

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 7 日現在

機関番号：16301
 研究種目：基盤研究(C)
 研究期間：2010年度～2012年度
 課題番号：22560298
 研究課題名(和文) ニューロン型導電性高分子へのニューラルネットワーク機能付加とその特性に関する研究
 研究課題名(英文) Implementation of neural network function to neuron-type conducting polymer and its characteristics
 研究代表者
 藤井 雅治 (FUJII MASAHARU)
 愛媛大学・大学院理工学研究科・教授
 研究者番号：00127911

研究成果の概要(和文)：導電性高分子を電解重合法で合成し、ニューロン状のものを合成し、そのネットワークにニューラルネットワーク機能を付加することを試みた。ニューラルネットワークとして機能させるために多重層、非線形の電圧電流特性と第3電極を用いた重み制御を組み合わせてデバイスを作成した。これにより AND と OR の論理回路が単一のニューロン型導電性高分子で実現できること、また多重層ネットワークでも誤り訂正法で AND 回路が実現できることを示した。

また、シナプス構造を持った導電性高分子がシナプス機能(非線形特性と重み制御)を実現できるか調べた。この時、拡散法とクロス電位法を用いて神経伝達物質がドーパントとして注入され、ギャップを移動することを確かめた。

研究成果の概要(英文)：The conducting polymers with neuron-like pattern have been polymerized and can be connected to make a network. The neuron like device or neural network device can be fabricated if three functions are added to the network of conducting polymer: I. Multilayer, II. Non-linear V-I characteristics(threshold function), III. Weight (i.e. conductivity) control by using signals that pass in the paths of the network. In this research, the methods to add three functions have been investigated. AND and OR logical circuits have set up by a single neuron-like conducting polymer. Furthermore AND logical circuit of multilayer network has been built up by the error correcting learning method.

Synapse-type conducting polymer has been estimated as a synapse-function device using diffusion method and cross potential method. Dopant as Neurotransmitter has been injected and transmitted by diffusion and migration during a gap as synaptic cleft.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2011年度	700,000	210,000	910,000
2012年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子・電気材料工学

キーワード：導電性高分子、ニューロン型導電性高分子、ニューラルネットワーク、シナプス構造

1. 研究開始当初の背景

導電性高分子の応用研究としてネットワークに関するものが、盛んに行われてきている。特にポリピロールは J. H. Kaufman らがパターンがフラクタル性を有することを見出して以来、よく調べられてきた[1]。また、ナノファイバーの作成[2]やナノのネットワーク[3]、あるいはその応用としてセンサー[4]やメモリ[5]なども盛んに研究されるようになってきていた。一方、バイオエレクトロニクス分野では、導電性高分子を酵素のセンサーとして機能[6]させたり、神経プローブとの接続[7][8]させたり、実際のニューロンとの接続[9]などが試みられていた。

これらの報告は機能/特性面に限定されたもので、これらをつなげてネットワークとしての素子の実現、あるいはニューラルネットワークの実現といったことに関しては言及されるもののまだ実際に素子として検討されていなかった。

導電性高分子を電解重合法で合成するとき形態がニューロン状のものが得られる場合があり、重合条件を制御することにより、さらにネットワークを形成させることが出来ることを見出した。導電性高分子の導電率はドーパント量に応じて変化するが、ドーパントは無機の半導体とは異なり電気的な方法や化学的な方法で容易に出入りさせることができる。そこでドーパントの出入りをネットワークに流した信号に応じて制御できれば、ニューラルネットワークとして使えると考えた。電気的な方法では入力信号の一部を、ネットワークパス部近傍に分配すれば、電位差でドーパント量を出きると思い立った。また、導電性高分子はゲルの性質を持ち、膨潤収縮の際にドーパントも出入りすることが知られているので、この方法でもドーパント制御が可能であると考えた。これまで、多くのニューロン型導電性高分子を任意に接続させる方法を確定して、ネットワークパス部の抵抗(重み)をネットワークに流れる信号に応じて変化させる方法を2種類見出していたので、これらの技法を用いれば、ネットワークの重み付けが可能となることが確認できていた。

