

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 20 日現在

機関番号：53401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2021

課題番号：18K03528

研究課題名(和文) 電荷密度波を用いた微小熱機関の構築と確率的熱力学への応用

研究課題名(英文) Micro-scale heat engines with charge density waves: for application to stochastic thermodynamics

研究代表者

松浦 徹 (Matsuura, Toru)

福井工業高等専門学校・電気電子工学科・准教授

研究者番号：60534758

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的は、電荷密度波と機械振動の相互作用を明らかにし、電荷密度波を用いた確率的熱機関の実験系を構築することである。電荷密度波は、低次元導体結晶で発現する電子状態であり、機械的変形と電荷密度波運動との相互作用がある。電荷密度波物質を微小な機械振動子に加工することで、数10ナノメートルの微小な機械振動を電気信号として検出できると期待される。ミクロスケールの機械振動子デバイスを作成のためのマスクレスフォトリソグラフィシステムの構築、電荷密度波物質NbS₃、TaS₃、NbSe₃の化学気相成長、電荷密度波機械振動子のプロトタイプの実験、機械振動素子の振動測定のためのレーザー振動計を製作した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

電荷密度波を用いた自律型の確率的熱機関が構築できれば、確率的熱機関の測定を通して熱力学の基礎を検証することができる。電荷密度波は室温でも生じる物質があるので、環境の熱ゆらぎを利用した自律型分子マシン、ナノマシンへの応用が期待される。また、生命が行っている熱ゆらぎの利用や制御に対して、人工的にデザインされた確率的熱機関の実験から新しい知見を得ることができる考えられる。

研究成果の概要(英文)：The aim of this research is to clarify an interaction between charge density waves (CDWs) and mechanical vibration, and to make an experimental system of stochastic thermal engine using CDW property. CDW is an electronic state on low-dimensional metallic crystals, which has an interaction between CDW dynamics and mechanical deformation. A small mechanical vibrator made of CDW materials would detect tiny mechanical vibrations of about 10 nm as electrical signals. We performed development of maskless photolithography system for micro-fabrication of mechanical vibrator, chemical vapor transportation growth of CDW materials NbS₃, TaS₃ and NbSe₃, measurement of a prototype of CDW-mechanical vibrators, construction of laser vibrometer for mechanical vibrator.

研究分野：凝縮系物理学

キーワード：電荷密度波 確率的熱機関 MEMS マスクレスフォトリソグラフィ

1. 研究開始当初の背景

生命は長い年月をかけてできた複雑な分子機械である。しかし、日常スケールの機械をそのまま分子サイズに縮小しても、相対的に大きくなる熱ゆらぎにより乱され、規則的な動作はしない。生命は、逆に熱ゆらぎを上手に利用した、従来の熱力学の範囲を超える“確率的熱機関”と考えられる。このような確率的に動作する微小な熱機関は、直径100nm程度の微小粒子の操作によって実現されているが[1-3]、熱サイクルに必要な観測やポテンシャルの制御を外部の計測器やコンピュータによって行っているため、微小な熱機関が生み出す仕事よりもはるかに大きいエネルギーが観測・制御に費やされてしまう。そこで、機械振動子を用いた自律型の確率的熱機関が、Serra-Garciaらによって提案された[4]。機械振動子の振動状態によって共振周波数が変化するようにデザインされ、状態の検出と制御を機械振動子自体に行わせる。しかし、論文では微小サイズの熱機関は作成しておらず、室温程度の温度で動作する自律型確率的熱機関は未だ実現されていなかった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、低次元導体ナノワイヤーに生じる電子結晶（電荷密度波状態の電子）の弾性特性を組み合わせた微小両持梁型の機械共振子を用いた自律型の確率的熱機関を作成し、ミクロスケールの確率的熱機関としての特性を実験的に調べることにある。

図1に、Serra-Garciaらのアイデア[4]を元に申請者が考案した、電荷密度波（CDW）を用いた確率的熱機関の模式図を示す。CDW振動子に外部から電流を流すと、CDWの周期性により電流に比例した機械的振動が発生する[5,6]。電荷密度波を用いた機械振動子では、小さくすることでより検出しやすくなると考えられるため、従来の機械振動の検出より小さい振動が検出でき、熱揺らぎが支配的な領域でも振動検出ができると考える。

