

令和 5 年 5 月 29 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2021

課題番号：18H01814

研究課題名(和文)有機/ナノカーボン接合スパイクダイナミクス発生と高次情報システム応用への基礎展開

研究課題名(英文)Elemental study of spiking dynamics from organic/carbon nanotube junction and application for informatics

研究代表者

赤井 恵 (AKAI, Megumi)

大阪大学・大学院理学研究科・教授

研究者番号：50437373

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,300,000円

研究成果の概要(和文)：ニューラルネットワーク情報処理技術を基礎とし、ナノ材料の化学反応のダイナミクスやネットワークの乱雑性がもたらす、材料化学物質における情報処理能力を探索した。結果として、分子とカーボンナノチューブのネットワークの接点において発生する非線型応答および信号ダイナミクスの効果と、溶液内電気化学反応を応用した現象において、それぞれ人工知能(AI)計算能力を示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究成果により、安全、安価かつ低消費電力な人工知能デバイスが、我々の最も身近な水とイオンや小さな分子を集めたナノ材料を利用し実現できる可能性が示された。情報量の爆発を抑えつつ快適な未来社会を目指すにはこれまでの半導体素子中心の情報処理方法から脱却した、まったく新しい材料や反応を模索することが求められている。本研究は未来の情報科学技術を切り拓く材料探索の新しい方向性を示した。

研究成果の概要(英文)：We explored the information processing ability in nano chemical materials. Based on neural network information processing technology, dynamics of response and nonlinearity brought about by the chemical reactions and charge transport in the nanomaterials are expected to be used as a computing resource.

We demonstrated the reservoir computational power in the effects of nonlinear responses and signal dynamics occurring at the interfaces of molecules and carbon nanotube random networks. Furthermore, we found the electrical chemical response in solution is used as the response in reservoir computing. A simple system of nanomaterials and electrochemical reaction in solution was also demonstrated as an AI computing resources.

研究分野：表面科学, 有機バイオエレクトロニクス, ニューロモルフィック素子

キーワード：ニューロモルフィック 分子デバイス カーボンナノチューブ POM 双安定 コンダクタンススイッチング ニューラルネットワーク リザーバ計算

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

ニューラルネットワークを主力とする人工知能(AI)の有用性が確実となり、脳型計算や自然計算といった、脳や生物の優れた特性、高効率な消費電力性等に学ぶ新しい情報処理技術が新しい技術として大きな期待が今も寄せられている。コンピュータの中で演算するAIは膨大なエネルギーを必用としその限界が。一方で、デバイスや材料、そしてこれまで全く情報処理とは無関係だと思われていた物理現象を利用することで、ニューラルネットワークを構築、またはその機能を取り出して情報処理に利用する可能性が盛んに議論され、多くの物理人工知能計算研究が始まった。研究開始当初には膨大なアナログ信号処理が必要な深層学習的なネットワークではなく、信号の複雑なフィードバックを利用したリカレントニューラルネットワークの技術を利用した新しい情報処理技術であるリザーバ計算が注目され始めていた。

2. 研究の目的

本研究ではナノ材料、特に金属錯体分子とナノカーボン材料の接合するシステムが含有する、酸化還元ダイナミクスに伴う電子応答に注目し、ナノ分子素子から発生する時系列応答信号を計測し、その発生メカニズムを明らかにする。電荷の貯積と放出に起因したスパイクダイナミクスを発生する金属錯体分子ナノ接点構造を作りあげる。また基礎物性モデルと応用展開を包括した理論的解析を行ない、広い視野を持った学理の構築を目指す。さらなる目標として、高次情報変換計算、リザーバ計算に利用可能な、リザーバネットワーク要素としての要請を満足する分子素子材料及び構造の探索を行うことを目的とする。