2. 研究の目的

電解重合法で作成されたニューロン型導電性高分子ネットワークにニューラルネットワークの機能を付加し素子としての基本

特性を調べることを目的とするものである。

具体的には (i) ネットワークに教師信号を流し、それに応じてパスの重み(導電率)を制御し、(ii) 得られた結果を修正する信号を流し、重みの再分布を行う(バックプロパゲーション)、(iii) 接続部に非線形性を導入するために導電性高分子のヘテロ接続を行う。これらの各特性を考慮して、(iv) 多層構造での論理回路構成方法について考察する。これらの結果を検討してニューラルネットワークの素子化を試みることにした。

また、接続部での非線形効果と重み付けはシナプスでの機能を数式的に表現したものであったが、導電性高分子のドーブ・脱ドーブ機能に注目すれば、シナプス構造的な配置を考慮することによって実現できると考えられるのでその方法についても調べることにした。

3. 研究の方法

3.1 ニューロン型ネットワークの作成と重み制御の方法

ニューロン型導電性高分子はシャーレを用いて重合した。陽極として白金線、対向電極としてリング状のニッケルをシャーレの縁に沿うようにして用いた。モノマーとしてピロール、電解質として p-トルエンスルフィン酸ナトリウムを用いた。重合電圧は 20V としシャーレ底部に PET フィルムを置きその上でニューロン型導電性高分子を重合させた。ニューロン型導電性高分子を接続する時は、得ようとするネットワークの形状に合わせて白金線を設置し、はじめにニューロン型導電性高分子をひとつひとつ成長させ、接近したところで、接続しようとするニューロン型導電性高分子間に電圧を印加させて接続させた。

重み付け機能を実現するために、入出力電極とは別に第3電極をネットワークのパス間に設置してパス部のドーパントを制御する方法を用いた。装置図を図1に示す。

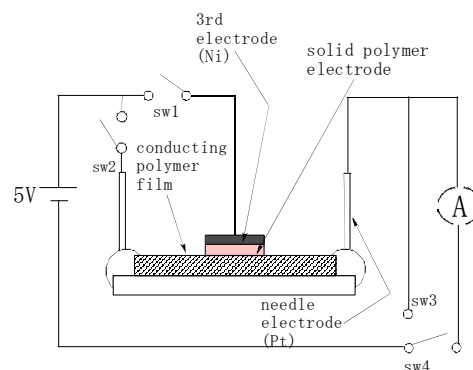


図1 第3電極を用いた装置

SW 1 を #1 にし、SW 2 を on にしてパルス印加し、第 3 電極を通じて導電性高分子のドーピング・脱ドーピングを行った。なおドーピング・脱ドーピングはパルスの極性により決まる。この時、電解質を含む寒天を媒質として第 3 電極と導電性高分子の間に置いた。導電性高分子の導電率変化は SW 1 を #1, SW 2 を off にして導電性高分子を流れる電流で調べた。