電荷密度波物質TaS₃、NbSe₃、NbS₃結晶を長さ数μm、厚さ100 nm以下の機械振動素子に加工し、機械振動を与えたときに、電荷密度波の電気輸送現象がどのように変化を与えるかを実験的に観測する。そして、電荷密度波による自己検出可能な微小機械振動子を用いて、熱揺らぎが支配的な確率的熱機関を構築する。

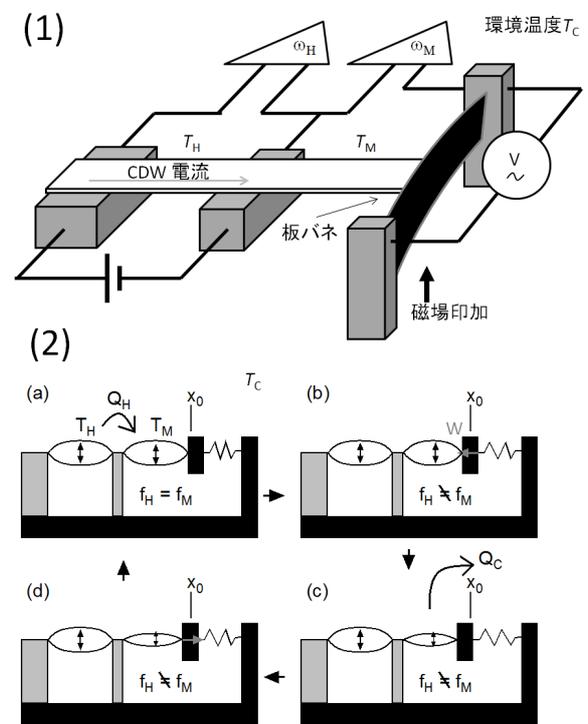


図1. (1)電子結晶(CDW)ナノワイヤーを用いた機械振動子式の自律型確率的熱機関の模式図。(2)高温 T_H と環境温度(低温 T_C)の差により熱サイクルが生まれ、仕事 W を取り出す。

3. 研究の方法

ミクロスケールの機械振動子デバイスを作成するために、フォトリソグラフィシステムなどの半導体微細加工技術が必要である。光学顕微鏡とプロジェクタを利用して廉価な簡易マスクレスフォトリソグラフィの作成を行う。

典型的な電荷密度波物質として知られている擬一次元導体 NbS₃、TaS₃、NbSe₃ の針状結晶を、化学気相輸送法で作成する。また、その特性を走査電子顕微鏡、元素分析 (EDS)、電気抵抗測定を用いて調べる。

作成した電荷密度波物質を用いて、機械振動子のプロトタイプを作成し、機械振動の電氣的検出を試みる。

機械振動子デバイスの振動を、電気信号とは別の手段で検出するため、マイケルソン干渉計をベースにしたレーザー振動計を作成する。

4. 研究成果

MEMS 作成のためのマスクレスフォトリソグラフィの構築

先行研究[7]を参考に、図 2 に示す簡易マスクレスフォトリソグラフィシステムを構築した。小型レーザープロジェクタ (HD301D1) を光源として、PowerPoint で作成したパターンを光学顕微鏡で縮小して基板に照射する。このシステムでは、通常のフォトリソグラフィ露光装置とは異なり、フォトマスクを作成しなくても PowerPoint でパターンを作成しプロジェクタから照射することで露光を行うことができる。

Merck 社の AZ6124 ポジ型レジストと、AZ5214E イメージリバーサル型レジストの二種類を用いて露光条件を調べた。AZ6124 ポジ型レジスト膜にパターン露光後、現像した結果を図 3 に示す。中央のギャップ部分は、数マイクロメートルの幅であるため、この位置に微細加工した電荷密度波物質の結晶を配置し、金属蒸着で電極を作成すれば、2 端子の電気抵抗測定を行うことができる。

電荷密度波物質の結晶作成

化学気相輸送法により、典型的な一次元電荷密度波物質 NbSe₃、TaS₃ 結晶を作成した。図 4 に作成した結晶の走査電子顕微鏡像を示す。作成した結晶が、NbSe₃、TaS₃ であることを、元素分析 (EDS) と電気抵抗の温度依存性から確かめた。電荷密度波の非線形伝導を確認した。また、室温で電荷密度波状態に

