

**「素材・デバイス・システム融合による革新的ナノエレクトロニクスの創成」研究領域
領域活動・評価報告書
－平成28年度終了研究課題－**

研究総括 桜井 貴康
副研究総括 横山 直樹

1. 研究領域の概要

本研究領域は、材料・電子デバイス・システム最適化の研究を連携・融合することにより、情報処理エネルギー効率の劇的な向上や新機能の実現を可能にする研究開発を進め、真に実用化しイノベーションにつなげる道筋を示していくことを目指します。

本研究領域で目標とするような、桁違いの情報処理エネルギー効率の向上と新機能提供の達成には、単に微細化技術の進展だけに頼るのではなく、革新的基盤技術を創成することが必要です。これらは、インターネットや情報端末などをより高性能化し充実してゆくのに必須であるとともに、センサやアクチュエータなどを多用して物理世界と一層の係わりをもった新しいアプリケーションやサービスを創出するのにも役立ちます。

具体的な研究分野としては、新機能材料デバイス、炭素系や複合材料・単原子層材料など新規半導体や新規絶縁物を利用した素子、量子効果デバイス、低リークデバイス、新構造論理素子、新記憶素子、パワーマネージメント向け素子、物理世界インターフェイス新電子デバイス、非ブール代数処理素子などのナノエレクトロニクス材料や素子が考えられていますが、これらに限定することなく、新規機能性材料や新材料・新原理・新構造デバイスの追求を進めていきます。一方、これらを真のイノベーションにつなげるためには、アプリケーションやシステム、アーキテクチャ、回路技術などがシナジーを持って連携あるいは融合する必要があります。そのために、実用化を見据えることによる、素材技術やデバイス技術の選別や方向性の最適化を積極的に推進します。

このような領域横断的な科学技術の強化ならびに加速によって、革新的情報デバイス基盤技術の創成を目指します。

2. 事後評価対象の研究課題・研究者名

件数： 13件(内、大挑戦型 0 件)

※研究課題名、研究者名は別紙一覧表参照

3. 事前評価の選考方針

選考の基本的な考えは下記の通り。

- 1) 選考は、「素材・デバイス・システム融合による革新的ナノエレクトロニクスの創成」領域に設けたさきがけ領域担当選考委員10名の協力を得て、副研究総括が行い研究総括が確認した。
- 2) 選考方法は、書類選考、面接選考及び総合選考とする。
- 3) 選考に当たっては、さきがけ共通の選考基準 (URL : <http://www.jst.go.jp/pr/info/info986/sankou2.html>) の他、以下の点を重視した。
 - ・レイヤー間の連携が可能であるか。
 - ・CREST との連携が可能であるか。
 - ・実用化に向けた構想が示されているか。

4. 事前評価の選考の経緯

一応募課題につき領域アドバイザー10名が書類審査し、書類選考会議において面接選考の対象者を選考した。続いて、面接選考および総合選考により、採用候補課題を選定した。

選 考	書類選考	面接選考	採択数			
			13件	内 訳	3年型	13件(0件)
対象数	131件	28件			5年型	0件(0件)

()内は大挑戦型としての採択数。

※本領域においては、5年型、大挑戦型を公募しなかった。

5. 研究実施期間

平成 25 年 10 月～平成 29 年 3 月(3年型)

6. 領域の活動状況

領域会議:7回

	日程	会場	交流の企画
第1回	2014年 2月 7日 ～ 8日	土佐ロイヤルホテルホテル	なし
第2回	2014年 9月 4日 ～ 5日	新横浜グレイスホテル	CREST「二次元」領域黒部研究総括の講演
第3回	2015年 1月13日 ～15日	チサンホテル神戸	CREST 担当の津田アドバイザーの講演
第4回	2015年 7月6日～ 7月8日	ホテルクレセント	東北大学の見学会
第5回	2015年11月26日 ～28日	アークホテルロイヤル福岡天神	なし
第6回	2016年5月12日～ 14日	アワーズイン阪急シングル館	CREST 担当の桜井研究総括の特別講演。
第7回	2016年11月17日 ～19日	ロワジールホテル豊橋	課題評価のためCREST担当のアドバイザーが参加

研究総括(またはアドバイザー、技術参事)の研究実施場所訪問:35回

研究開始直後の訪問

日程	訪問研究者	訪問先
2013年10月4日	原 祐子	奈良先端科学技術大学院大学
2013年10月4日	井上振一郎	情報通信研究機構
2013年10月5日	戸川欣彦	大阪府立大学
2013年10月7日	宮田耕充	首都大学東京
2013年10月7日	安武裕輔	東京大学
2013年10月7日	山本倫久	東京大学
2013年10月8日	望月維人	青山学院大学
2013年10月9日	山田浩之	産業技術総合研究所
2013年10月9日	岡田直也	産業技術総合研究所
2013年10月9日	安藤和也	慶應義塾大学
2013年10月10日	青野真士	東京工業大学
2013年11月15日	大野武雄	東北大学
2013年11月15日	吾郷浩樹	九州大学

最終年度にむけての訪問

日程	訪問研究者	訪問先
2016年2月8日	望月維人	青山学院大学
2016年2月9日	岡田直也	産業技術総合研究所
2016年2月9日	山田浩之	産業技術総合研究所
2016年2月10日	井上振一郎	情報通信研究機構
2016年2月11日	戸川欣彦	大阪府立大学
2016年2月12日	吾郷浩樹	九州大学
2016年2月15日	山本倫久	東京大学

2016年2月16日	安藤和也	慶應義塾大学
2016年2月17日	安武裕輔	東京大学
2016年2月19日	大野武雄	東北大学
2016年2月22日	青野真士	東京工業大学
2016年2月22日	原祐子	東京工業大学
2016年2月23日	宮田耕充	首都大学東京

アドバイザーによる訪問

日程	アドバイザー	研究者
2014年5月29日	秋永 広幸	大野 武雄
2014年6月23日	武藤 俊一	青野 真士
2014年7月11日	平山 祥郎	安武 裕輔
2014年7月24日	水谷 孝	吾郷 浩樹
2014年9月22日	笹川 崇男	安藤和也
2014年10月10日	武藤 俊一	山本倫久
2016年2月9日	秋永 広幸	山田浩之

技術参事による研究状況調査ほか

日程	訪問研究者	訪問先
2014年3月10日	青野真士	東京工業大学
2015年6月26日	青野真士	東京工業大学

7. 事後評価の手続き

研究者の研究報告書を基に、評価会（研究報告会、領域会議等）での発表・質疑応答、領域アドバイザーの意見などを参考に、下記の流れで研究総括が評価を行った。

（事後評価の流れ）

- 平成28年11月 評価会開催（第7回領域会議で実施）
- 平成29年 1月 研究総括による事後評価
- 平成29年 3月 被評価者への結果通知

8. 事後評価項目

- （1）研究課題等の研究目的の達成状況
- （2）研究実施体制及び研究費執行状況
- （3）研究成果の科学技術及び社会・経済への波及効果（今後の見込みを含む）
- （4）・・領域ごとの評価基準があれば、（4）以降に記載（複数可）

※該当する成果がある場合には「世界レベルの若手研究リーダーの輩出の観点から、本さがけ研究が、研究者としての飛躍につながったか（今後の期待を含む）」を加味して評価を行った。

評価結果

総論

本研究領域は、材料・電子デバイス・システム最適化の研究を連携・融合することにより、情報処理エネルギー効率の劇的な向上や新機能の実現を可能にする研究開発を進め、真に実用化しイノベーションにつなげる道筋を示していくことを目指して平成25年度に発足した。今回課題評価の対象となる研究者は平成25年度に応募された131件から採択された女性1名を含む13名の研究者。研究分野は単原子薄膜やスピントロニクス分野を中心に材料から回路までレイヤー間連携を意識して採択した。外部発表総数は招待講演152件を含む555件にのぼり後掲のとおり賞も多く受賞している。青野研究者は独自に開発したアメーバ計算手法をもとに基礎理論、デバイス実装、および応用までバランスよく成果を上げた。さがけ内での共同作業を積極的に推し進めるなど、リーダー格とし先導しており新たな研究の核としてCRESTの立上げに貢献が期待される。またSciFoS活動や研究者交流会に参加するなど積極的に交流活動を進めたことも評価される。望月研究者は理論家でありながら実

験に即した研究を進め多くの成果をあげた。望月研究者のスキルミオンを用いたメモリ・ストレージ技術への貢献は Science や Nature 系の雑誌に掲載され特許も取得し成果は高く評価される。望月研究者も SciFoS 活動に参加して積極的に研究の視野を広げた。両者とも、このような実績が文部科学大臣表彰若手科学者賞の受賞や昇任につながったと考えている。

1. 青野 真士 研究者「アメーバ計算パラダイム:時空間ダイナミクスによる超高効率解探索」

評価結果

このテーマはアメーバ計算の基礎理論からアメーバのデバイス実装、応用分野の探索と多岐にわたるが、実験サイドと共同研究することなどにより各方面で進歩が認められる。アメーバ計算の形が次第に見えつつあると考える。特に SAT 問題でのベンチマーキングがなされ、CPU 時間では劣るが、反復回数では勝るという、アメーバの物理実装を肯定するデータを示した。またアメーバモデルの化学反応への応用を検討し求核付加反応を表現できた。国際口頭発表 22、国際招待講演 11 が示すように、様々な分野でアメーバ計算の宣伝、普及に努めたことも評価できる。目標通りの成果を達成している。

特に FPGA により アメーバを自作したことは高く評価できる。当面、デジタルアメーバの問題点を洗い出すことに時間を割かれると思われるが、実体化したことによる今後の進化が期待できる。従来の情報処理を超える新しいアーキテクチャの可能性を示したことで科学技術のみならず実社会へのインパクトは大きいと考えられる。

本さがけ研究領域内で交流の成果が新たな超伝導量子回路を用いたアメーバの共同研究に発展、更に NEDO「IoT 推進のための横断技術開発プロジェクト」への採択に至り、研究者としての飛躍につながった。

今後は超伝導量子回路等のナノデバイス回路にアメーバアーキテクチャーを実装すること、および具体的アプリケーションとしての化学反応シミュレーションの発展に期待が持てる。実用段階では量子アニーリングやコヒーレントイジングマシンなどとの競合も問題になると思われるが、小型化に活路を見出せると考える。更にアメーバの基礎理論は他のゆらぎを用いた計算への応用可能性を有するものである。今後、電子回路の特許出願など知財確保が期待される。

検討により判明した回路のボトルネックや揺らぎ・乱数発生方法などの更なる技術面の深堀と、特に小型・低電力が求められるロボットへの適用などについて研究を深めてほしい。

2. 吾郷 浩樹 研究者「二次元原子薄膜の積層システムの創製とナノエレクトロニクスへの展開」

評価結果

目標は、様々な2次元ヘテロ材料の大面积積層技術を開発するとともに、それを用いた新奇デバイスの可能性を明らかにすることであった。しかしながら2015年度末までに結晶膜の大きさはいずれも10~20 μm 角程度と目標の大面积化には至っていない。またこれらを用いて作製した FET の特性に特筆すべきものはなかった。そこで研究テーマを大面积多層 h-BN の成長に絞り込むとともに、エネルギーギャップ・移動度の点で最近注目を集め、本人の希望の強い黒リンの成長を新たに研究項目として設定した。

h-BN の CVD 成長に関しては、多層化を制限していた要因の解明と対策を行い(Fe 合金触媒および窒素キャリアガスの採用)多層化を可能にするるとともに、その上に成長した WS_2 の高品質化(PL スペクトル半値幅の低減、バルク h-BN 上成長と同レベル)を実現した点は、新たな2次元ヘテロ構造開拓につながる成果と考える。大面积化についてはグレインサイズが5 μm 角程度と小さく、更なる改善が望まれる。新規デバイスについては、大面积化、高品質化、物性解明を優先させるべきと考える。

黒リンについては研究期間が1年弱と短く、原子層膜は得られていない。本テーマ追加からの研究期間が短かったのでやむを得ないと感じるが、さがけ内で研究するよりは、自主研究とすべきであったかもしれない。

多層 h-BN 膜の合成において、ホウ素、窒素の溶解度を高めることをポイントに置いて、金属触媒の合金化を推し進め、徹底した温度制御により、粒径の増大を短期間に実現させた。今後の二次元膜材料の応用に向け貴重な成果である。今後、良質な多層 h-BN の供給を行うことで、その開発を推進することができれば、ナノエレクトロニクス分野全体の振興に向けて大きな貢献になると期待している。

3. 安藤 和也 研究者「スピンホールエンジニアリングによる省エネルギーナノ電子デバイスの創出」

評価結果

スピン軌道相互作用を用いたスピントロニクスデバイスは実用への期待も大きく、その基盤となる電流-スピン流変換に関して安藤研究者はインパクトのある成果をあげた。特に、ある程度の知見が蓄積されていたバルクにおける効果から脱却して表面や界面に注目することで、電流-スピン流変換の効率が向上できることを見出した。特に、さがけ開始時には~数10%であった電流-スピン流変換の効率を、巨大 Rashba スピン軌道相互作用に着目することにより、非磁性元素の Bi/Ag 界面において~50%まで上昇させることに成功したことは高く

評価できる。加えて、ありふれた銅を自然酸化するだけでスピントロニクス生成効率が2桁以上向上する効果を発見したことは、想定外の非常に重要な成果である。従来から用いられていた白金を凌駕する性能であり、技術的にも容易なアプローチの提示であることから、将来のスピントロニクス素子の実用化に向けた大きな貢献が期待される。研究申請時の想定を遥かに上回る、「さきがけ」らしい研究成果であると評価する。Nature Communication などの著名誌への8報の論文掲載や国際会議での8件の招待講演など、成果発表も申し分ない。

大きな波及効果の可能性をもつ技術を見い出していることから、産業界に向けた情報発信を積極的に行ってゆくことも望まれる。新原理に基づいた研究は始まったばかりであり、メカニズム解明もこれからなので、基礎学理の確立や新たな応用につながる技術の創出に向けて今後も研究を推進して欲しい。

4. 井上 振一郎 研究者「有機・シリコン融合集積フォトニクスによる超高速電気光学デバイス」

評価結果

独自開発の有機電気光学(EO)ポリマーと、シリコン 1 次元フォトニック結晶導波路とをハイブリッドした EO 光変調器を作製し、その動作を初めて実証した。特に、ナノオーダーの高い加工精度をもとに、有機 EO ポリマーとシリコンフォトニクスとの融合プロセス技術を開発し、EO 変調効率の向上、極めて大きな電気光学係数を達成した点で大きな成果に繋がったと評価される。電気光学変調デバイスにより、「超高速動作(>100GHz)、LN 変調器の1/1000以下の素子サイズ(<100 μ m)、低消費電力性を同時に達成する」という高い目標をほぼ実現しており、高く評価でき、インパクトの大きな成果と考える。ポリマーとシリコンで温度依存性が相反することを利用して温度無依存を実現したのはアピールできる成果である。

企業との共同研究等により、実デバイスとしての可能性を示すことが望まれる。

今後、有機材料の弱点である耐水性から懸念される信頼性・長期安定性、電界集中から懸念される劣化について、実デバイスを念頭に置いて検討することを期待する。

5. 大野 武雄 研究者「極薄ナノ金属酸化膜をもつ抵抗変化型メモリ」

評価結果

原子スイッチ系の不揮発性メモリは、「中性酸素ビームを用いた電子デバイス成膜プロセス」の優位性実証を行う対象の1つであるとみなすことができる。そのように考えれば、十分に高い絶縁性と、適切な金属元素拡散性を備えた、アモルファス Ta₂O₅ 膜の形成に成功し、抵抗変化型メモリ動作の確認まで至ったことは、最低限の目標には達成したとして評価される。また、低温で均質な酸化膜を形成できるプロセスであるという特徴を生かして、さきがけ一期生の安藤研究者(スピントロニクス発生用の酸化層形成)、岡田研究者(金属/Si 接合の電子状態制御)と共同研究を開始していることは、「同じ研究領域に集まった様々な機関やバックグラウンドの研究者と交流・触発しながら、個人が独立した研究を推進する」という「さきがけ」ならではの研究展開と考えられる。さらに、ニューロモルフィック素子への応用を目指して、シナプス動作抵抗変化メモリの画像記憶デモを開始しており、今後の研究進捗に期待したい。

一方、抵抗変化型メモリの動作実証に関しては、科学技術及び社会・経済への波及効果が乏しいが、「中性酸素ビームを用いた電子デバイス成膜プロセス」の優位性を示すのであれば、膜厚・界面の評価(平滑性など形態評価、電子状態評価を含む)、析出する金属フィラメントのサイズ制御可能性の評価、イオン種・UV 光の影響の見極め、TDDDB(Time Dependent Dielectric Breakdown)等の電気特性評価等を実施するべきだった。今後に期待する。

外部との研究交流を始められたが企業とも連携を組み、ReRAM の問題点を把握しその解決策を考えることをやってみてほしい。画像記憶の実験など手を広げるのではなく、今の問題を把握し、追及することで ReRAM に活かされると思われる。

6. 岡田 直也 研究者「遷移金属内包シリコンクラスターを用いた低消費電力トランジスタ材料・プロセスの創出」

評価結果

WSi クラスターや WGe クラスターを用いた極微細トランジスタ向けの低抵抗オーミック接合(ソースとドレン電極の接合)に関し、材料選定やプロセス技術構築、また界面電子状態の評価などで成果を上げた。この結果は将来の低消費電力極微細デバイスのための要素技術としての可能性を持っており、論文掲載や学会発表による学術的アピールとともに産業界への新技術提示という観点で評価できる。

特に、クラスターのガスソース合成という技術開発に関して成果があったと評価でき、この成果を基に、クラスター成膜の適用範囲を拡げるなど、今後の展開を期待したい。一方で、クラスターの実際の構造とクラスターであることの効果について今後さらなる理解を深めることが必要である。さらに、実用的な将来技術としての評価を得

るためには極微細デバイスで実際の高いドライブ能力実証などが必要で今後何らかの手段で実現してほしい。本研究で獲得した技術がどのようなチャネル材料、デバイス構造で必要になるかを見極め、産業界にとってインパクトのある実証例を示すのが重要である。

国内メーカーがロジックデバイステクノロジーから撤退しているので非常に厳しい課題だが TSMC などとの連携を通じて彼らのテクノロジーライブラリーに載せることが産業界への貢献となるため、今後の努力をお願いしたい。今後、アカデミアの先端トランジスタ研究グループとの連携を図り、真に必要とされる技術として育成することを望みたい。

7. 戸川 欣彦 研究者「カイラル磁気秩序を用いたスピン位相エレクトロニクスの創成」

評価結果

カイラルソリトン格子の巨視的位相コヒーレンスを応用に結びつけようとするユニークな提案であり、長距離スピン秩序に基づく多値磁気抵抗の観測や集団共鳴現象の実験的検出に期待した成果が出ている。

具体的には、マイクロメートル程度の微細化単結晶デバイスを作製し、離散したソリトン閉じ込め効果とコヒーレントスピン位相に起因する多値的磁気抵抗効果を実証した。これはカイラルソリトン格子の示す位相コヒーレンスが巨視的スケールにおいて顕在化することを世界で初めて実証したものである。カイラル磁性体のマイクロサンプリング試料を高周波回路に配置し、共鳴現象の測定を進めていくことで、スピン波の位相コヒーレンス、集団的共鳴現象のダイナミクスの解明も進展した。特に、磁気共鳴モードの非対称性など興味深い高周波特性が明らかになった。これらはカイラルソリトン格子の集団ダイナミクスの高速制御につながる成果である。強い偏光依存性や長距離スピンコヒーレンスに基づいた非局所応答など当初想定していなかった成果も出現している。課題名に「スピン位相エレクトロニクスの創成」とあるように、非常に高い目標を掲げている関係で、当初目標のすべてが達成されたわけではないが、「さきがけ」の研究成果として十分に高く評価できる研究内容である。研究実施に際しては、イギリス・グラスゴー大学との国際共同研究を積極的に推進したが、これも研究を良い方向に導いている。

カイラルソリトン格子が有するマクロスコピックなスケールでのスピンコヒーレンスは、ユニークで多様な制御性が期待され、潜在的なポテンシャルは高い。物理的理解をさらに深めながら、「さきがけ」で培ったエレクトロニクスの視点を加えることで、課題名にある「スピン位相エレクトロニクスの創成」により一層近づくことを期待したい。「さきがけ」期間中にレイヤー間研究会の幹事として形成した、若手研究者のネットワークも「スピン位相エレクトロニクスの創成」に役立つことが期待される。

8. 原 祐子 研究者「階層融合型機能的冗長化による次世代低電力デバイス向け高信頼化設計」

評価結果

次世代低電力デバイス(超微細 CMOS、CNT、グラフェン、有機デバイス等)で顕著になると考えられる遅延故障や永久故障などの経年劣化の課題を、CAD レイヤーの上位設計の立場から改善することを目標とし、高信頼 CAD 設計技術を構築することを目指した。多様化する IoT に活用される端末への適用をターゲットとし、端末単体での故障診断・検出・回復を目的とした。既存手法の多重化(三重化)と比較して、少ない面積オーバーヘッド(低コスト)、データパスの規模によらない利用(汎用性)を実現した。

次世代デバイスの経年劣化について上位設計からの耐故障設計については、極めて重要な視点である。今後次世代デバイスの特性や再現性等のデータが共有されるような状況になれば、本研究成果の波及効果が出てくると思われる。また、FPGA ではなく ASIC や SoC による評価、更には低電圧動作 CMOS や次世代デバイスによる有用性が示されれば、産業的にインパクトが出てくると考える。

さきがけ期間中に奈良先端大助教から東工大准教授に昇進、学会での受賞もあり、さきがけ研究者のイメージアップにも貢献した。

今後、本研究が起爆剤となって、故障メカニズム、プロセス設計、生産、評価解析、テストなどの専門家が集い、それらに立脚した設計が行われ、さらに上位からの自己診断、故障回避・回復設計へと深化していく体系的な高信頼 CAD 設計技術が構築されることを期待する。

9. 宮田 耕充 研究者「単原子膜ヘテロ接合における機能性一次元界面の創出とエレクトロニクス応用」

評価結果

宮田研究者は CVD 法を用いた高品質遷移金属ダイコルコゲナイド(TMDC)原子層合成技術をもとに、原子レベルで直線的接合界面を有する TMDC 面内ヘテロ構造の作製に成功した。独自に合成した $WS_2/Mo_{1-x}W_xS_2$ ヘテロ界面において、1原子レベルでの急峻な界面が実現出来ていることを明らかにした。特に、共同研究の実施体制を積極的に進めることによって、 WS_2 と MoS_2/WS_2 の二層積層構造の接合界面において、導電性原子間力顕

微鏡および走査トンネル顕微鏡/分光を用い、価電子帯では閉じ込めポテンシャル、また伝導帯ではポテンシャル障壁が形成されることを見出した。これらのポテンシャル変調を「一次元界面」として捉え、極微細伝導チャネルを目指した量子細線の一形態を提案した点は高く評価されるとともに、研究目的の一部は達成されたとと言える。

しかしながら、ヘテロ一次元界面での電子状態の一次元性の実証はできておらず、実験結果と理論検討の整合性が評価できるレベルには達していないのが残念である。しかし二次元原子膜であるTMDCの横方向の接合を実現した意味は大きい。本テーマの拡張内容で応募した CREST が採択されたことは、本さがけ研究内容が認められたことを端的に示すものであり、研究者としての飛躍につながったと言える。これからの 5 年間で、デバイス化に向け、さらなる展開を期待する。

10. 望月 維人 研究者「高いデバイス機能を有するナノスケールトポロジカル磁気テクスチャの理論設計」

評価結果

2009年に発見されて間もないトポロジカル磁気テクスチャであるスキルミオンについて、これを情報担体として使うというデバイス応用へのアイデアを実験しやすい例示の形で理論展開し、スキルミオンの制御法確立への道筋を理論的に示した。具体的には、スキルミオンの熱的駆動、電場や磁場による書き込みなどを、先駆的なシミュレーション技術を活用して高いレベルで研究を進展させた。当初目標以上の想定していなかった成果として、マイクロ波による巨大な整流効果の発見や、初のネール型磁気スキルミオンをもつ物質(GaV_4S_8)の発見が特筆される。これらの成果は、Nature Materials 誌などの著名誌に8報の論文として掲載されるとともに、国際学会で9件、国内学会で7件の講演に招待された。

さがけ研究の期間内に日本物理学会若手奨励賞や文部科学大臣表彰若手科学者賞も受賞した。さがけ研究の終了のタイミングで早稲田大学教授に昇進することが決まったことは、さがけ研究者のキャリアアップとして素晴らしい成功例になった。産業的な応用を見据えて競合する他技術との比較分析から競争優位性を検証すること、課題は何であるのかを明確にすること、国内外の材料・デバイス分野の研究者との議論や共同研究を進めて“使える”技術としての進展を図ることなどのコメントを胸に刻んで、今後も物理とデバイスの両方を見据えた活躍を期待したい。

11. 安武 裕輔 研究者「水素終端 4 族単原子層を用いた室温動作新機能素子の創成」

評価結果

原子層 2 次元系(グラフェンなど)の概念を半導体エレクトロニクスを中心材料であるシリコンに拡張して、新しい電子材料シリセン(シリコン原子層膜)を実現する試みが脚光を浴びているが、本研究はさらにその先を行くゲルマニウム原子層膜に取り組む挑戦的でユニークな「さがけ」らしい研究である。

具体的には、ゲルマニウムのグラフェン様化合物であるゲルマネンを水素終端したゲルマナンを高品質に広い面積で作製し、エレクトロニクス応用への基礎を確立する研究を推進した。作製した膜では、さらなる検討が必要であるが、直接遷移の理論予測と矛盾しない室温発光が観測され、ゲルマナンを絶縁膜上に転写した試料などで電氣的測定も徐々に可能になりつつある。

Ca を用いたエピタキシャル成長には独自性も認められ、物性評価が可能なサイズ・形状のゲルマナン作製に成功し、新しい 2 次元物質としての可能性を開いたことは評価に値する。「さがけ」スタート当初は試行錯誤が多かったが、MBE に Ca 用 K-cell を導入したことにより、研究進捗状況が好転した。ゲルマナン、ゲルマニウムなどの間接-直接遷移端のエネルギー差が小さい材料では、バレー内緩和・バレー間散乱が光学特性に及ぼす影響が大きい。ゲルマニウムを用いて、半導体材料全般に適用可能なバレー緩和過程を含めた吸収、発光特性の理解を進めるなど、関連する成果もあげた。

ゲルマニウム単原子層がきちんとできていることが様々な物性測定から明らかになれば、科学的な基礎研究としてのインパクトは非常に高く、単層で室温発光していることが確認できれば発光素子、スピン量子デバイスへの展開の可能性も拓ける。得られた水素(あるいはメチル)終端ゲルマニウム単原子結晶の物性評価を継続して、高いレベルの公表論文にまとめることを期待したい。「さがけ」で培った研究者ネットワークを利用してデバイス、回路、アーキテクチャの各レイヤーと連携する方向を考えると、よりインパクトのある原子層半導体の研究進展が期待される。

12. 山田 浩之 研究者「強誘電体と機能性酸化物の融合による不揮発ナノエレクトロニクス」

評価結果

当初の目的である強誘電トンネル接合界面の物性特製の関係把握、電極材料に伴う特性の変化、微細化・多値化の検討に加えシリコンデバイスとしての成立性の検討について当初の目標をほぼ達成した。特に RuO_2 を用

いたエデュランス大幅向上を見出したこと、100nm 程度の微細化素子での動作実証、Si 基板上への展開の可能性検証については BTO 強誘電体を用いた素子では初めての結果であり、学問的成果、産業界へのインパクトいずれの観点でも評価できる。さきがけ研究としての要件は十分に満たしているものと判断する。

また論文掲載、国際学会講演の件数も多く、学会レベルのインパクトとしては非常に高いものと判断するが、デバイス業界へのインパクトが高いジャーナル、国際学会での成果報告が少ない。さきがけレベルの研究においても、産業界へのインパクトという点では、成果発表の戦略という点で今後の留意点と思われる。

本研究が研究者としての飛躍につながったかという観点については、強誘電体ダイオードという分野で多くの発表を行うことで、本分野のトップランナーの一人として独自のポジションを確立したことは間違いない。

この分野がややニッチな領域となっているのは現時点では産業界での開発は行われているが社外との交流はないことに起因しており、いかにアカデミア、国研での研究を実用結びつけるかは、本研究の当初からの課題であり、必ずしも研究者一人の責任ではない。したがって、今後の一層の飛躍のためにはデバイスとしての応用、すなわち新しいメモリ分野の開拓を実行するコミュニティへの参画が強く望まれよう。

その際、本研究で実施した強誘電体ダイオードを直接生かすことはできないかもしれないが、今回得られた界面研究の成果が活かせる形で研究領域を牽引することを期待する。

13. 山本 倫久 研究者「単一電子量子回路の集積化へ向けた基盤技術の開発」

評価結果

山本研究者は、電子波導波路での微弱な干渉電流を測定する高い技術を持っている。これを用いて本プロジェクトでは当初、空乏化したチャンネルでの単一電子の電子輸送を用いて、1および2量子ビットの精密操作を実現し将来の量子コンピュータの基礎を形成するという高い目標に挑戦した。ところが、実験を進めるうちに、空乏化したチャンネルでは、電子の不純物散乱が顕著に現れること、表面弾性波による電子輸送でホットキャリアの問題が生じることなどが、分かって来た。

そこでデバイスの改良を進める一方、電子のスピンを利用するなどの別の方向でもレベルの高い成果を模索した。この結果、80%に近いホットエレクトロンの干渉を実現し、電子の増幅率も9を実現した。更に90%に近い非局所的スピンもつれ2電子の形成に成功したと思われる。また飛行量子ビットとしての電子スピンが長距離保存されることがわかった。特に空乏化チャンネルでの電子波干渉に成功したことは評価できる。これらは直ちに量子コンピュータの実現に結びつくデータではないが、スピンを用いた飛行量子ビット型量子コンピュータの姿が見えかけて来たとも言える。

この研究テーマは3年余りで顕著な成果を期待するものではなく10年オーダーの長い視点での評価が必要なものである。実験データを理論解析することに加え、ネガティブな知見も集積することが将来の量子デバイス実現に寄与すると期待されるので、研究目的を達成したとは言いが、基礎物理的知見が多く得られたので、期間内では十分な成果を達成したと言える。

9. 評価者

研究総括 桜井 貴康 東京大学 生産技術研究所・教授
副研究総括 横山 直樹 株式会社富士通研究所・フェロー

領域アドバイザー(五十音順。所属、役職は平成29年3月末現在)

秋永 広幸	産業技術総合研究所 ナノエレクトロニクス研究部門・総括研究主幹
上田 大助	京都工芸繊維大学 ナノ材料・デバイス研究プロジェクト推進センター・特任教授
楠 美智子	名古屋大学 未来材料・システム研究所・教授
笹川 崇男	東京工業大学 科学技術創成研究院フロンティア材料研究所・准教授
高井 まどか	東京大学 大学院工学系研究科バイオエンジニアリング専攻・教授
平山 祥郎	東北大学 大学院理学研究科物理学専攻・教授
福島 伸	株式会社東芝 研究開発センター・首席技監
水谷 孝	中部大学 総合学術研究院・客員教授
武藤 俊一	北海道大学・名誉教授
森村 浩季	日本電信電話株式会社 デバイスイノベーションセンタ プロダクト戦略プロジェクト デバイス戦略グループ・グループリーダ、主席研究員

(参考)

件数はいずれも、平成29年3月末現在。

(1)外部発表件数

	国 内	国 際	計
論 文	4	112	116
口 頭	239	172	411
その他	23	5	28
合 計	266	289	555

(2)特許出願件数

国 内	国 際	計
14	1	15

(3)受賞等

・青野 真士

Incentive Award of ELSI 2014(東京工業大学)(H27.2)

Earth-Life Science Institute, Tokyo Institute of Technology, Recognition of Excellence 2014(H27.6)

電子情報通信学会 NOLTA ソサイエティ 貢献賞(H27.9)

文部科学大臣表彰若手科学者賞(H28.4)

・吾郷 浩樹

応用物理学会優秀論文賞(H26.9)

九州大学研究活動表彰(H26.11)

・安藤 和也

船井学術賞(船井情報科学振興財団)(H26.4)

本多記念研究奨励賞(H28.5)

・井上 振一郎

応用物理学会論文賞(H26.9)

・戸川 欣彦

関東地方発明表彰 発明奨励賞(H25.11)

日本顕微鏡学会 奨励賞Ⅰ:顕微鏡法基礎(H26.5)

日本中性子科学会 プレジデントチョイス(H26.12)

・原 祐子

情報処理学会 CPSY 研究会の優秀若手講演賞(H26.5)

・宮田 耕充

第5回 JSAP フォトコンテスト最優秀賞(H27.3)

・望月 維人

第8回日本物理学会若手奨励賞(領域8)(H26.3)

文部科学大臣表彰 若手科学者賞(H27.4)

・山田 浩之

文部科学省ナノテクプラットフォーム H26 年度「秀でた利用成果事例」(H28.3)

(4)招待講演

国際 66件

国内 86件

別紙

「素材・デバイス・システム融合による革新的ナノエレクトロニクスの創成」領域
事後評価実施 研究課題名および研究者氏名

(3年型)

研究者氏名 (参加形態)	研究課題名 (研究実施場所)	現職(平成29年3月末現在) (応募時所属)	研究費 (百万円)
青野 真士 (兼任)	アメーバ計算パラダイム:時空間ダイナミクスによる超高効率解探索 (東京工業大学)	東京工業大学 准主任研究者 (東京工業大学 研究員)	22
吾郷 浩樹 (兼任)	二次元原子薄膜の積層システムの創製とナノエレクトロニクスへの展開 (九州大学)	九州大学 教授 (九州大学 准教授)	37
安藤 和也 (兼任)	スピンホールエンジニアリングによる省エネルギーナノ電子デバイスの創出 (慶應義塾大学)	慶應義塾大学 准教授 (慶應義塾大学 専任講師)	42
井上 振一郎 (兼任)	有機・シリコン融合集積フォトニクスによる超高速電気光学デバイス ()	情報通信研究機構 センター長 (情報通信研究機構 主任研究員)	38
大野 武雄 (兼任)	極薄ナノ金属酸化膜をもつ抵抗変化型メモリ (東北大学)	東北大学 准教授 (同上)	36
岡田 直也 (兼任)	遷移金属内包シリコンクラスターを用いた低消費電力トランジスタ材料・プロセスの創出 (産業技術総合研究所)	産業技術総合研究所 主任研究員 (筑波大学 大学院生)	34
戸川 欣彦 (兼任)	カイラル磁気秩序を用いたスピン位相エレクトロニクスの創成 (大阪府立大学)	大阪府立大学 准教授 (大阪府立大学 特別准教授)	44
原 祐子 (兼任)	階層融合型機能的冗長化による次世代低電力デバイス向け高信頼化設計 (東京工業大学)	東京工業大学 准教授 (奈良先端科学技術大学院大学 助教)	34
宮田 耕充 (兼任)	単原子膜ヘテロ接合における機能性一次元界面の創出とエレクトロニクス応用 (首都大学東京)	首都大学東京 准教授 (同上)	39
望月 維人 (兼任)	高いデバイス機能を有するナノスケールトポロジカル磁気テクスチャの理論設計 (青山学院大学)	青山学院大学 准教授 (同上)	31
安武 裕輔 (兼任)	水素終端4族単原子層を用いた室温動作新機能素子の創成 (東京大学)	東京大学 助教 (同上)	38
山田 浩之 (兼任)	強誘電体と機能性酸化物の融合による不揮発ナノエレクトロニクス (産業技術総合研究所)	産業技術総合研究所 主任研究員 (同上)	33
山本 倫久 (兼任)	単一電子量子回路の集積化へ向けた基盤技術の開発 (東京大学)	東京大学 講師 (東京大学 助教)	38

