

令和 6 年 6 月 18 日現在

機関番号：34416

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2022～2023

課題番号：22K18816

研究課題名（和文）二次元物質で紡ぐモノリシック相転移振動子ネットワーク

研究課題名（英文）Monolithic phase change oscillator network based on two-dimensional materials

研究代表者

山本 真人（Mahito, Yamamoto）

関西大学・システム理工学部・准教授

研究者番号：00748717

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、室温近傍で絶縁体-金属相転移を示す二酸化バナジウム(VO<sub>2</sub>)と二次元半導体をヘテロ構造化させることで、周波数を変調可能な振動子の作製を試みた。本研究では、物理気相成長法によって任意の基板の上に転写可能なVO<sub>2</sub>ワイヤをSi/SiO<sub>2</sub>基板上に合成することに成功した。さらに、実際にVO<sub>2</sub>ワイヤを二次元半導体的一种であるMoS<sub>2</sub>上に転写し、VO<sub>2</sub>を電極、MoS<sub>2</sub>をチャネル、Siをゲートとする電界効果トランジスタを作製することに成功した。この構造を用いればMoS<sub>2</sub>トランジスタにゲート電圧を印加することでVO<sub>2</sub>の相状態を変調できる可能性があり、ゲート変調可能な相転移振動子の実現も期待できる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、振動子の集団同期現象を利用した新奇コンピュータがその低消費電力性から注目を集めている。実際に、振動子を大規模集積しコンピュータを構成するためには、振動子自体が微細性と集積性を有し、さらに振動周波数を変調可能であることが求められる。本研究では、絶縁体-金属相転移を示すことから振動子への応用が期待されているVO<sub>2</sub>をナノ細線状に大量合成することに成功し、さらにVO<sub>2</sub>ナノ細線と二次元半導体MoS<sub>2</sub>とのヘテロ構造トランジスタを作製し、ゲート電圧による相転移制御の可能性を開拓した。したがって、本研究はVO<sub>2</sub>相転移振動子を用いた新奇コンピューティングの実現への第一歩として意義があると考えられる。

研究成果の概要（英文）：The objective of this work is to fabricate gate-tunable oscillator devices based on a van der Waals heterostructure of VO<sub>2</sub> and MoS<sub>2</sub>. In this work, we demonstrated growth of transferrable VO<sub>2</sub> wires on Si/SiO<sub>2</sub> substrates using the physical vapor deposition method. Furthermore, we successfully fabricated VO<sub>2</sub>-contacted MoS<sub>2</sub> field-effect transistors by transferring VO<sub>2</sub> on MoS<sub>2</sub>. The results have implications for applications of the VO<sub>2</sub>/MoS<sub>2</sub> van der Waals heterostructure transistors to gate-tunable oscillators.

研究分野：デバイス工学

キーワード：二次元物質 相転移物質 振動子

### 1. 研究開始当初の背景

近年、人工ニューラルネットワークに基づく機械学習アルゴリズムである深層学習の開発と、それを実装可能な高性能コンピュータの発展により、人間の認知機能を凌駕する情報処理が可能となっている。一方、深層学習はエネルギー効率性の面では人間の脳には遠く及ばない。現状のフォン・ノイマン型コンピュータを用いた深層学習では、その学習過程において膨大な数のパラメータを用いて積和演算を行う必要があり、そのため膨大な電力と時間が消費される。一方、人間の脳では同等の情報処理を深層学習の10万分の1以下の電力で行える。したがって、人間の脳のように微小な電力で大規模な情報を処理するためには、ニューラルネットワークを超低消費電力でエミュレート可能なコンピュータを開発する必要がある。

これまで、脳型コンピュータの実現に向けてソフトウェア、ハードウェア両面において様々なアプローチがとられてきた。ハードウェア面では、既存のシリコンテクノロジーを基盤としたニューロチップの開発が進められている。しかし、スケーリング限界を目前にしているシリコンテクノロジーに基づくニューロチップは、将来的な人工ニューラルネットワークの集積化による飛躍的性能向上が困難であると予測される。人間の脳に準ずるような微小電力で認知情報処理が可能な脳型コンピュータを創出するためには、既存のシリコンテクノロジーの枠組みにとらわれず、新しい物質・現象・原理に立脚した素子設計の探求が必要不可欠である。