3. 研究の方法

研究申請以前に、単層カーボンナノチューブ(SWNT)とポリオキソメタレート(POM)の接合を含む分子素子は、大きな時系列ダイナミクスを持つ電流スパイクを発生し、このシステムがリザーバ計算に利用可能であることを理論的に示唆していた。しかしながらそのインパルス発生時の物理化学的なメカニズムは定かではなかった。よって本研究では以下に示すような基礎現象の確認と、リザーバ応用性能の検証を、実験とモデル構築を繰り返すことで確認した。

- 1) SWNT/POM 接合素子を作製し、スパイクダイナミクス応答の素子構造と環境及び入力依存性を計測する。SWNT/POM ダイナミクス応答の物理モデルを構築し、検証実験を行う。
- 2) SWNT/POM ランダムネットワークを作製して多点計測を実現し、リザーバ性能の確認及び機能最適化を行う。

提案当初には、異なる金属錯体分子の接合素子を作製し、応答ダイナミクスを有する新規材料の探索を行うことを計画していたが、研究途中で溶液内の電気化学電流における非線型応答をリザーバ計算に応用することが可能であることが判明し、以下の研究を追加し実行した

- 3) 溶液の電気化学電流の多点計測を実現し、リザーバ性能の確認及び機能最適化を行う。

4. 研究成果

まず、研究1)として、スパイクダイナミクス応答の原点と考えられるSWNT/POM単分子接合素子を作製した。電極のサイズを小さくし、カーボンナノチューブの電気泳動時間を短くすることで、たった一つの分子接点を持つ素子を再現性良く作成する条件を見つけ出し、図1に示すような、POM分子である PMo_{12} 分子のナノ接点構造をカーボンナノチューブ素子内に作成することに成功した。また、接点の電気伝導度が室温で大きく揺らいでおり、高い抵抗値を示すオフ状態と一定の低い抵抗値を示すオン状態、その中間の不安定状態を取ることが明らかになった。素子の応答は外部雰囲気の影響を強く受け、分子の酸化還元応答と分子周辺のカウンターイオン及びプロトンの解離結合、移動分散のモデルを

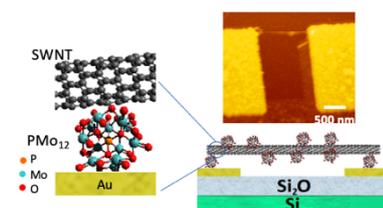


図1 電極間に1本から非常に少ない本数のSWNTを架橋させ、その接点に PMo_{12} 分子を挿入した分子素子

構築した。

次に研究2)としてPOM を挿入した SWNT のランダム ネットワークから収集した複数の信号を使用し、リザーバ計算を実行した(図2(a))。号はPOMとSWNT を混合させ、多点プローブから収集される電流として計測した。計測された電流は印加した電圧から非線型効果と時系列効果を有しており、これはネットワークの複雑さに起因する幅広い多様性を示唆していた。取得されたデータは、図2(b)に示すような周期波再構成タスクの良好なパフォーマンスを示し、これはPOM/SWNT試料の良好な非線型変換特性を証明した。図2(c, d)はリザーバ計算のベンチマークテストモデル非線形自己回帰移動平均(NARMA)モデルのNARMA2信号とその予測結果及び記憶容量テストの結果を示している。

本研究では約60プローブピンアレイを備えたマルチウェイクデータ収集システムを自作し、SWNT/POM ネットワーク内の物理的に分離されたポイントである複数のノードからの電流を測定した。一方で、試料の溶剤が残っていた場合、即ち溶液を流れる電気化学電流が非線形信号応答と信号伝達ダイナミクスに大きな影響を与えることも判明した。但し、リザーバの能力は以前の理論予測値よりも低かった。信号分布の解析の結果試料の一様性を向上させることによって全体の機能が向上することが判明し、今後の研究継続の重要性を示した。

