

令和 6 年 6 月 13 日現在

機関番号：17104

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2023

課題番号：21K14527

研究課題名（和文）ナノマテリアルを用いた大気下で最適駆動可能な演算ハードウェア素子の創製

研究課題名（英文）Creation of arithmetic hardware device that can be optimally driven under atmospheric conditions using nanomaterials

研究代表者

宇佐美 雄生（Yuki, Usmai）

九州工業大学・大学院生命体工学研究科・助教

研究者番号：60878437

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,600,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、大気環境中のナノマテリアルの電荷移動の活性化の起源を解明し、電気化学的な制御によって演算素子としての機能抽出を行うことを目的として、ポリアニリンの湿度環境の制御を行うことで、リザーバ演算がプロトン注入によって駆動する素子の作製を呼び性能評価を行った。湿度の上昇に伴い電気特性が劇的に変化し、酸化還元由来の強い非線形かつ負性微分抵抗ピークを持つようなI-V特性が得られ、湿潤環境下でイオン伝導性を有し、湿度変化に敏感に応答することがわかった。リザーバ演算の模擬実験の結果、90%の精度で波形生成を行うことができ、0-9の10種の数字音声をも70%程度の正解率で分類成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の意義は、有機分子ネットワークの電気化学反応を用いて大気化で駆動させ情報処理を実現したことである。生体脳においても、神経回路で有機分子のネットワークが形成されており、電気化学反応を用いて信号伝達が行われている。そのため本研究成果によって、低消費電力かつ外部刺激を駆動力として機能する脳を真に模倣した次世代デバイスの創製およびAIシステムへの実装が期待される。

研究成果の概要（英文）：In this study, with the aim of elucidating the origin of activation of charge transfer in nanomaterials in atmospheric environments and extracting their function as arithmetic devices through electrochemical control, we called for the fabrication of devices in which reservoir operations are driven by proton injection by controlling the humidity environment of polyaniline and evaluated their performance. The electrical properties changed drastically with increasing humidity, and I-V characteristics such as strong nonlinear and negative differential resistance peaks originating from redox were obtained, indicating that the device is ionic conductive in a humid environment and responds sensitively to humidity changes. The results of simulated experiments of reservoir operation showed that the waveform generation could be performed with 90% accuracy, and 10 types of numeric voices (0-9) were successfully classified with about 70% accuracy.

研究分野：応用物性

キーワード：リザーバ演算 導電性ポリマー マテリアルリザーバ イオン伝導 音声分類

様式 C - 19、F - 19 - 1 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、半導体の集積化の限界が近づき、情報処理のさらなる高効率化のために半導体回路内の計算資源をナノマテリアルの物理現象を用いて代替し、脳神経回路の仕組みを模倣した演算ハードウェアを構築することが検討され始めている。現在のナノマテリアル演算素子研究は単電子の電荷移動の演算処理への活用が主軸であり、演算精度向上のため、真空環境や極低温環境などできるだけ熱励起等の環境ノイズが入り込まない条件下で演算素子として動作させる方法が主流である。[S. K. Bose et al., Nat. Nanotechnol. 10, 1048 (2015).]しかしながら、実際の脳神経回路では、脳神経細胞外液に存在するカルシウムイオン、カリウムイオンなどの化学イオンポテンシャルの揺らぎを駆動力にして動作している。そのため、人間の脳のような柔軟かつ高度な演算を行うためには、今まで盛んに研究されてきた“剛直な物性”ではなく、外部環境の状態を演算処理に上手く取り入れられる“しなやかな物性”こそがナノマテリアルの特性として重要だといえる。