研究報告書

「アメーバ計算パラダイム:時空間ダイナミクスによる超高効率解探索」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 平成 25 年 10 月～平成 29 年 3 月

研究者: 青野 真士

1. 研究のねらい

さがけ研究者・青野が定式化した「アメーバモデル(AmoebaSAT)」は、環境に効率的に適応する粘菌アメーバのユニークな並列処理法に学んだアルゴリズムであり、揺らぎを伴った試行錯誤的な探索により、重要な組合せ最適化問題(NP 完全問題)である「充足可能性問題(Satisfiability Problem; 略称 SAT)」の膨大な数の解候補の中から正解を高速に発見できる。アメーバモデルは、従来型デジタルコンピュータ上でソフトウェアとして実行することもできるが、時空間ダイナミクスとして表現されているため、専用のハードウェアを構築して物理的に実装するのに適している。本研究のねらいは、従来のシリコンデバイスとは異なる確率的な挙動を示す先端デバイスを用いてアメーバモデルを実装することにより、様々な応用で威力を発揮する超小型・超低消費エネルギーの非ノイマン型コンピュータを開発し、そこから新たな計算パラダイムを開拓することである。

2. 研究成果

(1) 概要

本研究は、組合せ最適化アルゴリズム「アメーバモデル」の解探索性能を理論的に評価し、これを先端デバイスにより実装するための計算アーキテクチャを具体化し、実社会で有用な応用を提案することを目指して進められた。これらの目標を達成するため、次の3つのテーマA)、B)、C)に沿って研究を進め、それぞれ重要な成果を挙げることができた(図 1)。

研究テーマ A) 「アメーバモデルの解探索性能の起源と限界を明らかにする基礎理論の構築」

アメーバモデルは、アメーバの足を表現する複数のユニットの「揺らぎ」を伴った試行錯誤のダイナミクスと、解くべき問題の制約条件を参照して複数ユニットの伸縮運動を制御するダイナミクス(「バウンスバック制御」と命名)とのハイブリッドダイナミクスにより解探索を行うアルゴリズムである。本研究では、「揺らぎ」と「バウンスバック制御」の双方を改善することで、より高速な解探索性能が実現することを確認した。また、その性能を従来最速の確率的局所探索アルゴリズムと比較し、今後アメーバモデルを物理的に実装することで、劇的に高速な解探索が実現できる可能性を示した。

研究テーマ B) 「デバイスによる実装形態を表現し評価するためのモデルの開発」

アナログ回路や先端デバイスを用いることで、アメーバモデルを実装できることを数値計算により示した。こうして、室温の熱揺らぎを利用して確率的動作を実現する、小型・低消費電力の新たな計算アーキテクチャが提案された。さらに、デジタル回路やアナログ回路により、アメーバモデルを物理的に実装した。これにより、アメーバモデルの優位性を、ハードウェアを用いて評価していくための基盤技術が確立された。

研究テーマ C) 「応用に適用できるモデルの開発」

アメーバモデルのバウンスバック制御を拡張し、化学反応をシミュレートできるモデルを提案した。そこでは、いくつかの物理化学法則を確率的制約条件として設定する。このモデルでは、時間発展が一時的に安定化した状態が安定な分子群の形成に対応し、その状態から他の状態への確率的遷移により、化学反応が表現される。将来的には、反応経路や副生成物の分析や発見、未知反応の速度論の半定量的なシミュレーションなどを、従来の第一原理計算を基礎とする手法では実現できない低計算コストで実現することが目標となる。

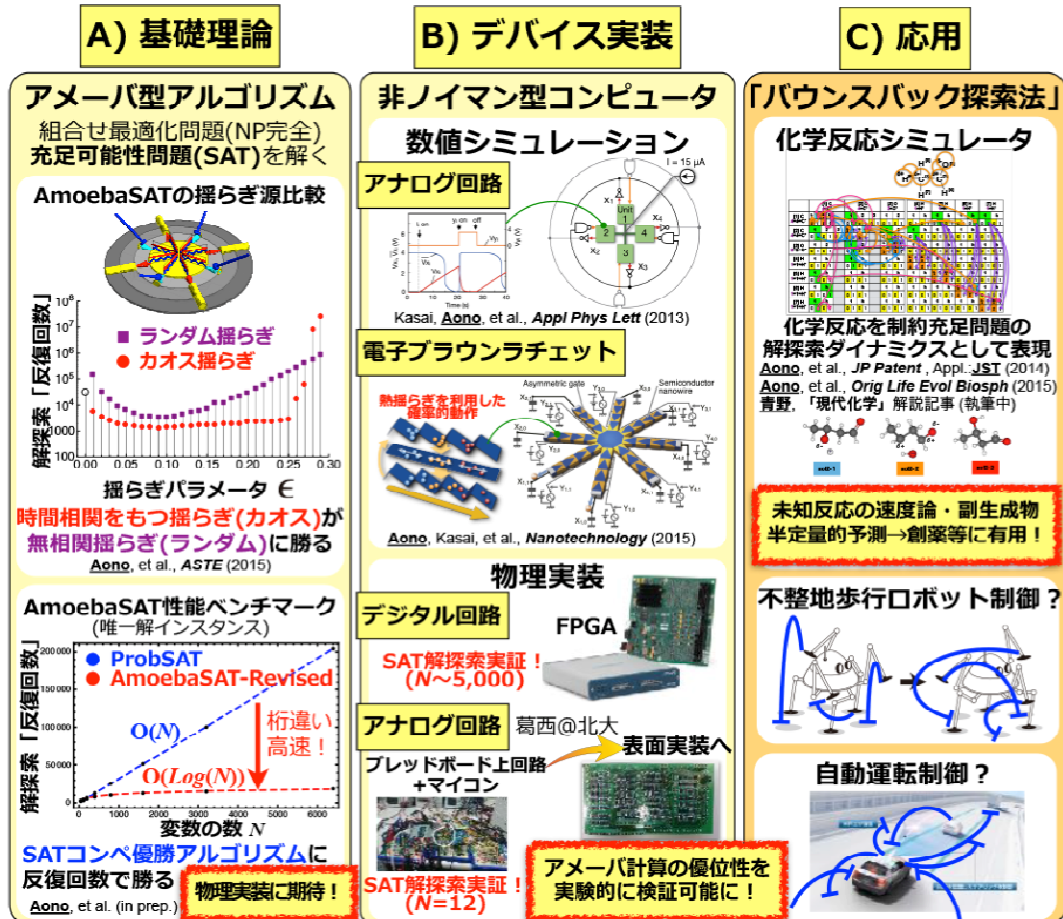


図1: 主な研究成果

(2) 詳細

研究テーマ A) 「アメーバモデルの解探索性能の起源と限界を明らかにする基礎理論の構築」

SAT は、複数の論理的制約条件を満たす真偽値の割当てを探索する問題である。アメーバモデルでは、各変数の真偽値がアメーバの足が伸長／縮退により表現され、ある組合せの足が伸長したとき制約条件により禁じられる足の伸長を抑制するよう導く「バウンスバック制御」のもとで、全ての足が同時並行的に伸び縮みを繰り返す(図2)。各足の抑制信号に対する応答は確率的に揺らぐため、試行錯誤的な解探索が実現し、全ての足が各自の伸長あるいは縮退を維持できる安定状態に到達したとき、SAT 解が得られる(図3)。本研究では、揺らぎ源として、ランダム(無相関)な白色雑音に代えて、時間相関をもつカオス振動子(ロジスティック写像)を用いると、解探索速度が向上することを示した(図 1, 論文 8,9,15)。また、バウンスバック制御規則を改善することにより、さらなる高速化を実現した(論文執筆中)。さ

The diagram illustrates the proposed 16-channel optical switch. It consists of two main parts: the input stage (left) and the output stage (right). The input stage has 16 input ports labeled $L_{1,0}$ to $L_{4,1}$ and 16 output ports labeled $X_{1,0}$ to $X_{4,1}$. The output stage has 16 output ports labeled $X_{1,0}$ to $X_{4,1}$ and 16 input ports labeled $L_{1,0}$ to $L_{4,1}$. The central part shows the 16 channels (Y1,0 to Y4,1) connecting the input and output stages. The top part shows the 16 input and output ports with their respective labels and the 16 channels with their respective labels.

図3: 安定な SAT 解に到達した状態

研究テーマ B)「デバイスによる実装形態を表現し評価するためのモデルの開発」

アーマーバモデルの物理実装を、複数の異なる回路構成により実現した。 デジタル回路(Field Programmable Gate Array; FPGA)を用い、揺らぎ源をカオス振動子により構成することで、変数の数 $N=5,000$ の SAT 解探索の正常動作を確認した(図 1, 論文執筆中)。また、北海道・葛西誠也研究室と共同で、ブレッドボード上のアナログ回路により $N=4$ の SAT 解探索の正常動作を実証した(論文 17)。さらに、ブレッドボード上のアナログ回路とバウンスバック制御を実行するマイコンを組合せる新たな回路構成を確立し、 $N=12$ の SAT 解探索を実証するとともに(図 1)、その性能を最大化する揺らぎの確率と持続時間のパラメータ値の存在を見出した(論文執筆中)。今後この回路構成の集積度を表面実装により向上させ、解探索時間が問題サイズ N の関数としてどう成長するかを評価する。こうして、アーマーバモデルの優位性を、ハードウェアを用いて実験的に検証していくための基盤技術が確立された。

研究テーマ C)「**応用**に適用できるモデルの開発」

自然現象のシミュレーションによく用いられる分子動力学法は、多数の粒子の引力や斥力による集合や離散を記述するが、それ自体では原子間結合の生成と開裂を扱えず、化学反応は表現できない。一方、反応式と反応速度が既知であれば、それらが定義する連立常微分方程式を解くシミュレーション手法が有効であるが、この手法は未知の反応に適用することはできない。未知の反応を扱うには、第一原理計算を基礎とする手法が必要になるが、現在最速のスパコンを用いても、数マイクロ秒以上の計算を実用的な時間内で実行することは難しい。この困難は今後数桁の性能向上が見られたとしても依然として立ちはだかる課題であり、大規模な化学反応の長時間にわたるシミュレーションを実現するには、ハードウェアとソフトウェアの両面で全く新しいアプローチが待望されている。本研究では、アメーバモデルを拡張して、未知の化学反応をシミュレートできるモデルを提案した(図 1,論文 12,特許 1)。ここでは、「バウンスバック制御」の方針を拡張し、原子間の結合の生成や開裂において存在するいくつかの物理化学法則(ルイスのオクテット則、結合解離エネルギー、分極、イオン化等)を確率的制約条件として設定する。このモデルでは、時間発展が一時的に安定化した状態が、安定な分子群の形成に対応する。そして、複数の(準)安定状態間の確率的に遷移として、化学反応が表現される。現段階で、熱力学的安定性(ある状態の維持されやすさ)と反応速度論(ある状態から他の状態への遷移の起こりやすさ)をパラメータ(バウンスバック適用確率)により調節可能となっている。これにより将来、未知の化学反応経路、副生成物、速度論を半定量的に予測するための基礎が固められた。

3. 今後の展開

物理実装

SAT は NP 完全問題であり、多くの複雑な組合せ最適化問題を SAT に変換することができる。よって、高速な SAT 解探索マシンには高い汎用性があり、実社会の多くの組合せ最適化の場面で活躍できると期待される。さきがけ研究により、デジタル回路、アナログ回路、および先端デバイスを用いた物理的ハードウェア実装方法が複数確立され、小さなサイズの SAT 問題につき解探索の正常動作を実証することができた。今後は、大きなサイズの SAT 問題に対し、集積性、高速性、消費エネルギーなどの観点から従来手法と比較してどのような優位性をもっているかを詳細に検証する。そして、そこから明らかとなる優位性を最大限に引き出す形で新たな計算パラダイムを提唱し、様々な社会実装へと展開していく。

社会実装

さきがけ研究により、アメーバモデルを拡張した化学反応シミュレーションモデルが構築され、未知の化学反応経路、副生成物、速度論を半定量的に予測するための基礎が固められた。今後は、確率的制約条件とそれらのパラメータの適切な設定方法を確立し、有機化学合成や新薬の開発などの応用を大きく前進させることを目標とし、研究を進めていく。こうした応用の成功のためには、従来型デジタル計算機上で走るソフトウェア、あるいは、クラウド側で高速計算を実行できる専用ハードウェアの開発が並行して進められる必要があるだろう。

一方、アメーバモデルの特長の一つは、確率的な挙動を示す先端デバイスを用いることで小型・低消費電力で実装できる可能性を有していることである。こうした実装が優位性を発揮するのは、携帯端末や自律航行ロボットなど、エッジ側で低消費電力の高速最適化計算を必要

とするアプリケーションである。そこで今後は、未知の不整地においてもその場で自律的に効率的な航行パターンを発見できる歩行ロボットや自動運転車の制御システムへと組込むことを想定し、センサーから高周波数で更新される入力情報を(中央処理系に伝達することなく)末端部において即座に分散処理できるハードウェアの研究開発を進める(図 1)。

4. 評価

(1) 自己評価

(研究者)

本研究は、さきがけ研究者・青野が定式化した組合せ最適化アルゴリズム「アメーバモデル」について、A)解探索性能を理論的に評価し、B)先端デバイスにより実装するための計算アーキテクチャを具体化し、C)実社会で有用な応用を提案することを目標として進められた。アメーバモデルの物理実装および社会実装の実現のためには、多くの共同研究者の継続的な協力が必要となる。そして、それが実現した先に、未知の答えを自ら導き出す創造的コンピュータを生む新たな計算パラダイムの開拓という大目標に向かう長い道のりが見えてくる。そこで、このさきがけ研究を開始するにあたり、期間内あるいは終了後に、目標 A)、B)、C)のそれぞれの分野の専門家にこれからアメーバ計算の共同研究を継続的に進めてみたいと思わせられるだけの結果と将来像とを提示できるようになっていることを目指した。その観点からすると、現時点で目標 A)、B)、C)のいずれに関しても強力な共同研究者の輪が広がってきており、それらの達成状況は良好であると自己評価したい。期間内の研究実施体制としては、目標 A)、B)、C)の多岐にわたる研究項目の達成のために、多くの協力者による分業体制を上手く確立することができたと考える。具体的には、目標 B)のハードウェア実装を北海道大学・葛西誠也教授とその学生2名および専門業者に担当していただいた。また、さきがけ予算で雇用した学生アシスタントおよび研究補助員(のべ5名)により、目標 A)、C)のプログラム開発や性能評価作業を分担して進めることができた。研究費は、ハードウェアおよびソフトウェアの開発費および人件費に重点的に配分し、研究成果へと直結するように執行することができたと考える。最後に、これらの研究成果の科学技術及び社会・経済への波及効果について、できる限り楽観的な期待を述べる。本さきがけ研究により、アメーバモデルをデジタル回路、アナログ回路、および先端デバイスを用いて物理的に実装する方法が複数確立された。これは将来、高い汎用性をもつ高速な SAT 解探索マシンの開発へとつながり、従来のシリコンデバイスとは異なる確率的な挙動を示す先端デバイスを生産する新たな半導体産業やそこから広がる新たな計算パラダイムの誕生をもたらし得ると期待する。また、本さきがけ研究により、アメーバモデルを拡張した化学反応シミュレーションモデルが構築され、未知の化学反応経路、副生成物、速度論を半定量的に予測するための基礎が固められた。今後、確率的制約条件とそれらのパラメータの適切な設定方法が確立できれば、従来の計算手法では実現できない大規模で長時間の化学反応シミュレーションが可能となり、有機化学合成や創薬などの応用が大きく前進し得ると期待する。

(2) 研究総括評価(本研究課題について、研究期間中に実施された、年2回の領域会議での評価フィードバックを踏まえつつ、以下の通り、事後評価を行った)。

(研究総括)

このテーマはアメーバ計算の基礎理論からアメーバのデバイス実装、応用分野の探索と多岐にわたるが、実験サイドと共同研究することなどにより各方面で進歩が認められる。アメーバ計算の形が次第に見えつつあると考える。特にSAT問題でのベンチマーキングがなされ、CPU 時間では劣るが、反復回数では勝るという、アメーバの物理実装を肯定するデータを示した。またアメーバモデルの化学反応への応用を検討し求核付加反応を表現できた。国際口頭発表 22、国際招待講演 11 が示すように、様々な分野でアメーバ計算の宣伝、普及に努めたことも評価できる。目標通りの成果を達成している。

特に FPGA により アメーバを自作したことは高く評価できる。当面、デジタルアメーバの問題点を洗い出すことに時間を割かれると思われるが、実体化したことによる今後の進化が期待できる。従来の情報処理を超える新しいアーキテクチャーの可能性を示したことで科学技術のみならず実社会へのインパクトは大きいと考えられる。

本さがけ研究領域内で交流の成果が新たな超伝導量子回路を用いたアメーバの共同研究に発展、更に NEDO「IoT 推進のための横断技術開発プロジェクト」への採択に至り、研究者としての飛躍につながった。

今後は超伝導量子回路等のナノデバイス回路にアメーバアーキテクチャーを実装すること、および具体的アプリケーションとしての化学反応シミュレーションの発展に期待が持てる。実用段階では量子アニーリングやコヒーレントイジングマシンなどとの競合も問題になると思われるが、小型化に活路を見出せると考える。更にアメーバの基礎理論は他のゆらぎを用いた計算への応用可能性を有するものである。今後、電子回路の特許出願など知財確保が期待される。

検討により判明した回路のボトルネックや揺らぎ・乱数発生方法などの更なる技術面の深堀と、特に小型・低電力が求められるロボットへの適用などについて研究を深めてほしい。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. S. Kasai, **M. Aono**, M. Naruse, “Amoeba-inspired computing architecture implemented using charge dynamics in parallel capacitance network,” *Applied Physics Letters* 103, 163703 (2013); DOI: 10.1063/1.4826143
2. **青野真士**, 成瀬誠, 金成主, 巳波弘佳, “粘菌アメーバから着想を得た計算パラダイムとナノフォトニクス・電子デバイス実現,” *信学技報 (IEICE Technical Report)* ED2013-132, SDM2013-147, pp. 1-6 (2014).
3. 巳波弘佳, **青野真士**, 成瀬誠, 葛西誠也, “粘菌アメーバ型解探索アルゴリズムとそのナノデバイスによる実現,” *信学技報 (IEICE Technical Report)* COMP2013-71, pp. 77-82 (2014).
4. **M. Aono**, S.-J. Kim, M. Hara, T. Munakata, “Amoeba-inspired Tug-of-War algorithms for exploration-exploitation dilemma in extended Bandit Problem,” *BioSystems* 117, 1-9 (2014); DOI: 10.1016/j.biosystems.2013.12.007
5. W. Nomura, M. Naruse, **M. Aono**, S.-J. Kim, T. Kawazoe, T. Yatsui, M. Ohtsu, “Demonstration of controlling the spatiotemporal dynamics of optical near-field

excitation transfer in Y-junction structure consisting of randomly distributed quantum dots,” *Advances in Optical Technologies*, Volume 2014, Article ID 569684 (2014).

6. M. Naruse, W. Nomura, M. Aono, M. Ohtsu, Y. Sonnefraud, A. Drezet, S. Huant, S.-J. Kim, “Decision making based on optical excitation transfer via near-field interactions between quantum dots,” *Journal of Applied Physics* 116, 154303 (2014); DOI:10.1063/1.4898570
7. M. Naruse, S.-J. Kim, M. Aono, H. Hori, M. Ohtsu, “Chaotic oscillation and random-number generation based on nanoscale optical-energy transfer,” *Scientific Reports* 4: 6039 (2014); DOI:10.1038/srep06039
8. M. Aono, S.-J. Kim, S. Kasai, H. Miwa, M. Naruse, “Amoeba-inspired heuristic search for NP-complete problem solution at the nanoscale,” Proceedings of the 2014 International Symposium on Nonlinear Theory and its Applications (*NOLTA 2014*), pp.499–502 (2014).
9. M. Aono, S.-J. Kim, S. Kasai, H. Miwa, M. Naruse, “Amoeba-inspired spatiotemporal dynamics for solving the satisfiability problem,” *Advances in Science, Technology and Environmentology* Vol. B11, 37–40 (2015).
10. S.-J. Kim, M. Aono, “Decision maker using coupled incompressible-fluid cylinders,” *Advances in Science, Technology and Environmentology* Vol. B11, 41–46 (2015).
11. M. Aono, S. Kasai, S.-J. Kim, M. Wakabayashi, H. Miwa, M. Naruse, “Amoeba-inspired nanoarchitectonic computing implemented using electrical Brownian ratchets,” *Nanotechnology* 26, 234001 (2015); DOI:10.1088/0957-4484/26/23/234001
12. M. Aono, M. Wakabayashi, “Amoeba-inspired heuristic search dynamics for exploring chemical reaction paths,” *Origins of Life and Evolution of Biospheres* 45 (3), 339–345 (2015); DOI:10.1007/s11084-015-9450-5
13. S.-J. Kim, M. Aono, E. Nameda, “Efficient decision-making by volume-conserving physical object,” *New Journal of Physics* 17, 083023 (2015); DOI: 10.1088/1367-2630/17/8/083023
14. M. Naruse, M. Berthel, A. Drezet, S. Huant, M. Aono, H. Hori, S.-J. Kim, “Single-photon decision maker,” *Scientific Reports* 5, 13253 (2015); DOI: 10.1038/srep13253
15. M. Aono, S.-J. Kim, S. Kasai, H. Miwa, M. Naruse, “Amoeba-inspired spatiotemporal dynamics for physically implemented satisfiability problem solvers,” *Proceedings of Pragmatics of SAT 2015* (2015).
16. S.-J. Kim, T. Tsuruoka, T. Hasegawa, M. Aono, K. Terabe, M. Aono, “Decision maker based on atomic switches,” *AIMS Materials Science* 3(1), 245–259 (2016); DOI: 10.3934/matricsci.2016.1.245
17. 若宮 遼, 葛西誠也, 青野真士, 成瀬 誠, 巳波弘佳, “アメーバ型最適化問題解探索アルゴリズムの電子回路実装,” *信学技報 (IEICE Technical Report)* ED2014–152, pp. 81–85 (2015).
18. K. Iwayama, Y. Hirata, M. Aono, L. Zhu, M. Hara, K. Aihara, “Decision-making ability of *Physarum polycephalum* enhanced by its coordinated spatiotemporal oscillatory

dynamics,” <i>Bioinspiration & Biomimetics</i> 11, 036001 (2016); DOI:10.1088/1748-3190/11/3/036001
19. S.-J. Kim, M. Naruse, <u>M. Aono</u> , “Harnessing the computational power of fluids for optimization of collective decision making,” <i>Philosophies</i> 1(3), 245–260 2016; DOI: 10.3390/philosophies1030245
20. S.-J. Kim, M. Naruse, <u>M. Aono</u> , H. Hori, T. Akimoto, “Random walk with chaotically driven bias,” <i>Scientific Reports</i> 6, 38634 (2016); DOI: 10.1038/srep38634.

(2)特許出願

研究期間累積件数:2 件

1.

発 明 者: 青野真士, 若林政光

発明の名称: 物質探索システム及び方法,物質探索プログラム

出 願 人: 科学技術振興機構

出 願 日: 2014/3/20

出 願 番 号: 特願 2014-059133

2.

発 明 者: 金成主, 鶴岡徹, 長谷川剛, 青野正和, 青野真士

発明の名称: 意思決定装置

出 願 人: 物質・材料研究機構

出 願 日: 2016/1/20

出 願 番 号: 特願 2016-008632

(3)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

国際学会招待講演

1. <u>M. Aono</u> , “Amoeba-inspired Beyond-Neumann Computing: Solving Intractable Computational Problems using Nanoscale Photoexcitation Transfer Dynamics,” Swiss-Japanese Workshop on Light and Matter on the Nanoscale, Lausanne, Switzerland, Ecole Polytechnique Federale de Lausanne (EPFL), Oct. 4, 2013.
2. <u>M. Aono</u> , S.-J. Kim, M. Naruse, S. Kasai, H. Miwa, “Amoeba-inspired Nanoarchitectonic Computing,” MANA International Symposium 2014, International Center for Materials Nanoarchitectonics (WPI-MANA), National Institute for Materials Science (NIMS), Tsukuba, March 4–8, 2014.
3. <u>M. Aono</u> , S.-J. Kim, S. Kasai, H. Miwa, M. Naruse, “Amoeba-inspired Heuristic Search for NP-complete Problem Solution at the Nanoscale,” 2014 International Symposium on Nonlinear Theory and its Applications (NOLTA 2014), Luzern, Switzerland, September 14–18, 2014.
4. <u>M. Aono</u> , S.-J. Kim, S. Kasai, H. Miwa, M. Naruse, “Amoeba-inspired Computing Paradigm,” New Challenges in Complex Systems Science, Waseda AICS Symposium and the 14th Slovenia-Japan Seminar, Waseda University, Tokyo, October 24–26, 2014.
5. <u>M. Aono</u> , “Amoeba-inspired Nanoarchitectonic Computing for Solving Computationally

	Demanding Problems (Keynote Lecture),” The 15th edition of Trends in Nanotechnology International Conference (TNT2014), Barcelona, Spain, October 27–31, 2014.
6.	M. Aono , “Amoeba-inspired Computing Systems and Models for Solving Computationally Demanding Problems at the Nanoscale,” Swiss–Japan Workshop 2015, The international workshop on Nanoscale Electron–Photon Interactions via Energy Dissipation and Fluctuation, Les Diablerets, Switzerland, September 7, 2015.
7.	M. Aono , “Amoeba-inspired Computing: Chemical Reaction as Solution Searching,” Workshop on Proto-computation and Proto-life, Harvard University, Boston, MA, USA, December 10, 2016.
8.	M. Aono , “Amoeba-inspired Computing Architectures,” MANA International Symposium 2017, International Center for Materials Nanoarchitectonics (WPI-MANA), National Institute for Materials Science (NIMS), Tsukuba, February 28– March 3, 2017.

国内学会招待講演

1.	青野真土 , “粘菌に学んだアメーバ計算パラダイム,” 第 23 回 SKIL フォーラム, 特定非営利活動法人科学知総合研究所 (SKIL), 武田先端知ビル, 東京大学本郷キャンパス, 2013 年 10 月 18 日.
2.	青野真土 , “知性と生命の起源を探索するアメーバ計算モデル,” 電子情報通信学会 情報ネットワーク科学研究会, 関西学院大学 大阪梅田キャンパス, 大阪市, 2013 年 11 月 22 日.
3.	青野真土 , “ナノ光励起移動の時空間ダイナミクスによる組合せ最適化問題解探索,” レーザー学会年次大会 シンポジウム「プラズモン・ナノフォトニクス」, 小倉市国際会議場, 小倉市, 2014 年 1 月 22 日.
4.	青野真土 , 成瀬誠, 金成主, 巳波弘佳, “粘菌アメーバから着想を得た計算パラダイムとナノフォトニクス・電子デバイス実現,” 電子情報通信学会 電子デバイス研究会, 北海道大学, 2014 年 2 月 27 日.
5.	青野真土 , “粘菌アメーバの解探索ダイナミクスに着着想を得た生化学シミュレーションモデル,” 総研大「生命概念の普遍化—宇宙の生命」第5回研究会, 広島大学学士会館, 2014 年 6 月 19 日.
6.	青野真土 , “アメーバ計算パラダイム: 時空間ダイナミクスによる最適解探索,” 複雑コミュニケーションサイエンス次元研究専門委員会パネルセッション, 電子情報通信学会総合大会, 立命館大学, 草津市, 2015 年 3 月 11 日.
7.	青野真土 , “粘菌アメーバから着想を得た計算パラダイム,” 第 2 期第 2 回(通算第 15 回) レーザー学会技術専門委員会「レーザーのカオス・ノイズ・ダイナミクスとその応用」, 理化学研究所 東京連絡事務所, 2015 年 7 月 31 日.
8.	青野真土 , “アメーバ計算から自然知能へ,” 第 2 回自然知能セミナー, 東京工業大学地球生命研究所, 2016 年 4 月 21 日.
9.	青野真土 , 成瀬誠, 葛西誠也, 金成主, “アメーバ計算パラダイム: 自然知能デバイスの創生,” 応用物理学会第 10 回集積化 MEMS 技術研究会, 東京大学駒場リサーチキャンパス, 2016 年 5 月 20 日.

10. **青野真土**, “自然知能システム: 粘菌の計算パワーを活用する,” シンポジウム「人工生体プログラマブルシステム ～精密構造設計から分子ロボティクスへ～」, 第 54 回日本生物物理学会年会, つくば国際会議場, 2016 年 11 月 27 日.
11. **青野真土**, “粘菌アメーバに学んだ自然計算デバイス,” 第 70 回研究会「脳型コンピューティングの最前線～生物、ニューロモルフィックから人工知能まで～」, 超精密加工専門委員会, 精密工学会, メルパルク大阪, 2016 年 12 月 16 日.
12. **青野真土**, “アメーバ型アルゴリズムから自然計算デバイスへ,” シンポジウム「ナチュラルコンピューティングとレーザーカオス」, レーザー学会学術講演会第 37 回年次大会, 徳島大学, 2017 年 1 月 8 日.
13. **青野真土**, “粘菌アメーバに学んだナノアーキテクニクス計算,” 応用物理学会 有機分子・バイオエレクトロニクス分科会 2 月研究会「生命知能が紡ぐ次世代コンピューティング～分子エレクトロニクスへの展開は可能か?～」東京大学駒場キャンパス, 2017 年 2 月 21 日.

国際学会発表

1. **M. Aono**, “Amoeba-inspired heuristic search dynamics for exploring the origins of life (oral),” The 2nd ELSI (Earth-Life Science Institute) International Symposium, Tokyo, Japan, March 24–26, 2014.
2. **M. Aono**, “Solution-searching models for exploring the origins of life (oral),” Origins 2014, Nara-ken New Public Hall, Nara, Japan, July 6–11, 2014.
3. **M. Aono**, S.-J. Kim, M. Wakabayashi, S. Kasai, H. Miwa, M. Naruse, “Amoeba-inspired spatiotemporal dynamics for physically implemented satisfiability problem solvers (oral),” Pragmatics of SAT 2015, Austin, Texas, United States, September 23, 2015
4. **M. Aono**, “Amoeba-inspired computing paradigm for solving NP-complete problems at the nanoscale (oral),” Workshop on Nanoscale Parallel Computing and Decision Making, Tampere, Finland, November 2, 2015.
5. **M. Aono**, “Amoeba-inspired search dynamics for simulating collective dynamics of attracting and repelling units (poster),” Gordon Research Conference on Protein Folding Dynamics, Galveston, Texas, January 11–12, 2016.
6. **M. Aono**, “Amoeba-inspired heuristic search dynamics for semi-quantitative estimation of unknown chemical kinetics (oral),” CINF 96, Division of Chemical Information, 252nd American Chemical Society National Meeting, Philadelphia, PA, USA, August 25, 2016.
7. **M. Aono**, “Amoeba-inspired heuristic search dynamics for simulating complex chemical reaction networks (oral),” 5th Japan-Korea Joint Workshop on Complex Communication Sciences, Pukyong National University, Busan, Korea, October 21, 2016.

国内学会発表

1. 葛西誠也, **青野真土**, 成瀬誠, 巳波佳弘, 若宮遼, “最適化問題探索電子アメーバ,” 第 61 回応用物理学会春季学術講演会 (講演予稿集 p. 09–070), 相模原市, 2014 年 3 月 17 日.
2. **青野真土**, 野村航, 成瀬誠, 金成主, 大津元一, “量子ドット間近接場光励起移動を用い

た意思決定機構とその基礎実験,” 第 61 回応用物理学会春季学術講演会 (講演予稿集 p. 03-109), 相模原市, 2014 年 3 月 17 日.
3. 青野真士 , “化学進化の反応経路を探索する複雑系計算モデル,” 日本進化学会 第 16 回大阪大会 ワークショップ「初期地球での生命誕生プロセスの網渡り」, 高槻現代劇場, 2014 年 8 月 23 日
4. 若宮遼, 葛西誠也, 青野真士 , 成瀬誠, 已波弘佳, “粘菌型解探索システムにおける自発的解探索の検討,” 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 講演番号 19a-A7-6, 北海道大学, 札幌市, 2014 年 9 月 19 日.
5. 若宮遼, 葛西誠也, 青野真士 , 成瀬 誠, 已波弘佳, “アメーバ型最適化問題解探索アルゴリズムの電子回路実装”, 電子情報通信学会電子デバイス・シリコン材料デバイス合同研究会, 札幌市, 2015 年 2 月 6 日.
6. 若宮 遼, 葛西誠也, 青野真士 , 成瀬 誠, 已波弘佳, “アメーバ型 SAT アルゴリズムの電子回路実装と動作速度,” 電子情報通信学会総合大会 (講演論文集 p. 57), 草津市, 2015 年 3 月 11 日.
7. 斉藤健太, 葛西誠也, 青野真士 , “電子アメーバにおけるエラーと SAT 解探索効率の関係,” 2016 年電子情報通信学会ソサイエティ大会, 講演番号 C10-01, 北海道大学, 札幌市, 2016 年 9 月 21 日.

受賞

1. 青野真士 , 平成 27 年度 電子情報通信学会 NOLTA ソサイエティ 貢献賞 (研究専門委員会運営; 複雑コミュニケーションサイエンス研究専門委員会の運営及び活動に対する貢献), 2015 年 9 月 9 日.
2. 青野真士 , 平成 28 年度 文部科学大臣表彰「若手科学者賞」, 粘菌アメーバに着想を得た革新的コンピュータの研究, 2016 年 4 月 20 日.

著作物

1. M. Naruse, N. Tate, M. Aono , M. Ohtsu, “Nanointelligence: Information Physics Fundamentals for Nanophotonics,” In: M. Naruse (ed.), Nanophotonic Information Physics (Springer, Berlin), pp. 1-39 (2014).
2. M. Aono , S.-J. Kim, M. Naruse, M. Wakabayashi, H. Hori, M. Ohtsu, M. Hara, “A Nanophotonic Computing Paradigm: Problem-Solving and Decision-Making Systems Using Spatiotemporal Photoexcitation Transfer Dynamics,” In: M. Naruse (ed.), Nanophotonic Information Physics (Springer, Berlin), pp. 223-244 (2014).
3. 青野真士 , “粘菌計算,” 「自然計算へのいざない」小林聡, 萩谷昌己, 横森貴 編著 (ナチュラルコンピューティング・シリーズ 第 0 巻), 近代科学社, 第 6 章, 167-194 (2015); ISBN-13: 978-4764904880.

メディア報道等

1. リクルート・キーマンズネット (オンラインニュース), “「粘菌型コンピュータ」って何だ?,” 2013 年 10 月 16 日.
2. TV Bros., わらしべマッドサイエンティスト 第 80 回 “粘菌アルゴリズム,” 2013 年 10 月 26 日.