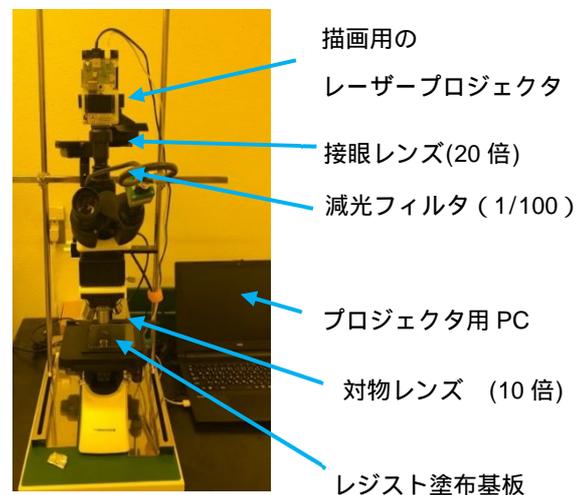


図 2 簡易マスクレスフォトリソグラフィ露光装置

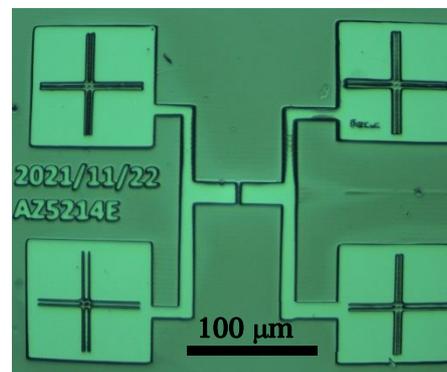


図 3. 作成したリソグラフィパターンの光学顕微鏡像

なる NbS₃-II 結晶の作成を試みたが、X 線結晶分析により NbS₃-I を作成したことが分かった。NbS₃には複数の Polytipe があるため、選択的に結晶成長させる条件を見出す必要がある。

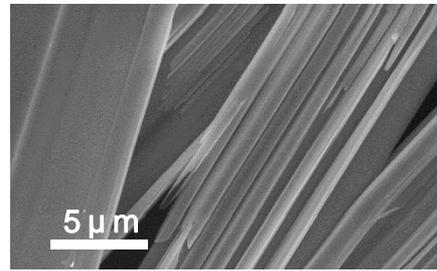


図 4 . 作成した NbSe₃ 結晶の走査電子顕微鏡像

電荷密度波物質を用いた機械振動子の測定

電荷密度波物質の結晶を機械振動子デバイスとして用いるために、まず図 5 のようなマクロな大きさ (mm オーダー) の試作デバイスを手作業で作成し、振動測定の構築を行った。図 5 に水色で示す部分が電荷密度波物質であり、2 つの電極によって宙づり構造をとる。基板から浮いているため、機械的な振動が可能になる。中央のゲート電極と電荷密度波物質の間に電圧を印加すると、クーロン力によって力が発生するので、直流電圧と交流電圧を同時に印加することで、電荷密度波物質に機械的な振動を誘起することができる。試料サイズと試料の密度から決まる機械的な固有周波数と同じ周波数で振動を誘起すると、共振により大きな振幅を持つと期待されるので、共振時の電気抵抗変化を測定し、機械的振動の検出を試みた。

ロックインアンプ LI5655 を用いて、交流測定 (ヘテロダイン測定) を行った[5]。ゲート電圧として周波数変調された交流電圧を印加すると、機械振動と混合し、変調波の周波数に対応する混合信号が交流電流として得られる。この

信号を、ロックインアンプ LI5655 を用いて検出することを試みた。測定は試料の電荷密度波 TaS₃ の転移温度 220K 以下で行った。80K 及び 100K での測定では、機械振動に対応する信号は得られなかった。測定理論[5]を見直したところ、この方法では試料 ゲート間距離が数 100 ナノメートル程度の微細構造にしないと測定可能な信号が得られないことが分かった。