次に研究3)として、溶液リザーバ計測研究を行なった。図3(a)に示すように、溶液試料はガラス基板の上の金電極アレー上に滴下され、電圧印加に対する電流が各電極の組み合わせの異なる約100端子対において、電流が自動的に計測した。結論から言うと溶液はどの試料もリザーバ性能を示した。中でも蒸留水はそれ自体でも比較的高い性能を常に見せた。溶液リザーバの性能はその高い非線形変換特性(図3(d))が特徴的であった。3次以降にも一定の記憶容量を持っていることが判る。このような高次の非線形信号を再現する能力は、例えば高い線形記憶能力を持つソフトウェアの数値リザーバ計算には備わっておらず、物質独特の機能を活かした情報処理目的を見いだす切掛けとなると期待される。

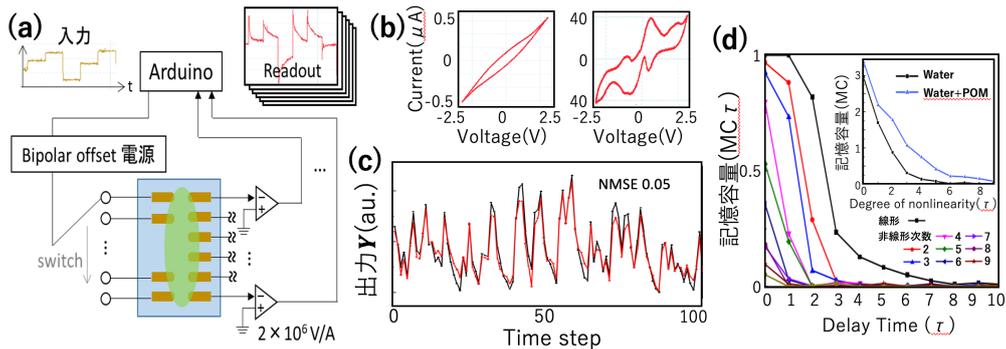


図3 (a)実験装置図 (b)電極間の電圧電流特性、蒸留水(右)蒸留水+POM(左) (c) 蒸留水+POM 試料のNARMA2 ターゲット信号(黒)と学習結果(赤)、(d) 蒸留水+POM 試料の非線形記憶容量

本研究の成果は現在ますます発展している人工知能と、化学反応を組み合わせた、情報化学と分子化学の融合という非常に新しい分野の新しい研究となった。ナノマテリアルで構成される物理的リザーバは、ますます重要性を増すエッジ コンピューティング向けに、低コスト、低消費電力、高度に統合されたハードウェア デバイスを備えたコンピューティングシステムとなる可能性がある。

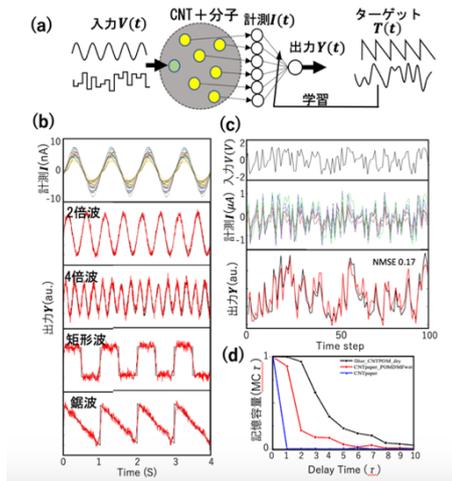


図2 (a)物理リザーバ計算実験概念図 (b)サイン波型電圧印加時の多点出力電流 $I(t)$ を用いた波形生成タスク(c)乱数電圧時の NARMA2 ターゲットタスク (d)記憶容量タスク

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計10件（うち査読付論文 10件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 5件）