本研究では上記の課題を解決するために、大気下に存在する水分から発生するプロトンの注入を演算処理の動作トリガーとして組み込み、電気化学的制御によって脳神経回路型ナノマテリアル演算素子を外部環境から駆動させることを目指す。これまでの研究で導電性高分子の一種であるポリアニリンの電流値が、電子伝導で電荷移動が行われる真空環境下に比べて大気環境では約 1000 倍上昇し、強い非線形電気特性が発現することが明らかとなった。ポリアニリンは電子とプロトンの両方が電荷移動キャリアとなりうる物質であることが報告されている。大気環境下で豊富に存在する水分から発生するプロトンがポリアニリンに注入されたことでプロトン伝導性が発現し、電気特性の劇的な活性化が起こったのではないかと推察される。もしこの推察が実証できれば、大気環境のプロトンをデバイス制御に活用可能となり、外部環境から駆動力を得る形式の真に脳の動作原理を模倣した演算処理が可能になると期待される。

2. 研究の目的

本研究では、大気環境中のナノマテリアルの電荷移動の活性化の起源を解明し、電気化学的な制御によって演算素子としての機能抽出を行うことを目的とする。具体的には、ポリアニリンの湿度環境の制御を行うことで、リザーバ演算がプロトン注入によって駆動する素子を確立する。このような研究は従来の環境ノイズを許さない情報処理とは正反対の考え方であり、新しい研究領域を提示できる。

3. 研究の方法

本研究は大気下で駆動する演算素子実現のための要素開発に着目して研究を進めた。大気中のプロトン注入によってナノマテリアルの電荷移動が活性化することを検証し、リザーバ演算導入により情報処理を行うことで、社会システムへの実装に耐えうるデバイスの開発を目指した。

(1) 大気環境下で現れる非線形電気特性の起源の解明

申請者がこれまで検討してきたポリアニリンを用いて、大気環境下で現れる非線形電気特性の起源を検討した。本研究で検討するプロトン伝導を含む電荷移動では、電子のみの電荷移動と比較して、湿度上昇に伴う抵抗値の指数関数的な減少、キャリア移動度の低下、ワールブルグインピーダンスの出現といった特徴的な振る舞いが現れる。そのため、湿度の上昇に依存してこれらの振る舞いが強くなれば、大気中のプロトンが電荷移動に関与することが確かめられる。本研究では、密閉した電気計測システムを自作し、湿気を含んだガスの注入量を調整することで湿度制御を行った。は所有している電流計測装置を用いて電流電圧特性を調べた。、についてはインピーダンスアナライザを用いて試料の周波数電気特性を検討することで評価を行った。の検討結果から、ポリアニリンが大気中のプロトンの注入により非線形電気特性が生じているかどうかを総合的に検証した。

(2) リザーバ演算の実装

上記の検討の後、リザーバ演算機能を実装した。研究代表者は真空環境下の材料系で一入力多出力系のリザーバ演算の模擬実験に既に成功している。そのため、計測システムを流用し、湿潤環境で計測できるようにシステム改造することで、大気中のプロトンを動作資源としたリザーバ演算システムの確立を目指した。

4. 研究成果

湿度の上昇に伴い電気特性が劇的に変化し、酸化還元に由来する強い非線形性かつ負性微分抵抗ピークを持つようなI-V特性が得られた。(図1)さらにインピーダンス計測から、電子に比べて遅い電荷移動が存在することが明らかになった。この結果から、SPANが湿潤環境下でイオン伝導性を有し、湿度変化に敏感に応答することがわかった。さらに、入出力電極間の関係を検討するためにリサージュ曲線をプロットしたところ、(図2)異なる出力間で異なる応答性が観測された。これは、イオン伝導によって多様な出力が得られることを意味しており、リザバー演算性能が高いことを示唆している。

