

平成 30 年 5 月 25 日現在

機関番号：17501

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2014～2017

課題番号：26708029

研究課題名(和文)電気化学材料が創る新しい知能情報処理デバイス

研究課題名(英文) Novel intelligent information processing devices created by electrochemical materials

研究代表者

大野 武雄(OHNO, Takeo)

大分大学・理工学部・准教授

研究者番号：90447144

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 17,400,000円

研究成果の概要(和文)：これまでシリコントランジスタを用いて開発されてきた知能情報処理デバイスのさらなる高性能化を行うためにイオン伝導体を用いた研究が注目されている。そこで本研究では硫化銀やタンタル酸化膜を用いた人工シナプスデバイスの構築とその高性能化を行った。さらに、学術的観点からナノスケールでの電気化学反応の観察を行い、ナノスケール金属フィラメントの直接観察に成功した。

研究成果の概要(英文)：Research using ionic conductors has attracted attention in order to further improve the performance of intelligent information processing devices that have been conventionally developed using Si transistors. In this study, an artificial inorganic synapse using Ag₂S and Ta₂O₅ film has been developed, showing a synaptic weight control and oscillation phenomenon. In addition, a metallic filament formed by the electrochemical reaction at the nanoscale has been successfully observed.

研究分野：工学

キーワード：知能機械 知能情報処理デバイス イオン伝導体

1. 研究開始当初の背景

(1) 近年、人工知能 (AI) や深層学習 (ディープラーニング) の技術を情報処理の分野に適用することは、より高速かつ高機能な情報処理を実現するために非常に注目されている。それらの技術を構築するうえで用いられている電子デバイスは基本的にはシリコントランジスタである。また、いわゆる知能情報処理デバイス・システムの研究では、生物学におけるシナプスやニューロンの動作模倣は主にトランジスタ、回路設計およびプログラミングが用いられ、基本的にはデジタル回路設計に依存している。

(2) このような状況の中、研究代表者は従来までの知能情報処理デバイスとは構成材料そして動作原理が全面的に異なる“無機シナプス”の現象を報告した (引用文献①)。このシナプス模倣動作の特徴は、①電気化学材料中のイオンと原子の移動を利用してシナプス特性をうまく再現できる、②入力電気信号の演算 (判定) とその記憶の両方を同時に行える、③回路設計やプログラミングが必要無いこと、などが挙げられる。

(3) 本研究課題で実現する電気化学材料であるイオン伝導体を用いた知能情報処理デバイスはアナログ的動作が可能であり、従来までのいわゆる“0”と“1”を用いたデジタル情報処理であるノイマン型アーキテクチャとはその動作が大きく異なる。ノイマン型のボトルネックを打破する可能性を秘めた基本デバイスを提案することは、学術的に重要であるだけでなく、将来の新たな産業の創成にも貢献できると考えられる。

2. 研究の目的

(1) 本研究課題では、研究代表者が発見したイオンと原子の酸化還元反応に基づいて動作する新規な人工シナプスデバイスについて、その動作の高機能化や新規動作の発現を目指す。これらの目標が達成されれば、電気化学材料ベースの知能情報処理ハードウェアの構築が可能となり、シリコントランジスタベースのものとは動作原理が異なる非ノイマン型アーキテクチャを実デバイスレベルで示すことが可能となる。

(2) 知能情報処理デバイスにとって新しい材料となるイオン伝導体を用いて生物の神経回路の重要な構成要素であるシナプスの動作を再現する。特に、シナプス結合強度 (シナプス荷重とも言う) の模倣やシナプス発火現象の再現を試みる。

(3) 上記の動作は金属イオンへの酸化反応や金属原子への還元反応に基づいて得られるが、それらは主にナノスケールでの電気化学反応である。そこで、学術的な観点から、

ナノスケールでの電気化学反応の観察に関する研究項目を設定する。

3. 研究の方法

(1) 知能情報処理デバイスを構築するための材料としてイオン伝導体を用い、特に、イオン・電子混合伝導体である硫化銀を研究対象とした。また、厚さを薄くすることでイオン伝導体として働くタンタル酸化膜も用いた。