3. SPIE Newsroom (米国オンラインニュース), “Nanophotonics for efficient solution searching and decision making,” 2014 年 1 月 6 日.
4. JST News (科学技術振興機構発行月刊誌) 裏表紙, さきがける科学人 Vol.30, “粘菌の動きで問題解決,” 2014 年 10 月 1 日.
5. 結界師: お殿様, 小学館コミック(My First Big), “スペシャル対談: 田辺イエロウ×青野真士,” 2015 年 4 月 15 日.
6. Phys.org (英国オンラインニュース), “Amoeba-inspired computing system outperforms conventional optimization methods,” 2015 年 6 月 1 日.
7. Nanotechweb.org (英国オンラインニュース), “Lab Talk: The wisdom of amoeba outperforms artificial intelligence,” 2015 年 6 月 8 日.
8. NICT/NIMS プレスリリース, “単一光子を用いた意思決定の実証に成功,” 2015 年 8 月 19 日.
9. Phys.org (英国オンラインニュース), “Researchers show that an iron bar is capable of decision-making,” 2015 年 8 月 24 日.
10. Mail Online (英国オンラインニュース), “Do inanimate objects THINK? Scientists claim that an iron bar can make 'decisions',” 2015 年 8 月 24 日.
11. MIT Technology Review (米国オンラインニュース), “First demonstration of photonic intelligence,” 2015 年 9 月 10 日.
12. Nanotechweb.org (英国オンラインニュース), “Single photons could help make complex decisions,” 2015 年 9 月 16 日.
13. Phys.org (英国オンラインニュース), “Single photon decision-maker solves multi-armed bandit problem,” 2015 年 9 月 17 日.
14. Nature Japan (オンラインニュース), “Single-photon decision maker,” 2015 年 10 月 26 日.
15. 日経産業新聞, “半導体の革新: 粘菌にヒント,” 2015 年 12 月 7 日.
16. 日経産業新聞, “次世代の先導者: 粘菌まねたコンピューター ～生命の起源解明に懸ける～,” 2016 年 1 月 14 日.
17. Nanotechweb.org (英国オンラインニュース), “Fostering strategies in materials design,” 2016 年 3 月 30 日.
18. CREST・さきがけ ナノエレクトロニクス研究領域 News Letter vol. 3, “「アメーバ型」探索コンピュータをナノエレクトロニクスにより実現するアーキテクチャを設計,” 2016 年 3 月.
19. 東工大ニュース (東工大ホームページ), “平成 28 年度科学技術分野の文部科学大臣表彰で「若手科学者賞」を受賞,” 2016 年 5 月 11 日.
20. NEDO ニュースリリース, “IoT 推進のための横断技術開発プロジェクトに着手—2030 年の高度 IoT 社会を支える基盤技術を開発—,” 2016 年 7 月 8 日.

研究報告書

「二次元原子薄膜の積層システムの創製とナノエレクトロニクスへの展開」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 平成 25 年 10 月～平成 29 年 3 月

研究者: 吾郷 浩樹

1. 研究のねらい

炭素からなる極薄の二次元層状物質であるグラフェンをはじめとして、原子レベルあるいは数 nm の厚みしかもたない「原子薄膜」が近年大きな注目を集めている。原子薄膜は、バルクの層状材料とは大きく異なる電子構造をもち、間接バンドギャップのバルク半導体が直接バンドギャップの原子薄膜に変わるなど、ユニークな特徴をもつことが明らかにされている。さらに、原子レベルで薄い材料であることから、透明でフレキシブルなデバイスへの応用も期待されている。材料の観点からも、極めて高い移動度を示すグラフェンをはじめ、層状の絶縁体である六方晶窒化ホウ素 (h-BN)、可視域にバンドギャップをもつ遷移金属ダイカルコゲナイド (TMDC) と呼ばれる半導体、そして高いオン/オフ比と移動度を併せ持つ黒リンといった様々な二次元原子薄膜材料が次々と報告されている。このように多様な物性をもつ原子薄膜を合成し、それらを積層化によって融合させることは、人工的な層状物質の創製につながり、多様な機能をインテグレートした新たな電子・光機能材料の創出へと発展するものと期待できる。

本研究では、種々の原子薄膜を制御して大面積に合成する手法を確立するとともに、それらを用いた積層システムを作製して機能を発現させることを目指した。特に、多くの二次元材料の基盤をなす h-BN 薄膜、および高い移動度とオン/オフ比を示す黒リンなどの CVD 合成技術の開発を試みた。同時に、二次元材料のヘテロ構造を創出し、新たな機能の付与やフレキシブル・エレクトロニクスへの展開を進めた。このような一連の取り組みを通じて、次世代のナノエレクトロニクス開発のための要素技術の構築に資する研究を推進した。

2. 研究成果

(1) 概要

近年、グラフェンの研究を契機として、様々な層状物質の原子薄膜がバルクにはない特徴的な性質を示すことから大きな注目を集めている。本研究では、図 1 に示すように、CVD 法によって多様な原子薄膜を制御して合成する技術を開発するとともに、複数の原子薄膜からなる積層システムを実現することで、世の中に存在しない人工的な層状物質を創り出し、ナノエレクトロニクスの世界に新たな可能性を提示するこ

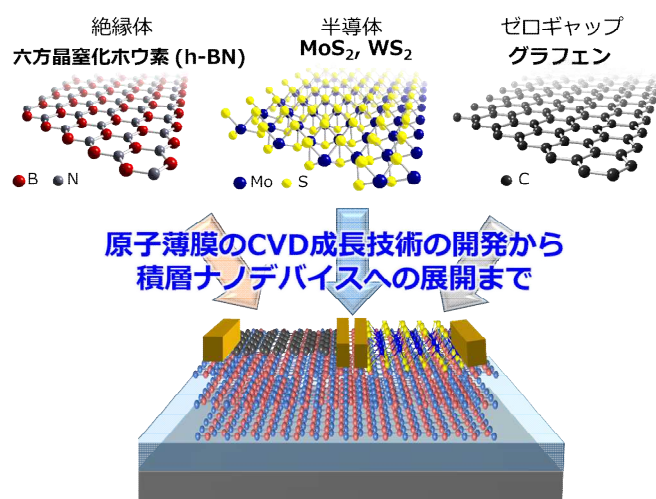


図 1 本さがけ研究で目指したこと。二次元原子薄膜の合成技術の開発を通じて積層システムへと展開し、ナノエレクトロニクス発展のシーズとする。

とを目的として研究を行ってきた。

原子薄膜の CVD 成長では、高い絶縁性と原子レベルの平坦性を有し、単層グラフェンや TMDC の電子デバイスの基板として優れた役割を果たす h-BN の合成に関する研究を行った。サファイア上に堆積した高結晶性 Cu(111)薄膜上で単層 h-BN のみならず、多層 h-BN の CVD 成長の研究開発も進めた。金属触媒、原料、合成雰囲気等を制御することで、均一性に優れた多層 h-BN を合成する手法を見出した。この多層 h-BN 上に WS_2 を CVD 合成したところ、 SiO_2 やサファイア上に成長させたものよりも WS_2 の蛍光が 10 倍以上も強くなり、クオリティが非常に高い多層 h-BN が得られたことが分かった。

ヘテロ構造の創出に関しても、グラフェンと MoS_2 の積層構造を CVD 法で得られることを実証するとともに、 MoS_2 がグラフェン上ではエピタキシャルに結晶方位を揃えて成長することも見出した。このことは CVD で直接成長することで清浄な界面が得られることを示している。この研究はグラフェンナノリボンと TMDC のヘテロ構造の創出やその光センサー応用、多結晶グラフェンのグレイン構造の解析などにも展開できた。また、多層グラフェンを電極に用いた WS_2 のフレキシブルデバイスを作製し、グラフェン電極が通常の金属電極よりもコンタクト性に優れていることなども見出した。このような一連の原子薄膜材料の CVD 成長、ならびにそれらを統合したヘテロ構造デバイスの創出は、超低消費電力デバイスなど次世代のナノエレクトロニクスや IoT への応用に展開できるものと期待される。

(2) 詳細

研究テーマ1「原子薄膜の CVD 成長技術の開発」

1. 1. h-BN 原子薄膜の CVD 成長

グラフェンと同じ六方格子をもち、ホウ素と窒素原子からなる層状物質である h-BN は、二次元原子薄膜の中でも特異的に大きなバンドギャップ (5.9 eV) と優れた絶縁特性を有する。h-BN は、グラフェンなどの原子薄膜と層間ファンデルワールス相互作用を示す絶縁性基板として、大きな期待を集めている。一般に単層グラフェンの電界効果トランジスタ(FET)をシリコン基板上で作製すると、グラフェンのキャリア移動度は数千から、高くても $1 \text{ 万 cm}^2/\text{Vs}$ 程度であることが知られている。一方、グラフェンチャネルの下面を、剥離した h-BN 片によりシリコン表面から保護すると、グラフェンの移動度が $3\text{--}5 \text{ 万 cm}^2/\text{Vs}$ にまで向上することが分かっている (C. R. Dean et al., *Nat. Nanotechnol.*, **5**, 722 (2010))。この h-BN 片によるグラフェンの移動度向上は、シリコン表面にある電荷不純物、表面の凹凸や光学フォノンなどを h-BN が遮へいするためであると説明されている。TMDC においても、 MoS_2 の上下両面を剥離 h-BN 片で保護することで、10 K という低温ながら $34,000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ という高いキャリア移動度が報告されている (X. Cui et al., *Nat. Nanotechnol.*, **10**, 534 (2015))。また、光学的にも WS_2 を h-BN 剥離片の上に CVD 成長させることで、 WS_2 の蛍光スペクトルがシャープになるとともに、蛍光強度が著しく強まることが報告されている (M. Okada et al., *ACS Nano*, **8**, 8273 (2015))。

しかしながら、世界中で用いられている h-BN 片は、バルク単結晶から剥離して得られたもので、剥離片のサイズは数 μm 程度と非常に小さい上、厚さや形状に大きなばらつきがある。そのため、原子薄膜の応用を考える上で、この h-BN の大面積・均一合成が非常に大きな課題となっておりつつある。

そこで、本研究では、大面積に低コストで原子薄膜の合成が可能な CVD 法を用い、高品質な h-BN の合成を試みた。この際、大面積化と高品質化の両立を目的として、サファイア上にエピタキシャルに Cu(111)薄膜を製膜し、それを h-BN 成長の触媒基板として用いた。図 2(a)に示す CVD 反応器を用い、アンモニアボラン(BH_3NH_3)を原料として、h-BN の成長を行った。その結果、図 2(b)のように、単層 h-BN が、その単結晶グレインの方位を揃えて成長できるようになった。ここでは、Cu(111)面の対称性を反映して、h-BN の三角形グレインは二方向を向いている。さらに、CVD 時間を延ばすことで 10 mm 角の Cu(111)基板全面に単層 h-BN を合成することができた。この h-BN/Cu(111)からの低エネルギー電子線回折 (LEED) のパターンが図 2(c)である。下地の Cu と h-BN からの回折スポットがほぼ同じ位置に観察されており、h-BN の方位が Cu(111)によって決定されていることが確認された。その構造を図示したのが、図 2(d)である。理論計算により、h-BN 三角形グレインが窒素原子で終端され、かつ Cu 原子の上に窒素原子が位置するように生成していると考えられる。この単層 h-BN シートを用い、グラフェン/h-BN のヘ

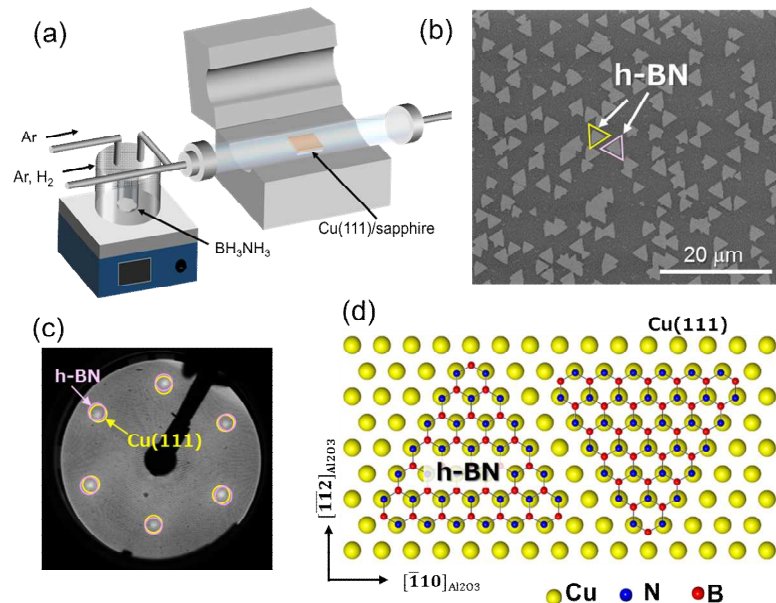


図 2 単層 h-BN のエピタキシャル CVD 成長。(a) CVD のセットアップ。(b) Cu(111) 上で配向成長した h-BN の三角形グレイン。(c) 単層 h-BN 膜の LEED パターン。(d) LEED から決定された h-BN グレインの結晶方位。

テロ構造を作製して、グラフェンの FET を評価したところ、単層 h-BN シートでは、上述の遮へい効果が十分でないことが分かった。この単層 h-BN の成果については、*Phys. Chem. Chem. Phys.*, in press (2017) (DOI: 10.1039/C6CP08903H)に発表した。

そこで、h-BN の多層膜の合成に関する検討を始めた。しかし、多層グラフェンの CVD 合成で知られている通り、一般的に金属触媒を用いた CVD で均一な多層膜を合成するのは非常に困難である。なぜなら、原料の触媒への溶解と、その後の原子薄膜の析出の制御、つまり析出量(溶解量)と析出点の制御が難しいからである。しかし、触媒金属、反応原料、結晶基板、CVD プロファイルなどを全面的に見直して検討を行ったところ、従来は剥離でしか得られなかった多層 h-BN 膜を、CVD 法で合成できるようになった。多層 h-BN の膜厚均一性や平坦性は十分高くなる可能性を見出している。さらに、この多層 h-BN 上に WS_2 を成長させたところ、 WS_2 から非常に強く、かつシャープな蛍光を観察することができた。この結果は、本研究で合成した多層 h-BN が原子薄膜に対する絶縁膜として十分な特性を備えていることを示している。

1. 2. 他の原子薄膜の CVD 成長法の開発

h-BNに加え、他の原子薄膜の CVD 成長に関しても研究を行ってきた。合金触媒を用いて 90%

以上の被覆率の二層グラフェンの合成に成功するなどした。他の材料に関しては現在も研究を継続中である。二層グラフェンに関しては、*Chem. Mater.*, **28**, 4583 (2016) に掲載され、ACS Editors' Choice としてハイライトされるとともに、同誌の表紙も飾っている。

研究テーマ2「ヘテロ積層薄膜の創製と応用」

2. 1. MoS₂/グラフェンのヘテロ積層構造

異なる物性をもつ原子薄膜を積層することは、電氣的・光学的にも興味深い。優れたキャリア輸送特性をもつグラフェンに、可視域に吸収をもつ MoS₂ の原子薄膜を積層成長させることは、グラフェンに光機能性をもたせるという観点から有効であると期待できる。そこで、まず六角形の形状をもつ単層グラフェンの単結晶グレインを Cu 上で合成し、それをシリコン基板に転写後、MoO₃と硫黄を用いた CVD により MoS₂を合成した。その結果、図 3(a)の原子間力顕微鏡 (AFM) 像に示すように、三角形の形状をもつ MoS₂ グレインを、六角形の形状のグラフェングレイン上に合成することができた。これらのグレインは、図 3(b)で分かるように、配向成長しており、単層グラフェンの六方格子によって、MoS₂ が方位を揃えて成長したことを示している。そのイ

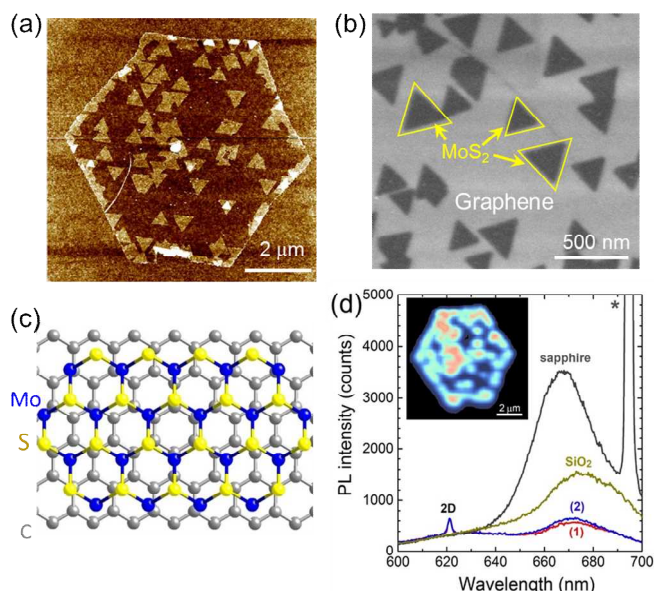


図3 MoS₂/グラフェンの積層ヘテロ構造。(a)単層グラフェンの六角形グレイン上に選択的に単層 MoS₂の三角形グレインが生成する。(b)配向した MoS₂グレインの SEM 像。(c) MoS₂/グラフェンの原子モデル。(d) グラフェンとサファイア、SiO₂の上の MoS₂の蛍光スペクトル。グラフェン上(1)と(2)で強く蛍光がクエンチされており、層間相互作用が強いことを示している。

メージが図 3(c)である。両者の格子定数は大きく異なるものの、上から見たときの六角格子が向きを揃えるように MoS₂ が成長する。グラフェン上に MoS₂ を直接的に成長させることにより、図 3(d)に示すように MoS₂ からの蛍光が大きくクエンチされ、二枚の原子薄膜間の強い層間相互作用が観測された。これは MoS₂ からグラフェンへのエネルギー移動に起因すると解釈しており、転写で積層した CVD 膜ではこの蛍光のクエンチが見られなかったことから、直接成長によって強い層間カップリングをもたらしたといえる。

なお、反応時間や基板の位置などの制御によって、グラフェン全面にも MoS₂を成長させることもできることも確認しており、界面に不純物の存在しない MoS₂/グラフェンヘテロ構造を CVD 法により実現することができた。この成果は *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **7**, 5265 (2015) に掲載された。

2. 2. グラフェンナリボン-MoS₂ヘテロ構造

グラフェンナリボン (GNR) は、グラフェンがバンドギャップをもたないという課題を解決する一

つの材料として期待されている。本研究では当該研究者が行ってきた CVD 法によって合成する GNR をテンプレートとして、 MoS_2 の成長とその光ディテクターとしての応用を検討した。図 4(a-c) に示すように、合成条件の制御により GNR 表面に部分的、あるいは全面に MoS_2 を成長させることができた。ここで興味深いのは、シリコン基板には MoS_2 が観察されないことで、ファンデルワールス相互作用により優先的にグラフェンのような二次元材料に MoS_2 が成長することを示している。

このヘテロ構造の FET を作製し、波長 532 nm の可視光に対する応答性を調べたのが図 4(e)である。光照射とともに、グラフェンの電荷中性点(Dirac 点)が負にシフトすることが明らかとなった。40 W/m² の光に対して 16-17%もの電流変調が観察された。このように、ヘテロ構造化することにより、グラフェンの FET に光機能性をもたせることができるようになった。本成果は *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 17, 2510 (2015) に掲載された。

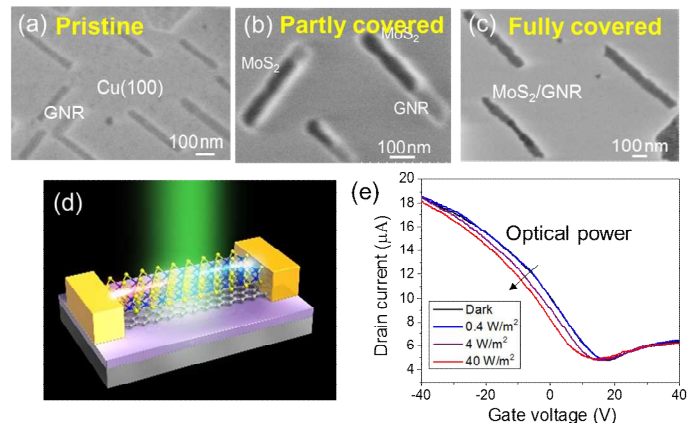


図 4 GNR への MoS_2 の選択成長と光ディテクター応用。(a) 未処理の GNR。(b) 部分的に MoS_2 で覆われた GNR。(c) 全面が MoS_2 で被覆された GNR。(d) 光ディテクターのイメージと (e) FET の光変調の結果。

2. 3. グラフェンのグレイン構造解析

CVD グラフェンにおいて、結晶粒界(グレインバンダリー)の存在が、キャリア移動度の低下やシート抵抗の増大、機械強度の低下など様々な物性値の低下につながることが知られている。しかし、グラフェンのグレイン構造の観察は、透過型電子顕微鏡(TEM)などの高価な装置が必要で、しかもデバイスの観察には利用できないという問題があった。そこで、本さがけ研究で開発した「グラフェン上への MoS_2 のエピタキシャル成長」の技術を、グラフェンのグレイン構造の解析に応用した(図 5(a))。ここで多結晶グラフェンは、市販の Cu ホイルを用いて合成を行った。

グラフェン上に MoS_2 を成長させ、走査型電子顕

微鏡(SEM)で MoS_2 の方向分布を測ることにより、多結晶グラフェンのグレイン構造を可視化する

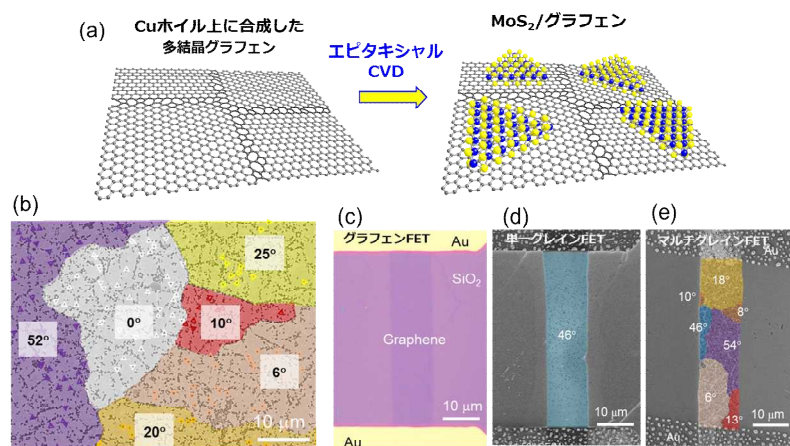


図 5 (a) MoS_2 のエピタキシャル成長による多結晶グラフェンの方位解析のイメージ。(b) 実験的に決定された多結晶グラフェンのグレイン構造。(c) グラフェン FET の光学顕微鏡と (d, e) MoS_2 によるラベリングにより明らかとなったグラフェンチャネルのグレイン構造。

ことができた(図 5(b))。図 5(c)は、グラフェン FET の光学顕微鏡写真であるが、このグラフェンのチャンネルが単結晶か多結晶か、もし後者の場合、チャンネル内に何個のグレインを含んでいるか、などは分からない。しかし、MoS₂ による可視化を用いると、図 5(d,e)のようにシングルグレインとマルチグレインを明瞭に区別できる。これら異なるグレインを構造をもつグラフェン FET を比較すると、シングルグレインの方がマルチグレインよりも移動度が高く、かつ Dirac 点がよりゼロ V に近いことが明らかになった。これらの結果から、グラフェンの結晶粒界が、転写時のポリマー残渣などをトラップし、物性の低下につながっているものと結論づけられた。この新しい可視化の方法は、ACS Nano, 10, 3233 (2016) に掲載された。

2. 4. TMDC-TMDC のヘテロ構造の合成

本研究では、グラフェンと TMDC のヘテロ構造に加え、異なる TMDC 同士の積層ヘテロ構造の合成も進めた。図 6 がその一例である。WS₂ の上にも MoS₂ をエピタキシャルに成長できることを確認した (ACS Nano, 10, 3233 (2016))。この MoS₂/WS₂ のヘテロ構造は、タイプ II の半導体の組み合わせであり、整流作用など、デバイス応用の観点からも興味深い対象である。なお、これとは異なる合成法で TMDC のヘテロ構造を合成し、太陽電池へと応用することを目指した研究を行っており、本さがけ研究の終了後も継続して進める計画である。

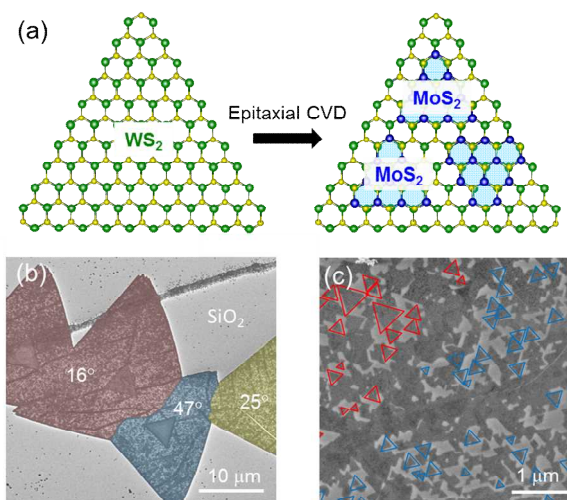


図 6 (a) WS₂ 上への MoS₂ の積層 CVD 成長。(b) MoS₂ の向きから判断した WS₂ のグレインの方位。(c) WS₂ 上の MoS₂ グレインの SEM 像。

2. 5. 二次元ヘテロ構造によるフレキシブルトランジスタへの応用

二次元原子薄膜の特徴である機械的柔軟性と透明性を活用し、フレキシブルデバイスへの展開を目指した。デバイスの作製には、単層 WS₂、多層グラフェンをそれぞれ独立に CVD で合成し、リソグラフィーやプラズマ処理でパターニング後に多重転写により積層デバイスとした。ここで WS₂ と多層グラフェンはそれぞれチャンネル材料、電極材料として用いている。

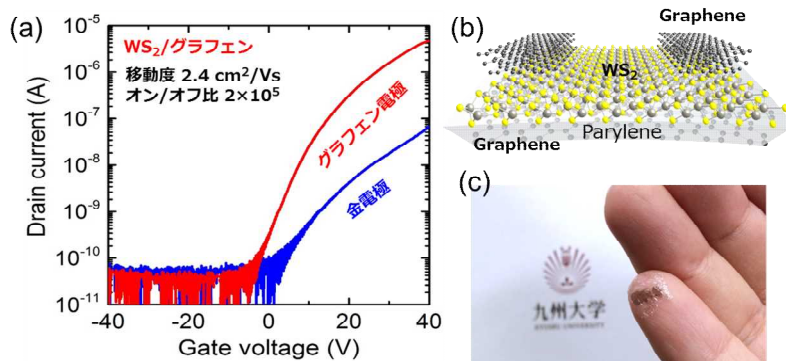


図 7 (a) グラフェンを電極にした WS₂ の FET と一般的に金属を電極として用いた WS₂-FET の比較。(b, c) 極薄のパリレン上に作製したグラフェン/WS₂ ヘテロ積層デバイスのイメージと写真。

図 7(a)は WS_2 をチャネルとした FET で、一般的に用いられる Au/Ti 電極と、CVD で合成した多層グラフェンを電極として SiO_2 基板上で比較したものである。多層グラフェンの方がオン電流、オン/オフ比ともに Au/Ti 電極よりもはるかに高く、 WS_2 のような二次元材料にはファンデルワールス相互作用をするグラフェンの方が電極材料として優れたコンタクトを提供することを明らかにできた。この多層グラフェン電極を用いて得られた WS_2 の電子移動度は、世界トップクラスの値である。最後に、この積層デバイスを厚さ $1\text{ }\mu\text{m}$ と非常に薄いパリレン基板上で転写して、フレキシブルデバイスとした(図 7(b,c))。この成果は現在論文としてまとめているところである。

3. 今後の展開

二次元原子薄膜は、材料と物性の多様性、それらの豊富な組み合わせ、機械的柔軟性、および光透過性などから、様々な応用が期待されている。本研究では、単層 h-BN の CVD 成長から多層 h-BN の成長へとシフトし、現在は均一な多層 h-BN 膜の合成法を確立しつつある。多層 h-BN は、グラフェンや TMDC を用いたデバイスのプラットフォームとなることから、二次元薄膜デバイスで重要な位置を占める。本さきがけの研究シーズをさらに発展させることにより、高品質で大面積の h-BN を様々な形で供給できるようになり、二次元材料の分野に大きなインパクトを与えるとともに、グラフェンなどの機能向上にもつながることから社会的な波及効果も期待できる。二層グラフェンに関しても、再現性良く合成できるようになっており、今後、積層様式の高度な制御を通じて、グラフェンの半導体応用の可能性が拓けるものと考えている。また、二層グラフェンの層間を利用したインターカレーションについても興味深い結果が得られはじめている。原子薄膜の積層システムに関しては、本研究で得たエピタキシャル成長技術を発展させ、超低消費電力のデバイス応用へと発展できるものと考えている。このように本さきがけ研究の成果をベースにして、科学的にも産業的にもさらなる発展が期待できる。

4. 評価

(1) 自己評価

(研究者)

本研究の目標である、二次元ヘテロ構造の創出では、グラフェンと MoS_2 の組み合わせ、および MoS_2 と WS_2 の組み合わせで、積層構造をエピタキシャルに成長できることを見出した。このことは、他の二次元材料の組み合わせにも発展でき、今後につながるものとして期待できる。その一方、応用という面からは、ヘテロ構造ならではのデモンストレーションが十分ではなく、(二次元材料の今後の進展ともリンクするが)アプリケーションの開発の必要性を強く感じた。なお、この方向に関しては、超低消費電力デバイスを目指した研究に着手しており、今後も推進していきたいと考えている。

一方、h-BN の合成では、単層膜から多層膜へとシフトし、均一な多層膜の CVD 成長を実現しつつあることは、さきがけの大きな成果である。多層 h-BN については、従来剥離膜しか得られなかったものが、大面積に CVD で合成できるようになれば、二次元原子薄膜材料の分野に大きなインパクトを与え、今後の原子薄膜デバイスの発展に多大な寄与をするものと期待できる。これも副総括、アドバイザーの助言や励ましのおかげと感謝している。この他にも二層グラフェンなどの研究開発も行い、90%以上の割合で二層が選択成長できるようになったことは、大きな進展である。その他の二次元材料で、1年半以上に亘る検討にもかかわらず合成に至らなかったも

のもある。これについては、かなり挑戦的な課題であることから、長期的な視点で今後も継続して進めていく計画である。このように二次元材料の合成を中心として、先駆的な研究を行えたと自負している。今後は、このさきがけ研究の経験を活かし、オリジナリティを一層追及して大きなインパクトを与える研究を目指して進めていきたいと考えている。

(2) 研究総括評価(本研究課題について、研究期間中に実施された、年2回の領域会議での評価フィードバックを踏まえつつ、以下の通り、事後評価を行った)。

(研究総括)

目標は、様々な2次元ヘテロ材料の大面积積層技術を開発するとともに、それを用いた新奇デバイスの可能性を明らかにすることであった。しかしながら2015年度末までに結晶膜の大きさはいずれも10~20 μm 角程度と目標の大面积化には至っていない。またこれらを用いて作製した FET の特性に特筆すべきものはなかった。そこで研究テーマを大面积多層 h-BN の成長に絞り込むとともに、エネルギーギャップ・移動度の点で最近注目を集め、本人の希望の強い黒リンの成長を新たに研究項目として設定した。

h-BN の CVD 成長に関しては、多層化を制限していた要因の解明と対策を行い(Fe 合金触媒および窒素キャリアガスの採用)多層化を可能にするるとともに、その上に成長した WS_2 の高品質化(PL スペクトル半値幅の低減、バルク h-BN 上成長と同レベル)を実現した点は、新たな2次元ヘテロ構造開拓につながる成果と考える。大面积化についてはグレインサイズが5 μm 角程度と小さく、更なる改善が望まれる。新規デバイスについては、大面积化、高品質化、物性解明を優先させるべきと考える。

黒リンについては研究期間が1年弱と短く、原子層膜は得られていない。本テーマ追加からの研究期間が短かったのでやむを得ないと感じるが、さきがけ内で研究するよりは、自主研究とすべきであったかもしれない。

多層 h-BN 膜の合成において、ホウ素、窒素の溶解度を高めることをポイントに置いて、金属触媒の合金化を推し進め、徹底した温度制御により、粒径の増大を短期間に実現させた。今後の二次元膜材料の応用に向け貴重な成果である。今後、良質な多層 h-BN の供給を行うことで、その開発を推進することができれば、ナノエレクトロニクス分野全体の振興に向けて大きな貢献になると期待している。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. H. Ago,* H. Endo, P. Solís Fernández, R. Takizawa, Y. Ohta, Y. Fujita, K. Yamamoto, M. Tsuji
“Controlled van der Waals epitaxy of monolayer MoS_2 triangular domains on graphene”
ACS Appl. Mater. Interfaces, **7**, 5265–5273 (2015).
2. Y. Takesaki, K. Kawahara, H. Hibino, S. Okada, M. Tsuji, H. Ago*
“Highly uniform bilayer graphene on epitaxial Cu–Ni(111) alloy”
Chem. Mater., **28**, 4583–4592 (2016).
3. H. Ago,* S. Fukamachi, H. Endo, P. Solís Fernández, R. M. Yunus, Y. Uchida, V. Panchal, O. Kazakova, M. Tsuji
“Visualization of grain structure and boundaries of polycrystalline graphene and

two-dimensional materials by epitaxial growth of transition metal dichalcogenides” <i>ACS Nano</i> , 10 , 3233–3240 (2016).
4. D. Ding, P. Solís Fernández, H. Hibino, H. Ago ”Spatially-controlled nucleation of single-crystal graphene on Cu assisted by stacked Ni” <i>ACS Nano</i> , 10 , 11196–11204 (2016)
5. Y. Uchida, T. Iwaizako, S. Mizuno, M. Tsuji, H. Ago* ”Epitaxial chemical vapour deposition growth of monolayer hexagonal boron nitride on Cu(111)/sapphire substrate” <i>Phys. Chem. Chem. Phys.</i> , in press (2017). (DOI: 10.1039/C6CP08903H)

(2)特許出願

研究期間累積件数: 1件

(2)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

1. 受賞

応用物理学会優秀論文賞、2014/9/17

2. 主要な招待講演

[1] IEDM 2015 (International Electron Devices Meeting 2015)

”Epitaxial CVD Growth of High-Quality Graphene and Recent Development of 2D Heterostructures”

2015/12/9, Washington DC, USA

[2] 227th ECS Meeting

”Synthesis, Characterization, and Applications of Single- and Double-Layer Graphene Grown on Epitaxial Metal Films”

2015/5/27, Chicago, USA

[3] 11th International Conference of Pacific Rim Ceramic Societies (PacRim-11)

”Exploring the Growth of Graphene and Related 2D Materials for Electronic Applications”

2015/9/1, Jeju, Korea

[4] IUMRS-IECM2016 (IUMRS International Conference on Electronic Materials)

”Vertical and In-Plane Heterostructures of Graphene and MoS₂”

2016/7/6, Singapore

[5] 第 77 回 応用物理学会秋季学術講演会

”二次元物質の CVD 成長とそのフロンティア”

2016/9/14、新潟

[6] 日本化学会春季年会 中長期テーマシンポジウム「エレクトロニクスの新パラダイム – 二次元機能性薄膜を基軸とする超低消費電力デバイスの開発 –」

”エレクトロニクス応用を目指した高品質グラフェンの触媒成長”, 吾郷浩樹

2014/3/27、名古屋

招待講演合計 国際 15 件、国内 21 件

3. 著書

[1] “グラフェン上でのカルコゲナイド系層状物質の CVD 成長”

「カルコゲナイド系層状物質の最新研究」, CMC 出版 (2016)

[2] “高品質グラフェンの CVD 成長”

カーボンナノチューブ・グラフェンの応用研究最前線」, (株)エヌ・ティー・エス (2016)

[3] “CVD Growth of High-Quality Single-Layer Graphene”

in “Frontiers of Graphene and Carbon Nanotubes: Devices and Applications”

Ed. by K. Matsumoto, Springer, 3-20 (2015)

4. 解説記事

[1] 吾郷浩樹

「エレクトロニクス応用を目指した高結晶性グラフェンの CVD 成長と将来展望」

NEW DIAMOND (ニューダイヤモンドフォーラム編), 32(1), 15-20 (2016).

