

令和 2 年 6 月 1 日現在

機関番号：32689

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2017～2019

課題番号：17H02789

研究課題名（和文）原子圧縮制御型分子シナプス素子の開発

研究課題名（英文）Synaptic device that operates by compressing a molecule

研究代表者

長谷川 剛（HASEGAWA, Tsuyoshi）

早稲田大学・理工学術院・教授

研究者番号：50354345

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,900,000円

研究成果の概要（和文）：ディープラーニングシステムの高性能化には、可変抵抗域が大きく、かつ連続的に抵抗が変化するシナプス動作素子が必要とされている。本研究では、分子圧縮による電子状態変化を利用した新しいシナプス動作を提案し、その動作実証を行った。得られた結果は、理論予測とも一致した。固体電気化学反応を利用して、分子を挟む電極間に電圧を印加するだけで分子圧縮を実現する手法も提案、その動作を実証することで、集積化を含む実用化の可能性も示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、人工知能に大きな注目が集まっている。現在の人工知能の多くは、既存のコンピューターとソフトウェアの組み合わせで動いている。より高度な情報処理を省エネルギーで実現するためには、脳型情報処理に適したコンピューターの開発が不可欠であり、その主要構成要素であるシナプス動作素子の研究が世界中で盛んに行われている。本研究では、新しく見いだした物理化学現象をシナプス動作に利用することで、基礎的な知見の集積による学術への貢献、ならびに、上記社会的要請に応えることを目指した。

研究成果の概要（英文）：Synaptic devices that operate with a wider range of analog resistance changes are required to improve the performance of Deep Learning systems. In this study, we proposed a new type of a synaptic device that operates by compression of a molecule, which causes a change in electronic states of the molecule. We demonstrated the operation, which is consistent with the theoretical prediction. We also proposed a new method to compress a molecule, in which only a bias application to the two electrodes that sandwich a molecule is needed. The method that utilizes an electrochemical reaction will enable a future integration of the developed device.

研究分野：ナノ構造物理学

キーワード：シナプス動作素子 脳型情報処理 走査型トンネル顕微鏡 固体電気化学反応

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

将棋や碁のプロ棋士が人工知能に次々と敗れたことを契機として、深層学習を始めとする人工知能システムに大きな注目が集まり始めていた。膨大なデータを学習することで、人工知能と気付けられずに複雑な会話もできるシステムの実用化も目前となっていた。これらのシステムでは、脳型の情報処理が行われている。本研究開始当初における人工知能システムの主流は、ソフトウェアに脳型情報処理の機能を組み込み、それを既存のノイマン型コンピュータで実行するものであった。現在(研究終了時点)でも、実用化されている人工知能システムに限って言えば、この状況は変わっていない。

現在広く普及しているノイマン型コンピュータは、逐次演算型の情報処理システムであり、プログラム通りに膨大な量の計算を実行できる。従って、プログラムを書き換えられない限り、常に同じ結果が得られる。このため、学習によって判断を変えていく脳型情報処理を実行するためには、その機能をソフトウェアに組み込むしかない。

近年、ノイマン型コンピュータの高性能化に伴う消費電力の増大が深刻な問題となっており、脳型情報処理本来の省エネルギー性をも備えたコンピュータの開発が望まれている。この実現のため、脳型コンピュータの基本構成要素であるシナプスの動作をする素子の研究・開発が盛んに行われるようになっていた。

### 2. 研究の目的

脳型情報処理におけるシナプスの役割は、その結合加重を学習によって変化させることである。表現できる結合加重の値(離散数)が多いほど、その可変抵抗域が大きいほど、より高度で複雑な情報処理が可能となる。これを実現するべく、様々な不揮発性メモリ素子を用いた研究が行われていた。本研究では、新しく見いだした物理化学現象を素子動作に利用することで、従来素子を使ってでは難しい「連続的な抵抗変化」と「大きな可変抵抗域」の実現を目指した。具体的には、1) 分子を圧縮することで、その電子状態が連続的に変化することの実証、2) 機械的な駆動部品を用いずに分子圧縮を実現する手法の確立を目指した。

### 3. 研究の方法

本研究では、圧縮による電子状態変化を示す分子として、 $C_{60}$ 分子を用いた。 $C_{60}$ 分子は対称性が高く、最高占有分子軌道(HOMO)、最低非占有分子軌道(LUMO)を含む多くの分子軌道が縮退している。圧縮によって分子形状が歪むと、これらの縮退が解けて電子状態が変化することが理論的に予測されていた。 $C_{60}$ 分子を2つの電極で挟んだ場合、電極間の抵抗は $C_{60}$ 分子のHOMO-LUMOギャップ幅で決まる。

