

平成 30 年 5 月 24 日現在

機関番号：15401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2017

課題番号：15K13339

研究課題名(和文)メモリ機能を有する光素子の研究

研究課題名(英文)Study of optical devices with memory function

研究代表者

横山 新 (Yokoyama, Shin)

広島大学・ナノデバイス・バイオ融合科学研究所・教授

研究者番号：80144880

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,400,000円

研究成果の概要(和文)：抵抗、インダクタ、キャパシタに続く第4の素子として、通過電荷量に応じて抵抗が変化する「メモリスタ」が注目されている。本研究では、「通過光量に応じて光透過率が変化する光メモリスタ」を実現した。紫外線照射により緑色光の透過率が減少し、緑色光照射により透過率が回復する、フォトクロミック材料「ジアリールエテン」(1988年立教大学入江教授発見)をクラッドまたはコアに含む光導波路を形成し、光メモリスタを実現した。だが、緑色光の回復時定数は0.2秒～数分と長く目標とするミリ秒に達しない。そこで、物理モデルを構築し実験結果を模擬した結果、ジアリールエテン濃度低下によりミリ秒時定数になるという予測が得られた。

研究成果の概要(英文)：As a fourth element following a resistor, an inductor, and a capacitor, a "memristor" whose resistance changes in accordance with the amount of passed charges attracts attention. In this research, we realized "optical memristor whose optical transmittance changes according to the amount of light passing through".

An optical waveguide including a photochromic material "diarylethene" (discovered by Prof. Irie, Rikkyo University in 1988) in clad or core was fabricated. Its transmittance is reduced by UV irradiation and is recovered by irradiation of green light. However, the recovery time constant by green light is as long as 0.2 s to several minutes and does not reach the target millisecond.

Therefore, simulation of the experimental result was carried out by setting up a physical model. As a result it was predicted that when the diarylethene concentration is lowered, the recovery time becomes a millisecond.

研究分野：半導体工学

キーワード：光メモリスタ ジアリールエテン ニューラルネットワーク 光導波路 シリコン窒化膜 紫外線硬化樹脂 緑色光透過率 フォトクロミック材料

## 1. 研究開始当初の背景

(1) 人工知能(AI)の進歩は目覚ましく、2013年に、現役プロ棋士が初めてAI:Ponanzaに破れた[注1]。Ponanzaは、逐次処理型ノイマン型コンピュータ上で実行される。最近、ノイマン型と異なり、脳の神経回路を模したニューラルネットワーク、特に多層ニューラルネットワークによるディープラーニングが、音声認識・画像認識・言語翻訳・ゲームAIなどの分野において、他の手法を圧倒する高い性能を持つようになってきた[注2]。ニューラルネットワークは、囲碁に代表される大局的な判断など、ノイマン型が苦手とする分野で特徴を有し、今後AI・医療・エネルギー等幅広い分野への応用が期待されている。

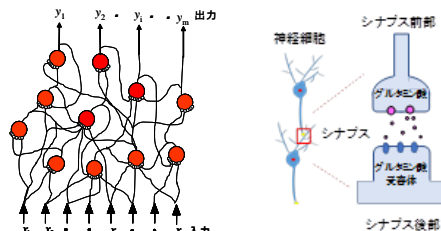


図1 神経回路の模式図(大きい赤丸が神経細胞、小さい丸がシナプス)およびシナプスの役割。

ニューラルネットワークでは、図1のように、1つの神経細胞から数千の樹状突起と1本の軸索(先端は複雑に分枝)が伸び、シナプスを介して他の神経細胞と繋がる、極めて複雑な相互接続がなされている。シナプスは、信号が通ることにより、接続のし易さ(結合重み)が変化する(信号が来るたびに結合重みが増す促進型と、減少する抑制型がある)。これが学習機能の本質を担っていると言われる。

注1: 将棋やチェスに比べAI化が格段に難しいとされる囲碁において、囲碁ソフトAlphaGoが、2017年に世界最強の棋士に全勝したニュースは記憶に新しい。

注2: AlphaGoは、ディープラーニングによる機械学習で自分自身との対局を数千万回繰り返し学習した結果、人間の能力を越えた。また、Google翻訳は、2016年からディープラーニングを活用し、翻訳能力が格段に進歩した。

(2) 人間の脳には、約100億個の脳細胞があり、複雑に相互接続されている。このような複雑で膨大な相互接続を金属配線で実現することは難しいと考えられる[付録1]。

