

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 9 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：20K21068

研究課題名（和文）極限環境での安定動作が可能な固体イオニクス論理素子の実証

研究課題名（英文）Investigation of ultra-high temperature solid-state ionic logic gates

研究代表者

中村 崇司（Nakamura, Takashi）

東北大学・多元物質科学研究所・准教授

研究者番号：20643232

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では YSZ/La₂NiO₄ヘテロ界面が800℃という高温域で安定的で強いイオン整流性を示すこと。YSZ/La₂NiO₄ヘテロ界面により構成されるイオンOR回路およびイオンAND回路を構築し、800℃で安定動作することを実証した。これは従来の半導体デバイスでは実現不可能な超高温、高線量環境下のような極限環境でも使用可能な革新的情報収集技術に繋がる成果であり、将来的にビッグデータの活用による技術イノベーションの根幹を支える技術になり得る発見である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、データ処理技術の進歩により、巨大なデータ群から必要な情報を抽出し、そこから有用な知見を得るといふビッグデータの活用が精力的に進められている。ビッグデータを効率的に活用するには、良質なデータ群を構成する必要があり、より高度で信頼性の高いデータ収集技術が求められる。例えば、数100℃以上の超高温域において安定的に動作する論理デバイスが実現すれば、冷却システムを付帯させることなく高温環境からデータを直接収集することが可能となり、これまで明らかにされてこなかった高温環境での諸現象についての学理や応用技術が飛躍的に進歩することが期待できる。

研究成果の概要（英文）：In this work, we successfully investigated strong ionic rectification at YSZ/La₂NiO₄ hetero-junction at 800°C. Moreover, ultra-high temperature ionic OR and AND gates were fabricated, and their electric response was investigated at 800°C. Stable operation under ultra-high temperature and/or high dose radiation condition is very severe for conventional Si-based information devices because of thermal excitation of electron and irradiation damages. Therefore, findings of this work can pave the way to the innovation of information technology, especially data collection from extremely high temperature and/or high-dose radiation conditions.

研究分野：固体イオニクス

キーワード：イオン整流性 イオン論理素子 高温情報デバイス

1. 研究開始当初の背景

情報処理技術が発展した現代において、様々な場所・環境からデータを収集し、ビッグデータとしてそれらを活用する事は社会的に極めて重要な課題である。数 100 以上の高温域や放射線暴露環境でも安定的に動作する論理素子を実現すれば、極限環境からのデータ収集技術が飛躍的に進歩することが期待できる。例えばタービンやエンジン、溶鉱炉などの高温領域や産業現場からの情報収集、原子炉や高線量環境のモニタリング、また地核調査や宇宙探索などに应用することができ、産業分野と基礎学術の発展に大きく貢献することが期待される。

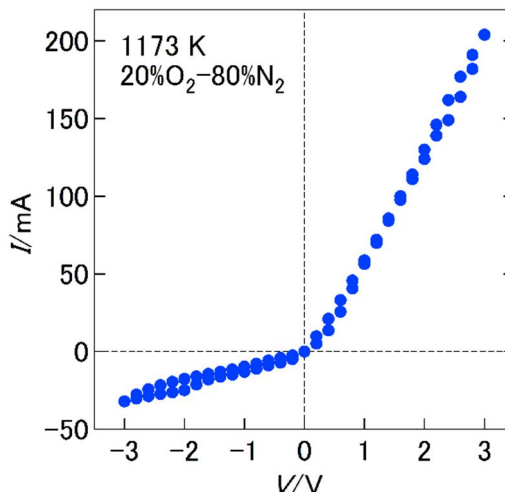


Fig. 1. 900 における $Pb_{0.8}La_{0.2}WO_{4.1}/YSZ$ 界面のイオン整流特性 (整流比 6.8)

2. 研究の目的

本研究では、申請者らが発見した酸化物イオン伝導体ヘテロ界面におけるイオン整流現象 (イオンが一方に流れやすくなり、逆方向には流れにくくなる現象: Figure 1) を活用する事で、高温、放射線暴露状態などの極限環境においても安定的に動作可能な論理素子の開発に挑戦する。

今回デバイスの主要構成材料として使用する酸化物イオン伝導体は 1000 でも安定な材料であり、材料中の点欠陥 (酸素空孔、格子間酸素) がキャリアであるため放射線によるダメージも小さい。つまり本研究で目指す論理素子は、既存の半導体素子の限界を大きく凌駕した領域をカバーすることができる。本研究を通して、全く新しいメカニズムで動作する新規論理素子を実証することができれば、ビッグデータの活用や IoT 技術といった、国際的に厳しい競争が繰り広げられている情報技術分野における我が国の優位性をより強固にすることができる。

3. 研究の方法

2 種類の酸化物イオン伝導体ペレットの片面を鏡面研磨し、研磨面を接触させることで界面の伝導特性を評価した。電流端子と電圧端子を分離する 4 端子構成とすることで、電流端子での電圧ロスを差し引いた形で評価を進めた。実験は 800 で実施した。