非線形特性の実現方法として異種の導電性高分子を接続させた時の電流電圧特性を利用した。今回はポリピロールとポリ(3-ヘキシルチオフェン)との接続を利用した。

3.2 シナプス型導電性高分子の構造
シナプスでは軸索からきた信号に応じて前

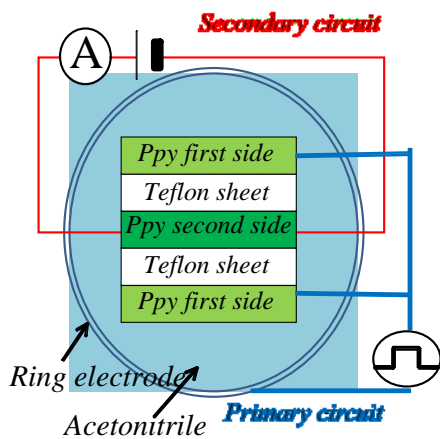


図 2 拡散を用いたシナプス型導電性高分子

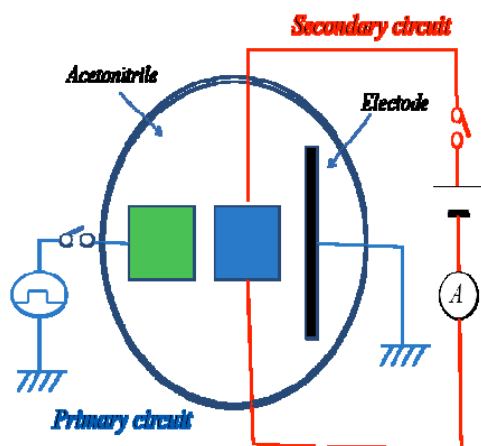


図 3 クロス電位法シナプス型導電性高分子

シナプスから伝達物質が放出され、拡散により後シナプスに達し、次の信号へと操作が進んでいく。この方法を導電性高分子を用いてモデル化したのが図 2 である。脱ドーピングに相当する信号を 1 次側の導電性高分子に加えることにより、ドーパントを溶液中に放出され、2 次側の導電性高分子に拡散していく。その結果 2 次側の導電率が変化し新たな信号源とすると言うモデルである。拡散距離は 1 mm 程度の孔を開けた厚さ 100 μm のテフロンシートをスペーサとして用いた。溶液に対して 25V のパルス波(周期 50ms)を用いて 1 次側に印加した。

拡散の方法に移動度を考慮して電位を印加した方法をクロス電位法と呼び、この方法を用いて 2 次側のドーパントを制御する方法を試みた。図 3 にクロス電位法を用いた装置図を示す。電解溶液中に導電性高分子と対向電極(Ni)を設置し、その間に 2 次側の導電性高分子を設置している。1 次側の導電性高分子はドーピングされていて回路にパルスが印加されたときパルスの大きさと回数によってある量のドーパントが溶液中に放出される。溶液中のドーパント濃度が上昇し、拡散によって 2 次側の脱ドーピングされた導電性高分子内にドーパントが入っていく。この伝達を確実にするために、2 次側の導電性高分子が 1 次側の対向電極の前に置かれている。このためドーパントは拡散だけでなく電位勾配により移動度の効果が加わり、確実に 2 次側に注入されることになる。これを調べるために 2 次側回路に電源を設け、パルスが印加された後の 2 次側の導電性高分子の抵抗変化を測定した。また、パルス制御には Arduino を用いた。

4. 研究成果

4.1 ニューロン型ネットワークの作成と重み制御の方法

第 3 電極にパルス印加してドーピング・脱ドーピングが可能かを調べた。一回の試行で 50 のパルス印加した。第 3 電極へ印加するパルスの極性が正の場合、第 3 電極下の導電性高分子で脱ドーピングが起き導電率が変化した。次にパルスの極性を反転させた場合、導電性高分子でドーピングが起きていることが分かった。これから第 3 電極を用いることにより重み付け機能(機能 I)を実現できることが分かった。閾値を実現するために、ポリピロールとポリ(3-ヘキシルチオフェン)を接続した。この場合両方の方向で閾値を持つ非線形特性(機能 II)が得られた。なお、ポリピロールのみの場合はオーム則を示した。導電性高分子のネットワーク化はニューロン型導電性高分子をひとつひとつ成長させ、接近したところで、接続しようとするニューロン型導電性高分子間に電圧を印加させ、人為的にネッ

トワーク化(機能 III)出来ることも示すことが出来た。これ3つの機能から論理回路が作成可能かどうかを調べた。AND 回路と OR 回路ともに入力が2つで、入力の和と閾値の関係で論理回路を決めることが出来ることを確認した。

実際の回路では、入力と出力の関係が望ましい関係になっているとは限らないので、重みを修正していく必要がある。誤り訂正学習法を用いて、本来の出力と実際の出力が異なったときに重みを変えていくことができるかどうか調べた。実際の多重層のネット