(3) そこで、インターネットに用いられている光波長多重技術(光ファイバー1本で1000チャンネルの通信回線が可能)を用いるニ

ューラルネットワークを提案する。これにより、膨大な相互配線が比較的容易に実現できる[付録2]。本提案では、

- ・接続の特異性は波長分割多重技術により実現する。
- ・シナプス結合重み・学習は、フォトクロミック材料(後述)により実現する。
- ・神経細胞の発火特性は、集積回路で一般に用いられるComplementary Metal Oxide Semiconductor (CMOS)回路により実現する。
- ・ニューラルネットワークの多層化は、チップ貼り合わせにより実現する。

## 2. 研究の目的

上記背景のもと、本研究では、光ニューラルネットワークに必要な、シナプス結合重みを制御する「メモリ機能を持つ光導波路」を実現する研究を行う。

電気回路では、抵抗、インダクタ、キャパシタに続く第4の受動素子として「メモリスタ」が注目されている。メモリスタは通過した電荷量を記憶し、それに伴って抵抗が変化する受動素子である。本研究では、「通過した光の量を記憶し、それに伴って光透過率が変化する光素子:光メモリスタ」の可能性を探る。当初計画では、固体電解質中のナノ粒子の析出・ドリフトを利用することを提案したが、問題点が多くあることが分かった。調査により、有機フォトクロミック材料(光照射によって光学的性質の変化する材料)である「ジアリールエテン」が光メモリスタとしての機能を備えていることが分かった。これは紫外線照射により緑色光透過率が減少し、緑色光照射により、その透過率が回復するという、光メモリスタとしての性質を備えている(立教大学入江教授により1988年に発見された。I. Masahiro *et al.*, *J. Org. Chem* **53**, 803 (1988))。我々は、この材料を用いて光メモリスタを実現する方法を研究する。

## 3. 研究の方法

最初に、シリコン窒化膜をコア、ジアリールエテンを混合した塗布シリコン酸化膜をクラッドとする光導波路を形成し、そのメモリ効果を調べる。また、コアにジアリールエテンを混合したメモリ光導波路を形成し、その性能を比較する。さらに、光応答の物理モデルを構築し、光応答時定数を実用的なミリ秒オーダーに短縮する方法について考察する。

## 4. 研究成果

#### 4-1 フォトクロミック材料の特性評価

フォトクロミック材料ジアリールエテン (粉末: 2.5 mg) を酢酸エチル (200  $\mu$ l) に溶かし、石英容器に入れて、そのフォトクロミック特性を確認した。その結果を図 2 に示す。

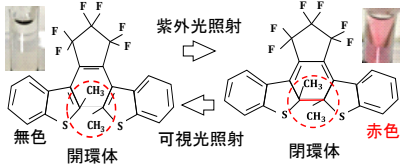


図 2 フォトクロミック材料「ジアリールエテン」の光照射による変化。

図のように、紫外線 (高圧水銀ランプ) を照射すると無色から赤色に変化し、可視光 (ハロゲンランプ) を照射すると赤色から無色に戻る。これは、入江らによって報告された光吸収スペクトルの変化 (図 3) に符合する。

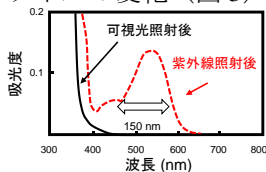


図 3 ジアリールエテンの光吸収スペクトルの変化 (I. Masahiro *et al.*, J. Appl. Phys, **33**, 1550 (1994))。

緑色光 (波長 550nm 付近) が吸収されると、その補色である赤色に見える。

#### 4-2 ジアリールエテンをクラッドに含む光導波路の特性評価

ジアリールエテンは、熱に弱く 80 $^{\circ}$ C 付近が耐熱温度である。そこで、可視光を透過する導波路として、シリコン窒化(SiN)膜をコアとする光導波路を 750 $^{\circ}$ C の熱化学反応により形成し、ジアリールエテンを含むシリコン酸化膜を塗布してクラッドとした光導波路を形成した。ジアリールエテン (2.5 mg) を酢酸エチル (200  $\mu$ l) に溶かし、その後塗布型 Si 酸化膜溶液 (東京応化 OCD 溶液: 400  $\mu$ l) と混ぜて塗布した。作製プロセスおよび作成試料の光学顕微鏡写真を図 4 に示す。

