行った。

##### (2) GaAs ホール素子を用いた装置の性能評価

構築した二交流ホール効果装置は、市販の GaAs ホール素子 (HG-166A-2U、旭化成マイクロデバイス)

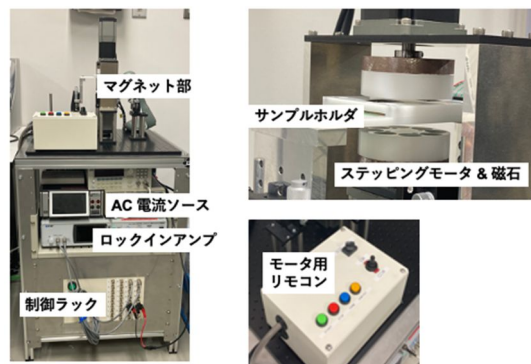


図2. 本研究で設計制作した二交流ホール効果装置の写真。左は装置の全体写真、右上はマグネット部の拡大写真、右下はマグネットを動作するリモコンの拡大写真。

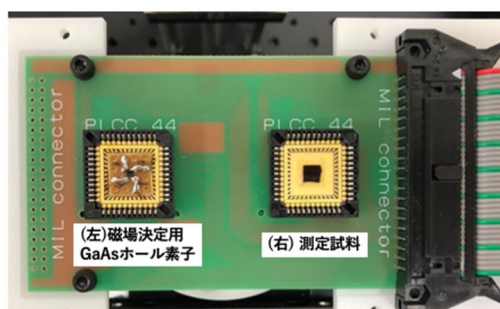


図3. 二交流ホール効果測定装置の試料部分の写真。特注の PCB 基盤と PLCC44 ピンのパッケージで形成され、2つの試料を同時にマウントできる。左に磁場決定用の GaAs ホール素子を、右に測定試料をマウントする。

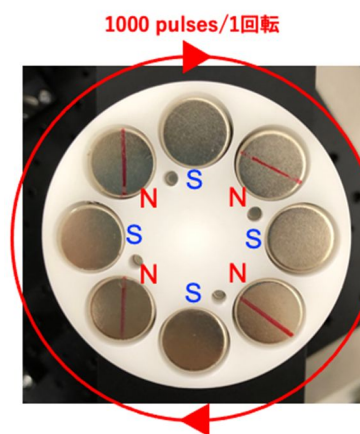


図4. 二交流ホール効果測定装置のマグネット部分の写真。ステッピングモータに N/S 極を交互に向けた8つのネオジウム永久磁石が設置されている。ステッピングモータは 1000 pulses/1 回転に設定した。

を用いて評価を行なった。初めにモーター回転による交流磁場の発生を明らかにした。図5にステッピングモータのパルス位置に対するホール電圧の実部と虚部を示す。ここでは、各パルス位置でマグネットを固定し、交流電流をホール素子に印加することで、交流ホール電圧をロックインアンプにより検出した。図5からホール電圧出力がパルス位置で大きく変化していることがわかる。交流ホール電圧の実部は正弦曲線で良くフィッティングされ、その周期は~250 pulses と、ステッピングモータと磁石の配置から期待される値とよく一致した。以上の結果から、モーター回転による交流磁場の発生が実現していることがわかる。

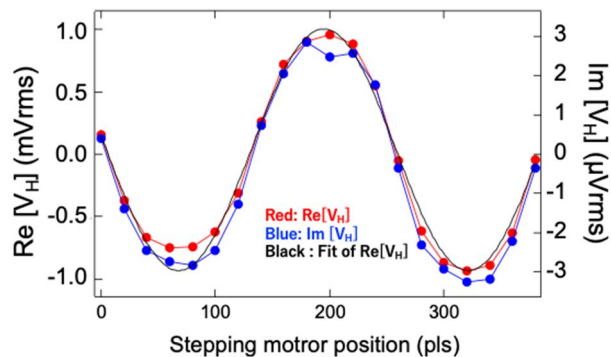


図5.ホール電圧の実部虚部とステッピングモータのパルス位置の関係。実部の正弦曲線によるフィッティング結果も同様に示す。

次に、交流磁場と交流電流の印加による二交流ホール電圧シグナルの生成を明らかにするため、オシロスコープによる観測を行なった。その結果を図6に示す。ここでは、37 Hzの交流電流と32 Hzの交流磁場をホール素子に印加した。図6から電流や磁場のみ交流とした場合には、それぞれの周波数に対応する交流のホール電圧が観測されている。一方で、電流と磁場の両者を交流とした場合には両者の周波数の和と差に対応する69 Hzと5 Hzの交流が重なり合ったホール電圧が観測された。この結果から、式(2)で期待される通りの二交流ホールシグナルが生成されていることが明らかとなった。

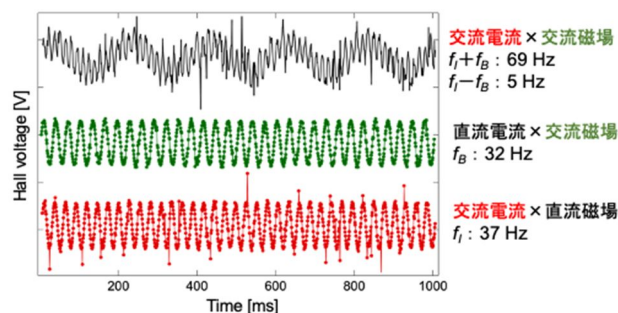


図6. オシロスコープにより観測した二交流ホール電圧シグナル。交流電流(37 Hz)、交流磁場(32 Hz)のみではそれぞれの周波数に対応する交流のホール電圧シグナルが、印加電流と磁場を両方交流とすると、両周波数の和と差の周波数(69 と 5 Hz)の二交流ホール電圧が観測されている。