研 究 報 告 書

「スピンホールエンジニアリングによる省エネルギーナノ電子デバイスの創出」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 平成 25 年 10 月～平成 29 年 3 月

研 究 者: 安藤 和也

1. 研究のねらい

電子の電荷自由度と電流だけでは実現困難なデバイス機能創出の指導原理として、スピン自由度とスピン流に基づくスピントロニクスがある。不揮発性と高性能・高耐性を兼ね備えた省エネルギースピン流デバイスの研究開発は全世界規模で進められており、この熾烈な競争に日本が勝ち残り国際的イニシアチブをとるためには、既存のデバイス構造最適化のみならず、現在のスピントロニクス原理の延長線上にはない本質的に新しいアプローチによるスピン流デバイスの省エネルギー化が必須である。この突破口を拓くのが本研究である。

本研究は、電流－スピン流変換効率の制御・増幅原理「スピンホールエンジニアリング」の開拓により、スピン軌道相互作用をベースとした新原理スピントロニクスの基盤構築を目指す。従来のスピントロニクスは、トンネル磁気抵抗素子に電流を流すことでスピン偏極電流を作り出し、これにより現れるスピントルクを用いて磁化制御を実現してきた。しかし、高抵抗素子に電流を流す必要があり、巨大なエネルギー損失に加えて絶縁破壊の可能性という深刻な問題を抱えている。一方、スピン軌道相互作用は物質中の電流とスピン流を結合し、電流と直交した方向に流れるスピン流を創り出す。これにより絶縁層を介した電流印加が不要となり、上記問題を根本的に解決できる。さらに、電流とスピン流が空間的に分離されているという著しい特長のため、磁気抵抗素子では原理的に不可能であった、電流を超える巨大スピン流の生成を実現できる可能性がある。本研究では、スピン軌道相互作用ベースの新原理スピントロニクスの基盤構築に向け、素子駆動に最も本質的となる電流－スピン流変換の制御・増大原理を明らかにし、既知の現象では到達できない変換効率実現のルート解明を狙う。これにより、既存原理では到達不可能な超低電力スピンデバイスの物理基盤を構築し、世界に発信する。

2. 研究成果

(1) 概要

本研究ではスピン軌道相互作用を基盤としたスピントロニクス構築に向け、電流－スピン流変換の制御・増大原理を探索した。その中で、バルクスピン軌道相互作用では実現困難であった高い変換効率が界面スピン軌道相互作用によるスピン－電荷変換により実現可能となることを明らかにし、更に、金属の酸化というこれまでにないアプローチがスピントルク生成効率を劇的に増大することを見出し、スピン軌道相互作用ベースのスピントロニクス素子設計に新たなルートを拓いた。

これまで研究が進められてきた電流－スピン流変換現象であるスピンホール効果は、物質バルクのスピン軌道相互作用を起源とするものであった。一方、金属表面或いは界面における Rashba スピン軌道相互作用の存在が古くから光電子分光により明らかとなっており、その中でも巨大な Rashba 分裂を示す系として Ag/Bi が知られていた。本研究では、Ag/Bi 界面ス

ピン軌道相互作用によるスピン流から電流へ変換を観測すると共に、この逆過程である電流からスピン流への変換とスピントルク生成を実現した。この結果から得られた 3 次元電流-スピン流変換効率は 50 パーセント程度と非常に大きなものであった。これまで知られていたバルクスピン軌道相互作用による変換効率は 10 パーセント程度であり、界面スピン軌道相互作用を用いた電流-スピン流変換の有用性が本研究により明らかとなった。

研究期間内に得られたもう一つの重要な成果として、Cu の酸化によるスピントルク効率の増大現象がある。Cu はスピン軌道相互作用が弱く、検出可能なスピントルクを生成しない材料の一つであった。本研究ではスピントルク強磁性共鳴法により自然酸化を制御した Cu からのスピントルクを定量した結果、酸化によりスピントルク生成効率が 2 桁以上増大し、自然酸化した Cu が磁気共鳴を駆動するほどの巨大なスピントルクを生成する材料となることを見出した。これにより、古くから広く産業で用いられ、世の中にありふれた金属である Cu が Pt を超えるスピントロニクス材料となることが明らかとなった。

以上の研究成果により、研究計画当初の目標であった 50 パーセントを超える電流-スピン流変換効率が実現された。更に、本研究により明らかとなった新原理のスピントルク生成はスピントロニクス材料選択の可能性を大きく広げるものであり、既知の現象では到達困難な変換効率実現へのルートを拓いた。

(2) 詳細

研究テーマ A 「界面スピン軌道相互作用によるスピン流-電流相互変換」

これまで研究が進められてきた電流-スピン流変換現象であるスピンホール効果は、物質バルクのスピン軌道相互作用を起源とするものであった。一方、金属表面或いは界面における Rashba スピン軌道相互作用の存在が古くから光電子分光により明らかとなっており、その中でも巨大な Rashba 分裂を示す系として Ag/Bi が知られていた。このような界面スピン軌道相互作用は、ゼロ磁場でアップ・ダウンスピンのエネルギー分裂を生み、運動量とスピンを結合する。本研究では、電子散乱によるバルク効果ではなく、このようなスピン-運動量結合を利用したスピン流-電流変換の定量を試みた。

まず、強磁性金属からのスピン注入により Ag/Bi 界面におけるスピン流-電流変換を測定した。強磁性金属としては NiFe を用い、比較のため NiFe/Ag/Bi の 3 層膜に加え、NiFe/Ag 及び NiFe/Bi の 2 層膜についてもスピン注入により現れる電流測定を行った。この結果、NiFe/Ag 及び NiFe/Bi に関しては、Ag 及び Bi のバルクスピン軌道相互作用によるスピン流-電流変換は本測定では無視できるほど小さいことが明らかとなった。しかし、このように Ag 或いは Bi のみではスピン流から電流への変換が殆ど検出されないものの、この 2 つの物質を接合にした NiFe/Ag/Bi では、1 桁以上大きなスピン流-電流変換が観測された。これは Ag/Bi 界面に特徴的な現象であり、これにより界面スピン軌道相互作用によるスピン流から電流へ変換が観測されたと言える[3]。

上記現象の存在は、この逆過程の存在を予言している。そこで、電流からスピン流への変換とスピントルク生成の検出を次に試みた。Ag/Bi 界面に電流を流すということは Rashba 電子系の運動量に偏りを作り出すことに対応する。Rashba 電子系では運動量とスピンが結合しているため、この運動量の偏りからスピン分極が生まれる。Ag/Bi 界面で現れたこのスピン分

極は Ag 中を拡散するはずであり、この拡散スピン流を検出するため、強磁性体/Ag/Bi 構造におけるスピントルク測定を行った。この結果、強磁性/Ag/Bi 構造において、Ag 或いは Bi のバルクスピン軌道相互作用では説明できないスピントルクが観測され、Ag/Bi 界面における Rashba スピン軌道相互作用によるスピントルク生成の検出に成功した。この結果は、非磁性金属接合における Rashba スピン軌道相互作用を用いてスピントルク生成に成功した初めての結果であり、この結果から得られた 3 次元電流-スピン流変換効率は 50 パーセント程度と非常に大きなものであった。これまで知られていたバルクスピン軌道相互作用による変換効率は 10 パーセント程度であり、界面スピン軌道相互作用を用いた電流-スピン流変換の有用性が本研究により明らかとなった[2]。

研究テーマ B「金属酸化によるスピントルク効率の増大」

研究期間内に得られたもう一つの重要な成果として、Cu の酸化によるスピントルク効率の増大現象がある。Cu はスピン軌道相互作用が弱く、検出可能なスピントルクを生成しない材料の一つであった。本テーマでは、スピントルク強磁性共鳴という手法により自然酸化を制御した Cu からのスピントルクを定量した結果、酸化によりスピントルク生成効率が 2 桁以上増大し、自然酸化した Cu が磁気共鳴を駆動するほどの巨大なスピントルクを生成する材料となることを明らかにした。これにより、古くから広く産業で用いられ、世の中にありふれた金属である Cu が酸化により Pt を超えるスピントロニクス材料となることが見出された [1]。

スピントルク強磁性共鳴により Cu からのスピントルク生成を定量するため、シリコン酸化膜キャップ層により表面保護した $\text{SiO}_2/\text{NiFe}/\text{Cu}$ を作製し、GHz の高周波電流を流しながら外部磁場の大きさを変え、試料に生じる直流電圧を測定した。共鳴時には、磁化の運動と高周波電流の整流効果により直流電圧が現れ、この直流電圧の形状を解析することで、スピントルクの大きさを見積もることができる。図 1 は、自然酸化を防ぐために表面を保護した Cu(図 1(a))、自然酸化を制御するためにキャップ層を薄くした Cu(図 1(b))、自然酸化した Cu(図 1(c))についてスピントルク強磁性共鳴を測定した結果である。1 段目の図は 3 つの試料の模式図、2 段目の図がスピントルク強磁性共鳴の測定結果であり、Cu が自然酸化していくとスペクトル形状が変化することを示している。この電圧スペクトル形状からスピントルク生成効率を求めた結果が 3 段目の図であり、表面を保護し、自然酸化を防いだ Cu ではスピントルクの生成効率は 0.1 パーセント以下と非常に小さいものであった。これは Cu のバルクスピン軌道相互作用が非常に弱いことから予想された結果である。しかし、表面のキャップ層を薄くし、Cu が少し自然酸化するように制御したところ、生成効率が 5 パーセントまで増大した。更に、キャップ層をなくし自然酸化層を生じさせたところ、巨大なスピントルクが観測され、その生成効率は 10 パーセントを超えることが明らかとなった。これは、白金(生成効率約 10 パーセント)などのレアメタルスピントロニクス材料を上回る高い効率である。

自然酸化は表面から進行するため、自然酸化した Cu は酸化した Cu 層と酸化していない Cu 層の 2 層で構成されていると見なせる。そこで比較のため、Cu 全体を一様に酸化させ、酸化 Cu と Cu の 2 層から成る構造を作製し同様の測定を行ったところ、スピントルクが検出されなかった。この結果から、自然酸化により現れたスピントルクは酸化した Cu 層と Cu の界面ではなく、自然酸化した Cu 内部の電子輸送の変化に起因することが明らかとなった。

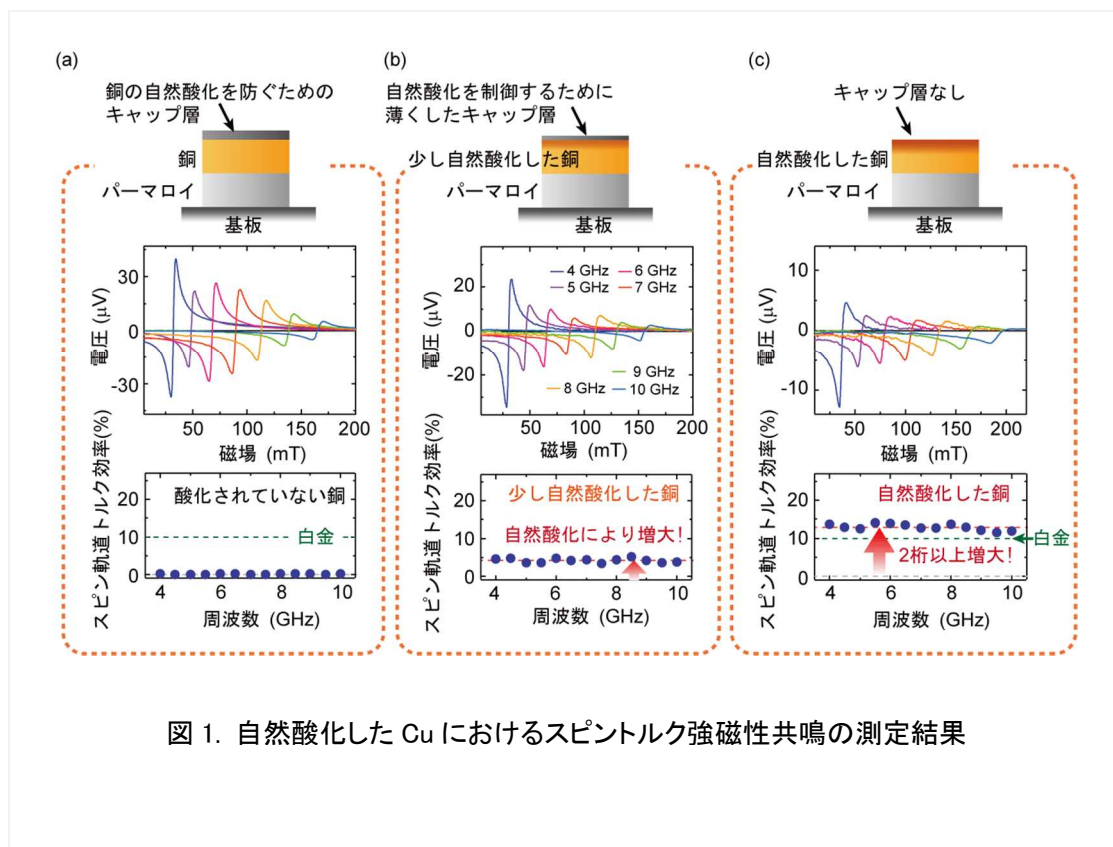


図 1. 自然酸化した Cu におけるスピントルク強磁性共鳴の測定結果

3. 今後の展開

スピン軌道相互作用を用いたスピントルク生成には、Pt をはじめとする原子番号の大きな物質が必須であるというのが常識であり、現在広く産業で用いられている Cu はスピントルク生成源としてほとんど注目されてこなかった。本研究により明らかとなった酸化によるスピントルク効率の増大現象はこのような常識を覆すものであり、ありふれた材料を酸化するというシンプルかつ新たなアプローチによって、これまで脚光を浴びてこなかった物質のスピントロニクス応用への道が拓かれ、材料の選択の幅が大きく広がった。今後の研究による機構解明と酸化に注目した物質探索により、スピン軌道相互作用を基盤とした新原理の高性能スピントロニクス素子作製が可能となるのみならず、レアメタルフリーのスピントロニクスデバイスの実現へと繋がるのが期待される。また本研究は、界面スピン軌道相互作用による電流-スピン流変換が、バルクスピン軌道相互作用と並ぶ重要なスピントルク生成機構となることを明らかにした。界面スピン変換はバルクスピン軌道相互作用による変換と共存可能であり、バルク・界面スピン軌道相互作用を併用したスピントロニクス素子設計が可能となる。

スピン軌道相互作用を基盤とするスピントロニクスは、これまで研究が進められてきた磁気抵抗素子ベースのスピントロニクス素子に加え、スピン流を介した熱電素子をはじめとする新原理デバイスを駆動できる。本研究により明らかとなったスピン軌道相互作用による新原理の電流-スピン流変換を用いることで、省エネルギー電子素子への展開が期待される。

4. 評価

(1) 自己評価

(研究者)

- ・本研究計画で当初目標としていた電流-スピン流変換効率 50 パーセントは界面スピン軌道相互作用を用いることで達成された。これだけでなく、Cu の自然酸化によるスピントルク生成効率の 2 桁以上の増大が見出されたことで、更なる変換効率向上へのルートが明らかとなった。

- ・本さがけ研究開始年度に現在の所属大学へと異動し、新たな研究室を立ち上げた。このため研究開始当初は研究環境の整備から始めることとなったが、途中の増額も含めて柔軟な予算執行を認めて頂けたため、早期に研究を軌道に乗せることができた。

- ・スピントロニクスは巨大磁気抵抗効果の発見を契機に始まったが、近年新たな展開を迎えている。その中で重要となるのがスピン軌道相互作用による電流-スピン流変換であり、本さがけにより得られた研究成果はこのような新原理のスピントロニクス技術の基盤となることが期待される。特に、2 桁以上のスピントルク効率増大を可能とするのは本研究により明らかとなった金属の酸化のみであり、今後の研究によりメカニズムまで解明することができれば、スピントロニクス素子の原理を本格的に変えられる可能性がある。

(2) 研究総括評価(本研究課題について、研究期間中に実施された、年2回の領域会議での評価フィードバックを踏まえつつ、以下の通り、事後評価を行った)。

(研究総括)

スピン軌道相互作用を用いたスピントロニクスデバイスは実用への期待も大きく、その基盤となる電流-スピン流変換に関して安藤研究者はインパクトのある成果をあげた。特に、ある程度の知見が蓄積されていたバルクにおける効果から脱却して表面や界面に注目することで、電流-スピン流変換の効率が向上できることを見出した。特に、さがけ開始時には～数10%であった電流-スピン流変換の効率を、巨大 Rashba スピン軌道相互作用に着目することにより、非磁性元素の Bi/Ag 界面において～50%まで上昇させることに成功したことは高く評価できる。加えて、ありふれた銅を自然酸化するだけでスピン軌道トルク生成効率が2桁以上向上する効果を見出したことは、想定外の非常に重要な成果である。従来から用いられていた白金を凌駕する性能であり、技術的にも容易なアプローチの提示であることから、将来のスピントロニクス素子の実用化に向けた大きな貢献が期待される。研究申請時の想定を遥かに上回る、「さがけ」らしい研究成果であると評価する。Nature Communication などの著名誌への8報の論文掲載や国際会議での8件の招待講演など、成果発表も申し分ない。

大きな波及効果の可能性をもつ技術を見い出していることから、産業界に向けた情報発信を積極的に行ってゆくことも望まれる。新原理に基づいた研究は始まったばかりであり、メカニズム解明もこれからなので、基礎学理の確立や新たな応用につながる技術の創出に向けて今後も研究を推進して欲しい。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. Hongyu An, Yuito Kageyama, Yusuke Kanno, Nagisa Enishi, and Kazuya Ando, "Spin-torque generator engineered by natural oxidation of Cu," Nature Communications 7, 13069 (2016).
2. Hiroyasu Nakayama, Yusuke Kanno, Hongyu An, Takaharu Tashiro, Satoshi Haku, Akiyo Nomura, and Kazuya Ando, "Rashba-Edelstein Magnetoresistance in Metallic Heterostructures," Physical Review Letters 117, 116602 (2016).
3. Akiyo Nomura, Takaharu Tashiro, Hiroyasu Nakayama, and Kazuya Ando, "Temperature dependence of inverse Rashba-Edelstein effect at metallic interface," Applied Physics Letters 106, 212403 (2015).
4. Hiroto Sakimura, Takaharu Tashiro, and, Kazuya Ando, "Nonlinear spin-current enhancement enabled by spin-damping tuning," Nature Communications 5, 5730 (2014).
5. Shun Watanabe, Kazuya Ando, Keehoon Kang, Sebastian Mooser, Yana Vaynzof, Hidekazu Kurebayashi, Eiji Saitoh, and Henning Sirringhaus, "Polaron Spin Current Transport in Organic Semiconductors," Nature Physics 10, 308 (2014).

(2)特許出願

研究期間累積件数:2 件

1.

発 明 者: 安藤和也, 中山裕康, 田代隆治, 桑原勇作

発明の名称: スピントロニクスデバイス及びこれを用いた記憶装置

出 願 人: 慶應義塾大学

出 願 番 号: 2015-241179

(3)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

国際会議招待講演

1. "Spin current coupled with dynamical magnetization,"
International Conference of Asian Union of Magnetism Societies, August 1-5, 2016,
Tainan, Taiwan.
2. "Spin-current emission governed by nonlinear spin dynamics,"
International School and Conference on Spintronics and Quantum Information
Technology, August 10-13, 2015, Basel, Switzerland.
3. "Dynamical generation of spin current,"
Energy Materials Nanotechnology, May 4-7, 2015, Phuket, Thailand.
4. "Dynamical spin injection into organic materials,"
International Meeting on Spin in Organic Semiconductors, October 13-17, 2014, Himeji,
Japan.
5. "Spin current generated by magnetization dynamics,"

SPIE, August 17-21, 2014, San Diego, USA.

受賞

1. 本多記念研究奨励賞(本多記念会)2016 年 5 月 27 日.
2. 船井学術賞(船井情報科学振興財団)2014 年 4 月 19 日.

プレスリリース

1. 銅を酸化させると白金を超える性能を発揮(2016 年 10 月 11 日)
2. 磁気の流れ(スピン流)の増大原理を初めて解明(2014 年 12 月 10 日)

研究報告書

「有機・シリコン融合集積フォトニクスによる超高速電気光学デバイス」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 平成 25 年 10 月～平成 29 年 3 月

研究者: 井上 振一郎

1. 研究のねらい

情報通信量(トラフィック)の増大や、データセンターの大規模化などを背景として、巨大な情報通信システムそのものが消費する電力量や発熱などの問題が顕在化してきている。今後ますます情報通信システムの肥大化が進む中で、消費電力の増大を抑制しながら、通信速度の向上を実現していくためには、電子集積回路と光回路の融合が不可欠である。特に、光配線技術や次世代の超高速オンチップ光・電子融合回路を実現するためには、電気信号を光信号に変換する電気光学(EO)変調デバイスの高集積化、低消費電力化、超高速化が重要な課題となる。これまで、電気光学変調器の代表的なものとして無機酸化物結晶である LiNbO_3 (ニオブ酸リチウム:LN)を用いた EO 変調器が実用化されているが、素子サイズが数 cm 以上と大きく、チップ間光配線への利用や、シリコン電子回路へのオンチップ集積は不可能であった。近年、そのような問題を解決するため、集積化・低コスト化に適したシリコンフォトニクス、シリコン光変調器の開発が活発に進められているが、シリコンは材料的に 2 次の非線形光学効果である電気光学効果をもたず、動作原理としてキャリアプラズマ効果を用いるため、変調帯域が数十 GHz 以下に制限される問題がある。一方、有機高分子マトリックス中に π 共役系非線形色素分子を分散あるいは結合させた有機 EO ポリマーは、マイクロ領域における π 電子の非局在化により、無機・半導体とは異なった光・電子物性を持ち、光デバイスにおいて、この特性は、極めて大きな電気光学係数や超高速な EO 応答速度(100GHz～THz)などの優れた特徴をもたらす。しかしながらこれまで、ナノ領域における分子配向制御の困難さや、波長オーダーの光閉じ込めを困難とする有機材料の屈折率の低さ、さらにはナノ微細加工ダメージの問題など、有機材料特有の極めてソフトな物理・化学特性が原因で、ナノ光・電子集積デバイスに対して有機 π 共役材料のポテンシャルを最大限発揮させることは困難であった。

ここで本研究は、高い電気光学係数と超高速応答性を併せ持つ有機電気光学ポリマーと、高集積化が可能なシリコン 1 次元フォトニック結晶からなるシリコンナノ構造プラットフォームとを 1 チップ上で効果的にハイブリッドする新たな有機・Si 融合集積デバイス(図 1)を創出することで、上記の技術課題をクリアーし、動作スピード × 消費電力 × 素子サイズ において従来デバイスを桁で上回る EO 変調デバイスを実証することを目指とした。またさらに、異種材料との 1 チップ内でのマルチ融合や、EO 変調動作の温度無依存化など、従来の LN 変調器やシリコン CMOS フォトニクスでは達成不可能であった新たな光機能性の創出も本研究の重要なターゲットとした。

2. 研究成果

(1)概要

本研究において、超高速動作(>100GHz)、小型・集積化可能(<100 μm)、低消費電力(デ

バイス内の電気光学性能指数: $r_{33} = 500 \text{ pm/V}$ 超(従来 LN 変調器の 15 倍以上に相当する値))な電気光学変調デバイスを実証した。さらに異種材料との Si チップ上でのマルチ光機能融合や、EO 動作の温度無依存化(同デバイス構造の Si 単独と比較し、温度変化に伴う位相シフト量を 1/25 に低減)という従来デバイスには達成困難な新たな機能性を実証した。

これらの特性は主に、有機分子へのナノ微細加工時のダメージ抑制技術や、デバイスの光低損失化技術を含む有機 EO ポリマー材料とシリコンナノ構造との新しい融合プロセス技術の確立と、ナノ領域での分子配向制御技術やスローライトやフォトニック結晶構造を駆使した EO 位相変調増幅技術を組合せることによって実現した。

達成した成果は、微細加工ダメージや低屈折率性という、有機 π 共役材料の光集積化に向けた、最大の弱点を解消し、ナノ領域での高い分子配向効率や温度無依存動作化、さらには従来実用化素子の性能を一桁以上凌駕する優れた電気光学性能を実証するものである一方、シリコンチップとの効果的な融合を果たすなど低コスト化や既存の産業プロセスとの親和性といった側面も熟慮されている。ニオブ酸リチウム光変調器やシリコン CMOS フォトニクス等の従来技術には達成できない性能と新しい機能性を提供し、従来 EO 技術の苦手領域を補完するもので、将来のより広帯域の光配線技術や超高速オンチップ光・電子融合回路、ミリ・THz 波センシング分野の基盤技術としてなど、幅広い分野に対する利活用が可能な技術である(図 2)。

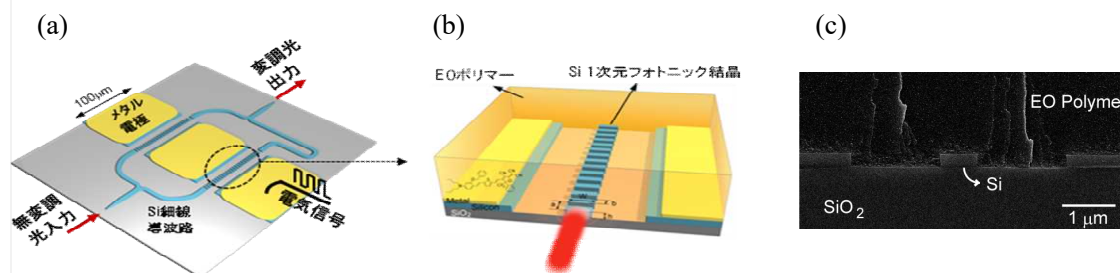


図 1：今回開発したマッハツェンダ型の有機・シリコン融合型電気光学変調デバイス：(a) 変調器の模式図、(b) 変調部の断面模式図、(c) 断面の電子顕微鏡 (SEM) 写真

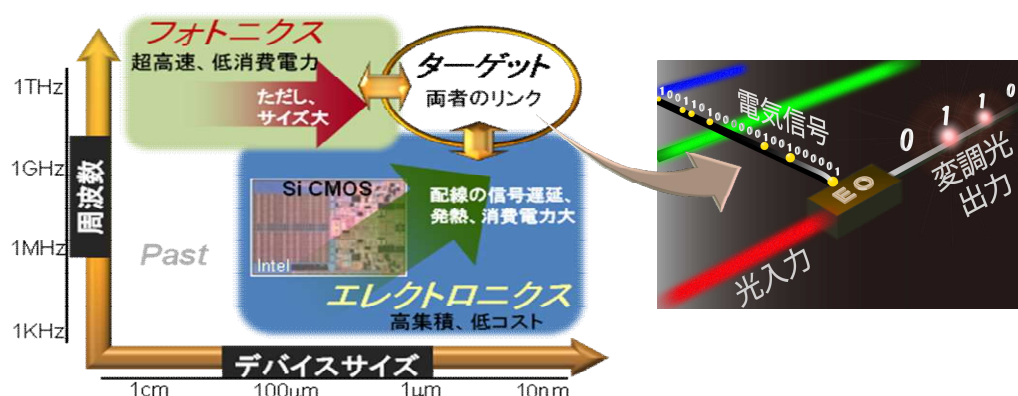


図 2：本研究の結果、実現可能性が拓かれる新たなナノ光・電子融合領域

(2) 詳細

研究テーマ1「有機 EO ポリマー材料とシリコンナノ構造との新しい融合プロセス技術の確立」

ナノ構造を用いた光集積デバイスに関しては、従来では、Si、InP や GaAs などの半導体材料で構成されたものが主流であり、有機材料のような低屈折率の材料では、素子サイズを小型化できず、さらにソフトな有機分子への微細加工ダメージの問題もあり、半導体のような高密度光集積化は困難であると考えられてきた。しかしながら、半導体材料を用いた素子が成熟段階に達しつつある中で、有機 π 共役材料のような半導体でない優れた光アクティブ機能性を有する材料に新たに展開していくことが不可欠であった。その中で本研究は、有機 EO ポリマー材料と 1 次元 Si フォトニック結晶導波路をナノ領域で組み合わせた独自の素子構造を提唱し、半導体や酸化物結晶を凌駕する非線形光学特性 (EO 係数: $r_{33}=500$ pm/V 超) を発現する電気光学変調デバイスを作製することに成功した。従来、Si スロット導波路を用いたハイブリッドデバイスが報告されていた。しかしスロット導波路の場合、数十~100nm 程度の極めて狭いスロット領域に EO ポリマーを充填し、その中を光が伝搬する形となるが、有機材料の不均質性やリーク電流などの問題により、電界ポーリング処理による EO ポリマーの分子配向効率が低く、また光伝搬ロスも大きいという問題があった。本研究では、有機 EO ポリマー材料と 1 次元 Si フォトニック結晶導波路とのハイブリッドデバイスを理論提案し、それを実験的に実現するインクジェット法を用いた要素技術を世界に先駆けて開発した。これにより、光の電磁界分布として屈折率の低い EO ポリマー材料の中に選択的に分布しながら光伝搬するとともに、ナノ光閉じ込めとスローライト効果を同時に達成することで、高い光非線形効果の発現が可能である。また本デバイス構造は、有機 EO ポリマーの分子配向制御に適した構造であることが特徴であり、Si ナノ構造内において、バルク薄膜の場合と遜色ない優れた分子配向効率 (対バルク比: >95%) を達成した。さらに、EO ポリマーを用いた Si 導波路とのスポットサイズコンバーターを開発することで光ファイバーとの結合損失を低減するとともに、Si の微細加工条件と有機材料とのハイブリッド条件を最適化することで、比較的低損失 (0.8dB/mm) な有機・Si ハイブリッド 1 次元 フォトニック結晶導波路の光伝搬を確認した。またさらに、インクジェット法で EO ポリマーを位置選択的に後工程でハイブリッド化することにより、スピコート法などの他の製法に比べ、有機 π 共役材料の消費コストを大幅に低減し、また微細加工によるダメージの問題を解消した。

研究テーマ2「超高速動作、小型、低消費電力な電気光学 (EO) 変調デバイスの実証」

有機 EO ポリマーと融合させるシリコンナノ構造プラットフォームとして、適切にデザインしたシリコン 1 次元フォトニック結晶を用いることで、作製した素子長 $80\mu\text{m}$ のマツハツェンダ (MZ) 型 EO 光変調器において、従来 LN 変調器の 15 倍以上に相当する EO 性能指数 ($r_{33}=500$ pm/V 超) を達成した。これらの結果は、Si ナノ構造内において、バルク EO ポリマー薄膜の場合と遜色ない極めて高い分子配向効率を達成したこと、そして同時に有機 EO ポリマーの中を光が伝搬しながら、スローライト状態を作り出すことによって実現された。またコプレナ伝送路による高周波印加時の光サイドバンド測定を行った結果、有機 EO ポリマー・Si 融合集積型の提案デバイスにおいて、100GHz を超える明瞭な変調サイドバンドの観測に成功した。また 5 ~20Gbps で PRBS 変調された光信号を光サンプリングオシロスコープにより測定した結果、

アイパターンの観測に成功した。

研究テーマ3「EO 変調動作の温度無依存化など、新たな光機能性の創出」

本研究の重要な点は、EO デバイス性能の向上を達成するだけでなく、EO 変調動作の温度無依存化など、EO 集積化に向けた新たな機能性を提供することである。本研究では、大きな負の熱光学係数をもつ有機 EO ポリマーと、大きな正の熱光学係数をもつシリコンとのナノ領域での光モード配分を適切に制御し、その熱光学係数差による屈折率の温度分散を補償し、光位相差を相殺することにより、温度変動に対して安定に動作する電気光学変調器を提案し、実証した。この機能により、隣接する電子デバイスの発熱によって生じる温度変動を補償する新たな仕組みの EO 変調デバイスを実現できる。実際に有機 EO・Si ハイブリッド MZ 型 EO 変調器を作製し、温度変化に対する位相シフト量を見積もった結果、Si 単独デバイスと比較し、位相シフト量を 1/25 に低減できることを確認し、提案デバイスの明瞭な温度補償効果を実証した。またインクジェット法による有機 EO ポリマーの位置選択的なハイブリッド技術により、シリコン 1 チップ内において EO 変調部や受光部などの異なる光機能のマルチ集積化も実現した。

3. 今後の展開

今回実証した有機 EO ポリマーとシリコンを融合した EO 変調デバイスは、既存のシリコン CMOS プロセス、シリコンフォトニクスとの整合性も高く、低コスト化や実用性に配慮した構造でありながら、従来の LN やシリコン CMOS フォトニクスでは、決して同時に実現できない(1)超高速 EO 特性、(2)超小型、(3)低消費電力という3つのデバイス特性を併せ持つ。また EO 変調時の温度補償動作の実現は、電気光学変調器の高性能化だけでなく、デバイス動作の安定性や信頼性を飛躍的に高める新しい技術である。これらは、100GHz~THz の超高速・低消費電力なオンチップ光配線やチップ間光通信の実現といった光・電子融合領域の新たな発展可能性を切り拓くものとして期待される。

また今回の成果は、上記だけでなく、有機 7 共役材料の高い非線形性と光集積性を活かすことで、量子光学のオンチップ化やミリ・THz 波センシングなど、幅広い分野への応用展開を可能とするものである。今後は、有機・シリコン融合集積フォトニクス技術を更に発展させ、電気光学、非線形光学デバイスの一層の高性能化と新機能性創出を目指すとともに、安定性や信頼性の検証といった社会実装に向けた取り組みについても総合的に進めていきたい。

4. 評価

(1) 自己評価

(研究者)

本研究では、有機電気光学ポリマーとシリコン 1 次元フォトニック結晶とを 1 チップ上でハイブリッドした有機・Si 融合型 EO 変調デバイスを提案、作製することで、100GHz を超える超高速動作化、小型・高集積化が可能で、且つ従来の LN 変調器の 15 倍以上の値に相当するデバイス内 EO 係数 ($r_{33}=500$ pm/V 超) を有する電気光学変調デバイスを実証した。これによりほぼ当初の目標については達成し、さらに異種材料との Si チップ上でのマルチ光機能融合や、EO 動作の温度無依存化という従来の LN や Si CMOS デバイスには達成困難な機能性を新

たに実証することで、提案したデバイスの本分野における有効性をより深く特徴付けることに成功したと考えている。

本研究の実施体制としては、記載した主テーマに係る部分は全て個人で研究を実施し、その研究費については、研究に必要な EO 測定設備等に有効に使用させて頂いた。

波及効果に関しては、前項の今後の展開にも記載した通り、本技術は、100GHz～THz 領域の次世代の超高速オンチップ光配線やチップ間光通信技術を新たに切り拓く可能性を有し、また有機 π 共役材料を用いた高い非線形性や光集積性は、電気光学変調デバイスに限らず、波長変換素子、量子光学のオンチップ化、あるいは、ミリ・THz 波センシングなど、幅広い分野の発展に寄与するものである。

(2) 研究総括評価(本研究課題について、研究期間中に実施された、年2回の領域会議での評価フィードバックを踏まえつつ、以下の通り、事後評価を行った)。

(研究総括)

独自開発の有機電気光学(EO)ポリマーと、シリコン 1 次元フォトニック結晶導波路とをハイブリッドした EO 光変調器を作製し、その動作を初めて実証した。特に、ナノオーダーの高い加工精度をもとに、有機 EO ポリマーとシリコンフォトニクスとの融合プロセス技術を開発し、EO 変調効率の向上、極めて大きな電気光学係数を達成した点で大きな成果に繋がったと評価される。電気光学変調デバイスにより、「超高速動作(>100GHz)、LN 変調器の1/1000以下の素子サイズ(<100 μm)、低消費電力性を同時に達成する」という高い目標をほぼ実現しており、高く評価でき、インパクトの大きな成果と考える。ポリマーとシリコンで温度依存性が相反することを利用して温度無依存を実現したのはアピールできる成果である。

企業との共同研究等により、実デバイスとしての可能性を示すことが望まれる。

今後、有機材料の弱点である耐水性から懸念される信頼性・長期安定性、電界集中から懸念される劣化について、実デバイスを念頭に置いて検討することを期待する。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. S. Inoue and A. Otomo, “Electro-optic polymers/silicon hybrid slow light modulator based on one-dimensional photonic crystal waveguides”, Appl. Phys. Lett., **103**, 171101–1–4 (2013).
2. S. Ishii, S. Inoue, and A. Otomo, “Electric and magnetic resonances in strongly anisotropic particles”, J. Opt. Soc. Am. B, **31**, 218–222 (2014).
3. S. Ishii, S. Inoue, R. Ueda, and A. Otomo, “Optical detection in a waveguide geometry with a single metallic contact”, ACS Photonics, **1**, 1089–1092 (2014).
4. K. Waki, T. Yamashita, S. Inoue, S. Miki, H. Terai, R. Ikuta, T. Yamamoto, and N. Imoto, “Fabrication and characterization of superconducting nanowire single-photon detectors on Si waveguide”, IEEE Trans. Appl. Supercond., **25**, 2200704 (2015).
5. S. Inoue, N. Tamari, T. Kinoshita, T. Obata, and H. Yanagi, “Light extraction enhancement of

265 nm deep-ultraviolet light-emitting diodes with over 90 mW output power via an AlN hybrid nanostructure”, Appl. Phys. Lett., **106**, 131104-1-4 (2015).