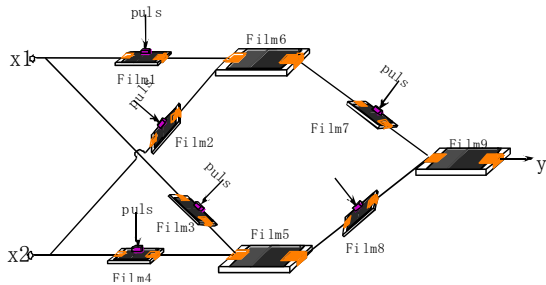


図4 多重層ネットワーク

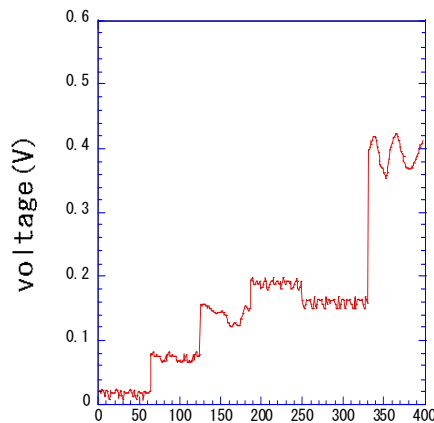


図5 多重層ネットワークの出力

表1 多重層ネットワークの入出力表

	①	②	③	④	⑤	⑥
V1	1	0	1	1	0	1
V2	0	1	1	0	1	1
y	0	0	0	0	0	1
				↑	↑	↑
				W1	W2	W3

ワークを図4に示す。ここでフィルム5, 6と9が閾値を持つフィルムで残りのフィルムは第3電極を持つもので重み付けを行うものである。結果を図5に示す。①から③では設定している閾値(0.2)より出力は低いので出力は0となる。この論理結果をFig.9に示す。この結果から④で操作w1(フィルム1と4に加重)を行い、さらにその結果から⑤で再び操作w1を繰り返し、⑥で操作w2(フィルム7と8に加重)を行った。その結果出力は閾値を越えAND回路が成立した(表1)。これから導電性高分子を用いたネットワークで論理回路素子が出来ることが示され、ネットワーク素子としての可能性が出てきた。また、原理的にニューラルネットワーク素子も作成可能であることが示唆された。

4.2 シナプス型導電性高分子の構造

機能 I, II に関しては図2で示したシナプス構造型導電性高分子でも実現可能と考えられる。1次側にパルスを送り脱ドーピングを行った。2次側にドーパントが拡散し、入っていったかどうかを確かめるために操作後、2次側に電圧を印加して電流を調べ、2次側の導電率が変化したか調べた。2次側の電流変

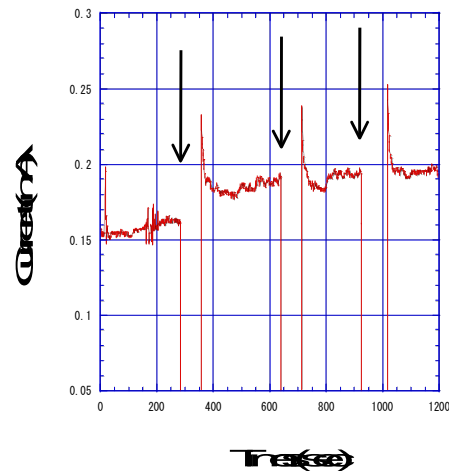


図6 シナプスモデルの2次側導電性高分子のドーパント効果による電流変化

化を図6に示す。各試行後、電流が上昇していることからドーパントが2次側の導電性高分子に入っていることが分かる。

イオンが確実にギャップを横切り2次側導電性高分子に入ることを確実にするために2次側導電性高分子を横切るように電位を印加するために対向電極を挿入したものが図3で示されたものである。導電性高分子は少しのドーピング量で劇的に導電率が変化することが知っている。そこで1次側からある