二交流ホール効果測定法における電流と磁場の周波数条件を明らかにするため、磁場の周波数を固定し、電流の周波数を変化させてホール電圧の測定を行なった。その結果を図7に示す。図7から磁場の周波数が0.4 Hzの場合、電流周波数が~40 Hz以下では電流と磁場の和と差の周波数でホール電圧が~250  $\mu$ Vrms と一定の値で得られていることがわかる。式(2)で見られるように、ホール電圧の振幅は周波数に依存しないことと一致している。一方で、電流の周波数が~40 Hz以上になるとホール電圧が小さくなることが見て取れる。これは電流と磁場の周波数の差が大きくなるため、両者の和と差の周波数がほぼ一致し、周波数で分離したロックイン検出ができないためと考えられる。実際、磁場の周波数を様々に変化させても同様の結果が得られており、二交流ホール効果測定においては、 $\sim 10^{-2} \leq f_i/f_B \leq \sim 10^2$ の範囲内で周波数を設定す

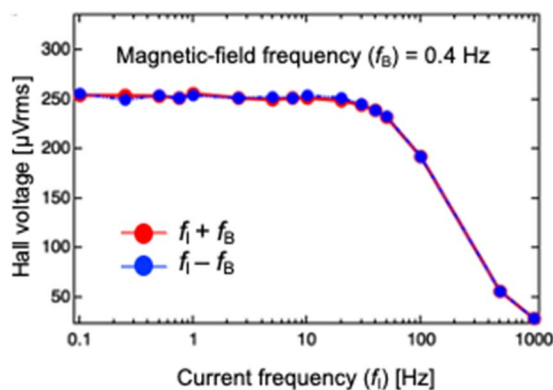


図7. 二交流ホール電圧の周波数依存性。磁場の周波数を0.4 Hzに固定し、電流の周波数を0.1~1000 Hzに変化させた。和と差の周波数をロックインすることで交流ホール電圧シグナルを観測した。

る必要があることが明らかとなった。

### (3) ZnO 薄膜の二交流ホール効果測定

ZnO 薄膜のホールバー試料(図1)に対し、本研究で構築した二交流ホール効果測定装置を用いてキャリア密度と

表 1. ZnO 薄膜の直流と二交流ホール効果測定結果。

測定手法	抵抗率 [ $\Omega$ cm]	ホール係数 [ $\text{cm}^3 \text{C}^{-1}$ ]	キャリア密度 [ $\text{cm}^{-3}$ ]	移動度 [ $\text{cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$ ]
直流法	$1.2 \times 10^{-2}$	2.3	$2.7 \times 10^{19}$	19
二交流法	$1.2 \times 10^{-2}$	3.7	$1.7 \times 10^{19}$	30

移動度の決定を行なった。ここでは、電流の周波数を 17 Hz, 磁場の周波数を二交流の場合には 4 Hz に設定して測定を行なった。その結果を表 1 に示す。表 1 から、通常の直流ホール効果測定で得られたホール係数と同等のそれが二交流法においても得られており、ホール係数の絶対値  $3.7 \text{ cm}^3 \text{C}^{-1}$  と抵抗率  $1.2 \Omega \text{ cm}$  からキャリア密度が  $1.7 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ , 移動度が  $30 \text{ cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$  の値が得られた。以上の結果から、二交流ホール効果測定法においても、従来の直流ホール効果測定法と同様に材料の電子物性観測が可能であることが明らかとなった。

ZnO は酸化物材料の中で比較的移動度が高く、ホール効果測定が容易な材料系である。今後は ZnO 以外にも様々な酸化物材料の二交流ホール効果測定を実施し、本手法の汎用性を示すことを計画している。

### 参考文献

- [1] L. J. van der Pauw, *Philios Tech. Rev.* **20**, 220 (1958).
- [2] O. Gunawan, *Nature* **575**, 151 (2019).
- [3] J. Falson *et al.*, *Rep. Prog. Phys.* **81**, 056501 (2018).

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Mizushiro Jun, Yoshimatsu Kohei, Ohashi Naoki, Tanaka Masahiko, Sakata Osami, Ohtomo Akira	4. 巻 127
2. 論文標題 Optical and structural investigations on titanium oxynitride films for visible-UV photocatalytic applications	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 135301 ~ 135301
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5143609	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Shiga D., Yang B. E., Hasegawa N., Kanda T., Tokunaga R., Yoshimatsu K., Yukawa R., Kitamura M., Horiba K., Kumigashira H.	4. 巻 102
2. 論文標題 Thickness dependence of electronic structures in V02 ultrathin films: Suppression of the cooperative Mott-Peierls transition	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 115114 ~ 115114
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.115114	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Soma Takuto, Yoshimatsu Kohei, Ohtomo Akira	4. 巻 6
2. 論文標題 p-type transparent superconductivity in a layered oxide	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Science Advances	6. 最初と最後の頁 eabb8570
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1126/sciadv.abb8570	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Yoshimatsu K., Hasegawa N., Nambu Y., Ishii Y., Wakabayashi Y., Kumigashira H.	4. 巻 10
2. 論文標題 Metallic ground states of undoped Ti2O3 films induced by elongated c-axis lattice constant	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 22109-22109
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-020-79182-5	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Soma Takuto, Kobayashi Tomohiro, Yoshimatsu Kohei, Ohtomo Akira	4. 巻 90
2. 論文標題 Superconducting Dome Underlying Bipolaronic Insulating State in Charge-doped Ti407 Epitaxial Films	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 023705 ~ 023705
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.90.023705	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計1件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件)

1. 発表者名 吉松 公平、長谷川 直人、南部 雄亮、石井 祐太、若林 裕助、組頭 広志
2. 発表標題 金属伝導を示すTi203薄膜
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------