(2)特許出願

研究期間累積件数:0

(3)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

1. 著書: S. Inoue, 『Organic Nanophotonics: Fundamentals and Applications』 Chapter 6: Nonlinear Optical Polymer Photonic Crystals and Their Applications, Springer (2014).
2. ニュース解説: 井上振一郎、『電子情報通信学会誌』、「有機電気光学ポリマーとシリコンを融合した超小形・高性能な電気光学変調器の開発に成功」、Vol.97, 262-253 (2014).
3. 招待講演: S. Inoue, “Compact ultrafast EO modulators and high-power DUV-LEDs based on photonic crystal structures”, EMN Ultrafast Meeting (Las Vegas) (18 Nov 2015)
4. 招待講演: 井上振一郎、「有機EOポリマー／Si融合集積フォトニクスと深紫外LEDナノ光取出し技術」、応用物理学会 微小光学研究会(東京)(2015年5月26日)
5. 招待講演: 井上振一郎、「有機電気光学ポリマーとシリコンを融合した超小型光変調器」、電子情報通信学会 ソサイエティ大会(徳島)(2014年9月26日)

研 究 報 告 書

「極薄ナノ金属酸化膜をもつ抵抗変化型メモリ」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 平成25年10月～平成29年3月

研 究 者: 大野 武雄

1. 研究のねらい

本研究課題のねらいは、次世代不揮発性メモリ素子として有望である抵抗変化型メモリについて、イオン伝導体として働く金属酸化膜の新しい形成手法を提案すると同時に、メモリ素子としての動作実証を行うことである。

抵抗変化型メモリの基本的な構造は金属／酸化膜／金属の多層構造であるが、本研究課題では特に金属酸化膜に注目する。従来までの研究で、金属酸化膜の厚さがある程度薄い場合には電圧印加することで金属酸化膜内部にて金属イオンが移動し、対向金属電極上における金属原子の析出反応によって金属フィラメントの形成が生じることが分かっている。本研究課題では、金属酸化膜の厚さ(成膜)方向に対してナノサイズ化を行い、非常に短い金属電極間距離を達成することで低しきい値電圧、高速スイッチ時間および低消費電力でのメモリ動作を得ることを目的とした。

極薄ナノ金属酸化膜を得るために、本研究課題では金属薄膜の新規な酸化手法を提案した。イオン伝導体として有効に働く金属酸化膜を形成するために、中性の原子状酸素ビームをナノ厚さの金属薄膜に照射する方法を試みた。原子状酸素ビームは電荷を有していないため試料のチャージアップ現象を回避でき、かつ装置構成上紫外線の照射も抑制される。加えて、10 eV 程度という比較的小さな運動エネルギーを利用した酸化反応であるため、室温付近でナノメートル厚さの酸化が可能である。つまり、ナノデバイスの特性に深刻な影響を与える欠陥・損傷の導入を抑制しつつ、かつ低温プロセスによる極薄ナノ金属酸化膜の形成が期待された。

本研究課題の目標は、中性の原子状酸素ビームを用いた金属酸化手法を適用することでイオン伝導体としてふるまう極薄ナノ金属酸化膜を形成し、0.1 V のしきい値電圧、10 ns のスイッチ時間および 0.1 pJ の消費電力で動作する抵抗変化型メモリを開発することである。得られる研究成果は、メモリ、ストレージ、ロジックシステムなどで構築される情報処理ナノエレクトロニクス分野に不可欠な超低消費電力動作する不揮発性メモリ素子の実現に貢献するものと期待される。

2. 研究成果

(1) 概要

中性の原子状酸素ビームをナノ厚さの金属タンタル(Ta)膜に室温で照射することでタンタル酸化膜(Ta_2O_5)を形成し、それを抵抗変化型メモリのイオン伝導体層として適用した。試作したメモリ素子構造は銅(Cu)/ Ta_2O_5 /白金(Pt)である。得られた Ta_2O_5 膜の厚さは 2～5 nm とナノスケールであり、室温という低温での金属酸化にも関わらず 1 TΩという非常に高抵抗な値を得た。また、試作した抵抗変化型メモリは最小で 2.2 nm 厚さの Ta_2O_5 膜を有する構造にて

スイッチ動作を示した。この結果は、原子状酸素ビームを用いて形成した Ta_2O_5 膜がナノメートル厚さにおいてもスイッチ動作が可能であることを示している。

抵抗変化型メモリの動作特性として、しきい値電圧はオン・オフ動作ともに 0.2 V 以下の値を得た。しきい値電圧が低減した理由として、 Ta_2O_5 膜の厚さが 3 nm と非常に薄いことが考えられる。また、 Ta_2O_5 膜の膜密度を下げることでしきい値電圧が低減可能であるという知見も得られた。スイッチング時間に関してはこれまでのところ最も高速なもので 10 ns のオン時間を得ている。加えて、Cu と Pt の電極面積が 30 nm 四方のメモリ構造においてオフ抵抗値 20 G Ω という大きな値を得た。

マルチレベル(多値)でのメモリ動作を実現した。この結果は、厚さ 3 nm の Ta_2O_5 膜中で Cu フィラメントのサイズ制御を実現したことを意味している。Cu 原子の共有結合半径から見積もると 3 nm は Cu 原子が 10 個程度配置される距離に相当する、つまり少ない数の Cu 原子や Cu イオンがスイッチ動作に寄与することが示唆された。

抵抗変化型メモリの応用展開として、メモリ素子を複数個配置したメモリアレイ構造を試作し、そのアレイ中に画像記憶するデモンストレーションを試みた。入力頻度を変えて画像記憶を行うと、画像記憶の保持時間の差異や記憶量(メモリの抵抗値)のアナログ経時変化を再現でき、いわゆる短期記憶と長期記憶の特性を表現できることを確認した。

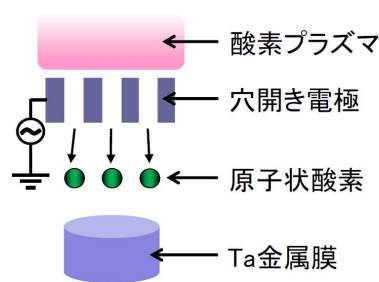


図 1 金属酸化を行う装置の構成。

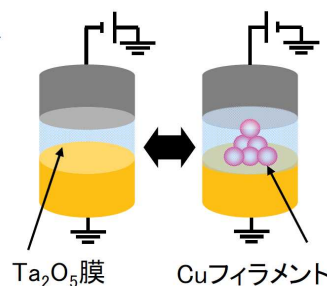


図 2 金属酸化膜を持つ抵抗変化型メモリの動作。

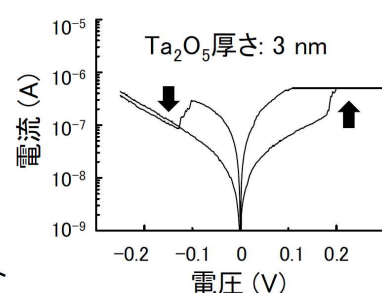


図 3 抵抗変化型メモリの電流－電圧特性。

(2) 詳細

研究テーマ A「極薄ナノ金属酸化膜の形成」

本研究テーマでは、中性化した原子状酸素ビームを用いて金属 Ta 膜の室温酸化を行いナノメートル厚さの金属酸化膜の形成を行った。目標は高い絶縁性を有しかつ 5 nm 以下の厚さをもつ極薄ナノ金属酸化膜の実現である。原子状酸素ビームの生成には、酸素プラズマ中の酸素イオンが高アスペクト比の穴開き電極を通過する際に穴の側壁に衝突することを利用した電荷交換による中性化反応を利用している。

得られた Ta_2O_5 膜の厚さは 2~5 nm であり、例えば厚さ 3 nm において 1 T Ω という非常に高抵抗な値を得た。この値は抵抗変化型メモリの高いオフ抵抗値を得るために有効である。また、透過型電子顕微鏡観察によって Ta_2O_5 膜はアモルファス層であることを確認した。X 線反射率測定からは Ta_2O_5 膜の膜密度は約 7.5 g/cm³ となり、バルクの Ta_2O_5 の値 8.2 g/cm³ のおよそ 90% という高密度な金属酸化膜が形成可能であった (T. Ohno et al., JJAP 55, 2016)。

また、金属 Ta 以外にも、原子状酸素ビームによってチタン、タングステン、アルミなどの各種金属の室温酸化が可能であることを確認し、アルミ酸化膜に関してはゲルマニウムの high- k MOS 構造への適用が可能であることを示した(T. Ohno et al., APL 107, 2015)。

研究テーマ B「抵抗変化型メモリの試作」

本研究テーマでは、極薄ナノ金属酸化膜を持つ抵抗変化型メモリの試作とその動作実証を行った。試作したメモリ素子構造は Cu/Ta₂O₅/Pt である。

メモリ動作のしきい値電圧に関してはオン・オフ動作ともに 0.2 V 以下の値を得た(T. Ohno et al., APL 106, 2015)。この値はこれまでの報告例と比較して最も低い値の一つに位置しており、それは Ta₂O₅ 膜の厚さが数 nm と薄いことに起因すると考えられる。また、Ta₂O₅ 膜の膜密度がバルクのそれよりも低いほうがしきい値電圧を低減できることも分かった。しかしながら、目標値 0.1 V まで低減することは出来なかった。スイッチ時間に関しては、3.25 V のパルス信号入力時に 10 ns を確認し、目標値を達成した。また、スイッチ時間は大きな電圧値を用いると短くなることを確認した。一方で、消費電力に関しては、高周波測定系およびデバイス構造の電気寄生成分の低減が十分に行えなかったことが原因で、目標値 0.1 pJ を得ることが出来なかった。

以上のように、数値目標に関しては未達成な点があるものの、中性化した原子状酸素ビームを用いて形成した Ta₂O₅ 膜をもつ抵抗変化型メモリにおいてスイッチ動作を実証した。これまでのところ、最も薄いもので 2.2 nm 厚さの Ta₂O₅ 膜での動作確認をしており、この値は抵抗変化型メモリ構造における金属酸化膜の値としては最小である。また、Cu と Pt の電極面積が 30 nm × 30 nm のメモリ構造において、大きなオフ抵抗値 20 GΩ と小さなオン電流値 60 nA を得た。

その他の重要な結果として、マルチレベル(多値)でのメモリ動作を示した(T. Ohno et al., APL 106, 2015)。具体的には、メモリ構造に電圧印加してオン状態を得る際に流れる電流を制限することでオン抵抗のマルチレベル化を行った。その結果、Ta₂O₅ 膜中での Cu フィラメント先端部と対向金属電極との距離の差に依存したマルチレベルなオン抵抗値を観測した。この時流れる電流はトンネル電気伝導である。また、Cu フィラメントが対向電極に対し単一原子コンタクト(量子ポイントコンタクト)する状態も確認した。以上の結果は、厚さ 3 nm の Ta₂O₅ 膜中で Cu フィラメントのサイズ制御に成功したことを意味する。Cu 原子の共有結合半径から見積もると 3 nm は原子が 10 個程度配置される距離に相当し、つまり、少ない数の Cu 原子(Cu イオン)がスイッチ動作に寄与することが示唆された。

研究テーマ C「抵抗変化型メモリのアレイ化」

本研究テーマでは、上記で試作した抵抗変化型メモリを複数個配置したメモリアレイ構造を試作し、その動作のデモンストレーションとして画像記憶処理を行った。本さきがけ研究者はこれまでに、一つの抵抗変化型メモリ構造が短期記憶と長期記憶の両方の状態をつくりだす現象を観測しており(T. Ohno et al. Nature Mater. 10, 2011)、ここではそれを実デバイス・システムレイヤーで実行することを目的とした。

アレイ化の方法として、上部電極と下部電極がクロスする部分に抵抗変化型メモリが配置

されるクロスバー構造を作製した。ここで、抵抗変化型メモリー一つが画像の一画素に対応する。このメモリアレイ部に入力頻度を変えて画像情報を入力することで画像記憶の保持時間の差異や記憶量(メモリの抵抗値)のアナログ経時変化を確認した。例えば、1 秒間隔で複数回入力した画像の記憶量は一定値を保つのに対し、10 秒間隔での入力では記憶量が時間経過とともに徐々に低下した。上記の結果は、いわゆる脳型やニューロモルフィックの分野における短期記憶と長期記憶の特性を再現している。

抵抗変化型メモリの試作やメモリアレイ化においては金属膜の成膜やクロスバー構造作製のための各種パターニングが必要であったが、その際には外部共用設備である文科省・ナノテクノロジープラットホームの支援が不可欠であった。さがけ研究期間内に、北大、東北大、物材機構、筑波大、産総研および東工大のナノプラの支援のもと各種デバイスプロセスを遂行した。

3. 今後の展開

本研究課題で得られたスイッチ動作のしきい値電圧 ± 0.2 V は抵抗変化型メモリの従来研究と比べて最も低い値の一つであり、低消費電力化に対して有効な結果である。また、わずか数ナノメートル厚さの金属酸化膜によってスイッチ動作を得た点や銅フィラメントの形成サイズを制御した点は、高集積化に重要な微小サイズの抵抗変化型メモリの開発における今後の発展を 推し進めると考えられる。加えて、本研究課題で得られた極薄金属酸化膜は抵抗変化型メモリ以外、例えば MOS 構造や強誘電体メモリなどの各種デバイスへの展開も期待される。

4. 評価

(1) 自己評価

(研究者)

研究目的の達成状況について、メモリ素子動作の数値目標という観点では未達成と言わざるを得ない。特に、消費電力については目標値に対して桁で到達できなかった。一方で、抵抗変化型メモリの脳型・ニューロモルフィック動作への展開を進めることができた点は今後の研究発展が見込めると考えられる。

研究の進め方について、研究実施体制は、研究補助者および学生がともにゼロであったこともあり、当初計画を完全には遂行できなかった。しかし、特に最終年度に関しては文科省・ナノプラ事業を積極的に活用できたため、前年度まで遅れていた分をある程度は取り戻せた。また、研究費執行状況に関しては、当初計画にはなかった新規の酸化装置の購入を第3年次に承認いただいたが、独自装置ということもあり業者選定・仕様決定・設計作製などに予想外の時間が掛かったことが原因で導入時期が大幅に遅れた点が反省点である。導入させていただいた装置は他所に無い独自なものであるから、さがけ研究終了後も積極的に活用することでこれまで以上の成果を得る予定である。

研究成果の科学技術及び社会・経済への波及効果について、新しい金属の酸化手法を提案した点に意義があると考えている。本研究課題ではその金属酸化膜を用いた抵抗変化型メモリの動作実証を行い、デバイスレベルで適用可能であることを示した。この点は、ナノエレクトロニクス分野への応用が可能であることを意味しており、極薄金属酸化膜が必要な

デバイスに対して新しいデバイスプロセスの選択肢を提供できたと考えている。

本さがけ・ナノエレクトロニクス領域では研究総括・横山先生の方針でさがけ研究者間の連携を強く推奨されていた。その大きな理由として、素材・デバイス・システムの各レイヤー間の融合が大きなブレークスルーを生み出すからである。その観点で、複数のさがけ研究者達とともに定期的に討論・連携を行う研究会に参加している点は今後の研究発展に有効であると考えている。

(2) 研究総括評価(本研究課題について、研究期間中に実施された、年2回の領域会議での評価フィードバックを踏まえつつ、以下の通り、事後評価を行った)。

(研究総括)

原子スイッチ系の不揮発性メモリは、「中性酸素ビームを用いた電子デバイス成膜プロセス」の優位性実証を行う対象の1つであるとなすことができる。そのように考えれば、十分に高い絶縁性と、適切な金属元素拡散性を備えた、アモルファス Ta_2O_5 膜の形成に成功し、抵抗変化型メモリ動作の確認まで至ったことは、最低限の目標には達成したとして評価される。また、低温で均質な酸化膜を形成できるプロセスであるという特徴を生かして、さがけ一期生の安藤研究者(スピントルク発生用の酸化層形成)、岡田研究者(金属/Si 接合の電子状態制御)と共同研究を開始していることは、「同じ研究領域に集まった様々な機関やバックグラウンドの研究者と交流・触発しながら、個人が独立した研究を推進する」という「さがけ」ならではの研究展開と考えられる。さらに、ニューロモルフィック素子への応用を目指して、シナプス動作抵抗変化メモリの画像記憶デモを開始しており、今後の研究進捗に期待したい。

一方、抵抗変化型メモリの動作実証に関しては、科学技術及び社会・経済への波及効果が乏しいが、「中性酸素ビームを用いた電子デバイス成膜プロセス」の優位性を示すのであれば、膜厚・界面の評価(平滑性など形態評価、電子状態評価を含む)、析出する金属フィラメントのサイズ制御可能性の評価、イオン種・UV 光の影響の見極め、TDDB(Time Dependent Dielectric Breakdown)等の電気特性評価等を実施すべきだった。今後に期待する。

外部との研究交流を始められたが企業とも連携を組み、ReRAM の問題点を把握しその解決策を考えることをやってみてほしい。画像記憶の実験など手を広げるのではなく、今の問題を把握し、追及することで ReRAM に活かされると思われる。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. T. Ohno and S. Samukawa. Resistive switching in a few nanometers thick tantalum oxide film formed by a metal oxidation. Appl. Phys. Lett. 2015, 106, 173110-1-4.
2. T. Ohno, D. Nakayama and S. Samukawa. Al and Ge simultaneous oxidation using neutral beam post-oxidation for formation of gate stack structures. Appl. Phys. Lett. 2015, 107, 133107-1-3.
3. T. Ohno and S. Samukawa. Ta_2O_5 -based redox memory formed by neutral beam oxidation. Jpn. J. Appl. Phys. 2016, 55, 06GJ01-1-3.

(2)特許出願

研究期間累積件数:0件

(3)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

(一般講演) T. Ohno et al.. Tantalum Oxide Resistance Change Memory Formed by Neutral Beam Technique. 第 61 回応用物理学会春季学術講演会, 青山学院大学淵野辺キャンパス, 2014 年 3 月 18 日.

(招待講演) T. Ohno. Nanoionic switches for neuromorphic electronics. The 13th International System-on-Chip Conference, Exhibit & Workshops, University of California, Irvine, USA, Oct. 21 (2015).

(招待講演)大野武雄. 原子スイッチー原子とイオンの移動を制御して動作するナノデバイスー. 応用物理学会シリコンテクノロジー分科会第 186 回研究集会, 産業技術総合研究所つくば中央, 2015 年 11 月 13 日.

研究報告書

「遷移金属内包シリコンクラスターを用いた低消費電力トランジスタ材料・プロセスの創出」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 平成26年4月～平成29年3月

研究者: 岡田 直也

1. 研究のねらい

遷移金属原子(M)を内包した Si クラスター(MSi_n)を単位構造に用いて、新しい半導体薄膜(MSi_n 膜)が形成できる。この材料は、Si と金属の中間的な原子構造と物性を有していて、実際の LSI プロセスに適用可能で制御性の高い合成プロセスを創出することで、様々な実用展開が期待できる。本研究では、タングステン原子内包 WX_n ($X = \text{Si, Ge}$) クラスターを単位構造とする WX_n 膜($n \leq \sim 12$)の化学気相反応成膜法を開発し、構造と物性を解明して、トランジスタ材料としての有用性を実証することを目的とした。

具体的には、1) W と X のガスソースの気相反応により、 WX_n 膜を成膜する手法を開発する。この成膜技術を利用することで、2) WX_n 膜の構造や組成を原子レベルで制御して、既存の Si 材料科学ではなし得ない物性を追及する。さらに、 WX_n 膜はほとんど X 原子で構成されることから、Si や Ge と接合を形成した際に、界面準位を形成しないことが期待できる。この性質を利用して、3) 金属と半導体基板の接合界面に WX_n 膜を挿入することで、金属／半導体の接触抵抗を低減して Si や Ge のトランジスタを高性能化する技術を創出し、情報機器の低消費電力化および高速化に貢献する。

2. 研究成果

(1) 概要

さきがけ研究では、タングステン原子内包 WX_n ($X = \text{Si, Ge}$) クラスターを単位構造とする WX_n 膜の 1) 化学気相反応成膜法を開発し、2) 構造と物性を解明して、3) トランジスタ材料としての有用性を実証することを目的とした。1)～3) の成果の概要は次の通りである。

1) 原料ガスに WF_6 ガスと XH_4 ガスを用いた WX_n 膜の成膜手法を開発し、広範囲に亘る組成制御性 (WSi_n 膜: $n \leq \sim 12$ 、 WGe_n 膜: $n \leq \sim 6$) を実証した。

2) WSi_n 膜は Si のアモルファス構造を有した半導体薄膜であり、膜を構成する WSi_n クラスターの組成均一性を向上させることで、Si アモルファスネットワークの乱雑性やエネルギーギャップ内の状態密度を低減できることや、熱的構造安定性を向上できることを示した。また、 WGe_n 膜も同様にアモルファス半導体薄膜であることを明らかにした。

3) MOSFET のソース／ドレイン接合部の接触抵抗を低減できる接合材料としての WX_n 膜の有用性を示した。W 電極と n-Si 基板の接合界面に WSi_n 膜を挿入することで、接合界面に形成される障壁高さの低減、および接触抵抗の低減を実証した。W 電極との固有接触抵抗値は、低抵抗 n-Si 基板 (抵抗率: $\sim 2 \times 10^{-4} \Omega\text{cm}$) に対して WSi_n 膜の挿入で約 5 桁の減少を示した。同様に、W/ WGe_n /n-Ge の接合でも、 WGe_n 膜の光学ギャップの大きさに応じた障壁高さの低減を実証し、W 電極との固有接触抵抗値は、高抵抗 n-Ge 基板 (抵抗率: $\sim 1 \Omega\text{cm}$) に対して WGe_n 膜の挿入で約 2 桁の減少を示した。

(2) 詳細

1) WX_n 膜の化学気相反応成膜法の開発

本テーマのねらいは、W原子内包X(Si, Ge)クラスターを単位構造とする新しいアモルファス半導体薄膜(WX_n 膜)の、実際の LSI プロセスに適用可能で制御性の高い合成プロセスの創出である。 WX_n 膜の構造や組成を原子レベルで制御することができれば、2) WX_n 膜のバンドエンジニアリングといった既存の Si 材料科学では成し得ない物性の実現や、3) WX_n 膜を用いた Si や Ge との金属接合による大幅な接触抵抗低減技術の創出が期待できる。

1-1. WSi_n クラスターの凝集膜(WSi_n 膜)の合成プロセスの創出

WF_6 と SiH_4 を原料ガスとして、気相中で WSi_n クラスターを合成し基板上に堆積できることを実証した。気相中で WF_6 が SiH_4 と衝突を繰り返すことで WSi_nH_x クラスターが合成され、下流側にある基板上に堆積されて、含有する水素を熱脱離して凝集し、薄膜が形成される。この特徴的な反応経路を利用した成膜手法をクラスター気相合成法と名付けた。この手法では、ガス圧力とガス温度により WSi_n クラスターの組成を制御でき、 WSi_n クラスターを凝集させた膜を $n \leq \sim 12$ の組成範囲で形成できる。図1は、 SiH_4 ガス圧の増大($< \sim 700$ Pa)により、気相中で WF_6 と SiH_4 の衝突回数が増し、 WSi_nH_x クラスターの n 値が増大することを示している。一方、同一温度の条件下では、 SiH_4 ガス圧を ~ 700 Pa 以上に増大させても n は一定値以上には増加せず、 WSi_nH_x クラスターと SiH_4 が衝突を繰り返しても、一定の n 値で反応が停止することを示している。この時、反応停止時の n 値はガス温度によって制御できる。この方法で得られる最大 n 値は 12.2 で、 WSi_n クラスターの最安定組成比 $n = 12$ に一致した。

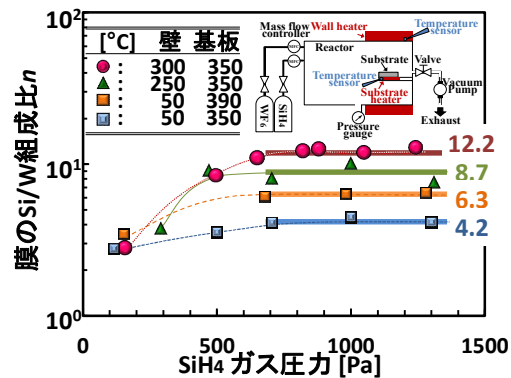


図 1. WSi_n 膜の n の成膜条件依存性

1-2. WGe_n クラスターの凝集膜(WGe_n 膜)の合成プロセスの創出

WGe_n 膜は Ge への接合材料として期待できるが、 WGe_n クラスターは理論研究で報告があるものの、実験的な作製例がない材料である。 WGe_n 膜の作製には、原料ガスに WF_6 と GeH_4 を用いた。クラスター気相合成法を用いて、ガス圧力とガス温度を高精度に制御することにより、 WGe_n 膜を $n \leq \sim 6$ の範囲で組成制御して作製できることを実証した

2) WX_n 膜の膜特性評価

本テーマのねらいは、 WX_n 膜の構造と物性を解明することである。また、これまでにレーザーアブレーション(LA)法を用いて WSi_n 膜(LA 膜)の作製を実証してきた。この LA 膜とクラスター気相合成法で形成した WSi_n 膜の特性を比較することで、クラスター気相合成法の優れた物質制御性を示すねらいもある。

2-1. エネルギーバンド構造の評価

光吸収測定より、 WSi_n 膜では、 n の増大に伴い

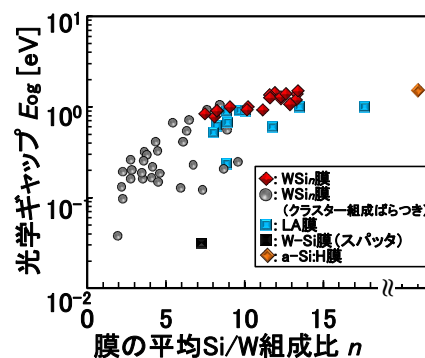


図 2. WSi_n 膜、LA 膜、W-Si 膜(スパッタ法)、及び a-Si:H 膜の光学ギャップの組成比 n 依存性

光学ギャップ E_{og} が ~ 1.5 eV まで増大し、水素化アモルファス Si 膜 (a-Si:H) の光学ギャップ E_{og} に近づいた (図 2)。W 原子が Si_n によって完全に包囲されることで、W 原子に起因する Si ネットワーク中の歪が抑えられており、脱水素された膜であるにもかかわらず、a-Si:H の E_{og} と近い値を示す。さらに、 n の増大 (W 密度の減少) により、歪が緩和して Si アモルファス構造の乱雑性 (Si-R) が減少し、エネルギーギャップ裾の状態密度が減少したと考える。一方、LA 膜では、 WSi_n 膜と同じ n でも、小さな E_{og} を示した。LA 膜を構成するクラスターの組成ばらつきが Si-R を増大させていることに加え、LA 膜中では Si ケージで不完全に内

包された W 原子などが存在し、局在状態が形成されて E_{og} の減少を助長していると推測する。実際に、クラスター気相合成法を用いて、意図的に様々な組成の WSi_n クラスターから構成された WSi_n 膜を作製し、 E_{og} やラマンスペクトルを評価したところ、LA 膜と類似していた。一方、スパッタ法で形成した W-Si 膜は W 原子と Si 原子が不規則に分布しているために、0 に近い E_{og} を示した。

WGe_n 膜では、 $n = \sim 2$ で最大の E_{og} を示し、 $n > \sim 2$ の範囲では、 n の増大に伴い E_{og} が減少した (図 3)。 WGe_n 膜が、 WSi_n 膜と同様に狭ギャップを有するアモルファス半導体薄膜であることを明らかにした。

2-2. 膜構造の評価

WX_n 膜のラマン散乱測定より、 WSi_n 膜は Si の、 WGe_n 膜は Ge のアモルファス構造を有していた (図 4)。従って、膜中ではクラスター同士がランダムに結合したネットワーク構造を持っている。 WSi_n 膜と LA 膜を比較するために、Si ネットワークの TA と TO のフォノンバンドピーク強度比 (TA/TO 比) を調べた。TA/TO 比は膜中の Si-Si-Si 結合角分

布の指標となり、TA/TO 比が大きいほど、結合角ばらつきが、即ち Si-R が大きいことを示す。LA 膜やスパッタ法で形成した W-Si 膜は WSi_n 膜と同じ Si リッチ組成であっても、 WSi_n 膜よりも TA/TO 比が大きく、Si-R が大きいことがわかった。

以上より、クラスター気相合成法で形成した WSi_n 膜が、LA 法で形成した膜よりも、Si アモルファスネットワークの乱雑性やエネルギーギャップ内の状態密度が低いことを明らかにした。これは、 WSi_n 膜が均一組成の WSi_n クラスターから構成されていることに由来する。以上から、クラスター気相合成法が優れた物質制御性を有していることがわかる。

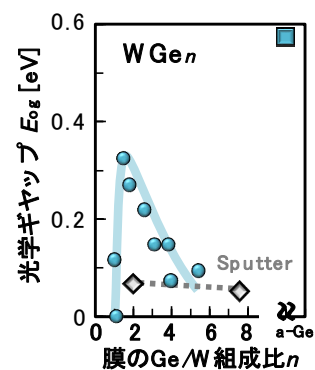


図 3. WGe_n 膜及び W-Ge 膜 (スパッタ法) の光学ギャップの組成比 n 依存性

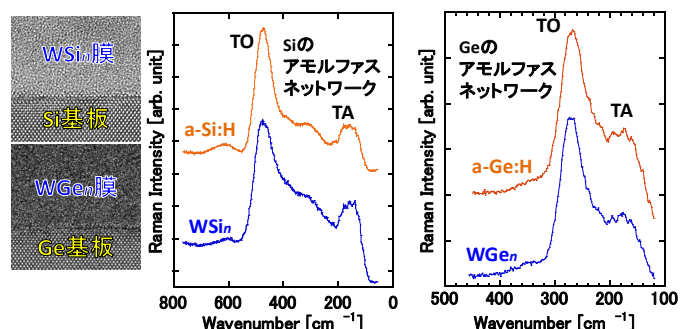
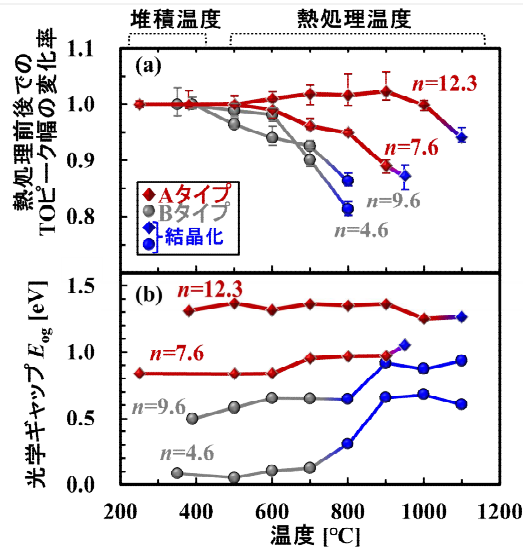


図 4. WSi_n 膜および WGe_n 膜のラマンスペクトル。それぞれ水素化アモルファス Si 膜 (a-Si:H) と水素化アモルファス Ge 膜 (a-Ge:H) と類似したネットワーク構造を持っている。

2-3. 膜の熱的構造安定性評価

WSi_n 膜を実デバイスに適用するためには、デバイス作製時のプロセス温度よりも十分な熱的耐性が求められる。しかし、WSi_n膜がSiリッチ組成の準安定状態な膜である事実は、熱処理した際に膜が平衡組成に転移するという懸念をもたらす。そのため、膜の熱的な構造安定性や、熱安定性の決定要因を明らかにしておく必要がある。2タイプ(A, B)の WSi_n 膜を作製し、500℃ - 1100℃の熱処理(窒素雰囲気、10分)を行い、WSi_n膜のSiアモルファス構造とエネルギーバンド構造の変化を調べた。その結果、均一組成のクラスターから構成された WSi_n膜(Aタイプ)は組成ばらつきのあるクラスターから構成された WSi_n膜(Bタイプ)よりも熱的構造安定性が優れていることが判明した(図5)。Aタイプの膜では800℃まで熱処理しても、構造変化が起きず、優れた熱的安定性を示した。一方、Bタイプの膜では、熱処理温度の増大に伴い膜構造やエネルギーバンド構造が変化し、800℃熱処理後は膜中の一部で微結晶の Si や WSi₂ が形成され、平衡組成に転移した。さらに、Density-Functional Theory (DFT)による構造計算から、(1) WSi_nクラスター自体の安定性が膜構造の安定性に帰着すること、(2)Si ケージに不完全に内包された WSi_nクラスターが、膜構造の不安定性に反映されることを示し、実験結果と整合する結果を得た。以上より、膜の構造安定性の決定要因は、膜の平均組成ではなく、膜を構成する WSi_nクラスターの均一性や組成であることを明らかにした。



Aタイプ: 均一組成のWSi_nクラスターから構成されたWSi_n膜
Bタイプ: 様々な組成のWSi_nクラスターから構成されたWSi_n膜

図5. WSi_n膜の熱処理前後での Si アモルファス構造とエネルギーバンド構造の変化

3) WX_n膜を用いた半導体基板への接合形成技術の開発

W/WSi_n/n-Si および W/WGe_n/n-Ge の接合を形成し、接合界面に形成される障壁高さを容量-電圧(C-V)特性から評価した。WX_n膜の E_{og} の増大に伴い、障壁高さが低減した(図6)。WX_n膜の E_{og} の大きさに応じて接合界面の準位密度が低減してフェルミレベルピンニングが緩和し、WSi_n膜が n = ~12 および WGe_n膜が n = ~2 で E_{og} が最も大きい時、障壁高さが最も低い値~0.45 eVを示す。この値は、最表面のW電極の仕事関数(~4.5 eV)に対応する。W電極との固有接触抵抗値は、高抵抗 n-Ge 基板(抵抗率: ~1 Ωcm)に対して 5.6 Ωcm² が WGe_n膜の挿入で 7.4 × 10⁻² Ωcm² と約 2 桁の減少を、低抵抗 n-Si 基板(抵抗率: ~2 × 10⁻⁴ Ωcm)に対しては 8.7 × 10⁻² Ωcm² が WSi_n膜の挿入で 6.2 × 10⁻⁷ Ωcm² と約 5 桁の減少を示した。

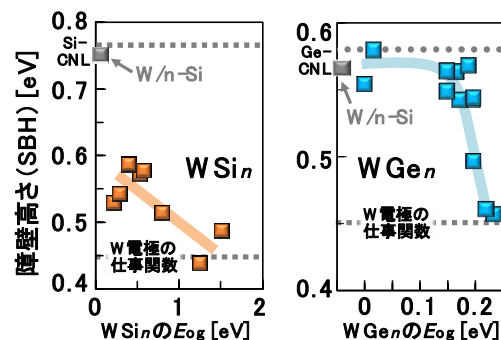


図6. W/WSi_n/n-Si と W/WGe_n/n-Ge の障壁高さと挿入層(WSi_n, WGe_n)の光学ギャップの関係

3. 今後の展開

さががけで開発した成膜法は、既存 CMOS プロセスとの親和性が高く、Si や Ge の微細 CMOS の高性能化に有用であると考えられる。今後は、微細トランジスタのソース／ドレインへの WX_n 膜の適用による高駆動化の実証、および極限的な接触抵抗低減の実現を目指す。また、この成膜法を応用して、対象元素を種々の遷移金属系、IV 族系、カルコゲン系へと拡大していき、新しい非平衡組成材料の開発へ発展させていく予定である。

4. 評価

(1) 自己評価

(研究者)

さががけでは、タングステン原子内包 WSi_n クラスターを単位構造とする WSi_n 膜の 1) 化学気相反応成膜法を開発し、2) 構造と物性を解明して、3) トランジスタ材料としての有用性を実証することを当初の目標に掲げた。

実際に、 WF_6 と SiH_4 を原料ガスとして、W 原子を内包した WSi_n クラスターを気相合成し、基板上に堆積する技術を開発した。この手法は、凝集クラスターの組成や原子レベルの構造が制御できる特長があることに加え、LSI プロセスへ適用可能な成膜技術である。この成膜手法を用いて Si 基板と WSi_n 膜の接合を形成し、接合障壁高さと膜特性との関係を系統的に調べ、障壁高さの決定要因が WSi_n 膜のエネルギーギャップであることを明らかにした。また、Si 基板と W 電極との接合へ WSi_n 膜を挿入することにより、大幅な接触抵抗低減を実証した。さらに、当初の目標には想定していなかった WGe_n 膜の作製にも成功し、Ge 基板と WGe_n 膜の接合を形成して接触抵抗の低減を実証した。一方、タングステン原子内包 WSi_n クラスターを単位構造とするエピタキシャル膜の作製を当初の目標に掲げていたが、研究の進捗が遅れて、エピタキシャル膜の超高濃度キャリアの実現や、トンネル FET のソース材料への適用には至らなかった。以上のように、当初の目標の要素技術に関しては、エピタキシャル膜の作製以外の項目で概ね達成することができた。今後は、この接合形成技術により、実際のデバイス構造において極限的な接触抵抗低減を実現し、実用フェーズに発展させていく。

(2) 研究総括評価(本研究課題について、研究期間中に実施された、年2回の領域会議での評価フィードバックを踏まえつつ、以下の通り、事後評価を行った)。

(研究総括)

WSi クラスターや WGe クラスターを用いた極微細トランジスタ向けの低抵抗オーミック接合(ソースとドレイン電極の接合)に関し、材料選定やプロセス技術構築、また界面電子状態の評価などで成果を上げた。この結果は将来の低消費電力極微細デバイスのための要素技術としての可能性を持っており、論文掲載や学会発表による学術的アピールとともに産業界への新技術提示という観点で評価できる。

特に、クラスターのガスソース合成という技術開発に関して成果があったと評価でき、この成果を基に、クラスター成膜の適用範囲を拡げるなど、今後の展開を期待したい。一方で、クラスターの実際の構造とクラスターであることの効果について今後さらなる理解を深めることが必要である。さらに、実用的な将来技術としての評価を得るためには極微細デバイスで実際の高いドライブ能力実証などが必要で今後何らかの手段で実現してほしい。本研究で獲得

した技術がどのようなチャネル材料、デバイス構造で必要になるかを見極め、産業界にとってインパクトのある実証例を示すのが重要である。

国内メーカーがロジックデバイステクノロジーから撤退しているので非常に厳しい課題だが TSMC などとの連携を通じて彼らのテクノロジーライブラリーに載せることが産業界への貢献となるため、今後の努力をお願いしたい。今後、アカデミアの先端トランジスタ研究グループとの連携を図り、真に必要とされる技術として育成することを望みたい。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. **N. Okada**, N. Uchida, and T. Kanayama, “Electrical properties of amorphous and epitaxial Si-rich silicide films composed of W-atom-encapsulated Si clusters”, *J. Appl. Phys.* 117, 095302 (2015).
2. **N. Okada**, N. Uchida, and T. Kanayama, “Si-rich W silicide films composed of W-atom-encapsulated Si clusters deposited using gas-phase reactions of WF_6 with SiH_4 ” *J. Chem. Phys.* 144, 084703 (2016).