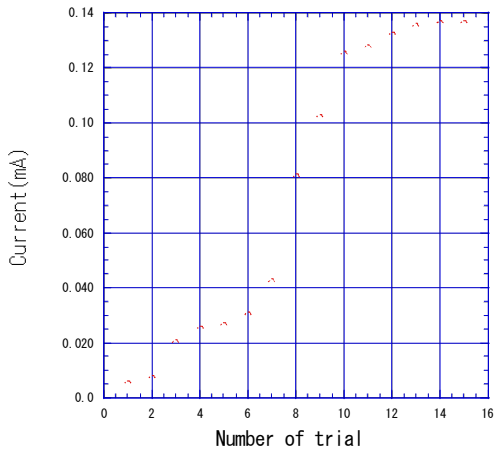


図 7 二次側回路の電流（閾値の存在）

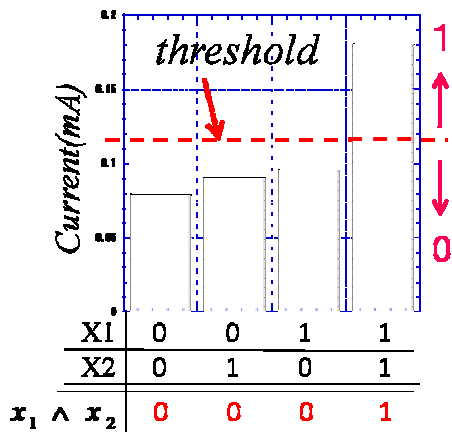


図 8 2入力による AND 回路

一定量のイオンを注入していくことにより閾値が実現できるか調べた。

1 次側に信号(電圧 15V、印加時間 10 秒)を印加した。これを 1 試行とし、二次側に電圧 5V をかけ、電流値の変化を調べた。2 次側の電流変化値を図 7 に示す。はじめ少し変化があり、7 回目以降急激に変化し、10 回目以降で飽和傾向を示した。6 回目と 8 回目のところで急激な変化があり閾値が存在することが分かる。

実際のシナプスのように多重入力とすれば、多くの入力があっても閾値を超えないと発火しないという意機能を実現できること

が分かる。また、これは論理回路としても働くことが予想される。2 入力としての論理回路として働くか調べた。またこの時 2 次側の導電性高分子は非線形性を強調するためヘテロ接合のものを用いた。結果を図 8 に示す。X1 と X2 のそれぞれのデューティ比 1:1 の単極パルス信号 (20V, 20Hz) を 10 秒加え、その時の電流値の変化を調べた。結果を図 5 に示す。単独ではそれほど結果に差がないが 2 入力の場合、2 次側の電流値が大きく変化した。これは 2 入力の場合注入されたドーパント量が閾値を超えたため AND 回路として働いていることが分かる。1 入力の大きさを大きいものにすると 2 次側の電流値は高い値を保つので閾値を高いところに設定すれば 0 R 回路として動作させることが可能であることも分かった。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 1 件)

①Masaharu Fujii, Yuka Machiya and Haruo Ihori

Transmitter function of synapse-structure system using conducting polymer

Journal of Physics

2012, vol.358 ,online 1-3

Journal of Physics: Conference Series

[学会発表] (計 17 件)

①藤井 雅治, 町屋 侑佳, 板本 成弘, 全現九, 井堀 春生

"PVA 上に作成したシナプス型導電性高分子のドーパントの移動について"

平成 25 年電気学会全国大会 2013 年 03 月 20 日-2013 年 03 月 22 日 名古屋

②Y. Machiya, M. Fujii, H. Ihori, and H.-G. Jeon

"Nonlinear effect for conducting polymer network with synapse structure"

The 10th International Conference on Nano-Molecular Electronics

2012 年 12 月 12 日~2012 年 12 月 14 日 淡路島

③Yuka Machiya, Masaharu Fujii, Haruo Ihori, H.-G. Jeon

"Properties of synaptic-structured conjugated polymer for neural network system"