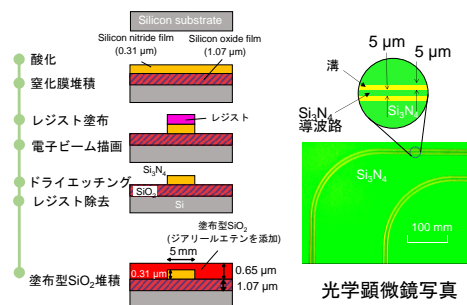


図 4 ジアリールエテンをクラッドに含む光導波路の作製法と作製試料の光学顕微鏡写真。

光学特性測定装置の概要を図 5 に示す。

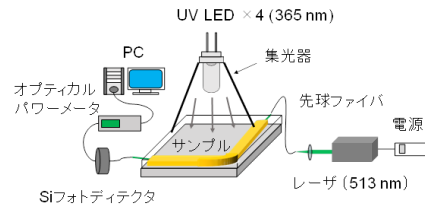


図 5 光学特性測定装置の概要。

UV LED (波長 365nm、最大 1.6W) の光を、試料から約 3.6cm 離れた所から照射する。UV 光が入出力用の先球ファイバーに照射されないよう、コーン状のステンレス製光遮蔽板を用いた。この装置を用いて、UV 光照射、および緑色光 (波長 513nm) 照射の効果を調べた。UV 光照射によって、透過率は指数関数的に減少し、ある値で飽和する。飽和値は、緑色光の強度が大きいほど大きく、強度が小さくなるほど小さい。飽和透過率は、UV 光による透過率減少と緑色光による透過率増大が平衡することで決まる。次に緑色光照射効果を図 6 に示す。

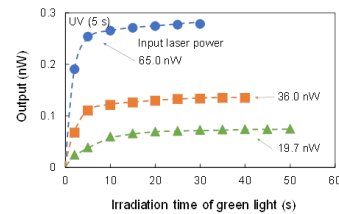


図 6 導波路出力の緑色光照射時間依存性。

UV 光 (1.6W) を 5 秒間照射した後 OFF すると同時に、緑色光を導波路に入力する。すると緑色光出力は徐々に増加する。緑色光強度が強いほど増加速度は早く、弱いほど遅い。出力が飽和したときの導波路の透過率を 1 として、透過率の緑色光照射総エネルギー依存性をプロットしたものが図 7 である。

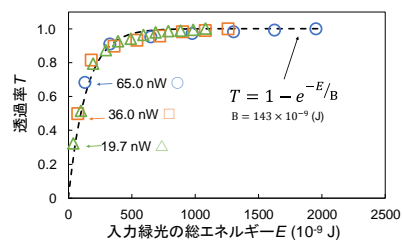


図 7 ジアリールエテンをクラッドに含む導波路透過率の緑色光照射総エネルギー依存性。

図 7 から、緑色光透過率は、緑色光の強度に

関係なく、緑色光の照射総エネルギー量のみによって決まる。この現象は、図 1 に示したニューラルネットワークにおける促進型シナプスと同様な働きをしている。

応答速度は、図 6 より数秒のオーダーである。一方、脳細胞の応答時定数はミリ秒のオーダーであり、時定数を短くすることが必要である。この試料では、導波光が弱く染み出すクラッド中にジアリールエテンが含まれているため時定数が長い。そこで、次にコアにジアリールエテンを含む導波路を製作し評価した。

#### 4-3 ジアリールエテンをコアに含む光導波路の特性評価

ジアリールエテンは熱に弱いため、コア材料として、紫外線硬化樹脂(NTT Advanced Technology Co. E3718、屈折率 $\sim 1.52$ )を用いた。下側クラッドは熱酸化  $\text{SiO}_2$ 、上側クラッドは空気である。UV 光照射効果は、4-2 節と同様であったが、光が直接伝搬するコアにジアリールエテンを入れたため、時定数が 0.2 秒以下と大幅に減少した。次に緑色光透過率の緑色光照射効果を調べた。初期状態は十分な UV 光照射によって透過率はほぼゼロになった。大きな入力緑色光パワーに対して透過率の回復が迅速になる。時定数は 0.2 $\sim$ 0.3 秒程度で、ジアリールエテンをクラッドに含むものに比べると早くなったが、要求されるミリ秒オーダーには達しなかった。