### 2. 研究の目的

本研究では、超低消費電力で動作する脳型コンピュータの創出に向けて、脳型コンピュータの基幹素子となる広域周波数制御可能な振動子の作製と、振動子の結合ネットワーク化を目的とする。そして、結合振動子ネットワークの集団同期現象を利用することで、人間の脳に準ずる超高効率な認知情報処理の実現を目指す。

### 3. 研究の方法

本研究では、340 K 近傍で単斜晶絶縁体から正方晶金属へと熱的相転移を示す二酸化バナジウム( $\text{VO}_2$ )を用いて振動子の作製を試みた(Fig. 1)。 $\text{VO}_2$ に外部抵抗を直列接続させ電圧を印加すると、 $\text{VO}_2$ がジュール加熱によって絶縁体から金属へと相転移するが、その瞬間にジュール加熱が抑制され $\text{VO}_2$ は絶縁体に戻る。直後、絶縁体に戻った $\text{VO}_2$ は再びジュール加熱によって金属に相転移する。以降、 $\text{VO}_2$ は金属-絶縁体相転移を繰り返し、その結果、 $\text{VO}_2$ における電圧は振動する。このとき、振動の周波数は外部抵抗の大きさによって制御可能である。そこで本研究では、 $\text{VO}_2$ と高い電界制御性を有する二次元半導体をファンデルワールスヘテロ構造化し、二次元半導体の抵抗をゲート変調させることで周波数可変な $\text{VO}_2$ 振動子の作製を目指した。

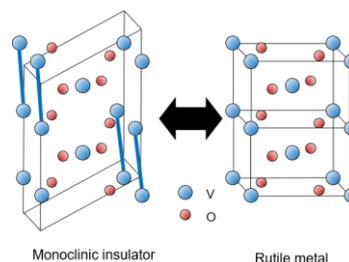


Fig. 1.  $\text{VO}_2$ の構造相転移

### 4. 研究成果

$\text{VO}_2$ と二次元半導体とファンデルワールスヘテロ化させるためには、 $\text{VO}_2$ を任意の基板の上に転写させる必要がある。したがって、本研究では $\text{VO}_2$ をエピタキシャル成長ではなく、物理気相成長(PVD)法によって合成を試みた。これまでに $\text{VO}_2$ のPVD成長は多く報告されているが、PVD法によってアモルファス基板の上に $\text{VO}_2$ 結晶を大面積かつ高密度で合成することは困難であった。そこで本研究では、まずPVD成長時における基板-原料間の距離を最適化することによりフレーク状 $\text{VO}_2$ の高密度合成を試みた。基板は $\text{Si}/\text{SiO}_2$ 、原料は高純度 $\text{VO}_2$ 粉末を用いた。キャリアガスとしてアルゴンを利用し管状炉内でPVD合成を行った。その結果、管状炉内において $\text{VO}_2$ 粉末の下流に基板を配置すると $\text{VO}_2$ 結晶の密度は低いが、 $\text{VO}_2$ 粉末直上に基板を配置することで、マイクロスケールの $\text{VO}_2$ フレークを高密度で基板の上に合成することに成功した(Fig. 2)。