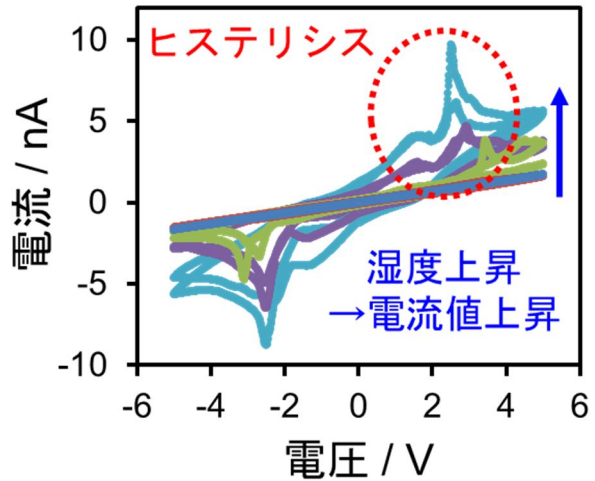


図1 湿度依存電流電圧特性

リザバー演算性能のベンチマークとして、波形生成タスクを行った。90%程度の予測精度を持つことから、複雑な波形の生成に十分な非線形性、高次元性を有することが示された。(図3a)0から9までの10種の数字の発声を用いて音声分類を行い、混同行列から68%の正解率であることがわかった。入出力数を同一にしたRCのソフトウェアシミュレーションにおいても8割程度の正解率であることから、SPANを用いたRCが高い性能を有することが示された。(図3b)さらに音声の入力時間と正解率との関係を調べたところ、入力時間5msの時に正解率が最も高くなることが明らかとなった。インピーダンス計測の結果からイオン拡散の時定数が10ms程度と算出されたため、時定数に近いデータ長である場合にSPANの豊富な電気化学ダイナミクスによって高い音声分類性能が達成できると考えられる。以上の結果、SPANを用いたRCの高い演算性能が示され、かつそれを十分に発揮可能な演算条件が時定数測定との比較により得られた。有機分子を用いてリザバー演算を行い、音声分類に成功したのは世界初である。

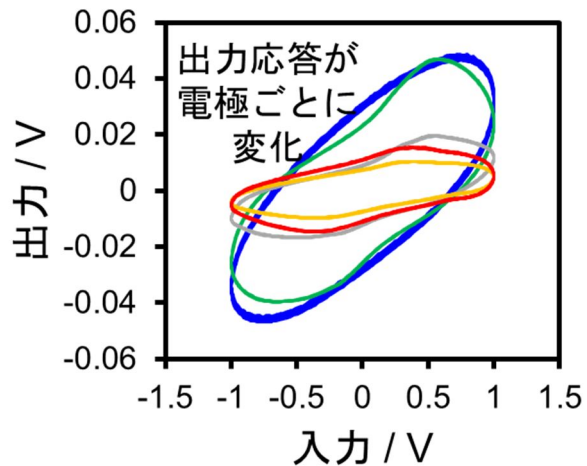


図2 入出力間のリサージュ曲線 (2Vpp, 11Hz 入力)