HOMO-LUMOギャップは、 $C_{60}$ 分子の歪み具合に依存して連続的に変化することが理論的にも予測されていた。このため、まず、走査型トンネル顕微鏡の探針(機械的な駆動部品)を用いて $C_{60}$ 分子を圧縮することで、理論予測通りに電子状態変化が起こるか否かを実験的に確認した。

続いて、機械的な駆動部品を用いない分子圧縮法として、硫化銀を電極材料に用いる方法を試みた。硫化銀電極に電流を注入すると、硫化銀表面から銀原子が析出してくる。この析出銀原子によって $C_{60}$ 分子を圧縮しようというものである。実験では、銀原子析出に必要なエネルギーと $C_{60}$ 分子の圧縮に必要なエネルギーを見積もり、銀原子析出による $C_{60}$ 分子の圧縮が可能かの理論的検証も行った。

### 4. 研究成果

#### (1) 走査型トンネル顕微鏡の探針を用いた $C_{60}$ 分子の圧縮と電子状態変化

タンダステン探針を用いた $C_{60}$ 分子の圧縮と、それによる電子状態変化の観測を行った。超高真空走査型トンネル顕微鏡のロードロック室に $C_{60}$ 分子の蒸着源を設置し、予め加熱清浄化しておいた金表面に $C_{60}$ 分子を蒸着した。蒸着量は1分子層以下とし、探針-金表面間に $C_{60}$ 分子が一つだけ挟まるようにした。

$C_{60}$ 分子の位置を走査型トンネル顕微鏡観察によって同定した後、探針位置を観察高さ(探針- $C_{60}$ 分子間にトンネルギャップがある)に固定して走査型トンネル分光を行った。その結果(微分コンダクタンス値)を図1(a)に示す。続いて、探針を固定した位置から表面側に0.3nm近づけてから走査型トンネル分光を行った。その結果を図1(b)に示す。図中に矢印で示すピークは、各状態におけるLUMO準位に対応しており、圧縮前はフェルミレベルから0.9eVの位置にあったが、圧縮によってフェルミレベルから0.6eVの位置まで下がってきたことが分かる。圧縮に伴う電子準位の移動幅は、理論予測ともほぼ一致していた。この結果、 $C_{60}$ 分子を圧縮することで電子状態が変化することを実験的に確認することができた。

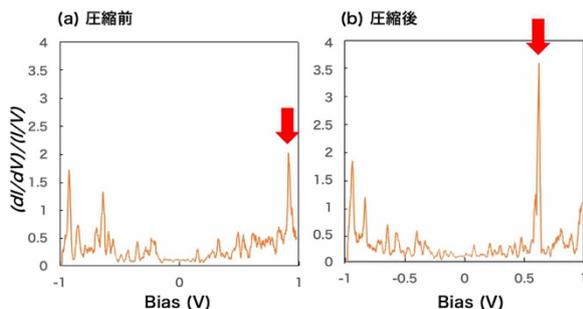


図1  $C_{60}$ 分子の微分コンダクタンス測定結果

(a)圧縮前、(b)圧縮後

## (2) 硫化銀探針を用いた C<sub>60</sub> 分子の圧縮と電子状態変化

硫化銀探針を走査型トンネル顕微鏡の探針として用いることで、機械的駆動部品無しに、電圧印加のみで C<sub>60</sub> 分子の圧縮を試みた。硫化銀からの銀原子析出量は、硫化銀探針に流れる電流値に指数関数的に依存することが知られている。この特性を利用して、電子状態変化の探針固定位置（トンネル電流）依存性を評価した。測定結果の一例を図 2 に示す。この測定では、試料側電圧 100mV、トンネル電流 1nA ないし 20pA の条件で探針位置を固定した後、走査型トンネル分光を行った。なお、硫化銀探針からの銀原子析出は、試料側電圧が負の時起こる。正側では析出は起こらず、析出していた銀原子があれば、それらは硫化銀内に戻っていく。