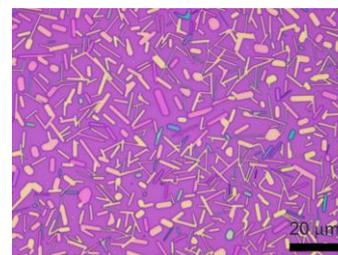


Fig. 2.  $\text{Si}/\text{SiO}_2$ 上に合成した $\text{VO}_2$ の光学顕微鏡像

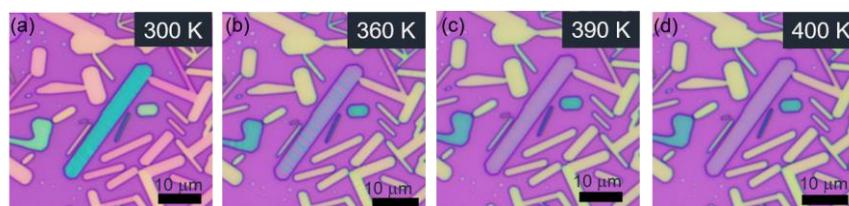


Fig. 3. (a) 300, (b) 360, (c) 390, (d) 400 Kにおける $\text{VO}_2$ フレークの光学顕微鏡像

Fig. 3 の光学顕微鏡像に示すように Si/SiO<sub>2</sub> 上に PVD 合成した VO<sub>2</sub> フレークは、バルク VO<sub>2</sub> の相転移温度である 340 K 以上に温度を上げると縞状に色が変化した。色が変化していない領域は 400 K まで維持され、その後最終的に完全に色が変化した。これは、PVD 合成した VO<sub>2</sub> フレークにおいて相転移温度が局所的に上昇していることを示唆するものである。そこで、VO<sub>2</sub> フレークのラマン分光測定を行ったところ(Fig. 4)、300 K においては VO<sub>2</sub> の最安定絶縁相である M1 相に由来するラマンピークが観察され、一方 360 K では準安定絶縁相である M2 相に由来するラマンピークが観察された。さらに、370 K において色が変化した領域ではラマンピークが観察されず、この領域では VO<sub>2</sub> が金属相であることが確認された。VO<sub>2</sub> における M2 相の安定化は、VO<sub>2</sub> に歪みが生じていることを意味している。この VO<sub>2</sub> に加わった歪みは 973 K で VO<sub>2</sub> を PVD 合成後、冷却過程において結晶が収縮する際に VO<sub>2</sub> と SiO<sub>2</sub> との熱膨張係数の差によって生じたものと考えられる(Fig. 5)。本研究で合成した VO<sub>2</sub> には最大で 1 % ほどの歪みが生じていると予想される。

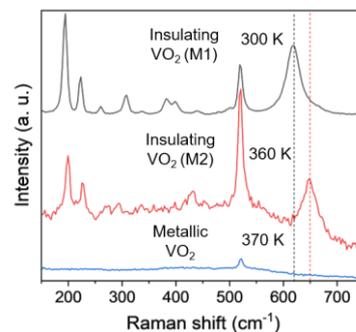


Fig. 4. VO<sub>2</sub> のラマンスペクトルの温度依存性

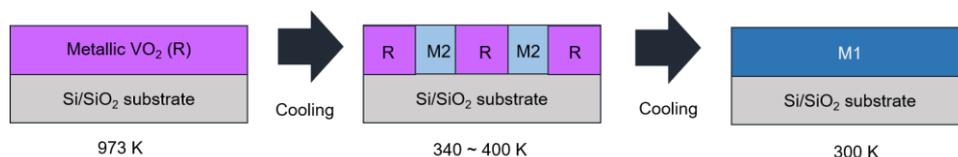


Fig. 5. VO<sub>2</sub> 合成後の冷却時における M2 相の安定化

次に、PVD 合成した VO<sub>2</sub> ワイヤの抵抗値の温度依存性を調べた。Fig. 6 に示すように、VO<sub>2</sub> ワイヤはバルク VO<sub>2</sub> の相転移温度である 340 K では絶縁体-金属相転移を示さず、およそ 403 K で 2 桁以上の急峻な抵抗変化を示す相転移を示した。この劇的な相転移は PVD 合成した VO<sub>2</sub> が単結晶であることに由来しており、薄膜成長した多結晶 VO<sub>2</sub> では観察されないものである。また、400 K において絶縁 VO<sub>2</sub> の電流-電圧特性を調べたところ、およそ 5 V で電流値が急激に上昇した。これは印加電圧を増加させることでジュール熱が生じ、VO<sub>2</sub> の絶縁体-金属体相転移が生じたことを示している。