(2) 特許出願

研究期間累積件数: 2 件

1.

発 明 者: 岡田 直也、内田 紀行、多田 哲也、金山 敏彦

発明の名称: 遷移金属シリサイド膜、その製造方法及び製造装置並びに半導体装置

出 願 人: 国立研究開発法人 産業技術総合研究所

出 願 日: 2015/5/8

出 願 番 号: 特願 2015-096023

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

学会発表

1. **N. Okada**, N. Uchida, and T. Kanayama, “Schottky-barrier-height Reduction for n-Si and n-Ge by Insertion of Tungsten Silicide and Germanide Films Chemically Synthesized using Gas-phase Reactions” *2016 INTERNATIONAL CONFERENCE ON SOLID STATE DEVICES AND MATERIALS*, 671, (2016).
2. **N. Okada**, N. Uchida, and T. Kanayama, “Formation of amorphous Si-rich W silicide films by deposition of W-atom-encapsulated Si clusters synthesized in gas-phase” *2016 MRS fall meeting & exhibit*, NM6, (2016).
3. **岡田直也**、内田紀行、金山敏彦、“組成制御した気相合成 W ジーマナイド薄膜と n-Ge との接合特性”、第 77 回応用物理学会春季学術講演会(2016)
4. **岡田直也**、内田紀行、金山敏彦、“気相合成した W 内包 Si クラスタを単位構造とする W シリサイド薄膜の膜質評価”、第 63 回応用物理学会春季学術講演会(2016)
5. **岡田直也**、内田紀行、金山敏彦、“W 内包 Si クラスタを単位構造とするシリサイド半導体薄膜の CVD 形成”、第 76 回応用物理学会秋季学術講演会(2015)

研究報告書

「カイラル磁気秩序を用いたスピン位相エレクトロニクス」の創成

研究タイプ: 通常型

研究期間: 平成25年10月～平成29年3月

研究者: 戸川 欣彦

1. 研究のねらい

カイラル磁性体と呼ばれる一群の磁性体に固有に現れるカイラルスピソリトン格子 (Chiral Spin Soliton Lattice: CSL、図1) を研究の舞台とし、物性研究において未開拓である“スピン位相の制御”に主眼を置く「スピン位相エレクトロニクス」を切り拓き、革新的スピネレクトロニクスを創成することを研究のねらいとする。これは CSL が巨視的コヒーレンスを有するスピン位相秩序であることに基づき実現される。

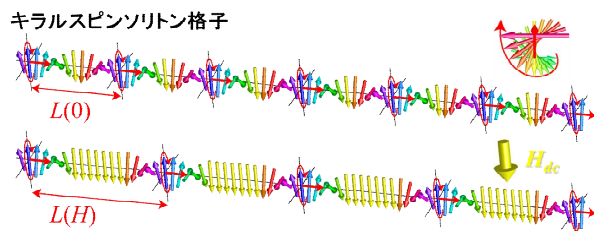


図1 キラルスピソリトン格子の模式図

物性科学において、電子の量子力学的な波動としての位相をマクロレベルで制御することは最も重要な課題の一つである。その好例は超伝導現象である。超伝導状態における電子（電荷）の位相はマクロな秩序状態と表現され、ゼロ抵抗・マイスナー効果・ジョセフソン効果などの顕著な物理現象が生じる。

着目するカイラル磁性体はらせん階段のようなカイラルな結晶構造を内在する。そのため、量子力学的なプロセスに基づき、ゼロ磁場で、カイラルらせん磁気秩序が数 nm から数十 nm 程度の微細な周期で形成される。この CSL のらせん周期は、0.1 テスラ程度の小さな磁場を用い、無限大（試料サイズ）まで変化することができる。CSL は結晶キラリティに頑強に保護され、結晶中の構造欠陥などの外的擾乱に対して強靱かつ安定に振舞う。研究者は最近、一軸性カイラル磁性体結晶 CrNb_3S_6 において、CSL が示すこれらの特異的な性質を世界で初めて実証することに成功した。

カイラル磁性体において発現する CSL は電子のスピン磁気モーメントの位相が巨視的に秩序化する稀有な状態である。結晶キラリティという従来と異なる概念に基づき具現化する巨視的スピン位相秩序であり、静磁エネルギーなどに起因する従来の強磁性体中の磁気ドメイン構造とは全く異なる特性を示す。CSL の巨視的スピン位相コヒーレンスを反映し、数多くの特異な物性（離散化、集団励起など）が発現すると期待される。本研究では、外力下でのカイラルソリトン格子の集団ダイナミクスの制御を通じて“スピン位相”を操り、カイラルソリトン格子の“巨視的スピン位相コヒーレンス”に起因して発現する離散的スピン応答や巨大集団運動などの新しい物質機能を実証することを目指した。

2. 研究成果

(1) 概要

キラル磁性体に固有に現れるキラルスピンソリトン格子(CSL)を研究対象とし、CSL の“巨視的スピン位相コヒーレンス”に起因して発現する離散的スピン応答、集団励起運動などの新しい物質機能を実証することを目指している。

(共通の研究項目)外力下での CSL ダイナミクスの解明 では、単軸性キラル磁性体 CrNb_3S_6 においてキラル磁気共鳴を検出することに成功した。広帯域での高速情報伝達の実現に向けて重要なCSLの集団励起運動の基本特性を解明することができた。マイクロ波領域の電磁場に対する強い偏向依存性、磁場依存性の非対称性を見出した。磁気共鳴特性はキラル磁気秩序の構造に依存しており、共鳴周波数の磁場変調性を示す。また、特定の磁場領域で、共鳴周波数はソリトン数に応じて離散化する。これらはキラル磁性体特有の高周波スピン応答である。高周波回路中にキラル単結晶を配置すれば、帯域選択型、帯域可変型の伝送路やフィルターなどが構築できる可能性が見出された(研究成果リスト:特許出願2)。

(研究項目A)コヒーレントスピン位相に起因する多値的磁気抵抗効果の実証 では、キラル磁性体 CrNb_3S_6 の磁気抵抗などの物性がキラルソリトン格子のソリトン密度にスケールされて変化することを見出した。ソリトン密度は CSL 形成の秩序変数であり、磁気抵抗を含めたさまざまな物性が普遍的に秩序変数に従って変化することを示唆している。これはキラル磁性体に固有の性質であり、CSL に起因するスピン応答に高い制御性をもたらす(論文1)。

また、ソリトン数の離散性、また、トポロジカル・可算性な性質の顕れとして、CSL 周期の20ケまでの多段階での離散的变化を直接観察することに成功した。さらに、磁気抵抗の多値化・離散化の電氣的検出と高周波スピン応答である磁気共鳴信号の離散化の検出に成功した。マイクロメーターサイズの微小デバイスからバルク結晶まで離散性・多値的応答が安定して発現することを実証した(論文2)。

(研究項目B)CSL の滑走に伴う磁気情報転送の実証 では、キラル磁性体に固有な高周波信号伝達の非相反性特性を検出している。非局所型スピン応答デバイスを設計するのに有用な高周波特性となる。

キラル磁気構造の安定性の起源を解明した(論文3, 4)。(研究項目 C)巨大スピン起電力の実証、(研究項目 D)孤立ソリトン滑走による情報伝送の実証 に関して研究を進めている。

(2) 詳細

キラルソリトン格子を“粒”と見なせば可変周期性、可算性(トポロジカル)、離散化(量子化)などが、一方、“波”として見なせば、集団励起、巨大スピン応答、非局所応答 などの特異な物質機能の発現が期待される。これらの物質機能の検証を目指し、次に示す研究項目に取り組んだ。単軸性キラル磁性結晶である層状カルコゲナイト結晶 CrNb_3S_6 (空間群 $P6_322$)をモデル物質として研究を進めた。 CrNb_3S_6 の磁気転移温度は 130 K である。新材料開発により動作温度の問題は解決する必要があるが、最近では室温を越える転移温度を有する物質の報告例もあるため、基盤原理を確立することを最優先した。

(共通の研究項目)外力下での CSL ダイナミクスの解明

“キラル磁気共鳴現象の基本特性の解明”に焦点をあてて研究を進めた。10 μm 程度の微小結晶において高感度・広帯域での磁気共鳴計測を行い、集団ダイナミクスを介して生じるキ

ラル磁気共鳴を検出することに成功した。キラル磁気共鳴の特性は、広帯域での高速情報伝達を行うための基盤技術を与える。

試料冷却と磁場印加に対応した高周波回路システムとマイクロ波ネットワーク・アナライザを組み合わせ、最大周波数 40 GHz の帯域に対応した高周波信号計測システムを立ち上げた。電子線描画装置などを用いてサファイア基板やシリコン基

板上にマイクロストリップ回路を作製し、フォーカスイオンビーム装置などを用いてマイクロストリップ回路上にマイクロメートルサイズの単軸性キラル磁性結晶 CrNb_3S_6 を配置し、高周波特性計測用のデバイスを作製した。このデバイスにおいてキラル磁性結晶の CSL 集団励起運動を検出することに成功した(図2)。

磁気共鳴の基本特性を解明するため、共鳴周波数や共鳴強度の磁場依存性や温度依存性、外磁場・高周波信号・結晶方位の相互依存性、入力パワー依存性、試料サイズ依存性など、系統的な実験を進めた。その結果、磁気共鳴モードの磁場依存性は、高周波信号と結晶方位の相対配置や、キラル磁気ソリトン格子と強制強磁性状態において異なることが明らかになった。キラル磁気共鳴をキラル軸方向に平行に励起する場合(図2の赤色データ)、磁気共鳴モードの磁場依存性は原点に対して対称な振舞いを示す。キラルソリトン格子の磁気構造を反映して、より正確には、キラルソリトン格子の密度に応じて、磁気共鳴モードが変化することがわかった。一方、キラル軸方向に垂直に励起する場合(図2の青色データ)、原点に対して線形で非対称な依存性を示す。つまり、励起方向に応じて対称性が異なる、言い換えると、キラルソリトン格子の集団励起運動が強い偏光依存性を示すことが明らかになった。この非対称性と強い偏光依存性は磁場を用いて変調可能であり、高周波デバイス設計に有用な特性となる。

国際共同研究を行っているロシア・ウラル連邦大学の理論チームとこれらの実験データのモデル構築を進めている。スピン波を取り込んだモデルでの解析が必要であることがわかった。磁気共鳴モードを同定し、磁気共鳴の基本特性の解明するため、実験と理論データの詳細な比較検証を進めている。

本研究項目で得られた磁気共鳴の基本特性データは、広帯域での高速情報伝達を行うために重要な基盤技術を与える。ここで収得した CSL 集団ダイナミクスに関する知見を基に、(研究項目B)、(研究項目C)、(研究項目D) などの研究項目に着手している。

本研究項目で見出したキラル磁気共鳴特性と(研究項目A)で見出した閉じ込め効果の研究成果を利用する高周波デバイスに関する特許申請(特許出願2)は第3年度までに完了している。第一報となる論文(研究成果リスト記載外、PRB 95, 104415 (2017).)を公開済みであり、続報を準備している。これらの進捗状況からこの研究項目の研究目的は達成したと考えている。

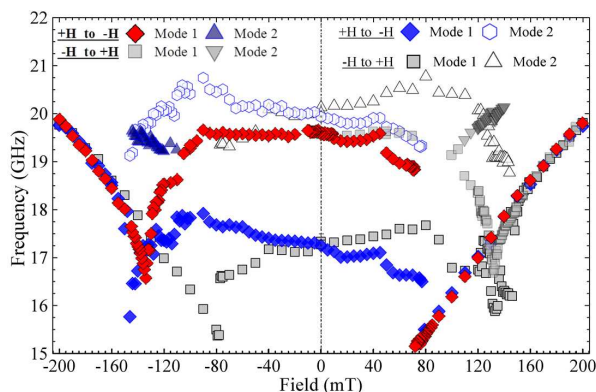


図2 微細キラル磁性結晶における磁気共鳴

(研究項目A)コヒーレントスピン位相に起因する多値的磁気抵抗効果の実証

キラル磁性体 CrNb_3S_6 のバルク結晶において、磁気抵抗の系統的な実験を行った(図3)。キラルソリトン格子の形成に伴って負の磁気抵抗が生じることを観察し、磁気抵抗の経験的スケーリング則が幅広い温度範囲において成り立つことを見出した。さらに、磁気抵抗の大きさがソリトン数に応じて変化する、つまり、キラルソリトン格子形成の秩序変数(オーダーパラメーター)であるソリトン密度に従って変化していることを明らかにした(図3(a)、論文1)。これらの振舞いはキラルソリトン格子の位相コヒーレンスが巨視的スケールに渡って発達していることに起因しており、磁気抵抗を含めた各種物性が普遍的に秩序変数に従い変化することを示唆している。

ローレンツ透過型顕微鏡法を用いた直接観察を行い、“ソリトン閉じ込め効果”を実証することに成功した。結晶キラリティの異なる領域に挟まれた領域において、キラルソリトン格子の周期が離散的に変化することを見出した。例えば、1 μm 幅のキラリティ結晶グレインでは、その領域に含まれる 20 ケのソリトンが磁場印加により一つずつほぐれていく(図4)。これは、ソリトン数に起因するスピン応答が 20 段階に離散化することを意味している。

さらに、TEM 試料加工技術を用い、電気抵抗計測用に 10 μm 角の CrNb_3S_6 結晶小片を作製し、磁気抵抗が離散的かつ多段階に変化することを電氣的に検出することに成功した(図3(b)、図5)。磁気抵抗のステップの大きさは臨界磁場近傍で 25 $\mu\Omega$ 程度に量子化されている。“ソリトン閉じ込め効果”と“磁気抵抗の離散化”もまたキラルソリトン格子が巨視的スケールに渡って示す位相コヒーレンスに起因して生じる特異な物性である。

ソリトン数を電氣的にカウントできることは、ソリトン数を磁気電子デバイスの情報信号として用いることが可能であることを意味している。一つのキラル磁性体から成る磁気デバイスに

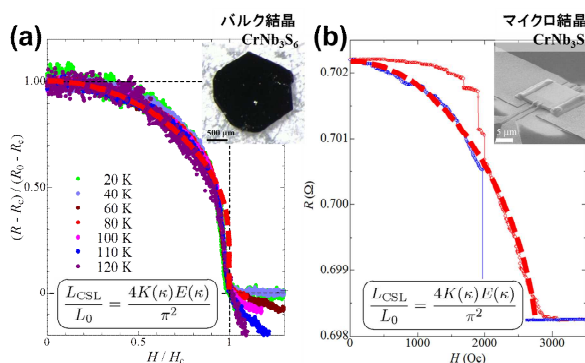


図3 キラル磁性結晶 CrNb_3S_6 における磁気抵抗のスケーリング則[1]

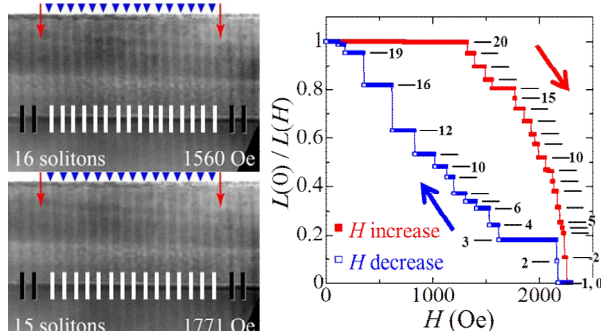


図4 キラル磁性結晶におけるソリトン閉じ込め効果の実証[2]

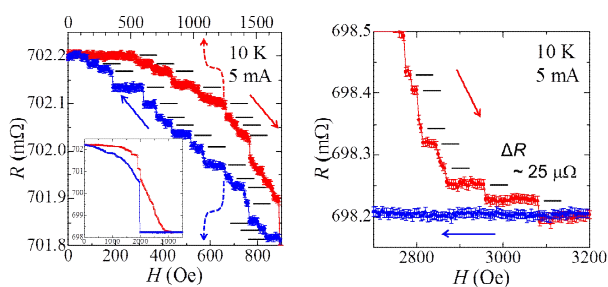


図5 微細キラル磁性結晶における離散的磁気抵抗[2]

において多数の離散信号の情報処理が可能となるであろう。これらの成果は論文(論文2)として発表済みである。関連して、プレスリリースを行い、新聞などに取り上げられた(その他の成果5)。これらの研究進捗を踏まえて、この研究項目の研究目的は達成したと考えている。

(研究項目B) CSLの滑走に伴う磁気情報転送の実証

入出力アンテナを備えたマイクロメーターサイズの微細結晶デバイスにおける“高周波信号の伝達特性の評価”に焦点をあてて、研究を進めた。具体的には、マイクロストリップ回路を介した高周波信号の入カラインおよび信号受信ラインを設けたサファイア基板へキラル磁性結晶 CrNb_3S_6 の微細試料を配置し、高周波信号の伝達特性を評価している。入力信号の進行方向とキラル磁気秩序構造の配置に応じた非相反応答やキラル磁気秩序構造の位相コヒーレンスに基づく非局所位相応答などの伝達特性を観測している。

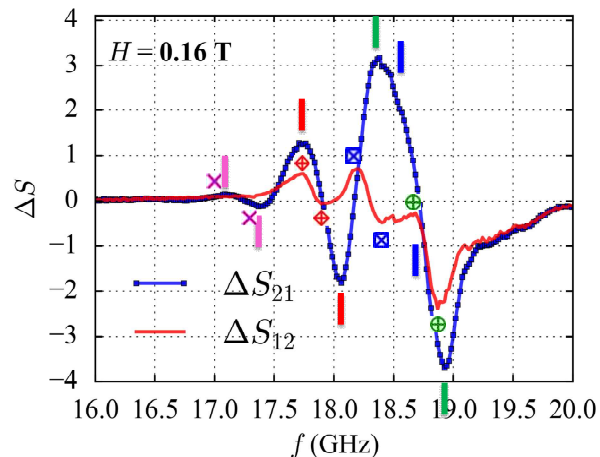


図6 微細キラル磁性結晶における
スピン応答の非相反伝搬

高周波信号の進行方向をキラル軸に平行にとる場合、強制強磁性状態において強い信号伝達が観察された。スピン波の進行方向の反転に対して信号強度に大きな違い(非相反性)を示すことがわかった(図6)。その比は臨界磁場近傍で20程度であり、金属系の材料としては大きい。静磁表面スピン波モードで知られる非相反伝搬の観点から膜厚依存性などを含めて系統的な解析を進めている。キラルソリトン格子の磁場領域では信号は極めて弱くなり、強い磁場依存性があることがわかった。

一方、キラル軸方向に垂直に高周波信号を入力する場合、強制強磁性領域とキラルソリトン格子領域の全領域で信号伝達が観察された。強度に関する非相反性は見出されないが、信号強度はゼロ磁場近傍で強くなる。キラルソリトン格子構造自身が伝送媒体となってスピン応答を増強している可能性が高く、その磁場依存性を系統的に調べている。また、周波数シフトがほぼ全磁場領域において観察された。これはキラルソリトン格子を構成している反対称交換相互作用によるマグノンバンドシフトのためであり、キラル磁性特有の効果であると解釈される。このキラル磁性体が示す強い非相反性はデバイス設計に興味深い高周波特性といえる。これらの研究成果について論文の準備を進めている。本研究項目では、別途にスピンモーメント流の検証という大きな目標があり、その意味では中途の段階にあるが、スピン波伝達の検出という観点からは目標を達成したと考えている。

上記の研究成果に加えて、2次元キラル磁気構造であるキラル磁気渦の磁気相転移現象の安定化メカニズム(論文3)や内部構造(論文4)を解明した。キラル磁性応用の学理構築において重要な研究成果である。(研究項目C) CSLの滑走に伴う巨大スピン起電力の実証 と (研究項目D) 孤立ソリトン滑走による情報転送の実証 は進行中であり、現時点で公開できる研究成果はない。

3. 今後の展開

本研究では、透過型電子顕微鏡法を用いた精密磁気構造解析、磁気抵抗計測、高周波スピン応答計測などを通じ、キラルスピンソリトン格子のスピン応答がトポロジカルな離散性、広帯域化、巨大化、可変性、非対称性などの特異な性質を示すことを明らかにした。キラリティとスピン位相コヒーレンスに保護されて安定に発現するキラルソリトン格子に固有のこれらの物質機能を活用

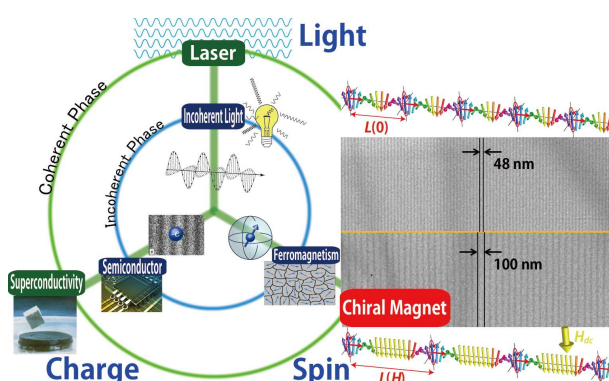


図11 位相コヒーレンスと物質機能[5]

すれば、磁気の根源である電子スピンの位相を制御し操るための基盤技術を開発することが可能になるであろう。つまり、従来からの磁気工学やスピントロニクス研究においてほとんど注目されることのなかったスピン位相に主眼を置く「スピン位相エレクトロニクス」という新たな研究領域を開拓するための基盤学理を構築することができつつある。研究成果は国内外からも注目を集めるようになってきており、例えば、日本物理学会の専門学術誌に invited review paper に研究成果とスピン位相エレクトロニクスの概念を紹介する機会を得た(研究成果リスト:論文5)。

物質科学における位相コヒーレンスの重要性は電荷の位相コヒーレント状態である超伝導や光のコヒーレント状態であるレーザーの研究において認識され、活用されている(図11)。キラル磁気秩序は磁性分野における位相コヒーレンス状態であり、技術革新を産み出すポテンシャルが大きい。研究成果を活用すれば、例えば、マルチビット化、非減衰高速ソリトン伝達、スピン位相変調を介した高速情報伝達などの情報処理技術が開発できるであろう。将来的には、磁気メモリ・センサ、高周波デバイス、論理回路などの磁気情報デバイスの新たな動作原理の開発につながると期待され、今後も精力的に研究活動を継続する。

その一方で、さがけにおける研究活動期間中に、当該研究領域が戦略目標とする具体的な革新的デバイスの形を明確に見出すことはできなかった。デバイスにつながりそうな新しいデータが出た(出そうな)ときは、研究室内外で、時に共同研究者も交えて議論を重ねた。この取り組みの成果の一つとして、冗長性を持つ論理回路を提案している。しかしながら、CMOSが主流の現状を踏まえると、この提案が最良のデバイスであるかは明確ではない。言い換えると、研究が基礎学術段階にあることを強く反映しているともいえる。基礎学術レベルの段階からデバイスの形を絞り込むことは難しいが、できる限り早い段階でキラル磁性ならではのデバイス機能開拓の方針を定めたい。同領域のレイヤーにまたがるさがけ研究者を含めた研究コミュニティにおいて幅広い視点から研究の意義に関する議論を交わしていきたい。

この関連で、さがけ研究領域内でレイヤー間研究会を発案し、幹事を務めている。発案当初の参加メンバーは、アメーバ計算に強い関心を頂く研究者たちと領域の戦略目標であるレイヤー間融合の意図・意味に苦悩し自主的に勉強しようとする研究者らである。現段階では、お互いの研究の理解を進めることを最優先課題として、将来的な方向性、共同研究の可能性

を議論している。研究会ではプログラム(時間)を明確に区切らないスタイルとして、質疑・議論を重要視している。そのことがレイヤー間の相互理解を進めるのに功を奏しているように感じている。参加メンバーは副研究総括による研究者分布表においてエッジに位置している。結果論ではあるが、全研究者を包括しているともいえ、関心を抱くさきがけ研究者が参加できる体制となっている。これらの活動が将来的に領域の戦略目標に貢献できるものとなればよいと思う。

4. 評価

(1) 自己評価

(研究者)

・研究目的の達成状況

当初に設定した研究目的の達成度は70%程度である。想定外の研究成果も得られていることを考慮すると、当初の目標がそれ以上の成果が得たと考えている。一方で、特許申請を2件行ったものの、デバイスの明確な形を提案できなかった。これは本研究が基礎段階にある研究であることを反映しており、キラル磁性体のポテンシャルの高さを示唆するものと考えて研究を継続する予定である。

・研究の進め方(研究実施体制及び研究費執行状況)

研究室の学生(3名)と研究補助者(1名)を登録し、また、他の学生の研究テーマも関連したものに設定することで、精力的かつ効率的に研究を進めることができたと考えている。また、数多くの研究者と共同研究を行った。日本国内にとどまることなく、海外の共同研究先に断続的に中長期滞在を行い、現在の共同研究体制を構築することに成功した。加えて、国際的なコンソーシアムを形成することに成功し、日本側の一翼を担って研究活動を進めている。これらの点は高く評価されるべきと考えている。研究費執行は研究の進行を最優先に考え、項目間流用や前借りなどを含めて、有効に活用した。それにより、キラル磁気共鳴の検出、スピン波伝達の検出に成功するなど、大きく研究を進展させることができた。

・研究成果の科学技術及び社会・経済への波及効果(今後の見込みを含む)

キラル磁性体のポテンシャルを開拓していると自負している。当初、世界の研究の主流(流行)から見れば、本研究は当初、孤軍奮闘したものであったが、さきがけ研究での研究成果も一因となり、学术界、また、産業界からの認知度も向上している。

キラリティの概念は、素粒子、分子、DNA、結晶、生体など、自然界の大小さまざまなスケールで見出すことができ、キラルゆえの有用な機能を物質にもたらしことが知られている。これは、電子がキラルな原子・分子配列の骨格の中を動き、キラル対称性に基づく特異な物理的性質を獲得することによる。本研究では、「キラリティ」は物質における機能発現の鍵になると考え、キラルな結晶構造をもつ磁性結晶に注目し研究を進め、数多くの興味深い研究成果を得た。このことは固体物理、物性物理のみならず多くの研究分野に影響を与えている。この意味で、研究成果は科学としての立ち位置を切り拓くのに十分のものであると考えている。

一方、技術という視点からは、ナノエレクトロニクスの革新を目指す研究領域でのさきがけ研究において確乎たる方針を示すことはできなかった。具体的な技術・デバイス・システムを以てして、社会・経済への波及効果を言及するのであれば、現時点では未知である。しかしな

がら、物質科学における位相物体および位相コヒーレンスの重要性は電荷の超伝導や光レーザーの研究において認識され、大いに活用されている。キラル磁性体におけるCSLは磁性分野における位相コヒーレンス状態であり、技術革新を産み出すポテンシャルが大きい。将来的には、磁気メモリ・センサ、高周波デバイス、論理回路などの磁気情報デバイスの新たな動作原理の開発につながると期待している。

・領域独自の評価項目

領域の戦略目標「素材技術・デバイス技術・ナノシステム最適化技術などの融合」の観点からは、評価が極めて低くなることもありうる。短期的視野に基づいた研究ではなく、数十年先を見据えた研究と理解していただきたい。

(2) 研究総括評価(本研究課題について、研究期間中に実施された、年2回の領域会議での評価フィードバックを踏まえつつ、以下の通り、事後評価を行った)。

(研究総括)

カイラルソリトン格子の巨視的位相コヒーレンスを応用に結びつけようとするユニークな提案であり、長距離スピン秩序に基づく多値磁気抵抗の観測や集団共鳴現象の実験的検出に期待した成果が出ている。

具体的には、マイクロメーター程度の微細化単結晶デバイスを作製し、離散的ソリトン閉じ込め効果とコヒーレントスピン位相に起因する多値的磁気抵抗効果を実証した。これはカイラルソリトン格子の示す位相コヒーレンスが巨視的スケールにおいて顕在化することを世界で初めて実証したものである。カイラル磁性体のマイクロサンプリング試料を高周波回路に配置し、共鳴現象の測定を進めていくことで、スピン波の位相コヒーレンス、集団的共鳴現象のダイナミクスの解明も進展した。特に、磁気共鳴モードの非対称性など興味深い高周波特性が明らかになった。これらはカイラルソリトン格子の集団ダイナミクスの高速制御につながる成果である。強い偏光依存性や長距離スピンコヒーレンスに基づいた非局所応答など当初想定していなかった成果も出現している。課題名に「スピン位相エレクトロニクスの創成」とあるように、非常に高い目標を掲げている関係で、当初目標のすべてが達成されたわけではないが、「さきがけ」の研究成果として十分に高く評価できる研究内容である。研究実施に際しては、イギリス・グラスゴー大学との国際共同研究を積極的に推進したが、これも研究を良い方向に導いている。

カイラルソリトン格子が有するマクロスコピックなスケールでのスピンコヒーレンスは、ユニークで多様な制御性が期待され、潜在的なポテンシャルは高い。物理的理解をさらに深めながら、「さきがけ」で培ったエレクトロニクスの視点を加えることで、課題名にある「スピン位相エレクトロニクスの創成」により一層近づくことを期待したい。「さきがけ」期間中にレイヤー間研究会の幹事として形成した、若手研究者のネットワークも「スピン位相エレクトロニクスの創成」に役立つことが期待される。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. Y. Togawa, Y. Kousaka, S. Nishihara, K. Inoue, J. Akimitsu, A. S. Ovchinnikov, J. Kishine,

“Interlayer Magneto Resistance due to Chiral Soliton Lattice Formation in Hexagonal Chiral Magnet CrNb_3S_6 ”, *Physical Review Letters* **111**, 197204/1–5 (2013).

2. Y. Togawa, T. Koyama, Y. Nishimori, Y. Matsumoto, S. McVitie, D. McGrouther, R. L. Stamps, Y. Kousaka, J. Akimitsu, S. Nishihara, K. Inoue, I. G. Bostrem, V. E. Sinitsyn, A. S. Ovchinnikov, J. Kishine, “Magnetic Soliton Confinement and Discretization Effects Arising from Macroscopic Coherence in a Chiral Spin Soliton Lattice”, *Physical Review B* **92**, 220412(R)/1–6 (2015). *Rapid Communication, Editors' Suggestion*, 文部科学省プレスリリースレクチャ (2015/12/15), 日刊工業新聞 第 33 面 (2015/12/18), 科学新聞 第 4 面 (2016/1/1), 日本経済新聞 第 13 面 (2016/1/11), AlphaGalileo (2016/2/10), EurekAlert! (2016/2/11) など.