トンネル電流が大きいと、銀原子析出量が多くなるので C<sub>60</sub> 分子がより圧縮される。図中、橙色の曲線がトンネル電流 1nA の位置に探針を固定して得た結果であり、青色の曲線がトンネル電流 20pA の位置に探針を固定して得た結果である。負の電圧領域では、橙色の曲線が上にあるが、これはフェルミレベル近傍により多くの電子準位があることに対応している。一方、正の電圧領域では、橙色と青色の曲線はほぼ重なっており、差が無い。これは、正電圧側では銀原子の析出が起こらず、C<sub>60</sub> 分子が圧縮されなかったことを意味している。銀原子の析出が起こらないタングステン探針による測定結果との比較等も行うことで、銀原子析出による C<sub>60</sub> 分子の圧縮とそれによる電子状態が起こっていることを確認した。

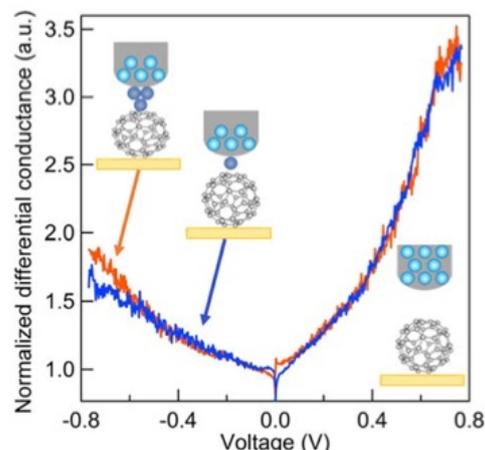


図 2 硫化銀探針によるトンネル分光結果  
探針固定時のトンネル電流：1 nA(橙), 20pA(青)

## (3) 集積化・実用化に関する研究

上記(1)および(2)に記載した研究成果を受けて、実用化に関する研究も実施した。例えば、シナプス動作では、学習によって最適化した結合加重(素子抵抗)を保持する必要がある。このため、析出原子による突起の安定性に関する研究を実施した。特に、シナプス動作ではアナログ的な抵抗変化の実現が要求される。本研究では、分子圧縮に伴う電子状態変化が連続的に起こることを利用しているが、分子を圧縮する銀原子突起が連続的に成長し、かつ、任意の原子析出量で安定な状態を保てることが不可欠である。この確認を行うため、原子析出量に応じた抵抗変化を検出できる素子構造を作製し、抵抗値(原子析出量)の関数として、保持特性を評価した。その結果、任意の抵抗値で1時間以上の保持特性を確認することができた。一般に、抵抗変化は数秒から数十秒で起こってしまうため、実用化に十分な保持特性があることを確認できたと考えている。近年、深層学習に続く脳型情報処理としてリザーバー計算が注目を集め始めている。深層学習では整然と並んだネットワーク構造が用いられるのに対して、リザーバー計算ではネットワーク構造は混沌としたものでよい。極端に言えば、非線形な応答特性を示せば、その内部構造はブラックボックスでも構わない。本研究で実証したシナプス素子動作は、銀原子を析出する固体電解質電極と C<sub>60</sub> 分子を近接して配置するだけで実現できる。これらをランダムに配置すればリザーバー計算に応用できることから、発展研究として、その基本動作実証に繋がる研究も実施した。具体的には、銀原子析出に必要なトンネル電流が流れる間隔で硫化銀電極をランダムに配置したネットワーク構造を試作した。この周辺に、電流電圧特性評価用の電極を複数配置して応答特性を評価した。その結果、入力パターンに依存した伝導経路の形成と消滅の確認に成功した。