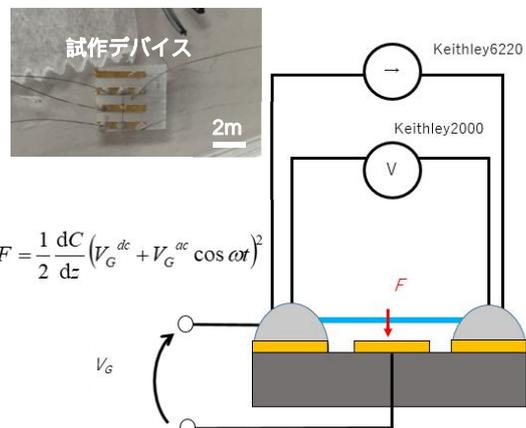


図 5 . 電荷密度波機械振動子の試作デバイス

機械振動子デバイス測定のためのレーザー振動系の作成

作成する機械振動子デバイスの機械的動作を直接検出するため、kHz ~ MHz の周波数帯で数 100nm 以下の変位を測定可能なレーザー振動計を製作し評価を行った。図 6 に示す干渉計を作成した。波長 532nm のレーザー光をビームスプリッターで二つに分け、片方を固定鏡、片方を 機械振動子デバイスに導く。鏡及び機械振動子デバイスで反射したビームを干渉させ、フォトディテクター (PD) で光強度を電気信号に変換して測定する。機械振動子デバイスが駆動・振動すると光路長が変化するため干渉縞が動き、PD で検出する光量が変化して振動を観測できる。



図 6. 作成したレーザー振動計

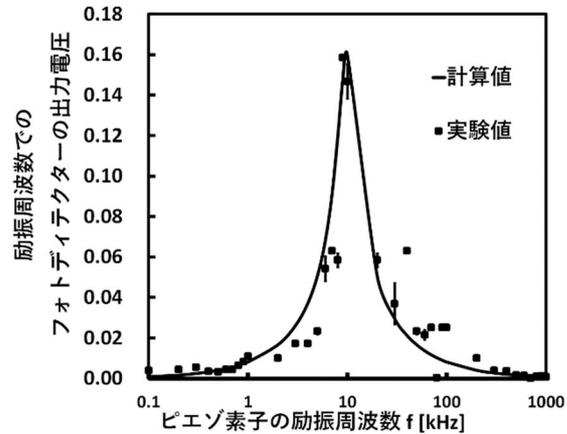


図 7. レーザー振動計で測定したバイモルフ振動子の振動速度の周波数依存性

動作確認のため、機械振動子デバイスとして反射板を取り付けたバイモルフ型振動子を設置し、バイモルフに振幅 700mV、周波数 100Hz ~ 1MHz の交流電圧を印加して発生するバイモルフの振動を測定した。そして PD の出力を高速フーリエ変換してピーク値の励振周波数依存性を記録したところ、図 7 に示すようなバイモルフ振動子の機械共振カーブを測定できた。振動の大きさはレーザーの波長以下であると見積もられ、数 100nm の振動を測定できるシステムができたと言える。

以上の研究成果により、電荷密度波物質を MEMS に加工し、機械的な振動の電氣的計測と光学的計測の 2 つの方法で確認するための知見が得られた。今後これらの技術を集約し、本来の目的である確率的熱機関の実験系の構築を目指す。

参考文献

- [1] S. Tayabe, et al., *Nature Physics* **6**, 988 (2010).
- [2] I. A. Martinez, et al., *Nature Physics* **12**, 6 (2016).
- [3] J. Klaers, et al., *Phys. Rev. X* **7**, 031044 (2017). [1] M. Serra-Garcia, et al., *Phys. Rev. Lett.* **117**, 010603 (2016).
- [4] M. Serra-Garcia, et al., *Phys. Rev. Lett.* **117**, 010603 (2016).
- [5] S. Sengupta, et al., *Phys. Rev. Lett.* **110**, 166403 (2013).
- [6] M. V. Nikitin, et al., *Phys. Rev. B* **86**, 045104 (2012).
- [7] 埼玉大学大学院理工学研究科物質科学部門 上野研究室 Web サイト <http://surface-chem.saitama-u.ac.jp>

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 松浦徹、達川卓輝、赤尾眞悟
2. 発表標題 一次元半導体NbS ₃ の分光測定
3. 学会等名 第6回無機・有機エレクトロニクスシンポジウム（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 半田和眞、松浦徹
2. 発表標題 赤外線放射によるバルク光起電力効果の研究
3. 学会等名 第6回無機・有機エレクトロニクスシンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 伊部賢人、立崎武弘、松浦徹
2. 発表標題 MEMS開発のためのレーザー振動計の製作
3. 学会等名 第6回無機・有機エレクトロニクスシンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 M. K. Kinyanjui, T. Matsuura
2. 発表標題 Imaging the atomic -scale effects of controlled disorder on an ordered electronic state in 2D quantum materials
3. 学会等名 Chem2Dmat (European conference on chemistry of two-dimensional materials) (国際学会)
4. 発表年 2022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			