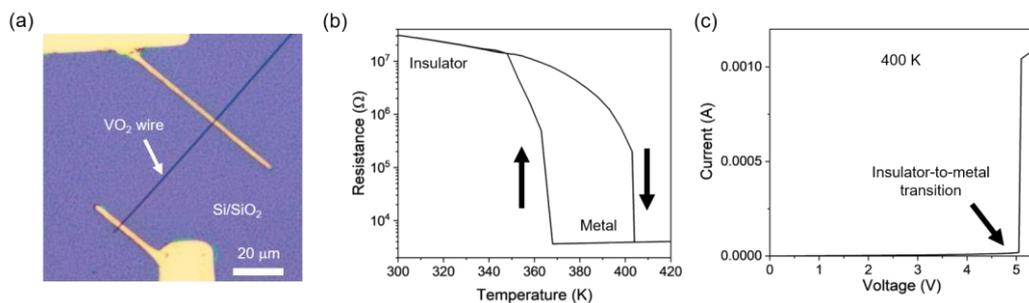


Fig. 6. VO<sub>2</sub> ワイヤの (a) 光学顕微鏡像、(b) 抵抗-温度特性、(c) 電流-電圧特性

最後に PVD 合成した VO<sub>2</sub> 上に二次元半導体を転写し、ファンデルワールスヘテロ構造の作製を試みた。二次元半導体としては二硫化モリブデン(MoS<sub>2</sub>)を用いた。Si/SiO<sub>2</sub> 基板上に PVD 合成した VO<sub>2</sub> ワイヤ上にバルク単結晶から機械剥離した MoS<sub>2</sub> をドライ転写することで、MoS<sub>2</sub>/VO<sub>2</sub> ファンデルワールスヘテロ構造を形成することに成功した(Fig. 7)。以上より、本研究では PVD 法によって劇的な相転移を示す VO<sub>2</sub> を合成することに成功し、また合成した VO<sub>2</sub> において電圧によって相転移を制御できることを示した。さらに、VO<sub>2</sub> ワイヤと二次元半導体である MoS<sub>2</sub> をファンデルワールスヘテロ構造化できることを明らかにし、これらの結果は MoS<sub>2</sub>/VO<sub>2</sub> ファンデルワールスヘテロ構造を用いて周波数制御可能な振動子の創製を期待させるものである。

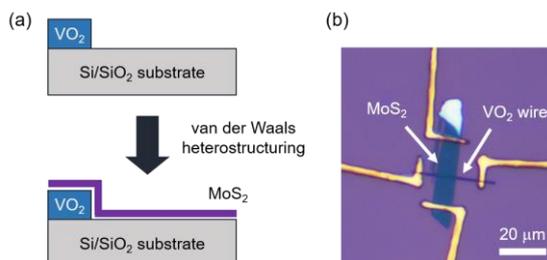


Fig. 7. MoS<sub>2</sub>/VO<sub>2</sub> ファンデルワールスヘテロ構造

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 Mahito Yamamoto
2. 発表標題 Oxidation-engineering of 2D semiconductors
3. 学会等名 第63回 フラーレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 櫛原 快児, 稲田 貢, 谷口 尚, 渡邊 賢司, 上野 啓司, 山本 真人
2. 発表標題 二次元WSe <sub>2</sub> 電荷トラップメモリにおけるシナプス動作
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 野村 尚哉, 稲田 貢, 上野 啓司, 山本 真人
2. 発表標題 二次元WO <sub>x</sub> をトラップ層とするMoS <sub>2</sub> 電荷トラップメモリの作製
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 小田 太一, 稲田 貢, 山本 真人
2. 発表標題 HMDS処理による黒リンの表面安定化の検討
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 四方 沢弥, 稲田 貢, 谷口 尚, 渡邊 賢司, 上野 啓司, 山本 真人
2. 発表標題 分子吸着ドーピングと表面酸化によるWSe <sub>2</sub> の局所キャリア制御
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 2023年

1. 発表者名 中村 優太, 稲田 貢, 谷 弘詞, 上野 啓司, 山本 真人
2. 発表標題 1T-VSe <sub>2</sub> の表面酸化膜を用いた抵抗変化メモリの作製
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 2023年

1. 発表者名 寒川 雄斗, 稲田 貢, 上野 啓司, 山本真人
2. 発表標題 二次元WSe <sub>2</sub> の自己制限酸化膜を利用した抵抗変化メモリの作製
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 2023年

1. 発表者名 後藤 新悟, 稲田 貢, 谷 弘詞, 山本 真人
2. 発表標題 VO <sub>2</sub> の化学気相成長における最適原料-基板間距離の検討
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 2023年

1. 発表者名 吉峯 夕貴, 小田 太一, 稲田 貢, 山本 真人
2. 発表標題 反応性蒸着酸化アルミニウム膜による黒リンFETの大気安定化
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 2023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