

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 27 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2015

課題番号：25600098

研究課題名(和文)4端子メモリスタを用いた信号伝達相関型シナプス素子の創製

研究課題名(英文)Four terminal memristor devices for correlation-based synaptic signal transduction

研究代表者

酒井 朗 (Sakai, Akira)

大阪大学・基礎工学研究科・教授

研究者番号：20314031

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、SrTiO₃およびTiO₂単結晶中の酸素空孔の挙動場と素子構造の精密なデザインに基づき、生体系シナプスの高次機能を模倣する信号伝達相関型シナプス素子を創製し、その基本動作を実証した。貼り合せ原子接合によって形成した高配向2次元螺旋転位網を酸素空孔のドリフト場として機能させることで、高い安定性を持つ低/高抵抗状態と急峻な抵抗スイッチング特性を実現した。また、平面型4端子メモリスタ素子を開発し、修飾電界印加による酸素空孔分布を基に、素子抵抗を可塑的かつ可逆的に変化させることに成功した。これによって、多入力信号伝達挙動を制御できる金属酸化物シナプス素子の実現への可能性が示された。

研究成果の概要(英文)：We have developed underlying technology of a correlation-based signal transduction synaptic device that mimics high-order functions of biological synapses and demonstrated basic operation of the devices fabricated on reduced SrTiO₃ and TiO₂ single crystal substrates. A highly-ordered two dimensional screw dislocation network formed by the wafer-bonding technique of SrTiO₃ crystals is found to act as a preferential field of oxygen vacancy drift that induces abrupt resistive switching phenomena with high stability. A planer four terminal memristor device fabricated on reduced TiO₂ has also been developed. In this device, the resistivity between two driving electrodes can successfully be changed plastically and reversibly by applying electric field from other terminal electrodes. These obtained results open the way to control the behavior of signal transduction in next-generation synaptic devices based on the modification of oxygen vacancy distribution in metal oxide crystals.

研究分野：材料物性工学

キーワード：メモリスタ 酸素空孔 転位 抵抗スイッチング シナプス 単結晶 金属酸化物 4端子

1. 研究開始当初の背景

ニューロモルフィックコンピューティングは、従来のノイマン型アーキテクチャに基づくブル代数コンピューティングでは不得意な、連合学習、パターン認識、順応行動、一般化処理、ファジー論理等の実行演算に対して優れた性能を発揮する。こうした脳型コンピュータシステムの基幹となるシナプス回路は、現在、多数のトランジスタや電荷蓄積型キャパシタで構成されている。しかし、膨大なエネルギー消費量、複雑なアーキテクチャ、キャパシタサイズで決まる素子構造が集積化を $10^5/\text{cm}^2$ 程度に制限し、その数は人間の脳のシナプス密度 $10^{14}/\text{cm}^2$ に遙かに及ばない。これに対して、単体素子レベルで学習・適応機能を持たせたシナプス素子は、高密度情報処理、高エネルギー効率を実現し、新たなエレクトロニクス素子としての可能性を拓ける。

シナプス素子には、入力信号の印加頻度、強度、タイミング等に応じて出力信号をダイナミックに変化させる機能が必要である。そのため、電荷の入力履歴によってその抵抗値が変化する金属酸化物や固体電解質等のメモリスタ材料が利用され、近年、生体系シナプスで発現する STDP (spike timing dependent plasticity)、長期増強、短期可塑性、等の信号伝達挙動を模倣する素子として開発が進められている。

しかし生体系シナプスは従来のメモリスタよりも遙かに複雑であり、その一端がニューロモジュレーション機能にある。すなわち、シナプス伝達は一入力の変調のみで出力状態が変化するのではなく、自らもしくは他のシナプスの出力信号の影響を受ける。それによって駆動中に信号伝達パラメータを自己調節し、それが神経系全体の連合学習や情報回帰・統合に機能している。また、長期増強を発現するシナプスにはシナプティック・タグが合成され、そのタグが連結した他のシナプス連結の増強や縮退に影響を与え、シナプス間の連合性と共同性を誘起している。こうした生体系シナプスが有する高次機能に近づけるためには、従来のような単なる可変抵抗器としての2端子メモリスタ素子では限界があり、他のシナプスと多次元で結びつき入出力状態を調節する基幹素子が必要である。

2. 研究の目的

本研究においては、金属酸化物結晶中の酸素空孔分と素子構造を精密にデザインし、信号伝達の相互作用を実現するメモリスタで構成されるシナプス素子を作製し、その基本動作特性と機能を実証することを目的としている。具体的には、駆動電極、修飾電極を介して各入力状態に応答する信号伝達関連素子を作製し、電気伝導に寄与する結晶内の構造の精密解析と電気伝導特性の計測によって、抵抗遷移の制御性と可塑性を検討する。