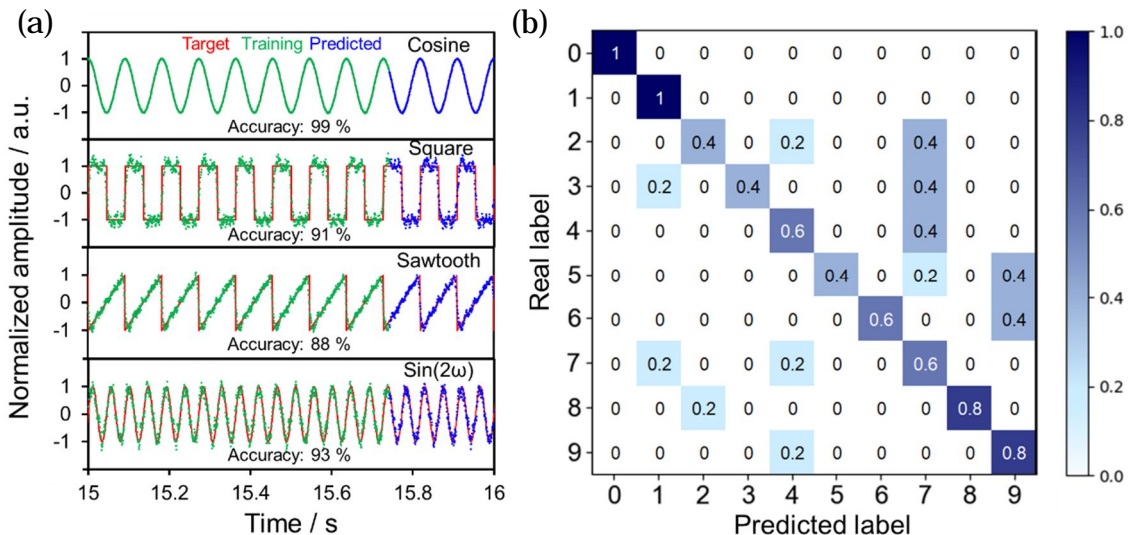


図3 (a) 波形生成結果 (b) 音声分類結果

今後の展望

今後は材料系の拡張を行い、大気化で駆動するマテリアル演算素子の最適化を行う予定である。すでにカーボンナノチューブに官能基を導入しイオン伝導を発生させるなど、検討を進めている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Takumi Kotooka, Yuichiro Tanaka, Hakaru Tamukoh, Yuki Usami, Hirofumi Tanaka	4. 巻 16
2. 論文標題 Random network device fabricated using Ag2 Se nanowires for data augmentation with binarized convolutional neural network	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 014002-1-7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1882-0786/acae6a	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 Masaya Hakoshima, Yuki Usami, Takumi Kotooka, Hirofumi Tanaka	4. 巻 62
2. 論文標題 Performance improvement of in-materio reservoir computing by noise injection	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SG1042-1-7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/acbd5b	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 Y. Usami, B. van de Ven, D. G. Mathew, T. Chen, T. Kotooka, Y. Kawashima, Y. Tanaka, Y. Otsuka, H. Ohoyama, H. Tamukoh, H. Tanaka, W. G. van der Wiel, T. Matsumoto	4. 巻 33
2. 論文標題 In-materio reservoir computing in a sulfonated polyaniline network	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Advanced Materials	6. 最初と最後の頁 2102688
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/adma.202102688	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 該当する