#### 4-4 ジアリールエテンをコアに含む光導波路の光学特性の物理モデルおよび考察

応答時間短縮の指針を得るために、フォトクロミック材料を含む光導波路の物理モデルを構築した。ジアリールエテン分子は、(A) 緑色光吸収状態、および (B) 透明状態の 2 つの状態を有する。これらの状態における分子数の時間変化は、式(1)~(4)で表せる。

$$\frac{dn_1}{dt} = k_2 I_G n_2(t) - k_1 I_{UV} n_1(t) \quad (1)$$

$$\frac{dn_2}{dt} = k_1 I_{UV} n_1(t) - k_2 I_G n_2(t) \quad (2)$$

ここで、 $n_1$ 、 $n_2$  は、それぞれ透明状態および吸収状態の分子数である。 $I_G$ 、 $I_{UV}$  はそれぞれ緑色光および UV 光の強度、 $t$  は時間である。また、ジアリールエテン分子の総数  $n$  は一定、すなわち  $n_1 + n_2 = n$  (3)

である。導波路の緑色光透過率  $T$  は次式で与えられる。  $T = \exp(-k_3 n_2)$  (4)

ここに、 $k_1$ 、 $k_2$ 、 $k_3$  は係数である。

(1)~(4)の微分方程式を解くと、一般解が得られる。UV 光照射による透過率減少過程は、初期条件、 $t=0$  で、 $n_1=0$ 、 $n_2(t=0)=n$ 、として、積分定数および  $k_1$ 、 $k_2$ 、 $k_3$  を、(4)式で与えられる理論透過率  $T$  と実験値がフィットするように決めて得られる。

UV 光を OFF し緑色光照射による透過率増加過程は、 $I_{UV}=0$ 、初期条件、 $t=0$  で、 $n_1=n$ 、 $n_2(t=0)=0$  として、同様にフィッティングして求められる。

UV 光照射による透過率減少過程では、理論と実験の一致は良かったが、緑色光照射による透過率増加過程では、その一致はあまり良くなかった。その理由は次のように考えられる。このモデルでは、UV 光および緑色光の強度は、場所的および時間的に一定と仮定している。図 5 の実験装置図に示すように、UV 光は試料上面から一様に照射しているので、この仮定はほぼ成立している。しかし、緑色光強度は、導波路に沿う光の進行と共に減衰する。特に今回の導波路では減衰が大きい。従って、このモデルは厳密には正しくなく、今後改良の余地がある。しかし、透過率の減少・増加過程共に、理論と実験結果は定性的には一致した。そこで、このモデルを用いて光応答速度を早くする方法を考察した。まず、UV 光による透過率減少の場合、初期時定数  $\tau$  は理論モデルより次式で近似できる。

$$1/\tau = k_3 k_1 n I_{UV} \quad (5)$$

UV 光照射による透過率減少過程の実験結果より得られる初期時定数の逆数を  $I_{UV}$  に対してプロットした結果、式(5)から予想されるように良く直線に載った。これより、時定数を短くするためには、UV 光の強度を増加させるか、ジアリールエテンの濃度  $n$  を大きくすれば良いことが分かる。ミリ秒の時定数を得るためには、UV 光源のパワーが 3W の時、ジアリールエテンの濃度を現在の約 10 倍に大きくすれば良いことが分かった。

次に、緑色光照射による透過率増加過程の初期応答については、初期時定数  $\tau$  は理論モデルより次式で近似できる。

$$1/\tau = k_3 k_2 n e^{-k_3 n} I_G \quad (6)$$

これより、時定数を短くするためには、緑色光強度を増大させれば良いことが分かる。実験結果より得られる初期時定数の逆数を  $I_G$  に対してプロットした結果、ばらつきは大き



かったが、直線にフィットさせミリ秒の応答速度の条件を求めた。その結果、緑色光強度を現在の最大の 900nW から、さらに約 1700~4400 倍に増加させる必要があることが分かった。スポットサイズコンバータを用いると、効率良く光を導波路に導入でき、緑色光強度は現状の約 100 倍に増大できる。しかし、残りの 17~44 倍の課題が残る。式(6)より、時定数は、 $n k_3 \exp(-k_3 n)$  に反比例している。縦軸に初期時定数の逆数を、横軸に  $n k_3$  をとって式(6)をプロットした結果  $n k_3 = 1$  で最大値を取った。現状では、理論と実験のフィッティングから  $n k_3 = 6$  である。これより、ジアリールエテンの濃度を現在の 1/6 にすれば、時定数は約 1/25 に低減できることが分かった。上の議論より、スポットサイズコンバータの付加と、ジアリールエテンの濃度低減により、ミリ秒オーダーの時定数が得られる可能性が示唆された。一方、UV 光による透過率減少の時定数はジアリールエテンの濃度を小さくすると長くなる。しかし、UV 光をチップ全体に照射して、すべての光デバイスを同時に初期化する目的で用いるのであれば、時定数が多少遅くても大きな問題は生じないと考えられる。