(2) シナプス動作を再現するための実験系やデバイス構造として、硫化銀と対向金属電極との間にトンネル電流が流れる程度の数ナノメートルの空気ギャップをもつ構成を用いた。加えて、数ナノメートル厚さのタンタル酸化膜を二種類の金属電極で挟みこんだ構造も検討した。これらの構造を構築するために、走査型トンネル顕微鏡のフィードバック回路、電子線描画装置によるリソグラフィ技術、スパッタリング法などの各種薄膜成膜法を適用した。

(3) ナノスケールでの電気化学反応の観察実験として、走査型トンネル顕微鏡を用いた金属フィラメントのその場観察を行った。具体的には、硫化銀と白金探針との間に電圧を印加するとトンネル電流が流れ、その結果そのギャップ中に銀の析出物が形成される。その後、同一箇所の表面状態を探針走査することでフィラメント観察を行った。

(4) 試作したデバイスの動作確認には半導体パラメータアナライザなどを用いて電圧を制御しながらデバイスに信号入力し、その際の応答を電流値または電圧値でモニタすることを基本とした。シナプス応答を確認するためにはパルス電圧信号を、揮発・不揮発特性を確認するためにはスイープ電圧をそれぞれ用いた。

4. 研究成果

(1) 無機シナプス動作を行うデバイス構造に必要なトンネル電流が流れるほどの狭い電極間隔の形成を目的としたナノファブリケーション技術の構築を行った。このナノスケールの電極間隔中に電気化学反応によって金属フィラメントが形成された場合、そのサイズは数ナノメートルと極めて小さく、フィラメントの安定性・不安定性の両方を再現することに適している。つまり、揮発性と不揮発性の両方を単一デバイスで実行することが可能となる。電子線リソグラフィ技術を用いて硫化銀や白金の電極をナノメートル間隔を有して配置する構造を試作した結果、電極間隔の違いによって電流値の大きさの変化が見られた。加えて、電極間をタンタル酸化膜で満たした場合についてトンネル伝導を確認した。

(2) シナプスおよびニューロン特性に必要な信号の蓄積と判断を行うためにイオン伝導体ベースのデバイスの試作を行い、それらの電気特性の評価を行った。イオン伝導体として硫化銀およびタンタル酸化膜を用いた構造に電気信号を入力し、シナプス特性で重要な電気抵抗値のアナログ経時変化の再現を試みた。硫化銀を用いた実験では硫化銀の組成比を調整し、硫黄の組成の低いデバイスの方がその組成の高いものと比較して動作に必要な電圧値が上昇する傾向にあることが確認された。この結果は、結晶の組成比がシナプス入力電圧の調整を可能であることを示唆している。また、タンタル酸化膜を持つデバイス構造において、入力する電圧の最大値を調整することで、揮発および不揮発なスイッチ特性が得られることを確認した。

(3) 走査型トンネル顕微鏡を用いてナノスケール電気化学反応を行い、揮発・不揮発特性に大きく寄与する金属析出物の直接観察に成功した。具体的には、硫化銀ベースの構造体に対してトンネル電流を流し、スイッチング動作によって硫化銀表面上に銀のフィラメントを形成し、その後観察を行った。その結果、直径約 30 nm の銀の析出物を確認できた (図 1)。このサイズは無機シナプスの系においては小さなサイズとは言えないため安定化し、析出後は不揮発特性として保持された。一般に、硫化銀表面の清浄度は高くないためナノフィラメントの観察は容易ではないが、本研究ではその観察に成功した。この直径サイズがより小さくなることで、究極的には原子 1 つずつの出し入れ現象が予想されている (引用文献②)。