1. 著者名 Kan S., Nakajima K., Takeshima Y., Asai T., Kuwahara Y., and Akai-Kasaya M.	4. 巻 15
2. 論文標題 Simple reservoir computing capitalizing on the nonlinear response of materials: Theory and physical implementations	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Applied	6. 最初と最後の頁 024030-024030
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevApplied.15.024030	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 Hagiwara N., Sekizaki S., Kuwahara Y., Asai T., and Akai-Kasaya M	4. 巻 13
2. 論文標題 Long- and short-term conductance control of artificial polymer wire synapses	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Polymers	6. 最初と最後の頁 312(1)-(10)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/polym13020312	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 Kan S., Nakajima K., Takeshima Y., Asai T., Kuwahara Y., and Akai-Kasaya M.,	4. 巻 15
2. 論文標題 Simple reservoir computing capitalizing on the nonlinear response of materials:	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Applied	6. 最初と最後の頁 024030-024030
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevApplied.15.024030	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 田中 啓文, 赤井 恵, 浅井 哲也, 小川 琢治,	4. 巻 J103-C
2. 論文標題 単層カーボンナノチューブとポリ酸によるニューロモルフィックランダムネットワークデバイス,	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 電子情報通信学会論文誌C	6. 最初と最後の頁 53-60
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 田中 啓文, 赤井 恵, 浅井 哲也, 小川 拓司	4. 巻 1
2. 論文標題 単層カーボンナノチューブとポリ酸による ニューロモルフィックランダムネットワークデバイス	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 電子情報通信学会論文誌	6. 最初と最後の頁 53-60
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 Kian L. Goh, H. Fujii, A. Setiadi, Y. Kuwahara, M. Akai-Kasaya,	4. 巻 59
2. 論文標題 Spontaneous spike signal originated from redox-active molecules functionalised on carbon nanotubes	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 S11B18-26
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab1b69	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 Tanaka Hirofumi, Akai-Kasaya Megumi, TermehYousefi Amin, Hong Liu, Fu Lingxiang, Tamukoh Hakaru, Tanaka Daisuke, Asai Tetsuya, Ogawa Takuji	4. 巻 9
2. 論文標題 A molecular neuromorphic network device consisting of single-walled carbon nanotubes complexed with polyoxometalate	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 2693-2699
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-018-04886-2	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 赤井恵	4. 巻 vss.62
2. 論文標題 ナノ材料を用いた生体及び神経細胞機能模倣素子	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 表面と真空	6. 最初と最後の頁 356-362
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1380/vss.62.356	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31件（うち招待講演 10件 / うち国際学会 12件）

1. 発表者名 Hagiwara N., Amemiya Y., Ali E.J., Asai T., and Akai-Kasaya M.
2. 発表標題 Feasibility of neuromorphic wetware using configurable polymer networks
3. 学会等名 The 10th RIEC International Symposium on Brain Functions and Brain Computer (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Akai-Kasaya M.
2. 発表標題 Towards physical neuromorphic device consisting of nanomaterials
3. 学会等名 The 4th International Conference on Memristive Materials, Devices & Systems (MEMRISYS 2021) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Hagiwara N., Asai T., and Akai-Kasaya M.
2. 発表標題 Conductance control of free-wiring conductive polymer synapses
3. 学会等名 The 4th International Conference on Memristive Materials, Devices & Systems (MEMRISYS 2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 赤井 恵
2. 発表標題 有機材料を利用した神経細胞機能模倣デバイスとそのAI応用に向けて
3. 学会等名 第8回電子デバイスフォーラム (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 赤井 恵
2. 発表標題 有機マテリアルが拓くニューロモルフィック科学
3. 学会等名 応用物理学会関西支部 2021年度第2回講演会 「昭和から令和までを橋架けた応用物理学における金字塔とその今 ~ノーベル賞から広がる最先端の研究~」(招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 萩原 成基, 浅井 哲也, 赤井 恵
2. 発表標題 導電性ポリマーワイヤーシナプスの抵抗変化特性評価
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Akai-Kasaya M.
2. 発表標題 Organic material that learns: Construction of physical neural network
3. 学会等名 The 17th International Conference on Multimedia Information Technology and Applications (MITA 2021) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 赤井 恵, 浅井 哲也
2. 発表標題 ナノ材料を用いた生体及び神経細胞機能模倣素子
3. 学会等名 第30回日本神経回路学会 全国大会 (JNNS2020) (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Akai-Kasaya M.
2. 発表標題 Study on nonlinear and dynamic response of electrical conductance through molecules
3. 学会等名 Joint Symposium of JSPS-DST Bilateral Research on Charge- and Spin-Blockade in Ultrathin-Layers of Single Molecule Magnets
4. 発表年 2020年～2021年