〔学会発表〕 計21件（うち招待講演 3件/うち国際学会 13件）

1. 発表者名 Yuki Usami, Yuichiro Tanaka, Hakaru Tamukoh, Takuya Matsumoto, Wilfred G. van der Wiel, Hirofumi Tanaka
2. 発表標題 Reservoir computing in the matter based on electrochemical dynamics
3. 学会等名 NANO2022（国際学会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 宇佐美 雄生、田中 悠一朗、琴岡 匠、田向 権、田中 啓文
2. 発表標題 電気化学ダイナミクスリザーバーを用いた分類用データ拡張
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yuki Usami, Yuichiro Tanaka, Takumi Kotooka, Hakaru Tamukoh, Takuya Matsumoto, Wilfred G. van der Wiel, Hirofumi Tanaka
2. 発表標題 In-materio reservoir computing based on electrochemical dynamics
3. 学会等名 MNC2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yuki Usami, Yuichiro Tanaka, Takumi Kotooka, Hakaru Tamukoh, Wilfred G. van der Wiel, Takuya Matsumoto, Hirofumi Tanaka
2. 発表標題 Material computing based on electrochemical dynamics
3. 学会等名 The 4th International Symposium on Neuromorphic AI Hardware (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Masaya Hakoshima, Yuki Usami, Takumi Kotooka, Hirofumi Tanaka
2. 発表標題 Electrical Properties of Photoresponsive Materials for In-materio Reservoir Computing
3. 学会等名 NANO2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Masaya Hakoshima, Yuki Usami, Takumi Kotooka, Hirofumi Tanaka
2. 発表標題 Relationship between Light Irradiation and Noise in Reservoir Computing with Photoresponsive Materials
3. 学会等名 Core-to-Core mini symposium (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 箱嶋 将弥, 宇佐美 雄生, 琴岡 匠, 田中 啓文
2. 発表標題 光照射によるノイズ制御を利用したリザーバー性能評価
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Masaya Hakoshima, Yuki Usami, Takumi Kotoka, Hirofumi Tanaka
2. 発表標題 Reservoir performance evaluation using noise control by light irradiation
3. 学会等名 MNC2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Masaya Hakoshima, Yuki Usami, Takumi Kotoka, Hirofumi Tanaka
2. 発表標題 Evaluation of material reservoir computing with noise injection
3. 学会等名 The 4th International Symposium on Neuromorphic AI Hardware (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yusuke Nakaoka, Takumi Kotooka, Yuki Usami, Hirofumi Tanaka
2. 発表標題 Developing material reservoir computing device using organic material
3. 学会等名 The 4th International Symposium on Neuromorphic AI Hardware (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Takumi Kotooka, Yuki Usami, Hirofumi Tanaka
2. 発表標題 Performance comparison of Ag2S and Ag2Se nanowire random network devices as physical reservoirs
3. 学会等名 NANO2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 琴岡匠, S. Lilak, A. Z. Stieg, J. K. Gimzewski, 田中悠一朗, 田向 権, 宇佐美雄生, 田中啓文
2. 発表標題 Ag2Seナノワイヤネットワークインマテリオリザパーデバイスの音声分類
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Takumi Kotooka, Yuichiro Tanaka, Hakaru Tamkoh, Yuki Usami, Hirofumi Tanaka
2. 発表標題 Voice Classification of Ag2Se Nanowire Network as Reservoir Device
3. 学会等名 MNC2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Takumi Kotooka, Yuki Usami, Hirofumi Tanaka
2. 発表標題 Evaluation reservoir computing device with Ag2Se nanowire network
3. 学会等名 The 4th International Symposium on Neuromorphic AI Hardware (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 箱嶋 将弥, 宇佐美 雄生, 琴岡 匠, 田中 啓文
2. 発表標題 マテリアル リザバ の光照射による性能向上
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 中岡佑輔, 琴岡匠, 宇佐美雄生, 田中啓文
2. 発表標題 光応答性有機材料を用いたマテリアルリザバードバイスの評価
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 宇佐美 雄生、Wilfred van der Wiel、松本 卓也、田中 啓文
2. 発表標題 ポリアニリンネットワークの電気化学的物理解リザバード演算機能創製
3. 学会等名 ナノ学会第19回大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 宇佐美 雄生、田中 啓文
2. 発表標題 ナノ材料ネットワークの時間ダイナミクスが拓く物理リザパーの演算機能
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yuki Usami, Yuichiro Tanaka, Hakaru Tamukoh, Takuya Matsumoto, Wilfred G. van der Wiel, Hirofumi Tanaka
2. 発表標題 In-materio voice classification based on self-doped polyaniline by binarized convolutional neural network
3. 学会等名 MNC2021（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yuki Usami, Tomoyo Fukumaru, Yuya Kawashima, Tomoki Misaka, Yoichi Otsuka, Yasuhisa Naitoh, Takuya Matsumoto
2. 発表標題 Chemical integration of molecular network with electrical nonlinearity toward neuromorphic computing
3. 学会等名 Pacifichem2021（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 宇佐美 雄生、田中 悠一郎、田向 権、Wilfred van der Wiel、松本 卓也、田中 啓文
2. 発表標題 電気化学ダイナミクスを用いたインマテリオリザパーによる音声分類
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 2022年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計2件

産業財産権の名称 演算デバイス、並びに、それを学習させる学習方法および学習装置	発明者 宇佐美雄生、田中啓文、箱嶋将弥、琴岡匠	権利者 国立大学法人九州工業大学
産業財産権の種類、番号 特許、2022-201293	出願年 2022年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 演算素子及びそれを具備する機械学習システム	発明者 宇佐美雄生、田中啓文、琴岡匠、川嶋悠哉、松本卓也	権利者 国立大学法人九州工業大学
産業財産権の種類、番号 特許、2021-165303	出願年 2021年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔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
---------	---------