3. 研究の方法

(1) SrTiO₃ 単結晶に着目し、電気伝導特性の計測を基に抵抗遷移の制御性と可塑性を検討した。ノンドープ SrTiO₃ 単結晶では、還元処理によって結晶中に生成された酸素空孔によって抵抗スイッチング特性を発現することが既に確認されており、それは主に転位に沿う酸素空孔のドリフト現象が関与していると示唆されている。研究代表者らがこれまでに立ち上げた、貼り合わせ・原子接合プロセスを当該結晶に適用し、接合界面に高配向螺旋転位網を有する直接接合 SrTiO₃ 結晶基板を作製した。これより縦型2端子素子を作製し、電流電圧測定から抵抗スイッチング特性を計測した。

(2) 本研究の目的である、信号伝達の相互作用を可能とするメモリスタで構成されるシナプス素子の実現には、電気伝導を担うフィラメントの電氣的制御と構造的制御が不可欠となる。そこで、メモリスタ材料である還元処理 TiO₂ 単結晶を対象にして、平面型2端子素子を TiO₂(100)面上に試作した。電気着色現象 (Electrocoloration) を基に、電圧負荷に伴う酸素空孔分布の遷移を観察することで、抵抗スイッチング特性の発現において重要な役割を果たすフィラメントを直接検出し、その結晶構造を詳細に解析した。

(3) 信号伝達関連型素子の実現には、ダイナミックな抵抗可変のための2端子と、その状態を修飾する2端子からなる、少なくとも4端子の素子構造が必要である。ここでは、還元処理 TiO₂(100)面上に、電気伝導に係る駆動電界を与える電極と、その電界方向に垂直な電界を与える修飾電極を設けた平面型4端子素子を作製し、修飾電界印加に伴う駆動電界方向の電流変化を計測した。また、還元 TiO₂ 単結晶の電気伝導特性に着目し、結晶内の酸素空孔分布と素子抵抗変化機構との相関を明らかにするために、光学顕微鏡を用いて、電界印加の各段階における酸素空孔集積による電気着色現象を観察した。

4. 研究成果

(1) ノンドープ SrTiO₃(001)基板結晶を対象に、貼り合わせ原子接合プロセスを用いて結晶中に高配向2次元螺旋転位網を形成した後、超高真空下において還元熱処理を施した。当初の基板の透明色が黒色に変化し、ホール測定による電子濃度が $3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ であったことから、結晶内に酸素空孔が形成されたことを確認した。この基板に対して、接合界面を含むショットキー金属 / SrTiO₃ / オーミック金属からなる2端子素子を形成し、電流-電圧特性を計測した。その結果、図1に示すように、高抵抗状態と低抵抗状態の二つの安定状態からなるバイポーラ型のヒステリシス特性が確認された。これは、ショットキー電極側を正電圧印加した状態で、低抵抗から

高抵抗に遷移するヒステリシスであり、抵抗遷移を誘発する媒体が酸素空孔であることを示唆している。また、高配向2次元螺旋転位網を有する酸素空孔ドープ結晶基板に特徴的な、転位を酸素空孔ドリフトの媒体とする急峻な抵抗遷移モードが観測されている。これは、これは抵抗スイッチングの発現と状態制御において結晶中の転位網が有効に働く可能性があることを示している。

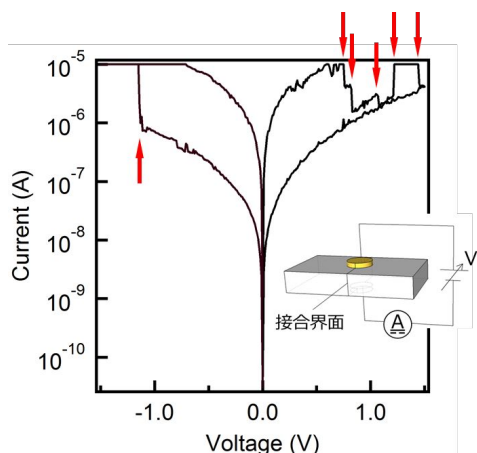


図 1 貼り合せ接合界面における高配向2次元螺旋転位網を電気伝導層とする縦型 Au/SrTiO₃/Al 構造の電流電圧特性。酸素空孔ドリフト型のヒステリシスが観測されると同時に、転位フィラメントの集団的な抵抗スイッチング機能による急峻な階段状の抵抗遷移（矢印参照）が観測される。