1. 発表者名 五十嵐 健人, 浅井 哲也, 赤井 恵
2. 発表標題 リザーバ機能発現を目指した大規模非線形ネットワークシミュレーターの構築
3. 学会等名 電子情報通信学会複雑コミュニケーションサイエンス研究会
4. 発表年 2020年～2021年

1. 発表者名 新田 純弥, ゴー キアン リアン, 竹嶋 勇樹, 桑原 裕司, 浅井 哲也, Schmid A. 新ヶ谷 義隆, 中山 知信, 赤井 恵
2. 発表標題 リンモリブデン酸分子結晶から発生するスパイク電流応答の観測とその機構解析
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 ゴー キアン リアン, Perice Denis, 桑原 裕司, 浅井 哲也, 赤井 恵
2. 発表標題 Spontaneous bistable redox switching in single molecular circuits,
3. 学会等名 第10回分子アーキテクトニクス研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 ゴ-キアン リアン, Perice Denis, 桑原 裕司, 浅井 哲也, 赤井 恵
2. 発表標題 Spontaneous bistable redox switching in single molecular circuits
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Akai-Kasaya
2. 発表標題 Towards Physical Neural Network System Consisting of Nanomaterials
3. 学会等名 The 31st Phase Change Oriented Science (POCS), (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Akai-Kasaya
2. 発表標題 Towards Physical Biomimetic and Neuromorphic Device Consisting of Nano-materials
3. 学会等名 International Conference and Expo on Nanotechnology & Nanomaterial 's, (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Akai-Kasaya
2. 発表標題 An elaborate response in molecular random network -Approach for information processing functionality-
3. 学会等名 The 7th International Conference on DV-X Methods (ICDM) (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 K. L. Goh, Y. Kuwahara, M. Akai-Kasaya
2. 発表標題 Investigation of State Dynamics of Phosphomolybdic Acid Molecules Functionalised on Carbon Nanotubes
3. 学会等名 ACSIN-14 & ICSPM26 (国際学会)
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 M. Akai-Kasaya, T. Asai
2. 発表標題 A Study of Spiking and Noise Generation from a System Consisting of Single-Walled Carbon Nanotubes complexed with Polyoxometalate
3. 学会等名 ACSIN-14 & ICSPM26 (国際学会)
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 M. Akai-Kasaya
2. 発表標題 Use of Room-Temperature Molecular Noise improves Signal Detection in Single Walled Carbon Nanotube Device
3. 学会等名 International Symposium on Nonlinear Theory and its Applications (NORTA) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 M. Akai-Kasaya
2. 発表標題 Stochastic Conductance Switching of Single Polyoxometalate Molecule at a Junction in Carbon Nanotube Device
3. 学会等名 ElecMol ' 18 (国際学会)
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 赤井恵
2. 発表標題 ナノ材料を用いた神経細胞模倣システムの構築
3. 学会等名 2018 年日本表面真空学会学術講演会
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 赤井恵
2. 発表標題 学習するマテリアル -ニューラルネットワーク構築
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 Kian Lian Goh 橋本優奈 桑原裕司 赤井恵
2. 発表標題 カーボンナノチューブに接続されたリンモリブデン酸単分子の状態ダイナミクス
3. 学会等名 2018 年日本表面真空学会学術講演会
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 竹嶋 勇樹, Goh Kian Lian, 岡田将, 桑原裕司, 浅井哲也, 赤井恵
2. 発表標題 カーボンナノチューブ/ポリ酸分子ネットワークを用いたリザーバコンピューティング
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2018年～2019年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 Akai-Kasaya M. and Asai T	4. 発行年 2021年
2. 出版社 World Scientific	5. 総ページ数 1208
3. 書名 Handbook of Unconventional Computing	

〔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
---------	---------