また Figure 2 および 3 に示すように YSZ/LNO 界面をダイオードとみなして高温イオン OR 回路と AND 回路を作製した。YSZ/LNO コンポジット層上に Pt ペーストを塗布し、入力 A、B の電流電圧電極とした。YSZ 表面の中央 (入力 A、B の間)、YSZ ペレット裏面および YSZ ペレット側面にも Pt ペーストを塗布し、それぞれ、出力用電極、GND 電極および電圧電極とした。実験は 800 で実施した。

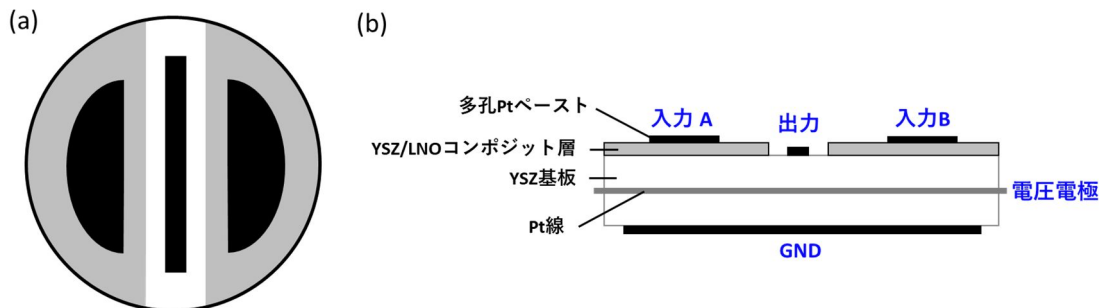


図 2. 高温イオン OR 回路セルの模式

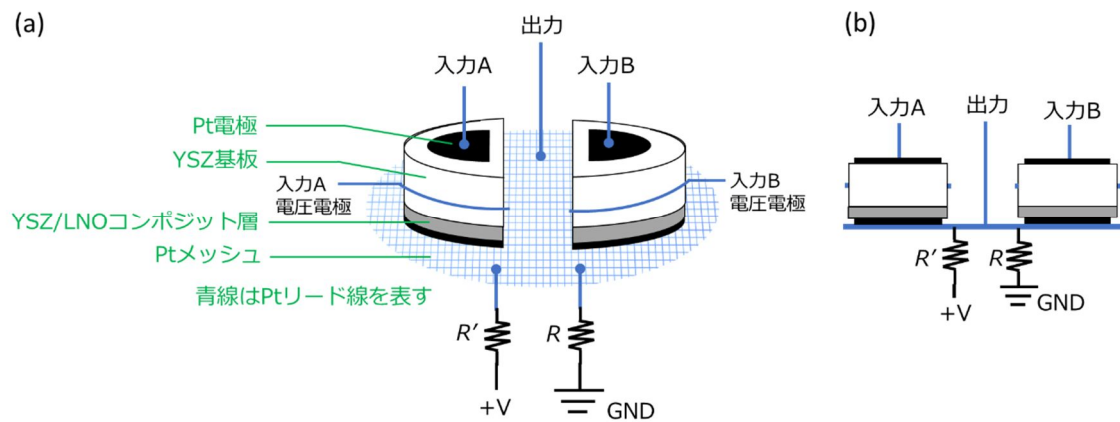


図 3. 高温イオン AND 回路の模式図

4. 研究成果

(1) 高い整流性を示す酸化物イオン伝導体ヘテロ界面の探索

酸素空孔 (V_O^{\bullet}) をキャリアとする $(Y_2O_3)_{0.08}(ZrO_2)_{0.92}$ (YSZ)、 $Ce_{0.8}Gd_{0.2}O_{1.9}$ (GDC)、および格子間酸素 (O_i^{\prime}) をキャリアとする $Pb_{0.8}La_{0.2}WO_{4.1}$ (PLW)、 $La_{9.6}(SiO_4)_6O_{2.4}$ (LSO) を使用した。また格子間酸素、電子をキャリアとする混合伝導体として La_2NiO_4 (LNO) を使用した。GDC/YSZ ヘテロ界面を除き、弱いイオン整流現象が確認された。特に酸化物イオン伝導体とイオン-電子混合伝導体界面となる YSZ/LNO 界面では整流比 10 を超える、本研究最大の整流比が得られた。そこで YSZ/LNO ヘテロ界面を利用して高温イオン論理素子の作製と動作検証を進めた。