(2) 図 2(a)および 2(b)は、TiO₂(100)面上平面型2端子素子に、それぞれ電圧7V 300秒間、引き続き12V 500秒間を印加した後の光学顕微鏡像である。電極間において、アース側から発生した暗いコントラストおよび[001]方向に走る線状の暗いコントラストが観察され、それらは電圧負荷の増加に伴い、正電極側へ伸びていることがわかる。これは、電圧印加により酸素空孔がアース側に遷移したことに起因する。特に図 2(b)で観察される線状コントラストに着目して、集束イオンビーム加工 (FIB) により抽出した試料を透過電子顕微鏡 (TEM) 観察した結果を図 3 に示す。ここで見られる[100]方向及び[010]方向に沿う矩形状コントラストは、当該フィラメントの一部の断面構造である。ルチル型 TiO₂ 単結晶は酸素空孔の集積により{121}面の剪断面を形成することが知られている。これより、今回観察されたフィラメントは等価な{121}剪断面が[001]方向を共通軸として連鎖した構造を有することが明らかになった。なお、形成されたフィラメントはすべて[001]方向に伸びており、電界の印加方向に依存しないこともわかった。この結果は、フィラメントが伸びる[001]方向を駆動電界、それに垂直な方向（例えば[010]、[100]方向）を修飾電界とする、信号伝達相關型の4端子素子の

設計指針を与えている。

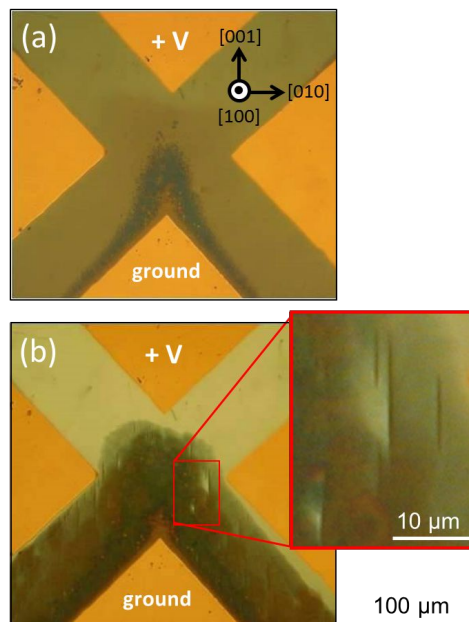


図 2 TiO₂(100)面上に形成した平面型2端子素子に、真空中において、(a) 電圧7V 300秒間、(b) それに引き続いて12V 500秒間、を印加した後の光学顕微鏡像。電気着色現象により、酸素空孔分布やフィラメントに起因する暗いコントラストおよび[001]方向に優先的に伸びる線状コントラストが観察される。

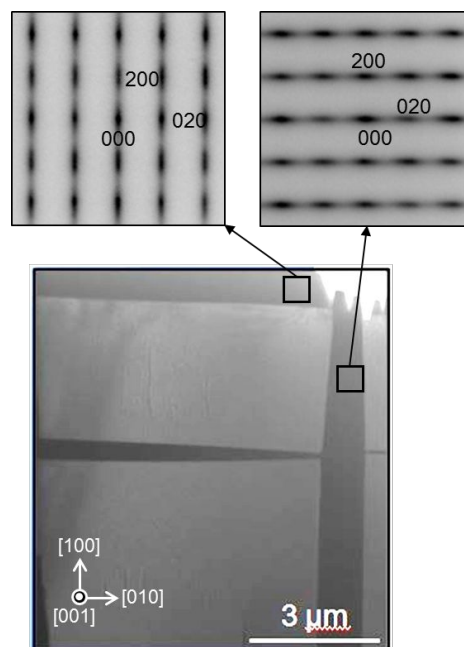


図 3 図 2 のサンプルのフィラメント部から局所的に抽出した試料の TEM 像。矩形状コントラストの各領域からの電子線回折パターンにはフィラメント以外の領域には見られない回折ストリークが明瞭に観測され、それらは周期的な原子面配列を乱す、酸素空孔による剪断面の連鎖構造に起因している。