3. A. O. Leonov, Y. Togawa, T. L. Monchesky, A. N. Bogdanov, J. Kishine, Y. Kousaka, M. Miyagawa, T. Koyama, J. Akimitsu, Ts. Koyama, K. Harada, S. Mori, D. McGrouther, R. Lamb, M. Krajenak, S. McVitie, R. L. Stamps, K. Inoue, “Chiral Surface Twists and Skyrmion Stability in Nanolayers of Cubic Helimagnets”, *Physical Review Letters* **117**, 087202/1–5 (2016).

4. D. McGrouther, R. Lamb, M. Krajenak, S. McFadzean, S. McVitie, R. L. Stamps, A. O. Leonov, A. N. Bogdanov, Y. Togawa, “Internal structure of hexagonal Skyrmion lattices in cubic helimagnets”, *New Journal of Physics* **18**, 095004/1–12 (2016).

5. Y. Togawa, Y. Kousaka, K. Inoue, J. Kishine, “Symmetry, structure and dynamics of monoaxial chiral magnets”, *Journal of Physical Society of Japan* **85**, 112001/1–37 (2016), *Invited Review Paper, Cover image on JPSJ web site*.

(2) 特許出願

研究期間累積件数: 2 件

1.

発 明 者: 戸川 欣彦、松本 悠、十河 忠幸、米村 潤一郎

発明の名称: 磁気デバイス及び論理回路装置

出 願 人: 大阪府立大学

出 願 日: 2015/2/27

出 願 番 号: 特願 2015-039011

2.

発 明 者: 戸川 欣彦、松本 悠、岸根 順一郎

発明の名称: 磁性体装置及び高周波デバイス

出 願 人: 大阪府立大学

出 願 日: 2015/2/27

出 願 番 号: 特願 2015-039016

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

- 【学会発表・招待講演】Yoshihiko Togawa, “Structure and Functionality of Chiral Soliton Lattice in a Monoaxial Crystal of Chiral Magnet”, 3rd. TOYOTA RIKEN International Workshop, 2016/7/2.
- 【学会発表・招待講演】戸川 欣彦、「キラル磁気秩序の物理と応用」、2016 年 第 77 回

応用物理学会秋季学術講演会 スピントロニクス分科 シンポジウム「応用に向けた新規スピントロニクス現象の物理」、2015/9/15.

3. 【受賞】戸川 欣彦、「日本顕微鏡学会奨励賞」(2014)
4. 【解説】戸川 欣彦、キラル磁性のスピントロニクスへの応用、化学工業 67(3), 1-8 (2016).
5. 【プレスリリース】文部科学省プレスリリースレクチャ、「らせん結晶構造を持つ磁石のひねり数を制御・検出に成功～電子デバイスのメモリー密度の飛躍的な向上が期待～」、2015/12/15、<http://www.jst.go.jp/pr/announce/20151217-2/index.html>.

研究報告書

「階層融合型機能的冗長化による次世代低電力デバイス向け高信頼化設計」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 平成 25 年 10 月～平成 29 年 3 月

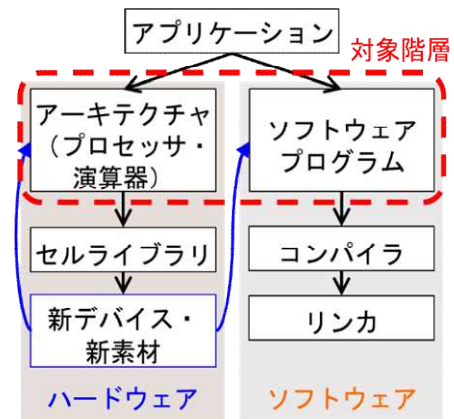
研究者: 原 祐子

1. 研究のねらい

近年、様々な IoT アプリケーションやサービスが創出されている。今後は、センシングのみではなく、クラウドを介さずエッジ端末のみでリアルタイムにアプリケーションを処理する要求が高まる。IoT アプリケーションの多くを支えるエッジ端末は大量配布されるため、エネルギー消費量、高信頼性(サービス・メンテナンスコスト)が大きな課題である。

一方、CMOS の微細化・低電力化のみでなく、新デバイス・新材料を用いたポストシリコンデバイスなど様々な低電力デバイスの研究開発が進んでいる。エネルギー消費量などの観点から、これらの低電力デバイス(以後、次世代低電力デバイス)をIoTアプリケーションへ積極的に活用することが期待される。しかし、製造時故障・経年劣化への脆弱性が回路の寿命(MTTF; Mean Time To Failure)へ大きな影響を与える点が、実用化への大きなボトルネックとなっている。

本研究のねらいは、(1)エッジ端末への演算回路搭載によるIoTアプリケーション・サービスの充実、(2)次世代低電力デバイスの積極的な利活用、(3)エッジ端末回路の高信頼設計、という 3 点の課題をすべて解決する上流(ソフトウェア、プロセッサ、演算器)設計技術を実現することである。特に、課題(3)では、図1に示す通り、次世代低電力デバイスの脆弱性を上流(ソフトウェア、プロセッサ、演算器)設計で考慮・補完する耐故障化設計手法を構築することで、新デバイス・新材料の早期実用化を促進、および、設計生産性の改善が期待される。デバイスの故障の種類・時期に応じて種々の耐故障化技術を開発し、それらを統合することで、入力(使用するデバイス、対象アプリケーション、設計制約)に対して最適な高信頼ハードウェア・ソフトウェアを自動設計するフレームワークを開発し、次世代低電力デバイスの実用化加速を狙う。



次世代デバイスの短所を補う上流自動設計 (CAD) 技術で積極的活用を促進
【図 1：研究対象の階層】

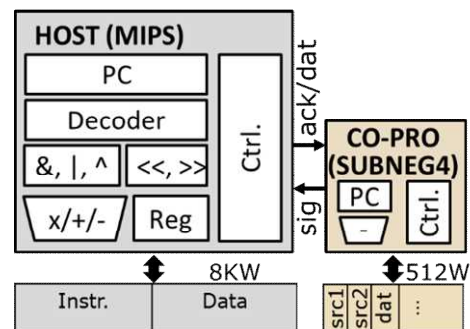
2. 研究成果

(1) 概要

演算処理を行う回路の故障は、いつ起きるか(製造時と経年劣化)とどのような故障か(永久故障と遅延故障)で各々二種に大別される。製造時故障については、製造後テストで故障を検出した場合、回路を部分再構成して故障回避する演算器設計手法(研究テーマ A)を考案した。経年劣化については、故障検出・回避専用のソフトウェア(研究テーマ B・C)およびプロ

セッサ(研究テーマ C)を用いる手法を考案した。研究期間内では、経年劣化による故障の検出・回避に絞って提案手法の有用性を評価した。

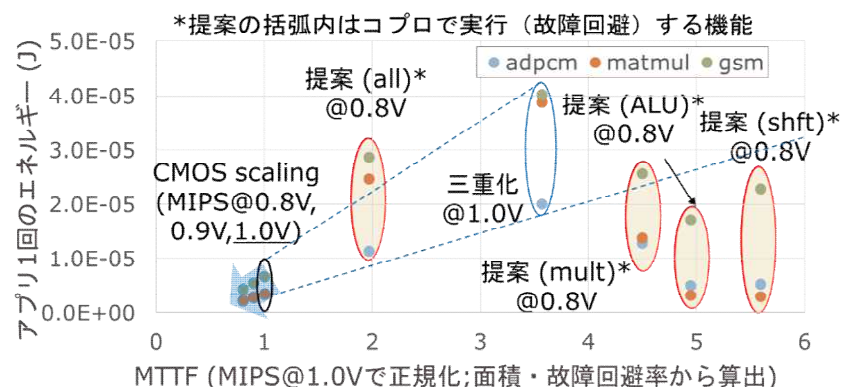
本提案手法では、耐故障化対象回路(評価では MIPS プロセッサ)に対して単一命令セットコンピュータ(OISC; One Instruction Set Computer)の subneg4 を用いる(図2)。OISC は、一種類の命令であらゆる演算を実行可能である。命令が一種であるため回路規模が小さい反面、MIPS の 1 命令と同等の処理を完了するために複数命令実行する必要がある。本研究では、OISC は MIPS と並列動作させ、可能な限り MIPS と等価な処理を行い、結果を比較することで故障検出する。全ての演算を検査せずに、従来手法(二重化)以上の故障検出率を実現した。さらに、故障演算器を使用する演算を全て OISC で代替処理することで、故障回避も行。実アプリケーション 3 種に対して、MIPS の故障回避を行った結果を図3に示す。横軸は MTTF(現在の CMOS デバイスの結果で正規化)、縦軸は故障回避時のアプリケーション 1 回分のエネルギー消費を示す。CMOS 微細化は、エネルギー消費量だけでなく MTTF まで低下させる。従来手法(三重化)は、冗長設計によりエネルギー消費が肥大化する。すなわち、従来は図 3 の青点線内の MTTF・エネルギーのトレードオフしか実現できない。本提案手法により、アプリケーションや故障によって差はあるものの、多くの場合で従来手法より MTTF 改善(高信頼化)とエネルギー削減を両立できている。



【図 2 : 提案手法概略図】

結果を比較することで故障検出する。全ての演算を検査せずに、従来手法(二重化)以上の故障検出率を実現した。さらに、故障演算器を使用する演算を全て OISC で代替処理することで、故障回避も行。実アプリケーション 3 種に対して、MIPS の故障回避を行った結果を図3に示す。横軸は MTTF(現在の CMOS デバイスの結果で正規化)、縦軸は故障回避時のアプリケーション 1 回分のエネルギー消費を示す。CMOS 微細化は、エネルギー消費量だけでなく MTTF まで低下させる。従来手法(三重化)は、冗長設計によりエネルギー消費が肥大化する。すなわち、従来は図 3 の青点線内の MTTF・エネルギーのトレードオフしか実現できない。

本提案手法により、アプリケーションや故障によって差はあるものの、多くの場合で従来手法より MTTF 改善(高信頼化)とエネルギー削減を両立できている。



【図 3 : 故障回避時の信頼性・エネルギー消費量】

その他、経年劣化による遅延故障

発生を抑制するソフトウェア・プロセッサ設計手法(研究テーマ D)を考案した。また、乗算器の故障回避オーバーヘッドを削減するため、故障が乗算結果に与える影響を調査した(研究テーマ E)。これらを併用することで、故障数および故障回避オーバーヘッドを抑え、図 3 の結果をさらに改善できると考えられる。

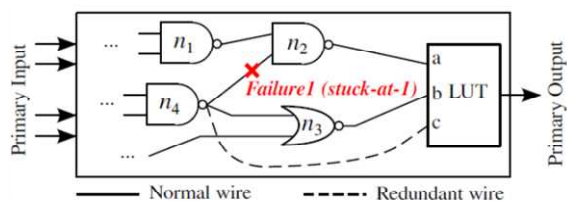
(2) 詳細

●研究テーマ A「部分的再構成可能な演算器設計による製造時故障回避」[論文 2]

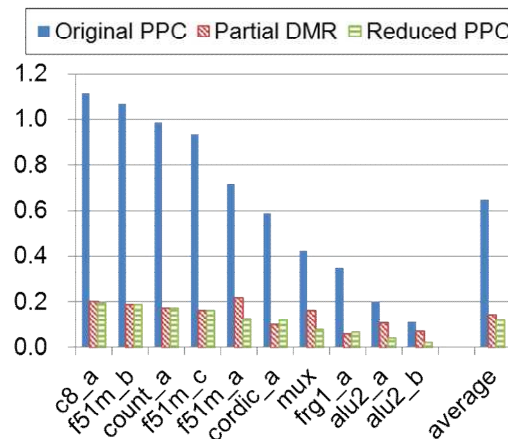
研究成果:回路設計では、製造後に動作検証・テストを行う。これまでは、回路の二重化でしかテストによって検出された故障を回避できなかった。本研究では、回路中に予め再構成可能な論理ブロック(LUT; Look-Up Table)を埋め込み、故障に応じて柔軟に論理を変更(再構

成)する手法を考案した(図 4(a))。回路中のどの程度(入力数)の LUT をどこに埋め込むかが重要な課題である。本研究では、LUT のサイズと挿入位置を効率良く探索するアルゴリズムを考案した。永久故障を対象に、同等の故障回避を実現するために要する面積オーバーヘッドを評価した(図 4(b))。提案手法(Reduced PPC)は既存手法(二重化)より少ない面積オーバーヘッドで等価な故障回避を実現できる。

達成状況: 演算器設計に本手法を適用することを想定している。演算器が大規模になるほど、最適な LUT のサイズと挿入位置を決定するのは非常に困難であるが、本研究は現実的な時間内で探索・決定する指針を示した。設計手法・環境構築は達成した。



【図4(a) : Partially Programmable Circuit (PPC)】



【図4(b) : 故障回避に要する面積オーバーヘッド】

●研究テーマ B「経年劣化による故障を回避するソフトウェア手法」[論文 3]

研究成果: プロセッサ中に故障が起こった場合でも、その故障箇所を使わずにアプリケーションを実行することができれば故障を回避することができる。本手法では、故障確率は面積に比例するものとして、EX ステージ内の演算器に着目し、それぞれの演算器に対する故障回避プログラムとそれを実行可能な小規模回路を予め付加することで故障回避する手法を提案した。本手法の成果は図3に示した通りである。

達成状況: 本研究の主たる成果である研究テーマ C のシーズになった。エネルギー削減のための改良の余地はあるものの、故障回避の効果としては概ね期待した成果を得られた。

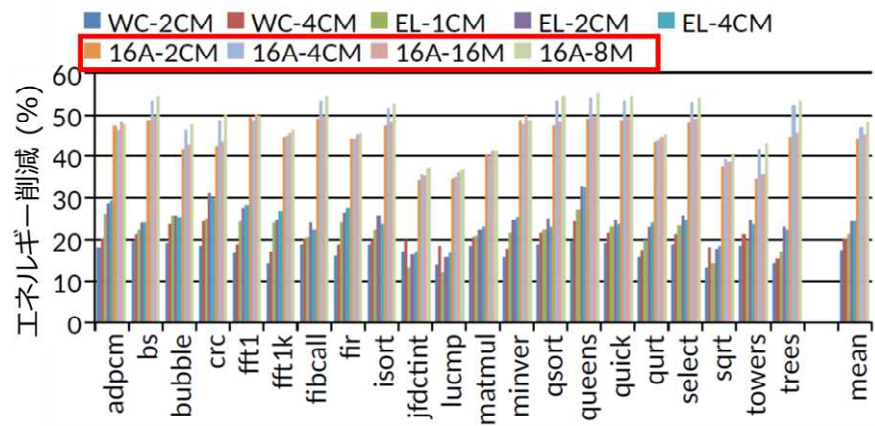
●研究テーマ C「経年劣化による故障を検出・回避するプロセッサとその設計環境」[論文4、論文6]

研究成果: 研究テーマ B で考案した故障回避するソフトウェア手法を拡張・改良し、故障検出およびさらに効率的な故障回避を実現した(論文4)。故障検出・回避用ソフトウェアを実行する回路(subleq 0(論文6)または subneg4)を開発し、故障検出率および故障回避時のエネルギー効率を改善した。アーキテクチャ全体の概略図および成果は、それぞれ図2および図3に示した通りである(図2および図3では、subleq 0を更に改良した subneg4 を使用)。

達成状況: 経年劣化によって起こる永久故障と遅延故障の両者を対象にしている。永久故障の評価は完了し、期待する効果を達成したことを確認した。遅延故障も同様に検出可能であることは確認済みだが、評価は未完了であり引き続き評価を行い実証する。

●研究テーマ D「遅延故障発生を抑制するソフトウェア・プロセッサ設計手法」[論文 1]

研究成果：経年劣化による遅延故障は、まず乗算器や ALU のような大きな演算器から発生する。従来は遅延故障を起こさないように周波数や電源電圧にマージンを設定し



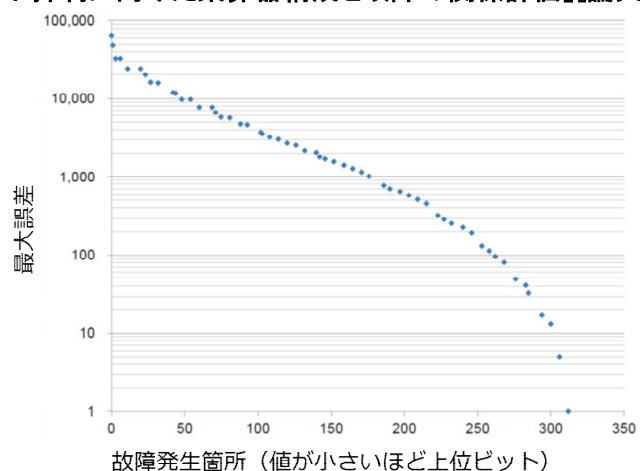
【図 5：エネルギー削減効果（提案手法は赤枠）】

て動作させるが、性能改善やエネルギー削減のボトルネックになる。代替案としては、小さい演算器を複数回使用する手法があるが（例：32 ビット乗算器 1 回使用する代わりに 16 ビット乗算器を 4 回使用）、実行サイクル数とのトレードオフであり、最適設計は困難である。さらに、従来手法は乗算器を主眼にしており、2 番目のボトルネックである ALU の対策手法が欠けている。本研究では、乗算器および ALU に着目して、上述の命令分解の粒度とその命令セット・プロセッサ拡張を定量的に評価した。図 5 は、遅延故障を起こさないように命令セット・プロセッサ拡張を行った場合のエネルギー削減率を示している。回路面積および周波数改善により、大幅なエネルギー削減を実現できた。本手法によって探索した命令セット・プロセッサ拡張を適用することで、図 3 の結果をさらに改善できる。

達成状況：本手法の効果は十分検証できたと考えられる。本手法を適用すると MIPS の演算実行に複数サイクル要するため、研究テーマ C と併用するには図 3 のアーキテクチャの拡張が必要である。引き続き、統合に向けて拡張・改良を進める。

●研究テーマ E「故障回避オーバーヘッド抑制に向けた乗算器構成と故障の関係評価」[論文 5、論文 7]

研究成果：図 3 に示した通り、乗算器の故障回避はエネルギーオーバーヘッドが大きい。アプリケーションと故障箇所によっては故障の影響はないあるいは無視できるため、検出後も回避せずそのまま MIPS の乗算器を使用できる可能性がある。本研究ではまず 8 ビットの乗算器を対象に、故障箇所と故障の影響（最大誤差）の関係を調査した。網羅的な実験評価により、上述の通り、故障の影響をほとんど無視できる場合が十分あることを確認した（図 6）。本知見を 32 ビット乗算器に反映することで、図 3 の結果をさらに改善できることが期待される。



【図 6：8 ビット乗算器における故障の影響】

達成状況:本研究は、研究テーマCの評価から着想を得た。まだ8ビット乗算器のみでしか評価できておらず達成度は高くないが十分な手応えを感じているため、今後は 32 ビット乗算器への適用およびアプリケーションの特徴(許容誤差)抽出を行い、他の手法と併用・評価したいと考えている。

3. 今後の展開

●本研究の拡張・改善

本研究ではFPGAを用いて、次世代低電力デバイスを想定した見積もり評価を行った。更なる拡張・改良の後、実際の次世代低電力デバイス実機での評価を検討・展開していく。さきがけ研究などを通して意見交換しているデバイス・材料の研究者と、密な議論を重ねていきたい。

また、近年、処理性能・エネルギー効率の観点からヘテロジニアス・マルチコアプロセッサの需要が高まっており、本研究のアーキテクチャもそれに相当する。開発済みの自動設計環境を活用しつつ、IoT・ビッグデータアプリケーションに向けた応用・拡張を展開する。

●OISCの拡張・応用

本研究で故障検出・回避に用いた小型プロセッサ subneg4 を拡張・改善する。2016 年 12 月から開始している ACT-「情報と未来」において、IoT・ビッグデータのストリームデータ処理に特化したメニーコアプロセッサに応用する。小型・省エネルギーを両立するメニーコアプロセッサとその設計環境構築に展開する。

4. 評価

(1) 自己評価

(研究者)

●研究目標の達成状況

本研究課題は、分野縦断型融合(上流のアプリケーション・回路設計から下流のデバイス・材料までの研究・技術統合)を目指し、それを目標に設定して取り組んできた。当初は「次世代低電力デバイスをすぐに実用可能な自動設計技術の確立」を目指し、開発段階のデバイスのパラメータや抽象モデルをすぐに得られると期待していたが、非常に困難であるということをしきがけ研究者との交流を通して感じ取った。しかし同時に、上流自動設計で確立すべき技術、すなわち、次世代低電力デバイスの製造技術ができればすぐに必要になる技術が何かという視点から、改めて本研究の価値・位置づけを考え直し、下流技術(デバイス・材料)への一定の貢献ができたと考えている。具体的には、次世代低電力デバイスで回路を実現できるようになった際に、まずは回路中の故障検出・回避による高信頼化設計は不可欠な技術であり、その技術の実現という目標は達成できた。ただし、各々のデバイスの特徴を考慮して、上流設計で回路の故障を救済する点は課題として残っている。デバイス・材料技術の発展とともに、今後も検討していく必要があると考えている。

一方、上流設計者に対しても、対象デバイスによらず今すぐに利用できる高信頼設計の新たな選択肢を提供できた点は、当初の目標以上の成果であったと考えている。

●研究の進め方

本研究開始直後に異動があったことから、最初に軌道に乗るまでに時間を要した。特に、新たな環境で研究・評価環境を揃えるまで、当初の想定以上の時間を要した。2 年度目後半頃から、徐々に研究実施体制が整い、新たなアイデアや課題を創出することができた。

当初の想定通り、回路設計用のソフトウェアを使用するためにハイパフォーマンスな計算機環境(サーバ等)を充実させる必要があり、本研究費を有効に執行できたと考えている。

●研究成果の科学技術及び社会・経済への波及効果

技術面については上記「研究目標の達成状況」で述べた通り、上流設計からの回路の効率的な高信頼化(故障検出・回避)を実現したことによって、デバイス・材料に起因する MTTF(寿命)の課題を改善できた。すなわち、デバイス・材料レベルで解決すべき課題の閾値を下げ、実用化までの時間を短縮する効果がある。上流設計技術に対しても、高信頼化技術の新たな選択肢と、その技術を含めた自動設計環境を実現したことによる技術的貢献は大きい。

また、IoT アプリケーション・サービスの高度化・複雑化に伴い、社会・経済への貢献も増すと期待される。本技術によって実現可能な IoT アプリケーション、提供可能なサービスを拡充することができ、特に社会の安全・安心、市場経済の拡大などへの波及効果は高い。これらの効果は、従来の CMOS デバイスにおいても期待できるが、最終的に次世代低電力デバイスと融合することによりその効果は更に高まることが期待される。

●その他

新デバイス・材料を実用化するためには、分野縦断の技術融合・協力がなければ成し得ない。さがけ領域内の研究者や本研究が切欠になり生まれた領域外の研究者との交流を通じて、各レイヤーの研究・技術の現状・課題・目標を相互に理解することができた。また、相互理解のために、領域内研究者らとの勉強会を発案・発起できたことは、大きな貢献であったと考えている。

(2) 研究総括評価(本研究課題について、研究期間中に実施された、年2回の領域会議での評価フィードバックを踏まえつつ、以下の通り、事後評価を行った)。

(研究総括)

次世代低電力デバイス(超微細 CMOS、CNT、グラフェン、有機デバイス等)で顕著になると考えられる遅延故障や永久故障などの経年劣化の課題を、CAD レイヤーの上位設計の立場から改善することを目標とし、高信頼 CAD 設計技術を構築することを目指した。多様化する IoT に活用される端末への適用をターゲットとし、端末単体での故障診断・検出・回復を目的とした。既存手法の多重化(三重化)と比較して、少ない面積オーバーヘッド(低コスト)、データパスの規模によらない利用(汎用性)を実現した。

次世代デバイスの経年劣化について上位設計からの耐故障設計については、極めて重要な視点である。今後次世代デバイスの特性や再現性等のデータが共有されるような状況になれば、本研究成果の波及効果が出てくると思われる。また、FPGA ではなく ASIC や SoC による評価、更には低電圧動作 CMOS や次世代デバイスによる有用性が示されれば、産業的にインパクトが出てくると考える。

さがけ期間中に奈良先端大助教から東工大准教授に昇進、学会での受賞もあり、さが

がけ研究者のイメージアップにも貢献した。

今後、本研究が起爆剤となって、故障メカニズム、プロセス設計、生産、評価解析、テストなどの専門家が集い、それらに立脚した設計が行われ、さらに上位からの自己診断、故障回避・回復設計へと深化していく体系的な高信頼 CAD 設計技術が構築されることを期待する。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. Y. Hara-Azumi et al., "Emulator-Oriented Tiny Processors for Unreliable Post-Silicon Devices: A Case Study", Asia and South Pacific Design Automation Conf., pp.85-90, 2014.
2. S. Sanae et al., "Better-than-DMR Techniques for Yield Improvement", Intl. Symp. on Field-Programmable Custom Computing Machines, p.34, 2014.
3. Y. Hara-Azumi et al., "Instruction-Set Extension of Embedded Microprocessor for Timing Speculation," Intl. Conf. on Integrated Circuits, Design, and Verification, pp. 67-72, 2015.
4. T. Ahmed et al., "Synthesizable-from-C Embedded Processor Based on MIPS-ISA and OISC", Intl. Conf. on Embedded and Ubiquitous Computing, pp. 114-123, 2015.
5. T. Yamamoto et al., "A Systematic Methodology for Design and Analysis of Approximate Array Multipliers", Asia Pacific Conf. on Circuits and Systems, pp. 352-354, 2016.
6. N. Sakamoto et al., "Subleq Θ : An Area-Efficient Two-Instruction-Set Computer", IEEE Embedded Systems Letters (採択決定).
7. T. Yamamoto et al., "A Systematic Methodology for Design and Worst-Case Error Analysis of Approximate Array Multipliers," IEICE Transactions on Information and Systems (採択決定).

(2) 特許出願

研究期間累積件数: 0件

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

●研究成果物

研究テーマ C のフレームワークおよび拡張した小型プロセッサのプログラム一式をオープンソースとして公開し、学術研究の発展・促進に貢献した。

- ・研究テーマ C: <https://github.com/Hara-Laboratory/Hirundo>
- ・小型プロセッサ: <https://github.com/Hara-Laboratory/subleq-toolchain>

研 究 報 告 書

「単原子膜ヘテロ接合における機能性一次元界面の創出とエレクトロニクス応用」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 平成25年10月～平成29年3月

研 究 者: 宮田 耕充

1. 研究のねらい

GaAs 等の化合物半導体等に代表される従来の固体物質において、異種物質間の接合は、二次元電子ガスに関連する基礎物理、高移動度トランジスタ等の電子デバイス、そして発光素子・太陽電池等の光デバイスなど様々な基礎・応用の観点から膨大な研究がなされてきた。近年、この三次元の固体物質とは異なる物質群として、グラフェンや二硫化モリブデン(MoS_2)に代表される様々な原子層物質が発見され、その特異な構造や電氣的・光学的性質より、基礎物理からデバイス応用まで幅広い研究が展開されている。従来の固体材料と同様に、原子層物質においても異なる原子層が「面内で接合した原子層ヘテロ構造」が実現できれば、接合部には一次元の界面が形成される。この一次元界面において電子のポテンシャルを変調できれば、従来にはない極微細な細線や伝導障壁としての利用が期待できる。このような着眼下、本研究では、原子層ヘテロ構造における機能性一次元界面の実現を目標として研究を進めてきた。具体的には、グラフェンや六方晶窒化ホウ素、そして MoS_2 や二硫化タングステン(WS_2)等の遷移金属ダイカルコゲナイド(TMDC)の原子層を対象に面内ヘテロ構造の作製法の確立と界面電子状態の解明に取り組んできた。特に、ヘテロ構造の作製法として化学気相成長に着目し、成長プロセスの開発から評価法の確立までを中心に進めてきた。

2. 研究成果

(1)概要

本研究の主要な成果として、TMDC 原子層のヘテロ構造に関する気相成長を用いた作製技術や端構造技術の開発と界面バンドダイアグラムの可視化が挙げられる。以下に、各研究項目の概要を示す。

研究テーマ A.「高品質 TMDC 原子層の成長法の確立」

本研究では、化学気相成長(CVD)の基板としてグラファイトのへき開面を用いることで、極めて均一な発光特性を示す単層の WS_2 と MoS_2 が合成できることを見出した。本成果は、CVD 合成された高品質 TMDC 試料の基準となる光学特性と従来の成長基板が持つ課題を明確にした点で重要な意義を持つ。

研究テーマ B.「単層 $\text{Mo}_{1-x}\text{W}_x\text{S}_2$ 合金の面内および積層ヘテロ構造の合成法の開発」

本研究では、様々な比率の単層 $\text{Mo}_{1-x}\text{W}_x\text{S}_2$ 合金やその面内・積層ヘテロ構造を基板上で直接成長させる手法を開発した。本成果は、様々な組成の合金の基礎物性を系統的に調べるための有用な手段として利用できる。

研究テーマ C.「グラフェンのジグザグ端の選択形成法の開発」

本研究では、グラフェンに一軸の応力が働いたときに生じる亀裂において、選択的にジグザグ端が形成されることを見出した。本手法では清浄かつ構造制御されたグラフェン端を簡便に作

製でき、また他の原子層物質などにも適用できることから、ジグザグ端の物性研究や接合作製に関する新しい基盤技術として活用できる。

研究テーマ D. 「単層 TMDC 面内ヘテロ構造のバンドダイアグラムの可視化」

本研究では、これまで未解決であった TMDC 面内ヘテロ構造の接合界面の電子状態を、走査トンネル顕微鏡/分光を用いて初めて解明した。特に、独自に合成した $\text{WS}_2/\text{Mo}_{1-x}\text{W}_x\text{S}_2$ ヘテロ界面において、1原子レベルでの急峻な界面が実現出来ていることや、バンド端の空間変化を可視化することに成功した。

研究テーマ E. 「二層 TMDC ヘテロ構造界面における閉じ込めポテンシャルの形成」

本研究では、3種類の TMDC ヘテロ構造を化学気相成長により作製し、その界面電子状態を導電性原子間力顕微鏡および走査トンネル顕微鏡/分光を用いて調べた。特に、二層の WS_2 と MoS_2/WS_2 の積層構造の接合界面において、価電子帯では閉じ込めポテンシャル、また伝導帯ではポテンシャル障壁が形成されることを見出した。

(2) 詳細

研究テーマ A. 「高品質 TMDC 原子層の成長法の確立」

TMDC 原子層の高品質試料の成膜法に関しては、品質の評価法も含め未だ研究段階にある。本研究では、化学気相成長の基板としてグラファイトのへき開面を用いることで、極めて均一な発光特性を示す単層の WS_2 と MoS_2 が合成できることを見出した(図1)。グラファイト上に成長した試料は、低温(80K)にてシリコン上単層 WS_2 の 1/5 程度になる非常に線幅(約 8meV)を持つ発光ピークを示す。これらの差異は、成長基板の凹凸や熱膨張係数のミスマッチによる格子歪みが、原子層の電子構造の不均一性を引き起こしていることで解釈できる。本成果は、CVD 合成された高品質 TMDC 試料の基準となる光学特性と従来の成長基板が持つ課題を明確にした点で重要な意義を持つ。(主な研究成果リスト:論文1)

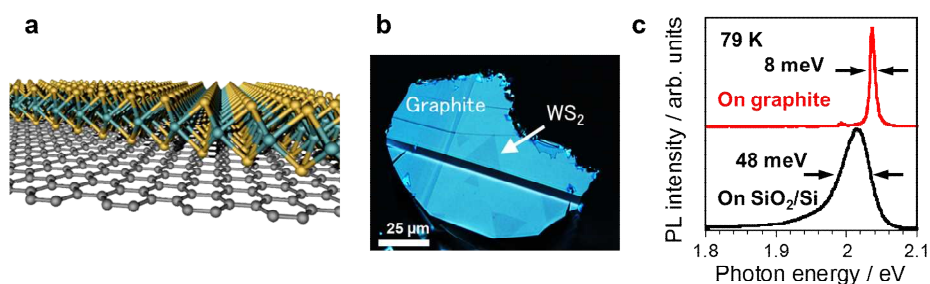


図1. グラファイト上に成長した単層 WS_2 の(a)構造モデルと(b)光学顕微鏡写真。(c)グラファイトおよび SiO_2/Si 基板上に成長した単層 WS_2 の発光スペクトル。

研究テーマ B. 「単層 $\text{Mo}_{1-x}\text{W}_x\text{S}_2$ 合金の面内および積層ヘテロ構造の合成法の開発」

TMDC 原子層である MoS_2 や WS_2 では合金が形成可能であり、組成に応じてバンドギャップが連続的に変調できることが知られていた。本研究では、様々な比率の単層 $\text{Mo}_{1-x}\text{W}_x\text{S}_2$ 合金やその面内・積層ヘテロ構造を基板上で直接成長させる手法を開発した(図2)。具体的には、基板上にモリブデンやタングステンの酸化物の薄膜を形成し、硫黄雰囲気において700~900°C程度でアニールすることで金属の表面拡散と硫化を促進させた。このとき、拡散の温度やレー

トの違いにより、組成の異なる $\text{Mo}_{1-x}\text{W}_x\text{S}_2$ 合金のヘテロ構造が形成される。本手法は、様々な組成の合金の基礎物性を系統的に調べるための有用な手段として利用できる。(主な研究成果リスト:論文2)

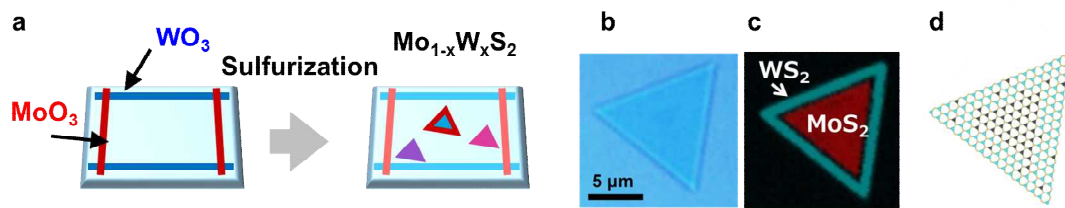


図2. (a)蒸着した酸化物から $\text{Mo}_{1-x}\text{W}_x\text{S}_2$ 合金を成長させる模式図、成長した結晶の(b)光学顕微鏡写真、(c)ラマンイメージングの結果、および(d)結晶の構造モデル。

研究テーマ C. 「グラフェンのジグザグ端の選択形成法の開発」

グラフェン結晶の端やグラフェン・窒化ホウ素の接合系においては、端および界面構造に依存して物性が大きく変わる。端構造には、ジグザグ端とアームチェア端の二種類が存在し、これら端の選択的な作製は重要な課題となっている。本研究では、グラフェンに一軸の応力が働いたときに生じる亀裂において、選択的にジグザグ端が形成されることを見出した(図3)。本手法では清浄かつ構造制御されたグラフェン端を簡便に作製でき、また他の原子層物質などにも適用できることから、今後のジグザグ端の物性研究や接合作製に関する新しい基盤技術になると期待される。(主な研究成果リスト:論文3)

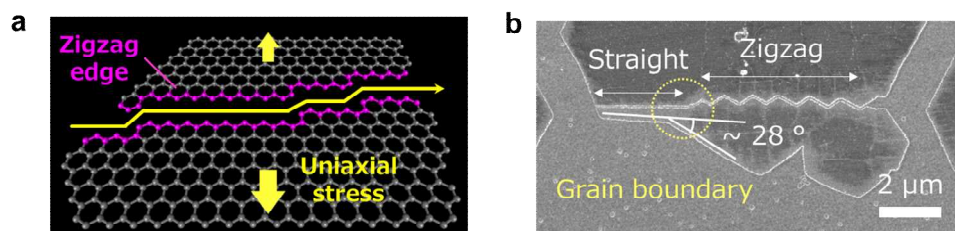


図3. (a)一軸の応力によりグラフェンのジグザグ端が形成するイメージと(b)実際のグラフェン多結晶グレインに形成された亀裂の電子顕微鏡像。グラフェンの結晶方位に依存して亀裂の方向が変化する。