## (4) 研究成果の位置づけと今後の展開

分子の電子状態を利用した素子開発は、分子エレクトロニクス分野における主要目標のひとつである。薄膜有機トランジスタを始めとして、数多くの技術が実用化され、学術的にも応用的にも不可欠な研究分野となっている。当該分野では、単一分子の特性を利用した素子開発を目指して、走査型トンネル顕微鏡を用いた研究も進んでいる。一方で、実用化に不可欠な、単一分子の特性を制御可能な集積化構造の開発が課題となっていた。本研究は、これを解決するものでもある。一方、脳型情報処理の観点では、本研究では新しい原理に基づくシナプス素子動作を実証した。従来素子と異なり、固体電解質電極と分子をランダムに配置するだけで容易にネットワーク構造を形成できることから、当初目標とした深層学習応用に加えて、リザーバー計算への適用可能性も示すことができた。今後、素子動作における物理化学現象の理解をさらに深めることで、実用化に向けた研究を進めていく予定である。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Ishikawa Yuya, Hasegawa Tsuyoshi, Joachim Christian	4. 巻 58
2. 論文標題 A nano-mechanical device using a Ag2S-C60 system	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SDDF02 ~ SDDF02
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab0499	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 該当する
1. 著者名 Kassai Ai, Hasegawa Tsuyoshi	4. 巻 59
2. 論文標題 Stable analog resistance change of a molecular-gap atomic switch over a wide range	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SIIF01 ~ SIIF01
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ab7f59	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 Arima Chisato, Naitoh Yasuhisa, Shima Hisashi, Akinaga Hiroyuki, Hasegawa Tsuyoshi	4. 巻 59
2. 論文標題 Reliable operation of a molecular-gap atomic switch in a vacuum achieved by covering with an ionic liquid	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SIIF04 ~ SIIF04
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ab80a1	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 Araki Masato, Hasegawa Tsuyoshi	4. 巻 59
2. 論文標題 Development of a metal oxide-based molecular-gap atomic switch for unconventional computing	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 040605 ~ 040605
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ab8026	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 Ojima Keita, Hasegawa Tsuyoshi, Naitoh Yasuhisa, Shima Hisashi, Akinaga Hiroyuki	4. 巻 59
2. 論文標題 Formation and dissolution of conductive channels in an Ag <sub>2</sub> S-islands network	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SN1011 ~ SN1011
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ab922d	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14件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 9件)

1. 発表者名 有馬知里、内藤泰久、島久、秋永広幸、長谷川剛
2. 発表標題 Reliable operation of a molecular-gap atomic switch in vacuum achieved by covering with an ionic liquid
3. 学会等名 MNC-2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 三上舞子、棚橋直哉、鶴岡徹、長谷川剛
2. 発表標題 Diffusion barrier height-controlled reduction of an operating bias of a Ag/Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> /Pt gapless-type atomic switch
3. 学会等名 MNC-2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 葛西亜衣、長谷川剛
2. 発表標題 Stable analog resistance change over a wide range achieved by a molecular-gap atomic switch
3. 学会等名 MNC-2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 長谷川剛、鈴木彩菜、鶴岡徹
2. 発表標題 Control of analog change in resistance and its characteristics using atomic switches
3. 学会等名 MNC-2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 尾島慶太、長谷川剛、内藤泰久、秋永広幸
2. 発表標題 Ag <sub>2</sub> S-island network for reservoir computing studied by C-AFM
3. 学会等名 ICSPM27 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 平谷航、長谷川剛
2. 発表標題 Control of precipitation and dissolution of Ag atoms on a Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> /Ag nanodot
3. 学会等名 ICSPM27 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 三島望実、長谷川剛
2. 発表標題 Measurement of change in resistance of a silver sulfide nanodot by removal of dopant silver atoms
3. 学会等名 ICSPM27 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中島基晴、長谷川剛
2. 発表標題 STM探針を用いたC60分子圧縮とそれに伴う電子状態変化
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 石川裕也、長谷川剛、ヨアヒムクリスチャン
2. 発表標題 Compression of a C60 molecule by a Ag2S STM tip(Ag2S探針から析出したAg原子によるC60分子圧縮)
3. 学会等名 ACSIN-14 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 石川裕也、長谷川剛、ヨアヒムクリスチャン
2. 発表標題 Nanomechanical device using a Ag2S-C60 system
3. 学会等名 MNC 2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 鈴木彩菜、鶴岡徹、長谷川剛
2. 発表標題 分子膜ギャップ型原子スイッチのコンダクタンス保持率の研究
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 三島望実、島貴明、長谷川剛
2. 発表標題 銀原子析出に伴う硫化銀ナノドットの抵抗変化測定
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 石川裕也、長谷川剛、ヨアヒムクリスチャン
2. 発表標題 Ag <sub>2</sub> S探針から析出したAg原子によるC60分子圧縮とその伝導度変化
3. 学会等名 第78回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 平谷航、長谷川剛
2. 発表標題 金属酸化物ナノドットからの銀原子析出制御
3. 学会等名 第65回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2018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
研究 分担者	松本 卓也  (MATSUMOTO Takuya)  (50229556)	大阪大学・理学研究科・教授   (14401)	

## 6. 研究組織（つづき）

	氏名 (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	田中 啓文  (TANAKA Hirofumi)  (90373191)	九州工業大学・大学院生命体工学研究科・教授    (17104)	