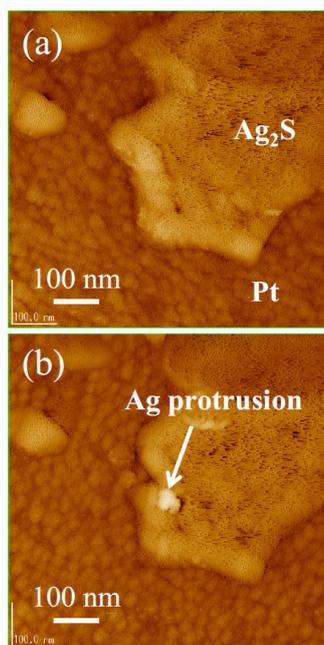


図 1 硫化銀上の銀の析出物

(4) シナプスやニューロン特性で必須となる発火現象を再現するためのデバイス試作を行い、その電気特性を評価した。その結果、デバイス構造にスイープ電圧を印加することでデバイスに流れる電流値がランダムに変化し、電気信号の振動現象を確認することができた (図 2)。この結果が得られた理由の一つは、デバイス中での金属フィラメントの伸縮現象にあると考えられる。現状としては高電圧印加が必要ではあるが、プログラミングや回路設計無しにイオン伝導体によって発振現象をとらえた点は新しい。

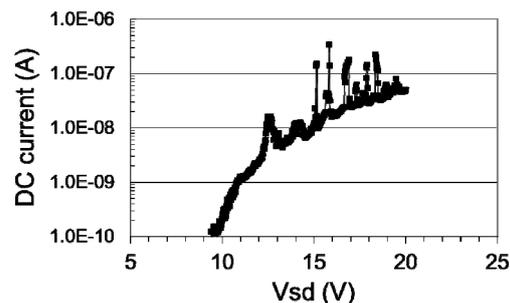


図 2 イオン伝導体を用いた発振現象

<引用文献>

- ① Takeo Ohno, Tsuyoshi Hasegawa, Tohru Tsuruoka, Kazuya Terabe, James K. Gimzewski and Masakazu Aono, "Short-term plasticity and long-term potentiation mimicked in single inorganic synapses", *Nature Materials* **10**, pp. 591-595 (2011). DOI: 10.1038/nmat3054
- ② Alpana Nayak, Satomi Unayama, Seichiro Tai, Tohru Tsuruoka, Rainer Waser, Masakazu Aono, Ilia Valov and Tsuyoshi Hasegawa, "Nanoarchitectonics for controlling the number of dopant atoms in solid electrolyte nanodots", *Advanced Materials* **30**, pp. 1703261-1-7 (2018). DOI: 10.1002/adma.201703261

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 1 件)

- ① Takeo Ohno and Tsuyoshi Hasegawa, "Observation of a Ag protrusion on a Ag₂S island using a scanning tunneling microscope", *Results in Physics* **5**, pp. 182-183 (2015). 査読有 DOI: 10.1016/j.rinp.2015.08.004

[学会発表] (計 4 件)

- ① Firman Mangasa Simanjuntak, Takeo Ohno, and Seiji Samukawa, "Conducting bridge RAM showing nonvolatile

switching and oscillation characteristic”, Kick-off Symposium for World Leading Research Centers - Materials Science and Spintronics -, Sendai International Center, Sendai, Japan, Feb. 18-20 (2018).

- ② Takeo Ohno, Tsuyoshi Hasegawa, Tohru Tsuruoka, Kazuya Terabe, Alpana Nayak, James K. Gimzewski, and Masakazu Aono, “Psychological memorization model demonstrated by atomic switches”, International Symposium on Atomic Switch, Okura Frontier Hotel Tsukuba, Tsukuba, Japan, Mar. 28 (2017).
- ③ Takeo Ohno, “Nanoionic switches for neuromorphic electronics”, The 13th International System-on-Chip (SoC) Conference, Exhibit & Workshops, University of California, Irvine, USA, Oct. 21-22 (2015).
- ④ Takeo Ohno and Seiji Samukawa, “Application of ultrathin Ta₂O₅ film to resistive switching memory”, The AIMR International Symposium 2015 (AMIS2015), Sendai International Center, Sendai, Japan, Feb. 17-19 (2015).

[図書] (計1件)

- ① Kazuya Terabe, Tohru Tsuruoka, Tsuyoshi Hasegawa, Alpana Nayak, Takeo Ohno, Tomonobu Nakayama and Masakazu Aono, “Atomic switches. in Resistive Switching” (eds by Daniele Ielmini and Rainer Waser) pp. 515-545 (Wiley-VCH, 2016).

[産業財産権]

なし

[その他]

なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

大野 武雄 (OHNO, Takeo)

大分大学・理工学部・准教授

研究者番号： 90447144