#### 4-5 成果まとめ

シリコン窒化膜コア、ジアリールエテンを混合した塗布シリコン酸化膜をクラッドとする光導波路を形成し、そのメモリ効果を調べた。その結果、紫外線(365nm)照射によって緑色光(513nm)の透過率が急速に減少し、紫外線照射を中止すると、照射する緑色光の総エネルギーに応じてその透過率が式  $(1 - \exp(-E/k))$  ( $E$  は照射緑色光の総エネルギー、 $k$  は定数)に従って回復することを見出した。このことを用いた光ニューラルネットワークのモデルを提案し、国際会議(SSDM2018)および学術誌(Jpn. J. Appl. Phys. **57**, 04FH02, 2018)に発表した。しかし、緑色光に対する回復応答時定数は数秒のオーダーで実用性にかける。そこで、ジアリールエテンを混合した紫外線硬化樹脂をコアとする導波路を形成した。その結果、0.2 秒程度まで時定数を短くすることができた。しかし、目標とするミリ秒には至らなかった。そこで、光照射による透過率変化の物理モデルを構築し、実験結果と比較した。その結果、定性的に両者を一致させることができた。このモ

デルを用いて、緑色光照射による透過率回復時定数をミリ秒にするためには、ジアリールエテンの濃度を現状の 1/6 にし、スポットサイズコンバータを併用すれば良いという予測ができた。

[付録 1]ニューラルネットワークの相互接続を金属配線で実現することが困難な理由

$N$  対の神経細胞が相互接続する場合の配線数  $L_N$  は、 $L_N = N^2$  となる。 $N = 1000$  とすると  $L_N = 10^6$  となる。 $10^6 =$  百万本の配線を、例えば  $0.1 \mu\text{m}$  幅の金属配線で並べると、その総幅  $= 0.1 \mu\text{m} \times 10^6 = 10 \text{cm}$  となる。これでは LSI チップとしては大きすぎる。そこで、10 層の多層配線を用いると、1/10 の幅  $= 1 \text{cm}$  で実現できる。ただし、これはたった 1000 個の神経細胞の相互接続の場合である。脳神経細胞の数は、哺乳類で 1~1000 億、昆虫で数万~100 万と言われ、このような数になると、金属配線では実用的なサイズで実現できない。  
[付録 2] 自由空間の波長多重光通信を用いた光ニューラルネットワークの提案

筆者が提案する自由空間波長多重光通信ニューラルネットワークの構成例を図 8 に示す。

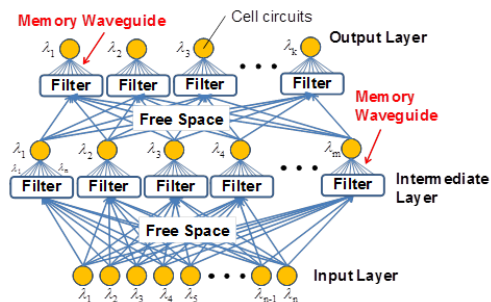


図 8 自由空間波長多重光通信ニューラルネットワークの構成例。

1 つの神経細胞を  $10 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$  の面積の回路で実現すれば、10,000 個の神経細胞を 1cm 角の正方形内に集積できる。図に示した 2 層間の総配線数は  $10,000^2 = 10^8$  (1 億) となる。自由空間の波長多重光通信を用いると、図のように容易に膨大な相互配線が実現できる。図 3 より、光吸収が変化する波長域の幅は、約 150nm である。一方、本研究室で実現可能な光フィルターの半値幅は、フォトニック結晶光共振器を用いて約 7nm である (A. K. Sana et al., Jpn. J. App. Phys. **56**, 04CM06 (2017))。従って、 $150 \text{nm} \div 7 \text{nm} \approx 20,000$  チャンネルの光多重通信が可能であり、1 万  $\times$  1 万セル間の混