International Union of Materials Research Societies-

International Conference on Electronic Materials 2012

2012 年 09 月 23 日-28 日 横浜

④佐々木 慶太, 藤井 雅治, 井堀 春生, 全現九

“ニューロン型導電性高分子ネットワークのArduinoを用いた重みの制御”

平成 24 年度電気関係学会四国支部連合大会
2012 年 09 月 29 日高松

⑤町屋 侑佳, 板本 成弘, 藤井 雅治, 井堀 春生, 全現九

“PVA 上のシナプス型導電性高分子を用いた学習効果と非線形特性”

平成 24 年度電気関係学会四国支部連合大会
2012 年 09 月 29 日 高松

⑥M. Fujii, Y. Machiya, T. Sakai, and H. Ihori

“BASIC FUNCTIONS OF NEURAL NETWORK USING SYNAPSE-STRUCTURED CONDUCTING POLYMER FILM”

International Conference on Science and Technology of Synthetic Metals 2012

2012 年 07 月 08 日～13 日アトランタ 米国

⑦町屋 侑佳, 酒井 利幸, 藤井 雅治, 井堀 春生

“共役系高分子を用いたシナプス機能の実現

平成 24 年電気学会全国大会

2012. 3. 21 広島

⑧町屋 侑佳, 藤井 雅治, 井堀 春生

“導電性高分子を用いた興奮、抑制シナプスの実現”

電気関係学会四国支部連合大会

2011. 09. 23 阿南

⑨伊藤 圭佑, 藤井 雅治, 井堀 春生

“導電性高分子における異常電流の検出とそのモデル”

電気関係学会四国支部連合大会

2011. 09. 23 阿南

⑩ Masaharu Fujii, Yuka Machiya, Haruo Ihori

“Function of Synapse System using Conjugated Conducting Polymer”

India-Japan Workshop on Biomolecular Electronics & Organic Nanotechnology for Environment Preservation 2011.2 Himeji, Japan

⑪酒井利幸, 藤井雅治, 井堀春生

“ポリアニリンナノファイバーを用いた複合導電性高分子における重み付け操作”

電気学会全国大会 2011. 3. 18 大阪

⑫ M. Fujii, Y. Machiya, T. Sakai, H. Ihori

“Synapse functions of organic device using conjugated conducting polymer”

9th International Conference on Nano-Molecular Electronics

2010. 12. 16 神戸

⑬町屋侑佳, , 安田昌司, 井堀春生, 藤井雅治

“導電性高分子を用いたニューラルネットワーク機能の実現”

電気学会基礎・材料・共通部門大会

2010. 9. 14 沖縄 (琉球大学)

⑭藤井雅治, 井堀春生

“ニューロン型導電性高分子を用いたニューラルネットワーク素子の開発 -AND 回路と OR 回路”

電気関係学会四国支部連合大会

2010. 9. 25 松山 (愛媛大学)

⑮酒井利幸, 藤井雅治, 井堀春生, 西尾真則

“ポリアニリンナノファイバーを用いた複合導電性高分子におけるメモリ効果の付加”

電気関係学会四国支部連合大会

2010. 9. 25 松山 (愛媛大学)

⑯町家侑佳, 酒井利幸, 藤井雅治, 井堀春生

“導電性高分子を用いたシナプス機能の実現方法”

電気関係学会四国支部連合大会

2010. 9. 25 松山 (愛媛大学)

⑰M. Fujii, S. Yasuda, T. Yano and H. Ihori

“Fundamental Properties of Conducting Polymer Network Device”

International Conference on Science and Technology of Synthetic Metals

20102010. 7. 6 京都

[その他]

6. 研究組織

(1) 研究代表者

藤井 雅治 (FUJII MASAHARU)

愛媛大学・大学院理工学研究科・教授

研究者番号：00127911

(2) 連携研究者

井堀 春生 (FUJII MASAHARU)

愛媛大学・大学院理工学研究科・准教授

研究者番号：70249861