Figure 4 に YSZ/LNO ヘテロ界面の I-V 特性を示す。横軸は、YSZ が負、LNO が正となるバイアスを正とし、YSZ が正、LNO が負となるバイアスを負としている。YSZ/LNO 界面の I-V 特性は非対称となり、イオン整流作用が発現した。100 ppmO₂ の ±2.0 V での整流比は 10.4 で、強い整流作用が確認された。ここで注目すべきは、見かけの順バイアスが、イオン空乏層から想定される順バイアスとは逆向きとなったことである。見かけの順バイアスは、YSZ が負、LNO が正となる電場方向であった。しかし、界面にイオン空乏層が形成されるなら、YSZ に正、LNO に負の電場をかけた場合が順バイアス（界面のイオン空乏層にキャリアを注入する方向）となるはずである。したがって、YSZ/LNO 界面で生じた見かけのイオン整流性はイオン空乏層によるものではなく、固体イオン伝導体界面特有の現象に起因するものと考えられる。YSZ/LNO 界面ではバイアス印加時に界面で酸素の化学ポテンシャルが変調し、順バイアスでは酸素発生反応 ($2O^{2-}(SE) \rightarrow O_2(g) + 4e^-$) が、逆バイアスでは酸素取込み反応 ($O_2(g) + 4e^- \rightarrow 2O^{2-}(SE)$) が進行することが予想される。この電気化学反応の速度差が見かけの整流性に寄与していたことが示唆された (Figure 4)。

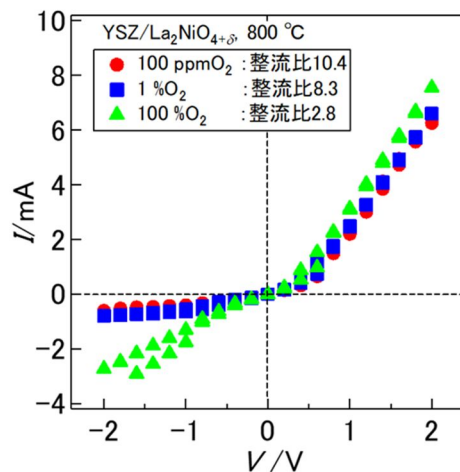


Fig. 4. La_2NiO_4/YSZ 界面のイオン整流特性の fO_2 依存性

(2) イオン AND 回路、OR 回路の作製と動作確認

(1) で確認されたイオン整流性は 800 以上の高温で安定的に発生している。原理的には、この整流現象を利用すれば、高温でも安定的に動作するイオン論理デバイスの構築が可能である。本コンセプトの実証に向けて、特に強い整流性を示した YSZ/LNO 界面による高温イオン AND 回路、OR 回路の動作を検討する。温度 800、100 ppmO₂ の雰囲気の下、入力電圧を 0.5 V または 1.0 V とし、入力信号 (A, B) = (1, 0), (0, 1), (1, 1), (0, 0) に対応する出力電圧を測定した。Figure 5 に示す通り、YSZ/LNO 界面のイオン整流作用を活用したイオン OR 回路および AND 回路は、800 の高温条件において安定的に動作し、OR 回路、AND 回路として動作することを確認できた。デバイスサイズや応答性など実用には程遠いものの、本検討により、イオン整流性の起源によらず高温イオン整流性を利用した論理デバイスの作製が可能であることを実証することができた。

本研究を通して得られた知見を以下にまとめる

酸化物イオン伝導体ヘテロ界面では酸素の取込み/吐き出し反応の速度差による見かけのイオン整流現象を起こることを見出した。

様々な酸化物イオン伝導体界面のスクリーニング試験を行ったところ、YSZ/La₂NiO₄ ヘテロ界面において強いイオン整流性が発現することを見出した。

YSZ/La₂NiO₄ 界面を利用したイオン AND 回路、OR 回路を作製し、800 という高温において論理素子として適切な動作を確認した。

以上、本研究で得られた知見は既存の半導体素子が使用不可能な極限環境でも安定動作するイオン論理素子の発展に繋がるものであり、当初設定した研究目的を達成することができたと言える。またデバイス作製にはまだまだ改善の余地が残されており、今後さらにデバイスの高性能化・高信頼成果が可能である。

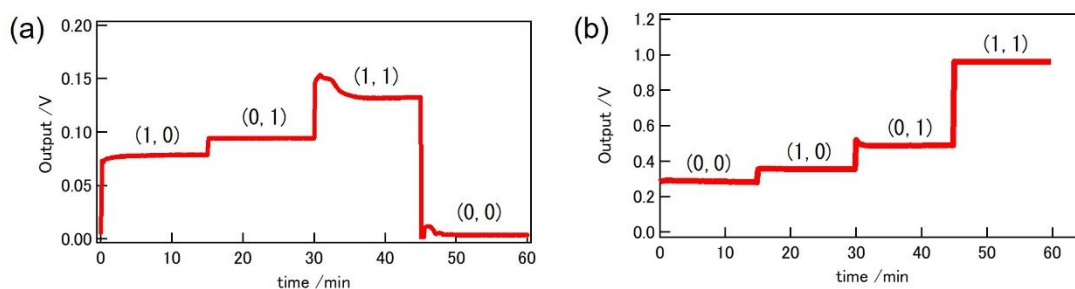


Fig. 5. 800 における(a)イオン OR 回路および(b)イオン AND 回路の出力応答。図中、カッコ内の数字は 0 が低電圧入力、1 が高電圧入力を示す。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔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 中村 崇司、本田 美季、木村 勇太、雨澤 浩史
2. 発表標題 酸化物イオンの整流性を利用した高温論理素子の実証
3. 学会等名 電気化学会第88回大会
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
---------	---------