線の無い相互接続が原理上可能である。一つの神経細胞回路の構成例を図9に示す。

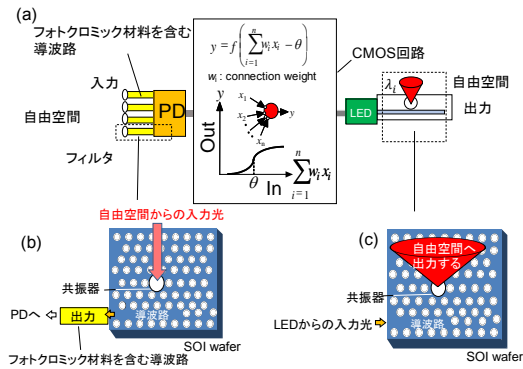


図9 一つの神経細胞回路の構成例。

この光ニューラルネットワーク提案は、主な発表論文等〔雑誌論文〕1.に記載されている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計4件)

1. K. Tanimoto, Y. Amemiya, and S. Yokoyama, “Optical Waveguides with Memory Effect Using Photochromic Material for Neural Network,” Jpn. J. App. Phys. **57**, No. 4, (2018) pp. 04FH02-1-5. <https://doi.org/10.7567/JJAP.57.04FH02> 査読有.
2. K. Tanimoto, Y. Asahara, Y. Amemiya, T. Tabei, and S. Yokoyama, “Biomimetic Neural Network Using Photochromic Optical Waveguides with Memory Effect,” Proc. of the Second Int. Symp. on Biomedical Engineering (2017) Tokyo, Japan, A-96, pp. 250-251. 査読無.
3. K. Tanimoto, Y. Asahara, Y. Amemiya, and S. Yokoyama, “Optical Memory Waveguides Using Photochromic Material for Neural Network,” Ext. Abst. of Int. Workshop on Nanodevice Technologies 2018 (2018) Hiroshima, Japan, P-1, pp. 18-19. 査読無.
4. K. Tanimoto, Y. Amemiya, and S. Yokoyama, “Optical Waveguides with Memory Effect Using Photochromic Material for Neural Network,” Extend. Abst. Int. Conf. on Solid State Devices and Materials (SSDM2017) (2017) Sendai, Japan, B-4-02, pp. 97-98. 査読有.

〔学会発表〕(計7件)

1. K. Tanimoto, Y. Amemiya, and S. Yokoyama, “Optical Waveguides with Memory Effect Using Photochromic Material for Neural Network,” Int. Conf. on Solid State Devices and Materials (SSDM2017) (2017) Sendai, Japan.

2. K. Tanimoto, Y. Asahara, Y. Amemiya, T. Tabei, and S. Yokoyama, “Biomimetic Neural Network Using Photochromic Optical Waveguides with Memory Effect,” Second Int. Symp. on Biomedical Engineering (2017) Tokyo, Japan.

3. K. Tanimoto, Y. Asahara, Y. Amemiya, and S. Yokoyama, “Optical Memory Waveguides Using Photochromic Material for Neural Network,” Ext. Int. Workshop on Nanodevice Technologies 2018 (2018) Hiroshima, Japan.

4. 谷本 桂理, 麻原 遥平, 雨宮 嘉照, 田部井 哲夫, 横山 新, “フォトクロミズムを利用した光ニューラルネットワークの研究,” 2017 年度応用物理・物理学系学会中国四国支部合同学術講演会, 松山, 愛媛大学, 2017年7月29日, Bp-9.

5. 谷本 桂理, 麻原 遥平, 雨宮 嘉照, 田部井 哲夫, 横山 新, “フォトクロミック材料とスロット導波路を用いた光メモリデバイスの研究,” 2017年第78回応用物理学学会秋期学術講演会, 福岡国際会議場・福岡国際センター・福岡サンパレスホテル, 福岡, 2017年9月5日～8日, 5p-PB1-13.

6. 谷本 桂理, 麻原 遥平, 雨宮 嘉照, 田部井 哲夫, 横山 新, “光記憶材料を用いた神経回路の研究,” 平成 29 年度生体医歯工学共同研究拠点成果報告会, 東京工業大学、横浜市, 2018年3月9日, 1-34.

7. 谷本 桂理, 麻原 遥平, 雨宮 嘉照, 横山 新, “フォトクロミック材料をコアに含む光メモリ導波路の研究,” 2018 年第 65 回応用物理学学会春期学術講演会, 早稲田大学, 東京都, 2018 年 3 月 17 日～20 日, 17p-P3-12.

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計0件)

○取得状況 (計0件)

〔その他〕

ホームページ 等

<http://www.RNBS.hiroshima-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

横山 新 (YOKOYAMA SHIN)

広島大学・ナノデバイス・バイオ融合科学  
研究所・教授

研究者番号：80144880