(3) 還元熱処理 $\text{TiO}_2(100)$ 面上平面型 4 端子素子に対して、図 4 に示すように、電極 2、4 を接地し、電極 1、3 に同時に正または負の一定電圧 $V_{1,3}$ を印加した後、電極 2-4 間に電圧 1 V で流れる電流 I_{2-4} を計測した。 $V_{1,3}$ および I_{2-4} の経時変化を図 5 に示す。 $V_{1,3}=+8$ V で 500 秒間印加すると、 I_{2-4} が当初の値よりも増加した。この段階における光学顕微鏡像を図 6 (a) に示す。電極 2-4 間に繋がる暗いコントラスト、すなわち酸素空孔の集積による電気着色現象が確認できる。その後、 $V_{1,3}$ を -1 V から -8 V まで段階的に印加し、 -8 V の電圧印加時間が合計 100 秒間に達すると、 I_{2-4} が減少した。図 6(b)はその際の光学顕微鏡鏡像であり、図 6(a)で観察された暗いコントラスト領域が電極 1 と 3 側へ遷移した様子が確認できる。この結果は、電極 2-4 間の酸素空孔集積領域が消失したことを意味しており、負電圧印加による I_{2-4} の減少、すなわち電極 2-4 間の抵抗上昇と対応している。図 5 では、その後、 $V_{1,3}$ として正電圧・負電圧を順次印加することで、 I_{2-4} が増加・減少しており、4 端子素子への電圧印加によって素子抵抗値を変化できることを意味している。本結果から、電気着色現象によって観察される暗コントラストの形態が修飾電界によって可逆的に変化し、このコントラスト形態に依存して、素子抵抗が不揮発・可逆的に変化することが明らかになった。これは結晶内の酸素空孔分布変化が抵抗遷移に直接影響していることを示している。これにより、酸素空孔分布の制御に基づき、多入力で信号伝達挙動をコントロールできるシナプス素子の実現への可能性が示された。

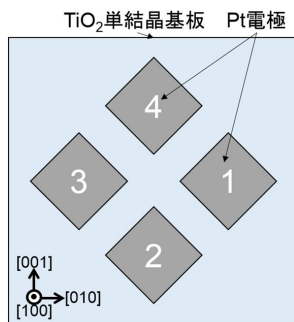


図 4 平面型 4 端子素子構造の模式図。

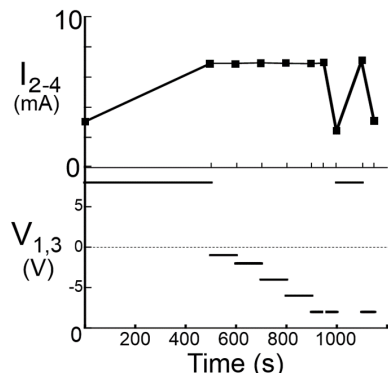


図 5 印加電圧 $V_{1,3}$ のプロトコルと計測された電流 I_{2-4} の時間変化。

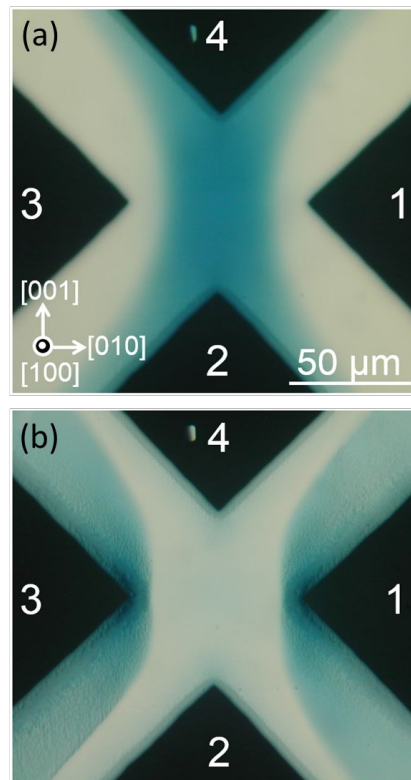


図 6 電圧印加後の素子の光学顕微鏡像。電気着色現象によって、酸素空孔が高濃度に分布している箇所は青暗く観察されている。(a) $+8$ V 500 秒間印加後。図 5 で見られる 500 秒後の I_{2-4} の増加に対応している。(b) -8 V 100 秒間印加後。図 5 の全印加時間 1000 秒後の I_{2-4} の減少に対応している。

5. 主な発表論文等

〔学会発表〕(計 2 件)

下谷将人、竹内正太郎、酒井朗、ルチル型 TiO_2 単結晶の酸素空孔分布制御と抵抗変化特性、第 63 回応用物理学会春季学術講演会、2016 年 3 月 19-22 日、東京工業大学大岡山キャンパス

下谷将人、村上弘弥、竹内正太郎、酒井朗、ルチル型 TiO_2 単結晶の抵抗変化特性と結晶構造変化、第 76 回応用物理学会秋季学術講演会、2015 年 9 月 13-16 日、名古屋国際会議場

6. 研究組織

(1) 研究代表者

酒井 朗 (SAKAI Akira)

大阪大学・大学院基礎工学研究科・教授
研究者番号：20314031

(2) 連携研究者

竹内正太郎 (TAKEUCHI Shotaro)

大阪大学・大学院基礎工学研究科・助教
研究者番号：70569346