研究テーマ D. 「単層 TMDC 面内ヘテロ構造のバンドダイアグラムの可視化」

本研究では、これまで未解決であった TMDC 面内ヘテロ構造の接合界面の電子状態を、走査トンネル顕微鏡/分光 (STM/STS) を用いて初めて解明した。特に、独自に合成した $\text{WS}_2/\text{Mo}_{1-x}\text{W}_x\text{S}_2$ ヘテロ界面において、1原子レベルでの急峻な界面が実現出来ていることや、バンド端の空間変化を可視化することに成功した(図4a,b)。また、この系では、タイプ II と呼ばれるバンドアライメントが実現している点、バンド端の変化が界面近傍 10nm 程度で起こる、等の基礎的な知見を得ることができた。これらの結果は、TMDC ヘテロ構造様々なデバイス応用や材料設計において重要な指針となる。(主な研究成果リスト:論文4)

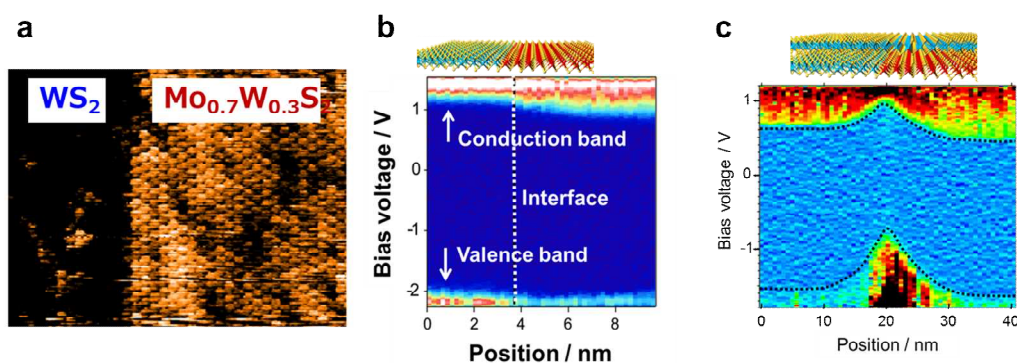


図4. (a)単層 WS₂/Mo_{1-x}W_xS₂ ヘテロ界面の STM 像と(b)構造モデルと局所状態密度の空間変化。(c)二層 TMDC ヘテロ構造の構造モデルと局所状態密度の空間変化。

研究テーマ E.「二層 TMDC ヘテロ構造界面における閉じ込めポテンシャルの形成」

TMDC 面内ヘテロ構造の接合部に電荷キャリアを閉じ込めることができれば、1次元界面を利用した極微細な伝導チャネルを実現できる可能性がある。本研究では、この可能性を検証するため、3種類の TMDC ヘテロ構造を化学気相成長により作製し、その界面電子状態を導電性原子間力顕微鏡および走査トンネル顕微鏡/分光を用いて調べた。特に、二層の WS₂ と MoS₂/WS₂ の積層構造の接合界面において、価電子帯では閉じ込めポテンシャル、また伝導帯ではポテンシャル障壁が形成されることを見出してきた(図 4c)。これらの結果は、本課題で目指してきた1次元界面へのキャリア蓄積が可能なポテンシャル形成を初めて確認した例であり、今後の極微細伝導チャネルの実現が期待される。(主な研究成果リスト:論文5)

3. 今後の展開

本研究で得られた TMDC 原子層のヘテロ構造に関しては、現状では、主に MoS₂と WS₂を対象にしており、今後、異なる組成・機能を持つ TMDC ヘテロ構造の作製と電子状態の解明へと研究を展開していくことが可能である。特に、接合する TMDC のキャリアタイプ・濃度やバンドアライメントを制御していくことで、様々な光・電子デバイスに利用できると期待される。一方で、ドーピング技術に加え、成長基板温度の低温化、結晶の均一性の向上、成長位置の制御などが集積性を示すために必要となる。二次元材料は、その構造・特性より大きな期待を集めているが、成膜プロセスや評価技術は未だ発展中であり、本研究成果を将来のデバイス応用に繋げるために継続して研究を進めていく。

4. 評価

(1) 自己評価

(研究者)

・研究目的の達成状況

遷移金属ダイカルコゲナイド原子層に関しては、目標の一つである面内ヘテロ構造の作製、閉じ込めポテンシャルの形成までを確認した。デバイス構造の作製と界面へのキャリア蓄積などの検証について未達成であり、デバイス作製・評価技術の構築を中心に研究に取り組んでいる状況にある。グラフェン・BN 面内ヘテロ構造に関しては、端構造の制御やリボン状グラフ

エンの加工・成長に関する個々の要素技術を開発してきたが、BN 接合、および幅や端構造を同時に制御していくためには、合成・加工プロセスのさらなる改善が大きな課題となっている。

・研究の進め方

研究開始当初より、原子層の合成法の確立を第一に実験設備の構築を進めてきた。初期の段階で、合成炉や顕微分光装置をタイミング良く導入できたことで、合成と評価を効率的に進め高品質試料の作製につなげることができた。また、界面の構造や電子状態の研究に関しては、共同研究を通じ新しい成果に結びつけることができた。

・研究成果の科学技術及び社会・経済への波及効果

研究対象である遷移金属ダイカルコゲナイド原子層は、次世代の半導体材料として大きな注目を集めており、本研究成果である合成法や界面電子状態の基礎情報については今後の研究を支える基盤になると期待できる。一方で現状では基礎研究にとどまっており、社会・経済への波及効果を及ぼすには、試料成膜の低温化・均一化やデバイス実装など多くの課題が残っている。今後、これらの課題を解決することで既存の半導体材料では困難なデバイスの実現を目指し、将来の半導体産業への応用を目指していきたい。

(2) 研究総括評価(本研究課題について、研究期間中に実施された、年2回の領域会議での評価フィードバックを踏まえつつ、以下の通り、事後評価を行った)。

(研究総括)

宮田研究者は CVD 法を用いた高品質遷移金属ダイカルコゲナイド(TMDC)原子層合成技術をもとに、原子レベルで直線的接合界面を有する TMDC 面内ヘテロ構造の作製に成功した。独自に合成した $WS_2/Mo_{1-x}W_xS_2$ ヘテロ界面において、1原子レベルでの急峻な界面が実現出来ていることを明らかにした。特に、共同研究の実施体制を積極的に進めることによって、 WS_2 と MoS_2/WS_2 の二層積層構造の接合界面において、導電性原子間力顕微鏡および走査トンネル顕微鏡/分光を用い、価電子帯では閉じ込めポテンシャル、また伝導帯ではポテンシャル障壁が形成されることを見出した。これらのポテンシャル変調を「一次元界面」として捉え、極微細伝導チャンネルを目指した量子細線の一形態を提案した点は高く評価されるとともに、研究目的の一部は達成されたと言える。

しかしながら、ヘテロ一次元界面での電子状態の一次元性の実証はできておらず、実験結果と理論検討の整合性が評価できるレベルには達していないのが残念である。しかし二次元原子膜であるTMDCの横方向の接合を実現した意味は大きい。本テーマの拡張内容で応募した CREST が採択されたことは、本さがけ研究内容が認められたことを端的に示すものであり、研究者としての飛躍につながったと言える。これからの5年間で、デバイス化に向け、さらなる展開を期待する。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. Y. Kobayashi, S. Sasaki, S. Mori, H. Hibino, Z. Liu, K. Watanabe, T. Taniguchi, K. Suenaga, Y. Maniwa, Y. Miyata, "Growth and Optical Properties of High-Quality Monolayer WS_2 on

Graphite”, ACS Nano, (2015) 9, 4056–4063.
2. Y. Kobayashi, S. Mori, Y. Maniwa, Y. Miyata, “Bandgap-tunable lateral and vertical heterostructures based on monolayer $\text{Mo}_{1-x}\text{W}_x\text{S}_2$ alloys”, Nano Res., 8 (2015) 3261–3271.
3. M. Fujihara, R. Inoue, R. Kurita, T. Taniuchi, Y. Motoyui, S. Shin, F. Komori, Y. Maniwa, H. Shinohara, Y. Miyata, “Selective Formation of Zigzag Edges in Graphene Cracks”, ACS Nano, (2015) 9, 9027–9033.
4. S. Yoshida, Y. Kobayashi, R. Sakurada, S. Mori, Y. Miyata, H. Mogi, T. Koyama, O. Takeuchi, H. Shigekawa, “Microscopic basis for the band engineering of $\text{Mo}_{1-x}\text{W}_x\text{S}_2$ -based heterojunction”, Sci. Rep., (2015) 5, 14808–1–6.
5. Y. Kobayashi, S. Yoshida, R. Sakurada, K. Takashima, T. Yamamoto, T. Saito, S. Konabe, T. Taniguchi, K. Watanabe, Y. Maniwa, O. Takeuchi, H. Shigekawa, Y. Miyata, “Modulation of electrical potential and conductivity in an atomic-layer semiconductor heterojunction”, Sci. Rep., (2016) 6, 31223–1–8.

(2)特許出願

研究期間累積件数:0 件

(3)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

主要な学会発表

1. “Controlled growth of graphene-related materials using carbon nanostructures with well-defined edges” 28th International Winterschool on Electronic Properties of Novel Materials (IWEPM), Austria
2. “CVD growth of atomically thin transition metal dichalcogenides” 2015 international conference on solid state devices and materials (SSDM2015)
3. “CVD growth of atomically-thin transition metal dichalcogenides and their heterostructures” JSAP-KPS Joint Symposium: Recent progress and future prospects of functional 2-dimensional materials
4. “Growth and electronic properties of MoS_2/WS_2 lateral heterostructures”, The 9th Singapore International Chemical Conference (SICC-9)

プレスリリース

1. 「注目の半導体複合構造の電気的性質を解明」(2015 年 10 月),

首都大学東京 HP: <http://www.tmu.ac.jp/news/topics/11747.html>

筑波大学 HP: <https://www.tsukuba.ac.jp/attention-research/p201510071800.html>

研究報告書

「高いデバイス機能を有するナノスケールトポロジカル磁気テクスチャの理論設計」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 平成26年月～平成29年3月

研究者: 望月 維人

1. 研究のねらい

現代の高度情報化社会において、高性能のデータストレージを希求する声が上がっている。キラル磁性体中で実現する「磁気スキルミオン」と呼ばれるナノサイズの磁気渦は、(1)数 nm から数十 nm の極小サイズ、(2)位相幾何学的(トポロジカル)な安定性、(3)高い転移温度に加え、(4)極小の外場で駆動できるといった性質を兼ね備え、次世代磁気メモリ素子の情報担体の候補として大きな可能性を秘めている。この磁気スキルミオンを実際に高密度・省電力な磁気メモリ素子に応用するためには、これを「書く」、「消す」、「読む」、「動かす」といったメモリ素子としての基本的な要素技術確立する必要がある。これらの基礎技術を、数値シミュレーションと微視的理論の構築を通じて探索・設計し、その物理機構を解明することが本研究のねらいである。また、磁気スキルミオンをメモリ素子に応用するためには最適な材料開発が不可欠になるが、現在までに発見されているスキルミオンを発現する物質は、B20 型金属磁性体や絶縁性キラル磁性体 Cu_2OSeO_3 などに限られている。研究・開発の裾野を広げ、この分野を大きく展開するためにも、スキルミオンやそれに類似した高いデバイス機能を持つトポロジカル磁気テクスチャを発現する新しい物質群の探索は重要である。そこで電子構造や結晶構造と言った物質の個性をまじめに考慮して、このような磁気テクスチャを発現する新しい物質群を発見するための物質探索の指針を理論的に打ち立てることと、磁気相互作用や磁気異方性、格子と磁化のカップリングに由来する新しいトポロジカルナノ磁気テクスチャを磁性体中に実現する方法を理論的に設計することも本研究のねらいである。

2. 研究成果

(1) 概要

磁気スキルミオンを利用した磁気メモリ素子の形態としては、レーストラックメモリ(磁壁駆動型メモリ)の強磁性磁区をスキルミオンに置き換えた「スキルミオントレインメモリ」が有望である。また、スキルミオンを情報担体とする MRAM(磁気抵抗変化型メモリ)も、もう一つの有望な形態である。これらの磁気メモリ素子の実現には、スキルミオンの「駆動」と「書き込み」技術の確立が不可欠である。磁気スキルミオンの駆動機構として、以前に提案したスピン偏極電流を利用する方法以外に、本さがけ研究ではマグノン流を利用する方法を理論的に確立した。また、スキルミオンの書き込み技術として、絶縁性キラル磁性体の薄膜試料に針状電極で局所的に電場を印加する方法を理論的に提案した。これらの「マグノン流」や「電場」を利用する方法は、ジュール発熱によるエネルギー損失を伴う「電流」を使う方法に比べ、省電力な方法となる。また、スキルミオンを発現する新しい物質群として、極性を持つ(polar な)非キラル磁性体を提案し、海外の実験研究者と共同研究をすることで、新しいスキルミオン物質 GaV_4S_8 を発見した。さらに、磁気スキルミオンが巨大なマイクロ波整流効果を示すことや、らせん磁性強誘電

体の磁場誘起分極フロップが決定論的に起こることを理論的に実証し、これらの磁気テクスチャの高いデバイス性能と可能性を実証した。

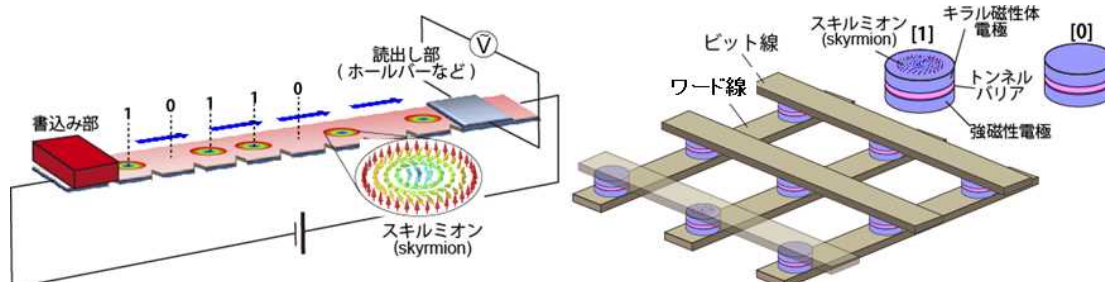


図1 (左)磁壁駆動型メモリの強磁性磁区をスキルミオンに置き換えた「スキルミオントレインメモリ」の概念図。(右)スキルミオンを情報担体とする磁気抵抗メモリ(MRAM)の概念図。

(2) 詳細

研究テーマ A「トポロジカルナノ磁気テクスチャの探索と制御方法」

マグノン流によるスキルミオン駆動 [論文8]: キラル磁性体薄膜に光や電子線を照射することで微小な温度勾配を導入すると、熱励起された磁化の振動(マグノン、スピン波)が温度勾配の方向に流れる。この熱拡散マグノン流が「スピン移行トルク機構」を通じて磁気スキルミオンの回転運動や並進運動を引き起こすことを理論的に明らかにした[図2左参照]。マグノン流は電流と異なり、絶縁性の試料でも流れるため、金属、絶縁体を問わないスキルミオンの駆動機構となる。また、マグノン流は電流と異なりジュール発熱によるエネルギー損失がほとんどないため、省エネルギーな駆動機構になりうる。この研究成果を論文にまとめて発表した。また、プレスリリースを出した。

新規スキルミオン物質の発見 [論文4]: Dzyaloshinskii-守谷相互作用に起因するナノサイズの磁気スキルミオンは、これまでに B20 型磁性体や Cu_2OSeO_3 などのキラル磁性体でしか発見されていなかった。本さがけ研究で、キラル磁性体でなくとも、極性を持ち空間反転対称性の破れた結晶構造を持つ磁性体では、Dzyaloshinskii-守谷相互作用が活性化し、スキルミオン

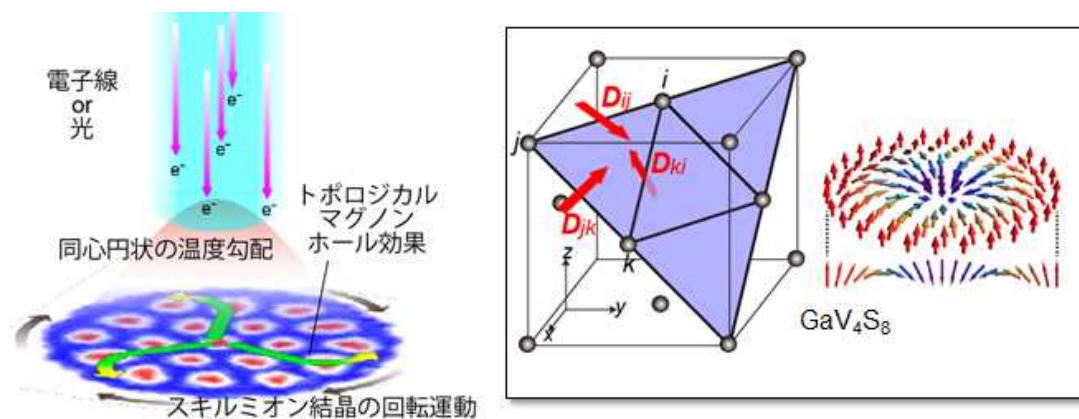


図2. (左)光や電子線照射により導入された温度勾配のもとで生じる熱拡散マグノン流のトポロジカルマグノンホール効果と、それにより誘起されるスキルミオン結晶の回転運動。(右)新たに Dzyaloshinskii-守谷相互作用に起因するスキルミオンの発見が発見された絶縁性極性磁

性体 GaV_4S_8 と、そこで実現しているネール型スキルミオンの磁気渦構造。

ンが発現することを予言した。この理論予言に基づき、ドイツやスイス、ハンガリーの実験グループと物質探索を行い、絶縁性の極性磁性体 GaV_4S_8 でスキルミオンが実現していることを発見した[図2右参照]。これは、絶縁磁性体では世界で二例目、非キラル磁性体では世界初のスキルミオン物質の発見例となった。さらに、理論計算により、このスキルミオンが、これまでキラル磁性体で発見されていた「ブロッホ型」ではなく、「ネール型」と呼ばれる構造であることを明らかにした。また、温度－磁場平面で実験的に得られている磁気相図を理論計算により再現した。この発見により、物質探索における自由度と可能性が大きく広がった。また、この物質群で実現しているネール型スキルミオンは、従来のブロッホ型とは異なる応答ダイナミクスを示すと考えられることから、今後の研究により新たな物理現象やデバイス機能の発見が期待される。

研究テーマ B「磁気強誘電性を持つトポロジカル磁気構造の制御方法とデバイス機能」

2010 年にスキルミオンが発見されたキラル磁性体 B20 化合物 (MnSi , FeGe , $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ など) は金属磁性体であるが、2012 年になって絶縁性のキラル磁性体 Cu_2OSeO_3 においてもスキルミオンが実現していることが実験的に発見された。スキルミオンのような非共線的な磁気構造は、絶縁磁性体中でスピン軌道相互作用を通じて電荷分布の偏りを引き起こし、電気分極を誘起する。その結果、磁化と電気分極のカップリング(電気磁気結合)を通して、電場で磁化を制御・励起することが可能になる。

電場によるスキルミオン書き込み [論文3, 5]: 本さがけ研究では、絶縁性キラル磁性体の薄膜試料に探針電極を使って局所的に電場を印加することで、強磁性状態の試料にスキルミオンを書き込めることを理論的に明らかにした[図3左参照]。この方法は、電場印加により電気分極の空間配列に変調を引き起こすと、電気磁気結合を通じて、それと連動した磁化反転が起きることを利用している。また、強磁性状態のみならず、ヘリカル磁性状態にもスキルミオンが書き込めることや、薄膜の面方位や印加電場の符号の選択が重要なことで、試料の中央ではなく試料端近傍に電場を印加することで書き込みの閾値磁場を大幅に低減できることを明らかにした。これらの成果を特許出願し(出願人: 科学技術振興機構)、論文に発表した。

スキルミオンのマイクロ波整流効果 [論文2, 7]: さらに、絶縁性キラル磁性体では、電気磁気結合を通じて、マイクロ波の交流磁場成分のみならず、交流電場成分でもスキルミオンの共

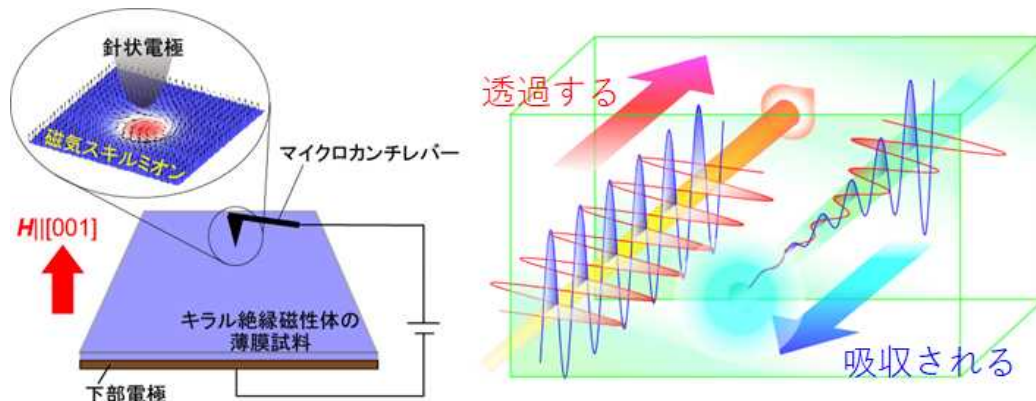


図3. (左) 絶縁性キラル磁性体の薄膜試料に針状電極で局所的に電場を印加することでス

ルミオンを書き込む方法の概念図。(右)スキルミオンが実現している絶縁性キラル磁性体が示すマイクロ波の整流効果の概念図。

鳴励起モード(エレクトロマグノン)を励起することができる。このスキルミオンのエレクトロマグノン励起が持つ「電場」と「磁場」の二種類の励起チャネルの干渉効果を利用することで、マイクロ波の巨大な非相反方向二色性を実現できることを理論的に発見した。これは、スキルミオンが実現している絶縁性キラル磁性体に、ある方向からマイクロ波を入射すると透過するが、逆方向から入射すると、強く吸収されてしまい、あまり透過しないというマイクロ波の整流現象である[図3右参照]。方向二色性の強度は、印加する磁場強度にも依存するが、最大で30%程度にもおよぶことが微視的な理論計算により分かった。これは、バルク試料ではこれまでに報告例がないほど巨大な効果である。この発見は、スキルミオンがメモリ素子の情報担体としてのみならず、マイクロ波素子や光素子への応用にも大きな可能性を秘めていることを示した重要な成果である。この成果も特許出願し(出願人:理化学研究所)、論文にまとめて発表した。

スパイラル磁性強誘電体の磁場誘起分極フロップ[論文1, 6]: 絶縁性磁性体中でスパイラル磁性がDzyaloshinskii-守谷相互作用の逆効果を通じて強誘電分極を誘起しているスパイラル磁性強誘電体(マルチフェロイックス物質)ペロフスカイト型 Mn 酸化物(TbMnO_3)を対象に、スパイラル磁性の伝搬ベクトル(Qベクトル)に平行に磁場を印加すると強誘電分極が 90 度フロップする現象(磁場誘起分極フロップ現象)を理論的に研究した。例えば、結晶軸の c 軸正の方向を向いていた電気分極 $P||+c$ は、磁場印加により 90 度フロップを起こし、結晶軸の a 軸方向を向くことになるが、この際に分極が a 軸正の方向を向く($P||+a$)か、負の方向を向く($P||-a$)かは、両者がエネルギー的に縮退しているため、確率的に選択されると考えられてきた。しかし、これが磁場の符号に依存した磁気トルクによって、決定論的に起こることを明らかにした。この成果は、これまで不可能と考えられてきた磁場による決定論的な分極制御が可能であることを示したものであり、世界中で研究がおこなわれている磁性強誘電体のメモリ素子応用に道を拓く重要な成果である。これは、スイスETHの磁気光学実験グループや大阪大学の物質合成グループとの共同研究の成果であり、共著で論文を発表した。また、JST、青山学院大学、東北大学、大阪大学と共同でプレスリリースを行った。

研究テーマ C「トポロジカル磁気テクスチャを利用した論理回路の理論設計」

本さがけ研究では、スキルミオンを利用した論理演算素子の理論設計も目指した。ナノスケールの領域で閉じた磁気構造であるスキルミオンは「粒子性」を示し、ピン止め中心となりうる磁性不純物を回避して運動することができる。この性質は、スキルミオン駆動に要する閾電流密度が通常の磁気構造に比べて 10 万分の1から 100 万分の1と非常に小さいことの原因となっている。しかし、通常の粒子が、受ける力(ポテンシャル勾配)と平行に運動するのに対し、スキルミオンは、受ける力(ポテンシャル勾配)に対して垂直に運動するという特殊なダイナミクスを示す。このため、二つのスキルミオンが出会うと互いの周囲を回ったり、横方向にスライドしたりする運動を示す。また、試料の端から受ける斥力ポテンシャルを感じて、端に沿って運動するといった現象も起こる。そのような、スキルミオンの特殊な運動形態を利用することで、AND やOR、NANDといった論理演算を実現する素子の理論設計を目指した。そこでまず、設計し

た回路内でのスキルミオンの電流駆動ダイナミクスを数値シミュレーションするためのソフトウェアの開発から研究をスタートした。ソフトウェアでは、描画ソフトで描いた形状や電極位置が色で指定されたビットマップ形式の回路図を読み込んで、有限要素法により回路内の電位差および電流密度分布を計算する。その電流密度の空間分布データを読み込んで、電流がある場合の磁化の時間発展方程式 (Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式) を数値シミュレーションする。このソフトウェアを使って、論理演算素子として機能する回路の設計を目指した。一応、AND やORの動作をする回路はできたが、回路形状が複雑な上に、回路構造の長さや幅、印加磁場などを精密にチューニングする必要があり、実用化に向けたさらなる研究に耐えられるものではない。現在、単純な構造で、かつ精密なパラメータチューニングの必要ない汎用性の高い回路構造を探索しているが、あまりうまくいっておらず、引き続き取り組んでいく課題として残った。

3. 今後の展開

本さがけ研究により、メモリ素子応用に向けたスキルミオンの「write(書込み)」、「delete(消去)」、「drive(駆動)」方法の理論設計に関しては、かなり確立してきたと考えている。「delete」に関しては、特に明示的には書いていないが、電流で駆動して試料端に衝突させる方法や、電場や磁場による書き込みの逆プロセスで簡単に消去できることも分かった。今後の展開として、これらの理論的に設計された方法を、実際に実装するには、薄膜作成やデバイス作成の実験研究者との共同研究が必要になる。実験的には、キラル磁性体の結晶キラリティが揃った単結晶薄膜を作ることが最大の困難になることが予想される。スキルミオンの巻き方は結晶のキラリティが決める Dzyaloshinskii-守谷相互作用の符号に依存するので、薄膜試料中にキラリティの異なるドメインがあると、そこに飛び移るのにスキルミオンの全磁化の巻き方を一斉に変えなくてはならず、大きなエネルギーを必要とする。そのため、スキルミオンが試料中をスムーズに移動し、情報が伝送されるためには、試料の結晶キラリティを単一に揃える必要がある。

将来的に、キラル磁性体の単結晶薄膜の作成が非常に難しいことが明らかになって場合、代わりとして、接合界面を持つ磁気細線を使う方法が考えられる。強磁性を示す CoNi 合金と非磁性の白金 Pt を貼り合わせた磁気細線では、接合界面での空間反転対称性の破れに起因して Dzyaloshinskii-守谷相互作用が活性化し、スキルミオンを発現する。この場合、単結晶性は必要ないため、より簡便なデバイス作成が可能になると期待される。しかし、多結晶やアモルファス試料においては、「動きやすく、駆動に必要な電流などの外部パラメータが極小である」というスキルミオンの利点がどこまで生き残るのか検討が必要になる。

その他の展開として、「読み出し技術の理論設計」と「論理演算素子の理論設計」を考えている。

読み出し技術の理論設計

「スキルミオントレインメモリ」の場合、スキルミオンビットの読み出しは、ホールクロスによるホール電圧測定が有望である。スキルミオンは隣り合う三つの磁化が張る立体角の和が単位球のそれ(+4 π あるいは-4 π)に等しい。このような磁気構造は、伝導電子に対して1つの量子磁束として振る舞う。これをスキルミオンの面積で割った有効磁場(磁束密度)の大きさは、数十 nm 径のスキルミオンの場合、数百テスラに相当する巨大なものとなる。したがって、ホールクロス部にスキルミオンがいると、トポロジカルホール効果に由来する巨大なホール電圧が測定されるはずである。このホール測定のSN比の評価や、感度向上のための材料の選択や形状の設計は重

要な課題になる。また、「スキルミオン磁気抵抗メモリ(Sk-MRAM)」の場合は、MTJ(磁気トンネル接合)が最も自然な読み出し方法であるが、この場合も、取り組むべき課題は同じである。

論理演算素子の理論設計

本さがけ研究では、スキルミオン論理演算素子の理論設計に用いる数値シミュレーション用のソフトウェアを開発し、それを使って素子の設計に取り組んだ。一応、AND と OR の動作をする回路を見つけることをできたが、パラメータやデバイス形状の微妙なチューニングが必要であり、汎用性のあるものとはとても言えない。さがけ研究期間終了後も、引き続き簡便で、エラーレートが小さく、汎用性のある素子回路の設計に取り組んでいきたい。

4. 評価

(1) 自己評価

(研究者)

本さがけ研究では、磁気スキルミオンを情報担体として利用するための要素技術を理論的に多数提案し、その基礎学理を構築することができたと自負している。特に、スキルミオンの書き込み技術として提案した「絶縁性薄膜に電場を印加する方法」は、ジュール熱によるエネルギー損失がほとんどなく省エネルギー性に優れている。また、印加領域をナノサイズに絞ることが困難な「磁場」で、狙った場所に狙った数だけナノサイズのスキルミオンを生成する技術の提案は、磁場以外の様々な外部パラメータによる書き込み技術にも応用可能である。今後、ストレージ素子のさらなる大容量化を目指す、磁気ビットサイズを数十 nm から数 nm まで小さくすることが必要になると考えられるが、その時に必要不可欠な技術になると考えている。また、熱勾配でスキルミオンを駆動する技術は、熱拡散マグノン流を磁気構造の制御に使おうという、これまでにない新しい概念である。マグノン流も電場同様、ジュール発熱によるエネルギー散逸がない省エネルギー性に優れた制御・駆動機構であり、今後スピントロニクス研究やデバイス研究における新しい研究分野になりうる先駆的な成果であると考えている。さらに、これまでは限られたキラル磁性体でしか発見されていなかったナノサイズのスキルミオンが、非キラル磁性体でも実現することを理論的に予言し、海外の物質合成や測定・観察実験の研究者を巻き込んだ国際的な共同研究を展開することで、実際の物質(群)を発見したことは、デバイス開発に不可欠な材料探索に大きな道を拓いた重要な成果であると考えている。また、スキルミオンがメモリ素子応用だけでなく、マイクロ波デバイス応用にも大きな可能性を秘めていることを発見した成果や、スパイラル磁性強誘電体のメモリ素子応用に向けた核となる現象を発見した成果も、本さがけ研究における重要で先駆的な成果であると考えている。

さらに、本さがけ研究の開始当初は、スキルミオン自体が業界でほとんど認知されていなかったが、スキルミオンに関する多数の解説記事、著書、英文レビューを執筆し、国内外の学会や研究会で多くの招待講演を行うことで、その情報担体として有望性をアカデミアや企業の研究・開発者に広く認識させることができた。これには、JSTのScifos活動に参加させていただき、様々な企業で磁気デバイスの研究・開発に従事している(従事していた)方々にスキルミオンをアピールする機会をいただいたことも大きい。今後、スキルミオンと使った高密度・省電力のストレージ素子を社会実装するためには、様々な分野やレイヤーの研究者が開発に参画する必要があるが、そのための確固たる礎を築くことができたと考えている。

(2) 研究総括評価(本研究課題について、研究期間中に実施された、年2回の領域会議での評価フィードバックを踏まえつつ、以下の通り、事後評価を行った)。

(研究総括)

2009年に発見されて間もないトポロジカル磁気テクスチャーであるスキルミオンについて、これを情報担体として使うというデバイス応用へのアイデアを実験しやすい例示の形で理論展開し、スキルミオンの制御法確立への道筋を理論的に示した。具体的には、スキルミオンの熱的駆動、電場や磁場による書き込みなどを、先駆的なシミュレーション技術を活用して高いレベルで研究を進展させた。当初目標以上の想定していなかった成果として、マイクロ波による巨大な整流効果の発見や、初のネール型磁気スキルミオンをもつ物質(GaV_4S_8)の発見が特筆される。これらの成果は、Nature Materials 誌などの著名誌に8報の論文として掲載されるとともに、国際学会で9件、国内学会で7件の講演に招待された。

さががけ研究の期間内に日本物理学会若手奨励賞や文部科学大臣表彰若手科学者賞も受賞した。さががけ研究の終了のタイミングで早稲田大学教授に昇進することが決まったことは、さががけ研究者のキャリアアップとして素晴らしい成功例になった。産業的な応用を見据えて競合する他技術との比較分析から競争優位性を検証すること、課題は何であるのかを明確にすること、国内外の材料・デバイス分野の研究者との議論や共同研究を進めて“使える”技術としての進展を図ることなどのコメントを胸に刻んで、今後も物理とデバイスの両方を見据えた活躍を期待したい。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. M. Mochizuki, “Theory of Magnetic-Field-Induced Polarization Flop in Spin-Spiral Multiferroics” *Physical Review B* **92**, 224412/1–6 (2015).
2. M. Mochizuki, S. Seki, “Dynamical magnetoelectric phenomena of multiferroic skyrmions” *Journal of Physics: Condensed Matter* **27**, 50300/1–24 (2015).
3. M. Mochizuki, “Creation of Skyrmions by Electric Field on Chiral-Lattice Magnetic Insulators” *Advanced Electronic Materials* **1**, 1500180 (2015).
4. I. Kezsmarki, S. Bordács, P. Milde, E. Neuber, L. M. Eng, J. S. White, H. M. Ronnow, C. D. Dewhurst, M. Mochizuki, K. Yanai, H. Nakamura, D. Ehlers, V. Tsurkan, A. Loidl, “Neel-type skyrmion lattice with confined orientation in the polar magnetic semiconductor GaV_4S_8 ” *Nature Materials* **14**, 1116–1122 (2015).
5. M. Mochizuki, Y. Watanabe, “Writing a skyrmion on multiferroic materials” *Applied Physics Letters* **107**, 082409/1–5 (2015).
6. M. Matsubara, S. Manz, M. Mochizuki, T. Kubacka, A. Iyama, N. Aliouane, T. Kimura, S. Johnson, D. Meier, and M. Fiebig, “Magnetoelectric domain control in multiferroic TbMnO_3 ” *Science* **348**, 1112–1115 (2015).
7. M. Mochizuki, “Microwave Magnetochiral Effect in Cu_2OSeO_3 ” *Physical Review Letters* **114**, 197203/1–5 (2015).

8. M. Mochizuki, X. Z. Yu, S. Seki, N. Kanazawa, W. Koshibae, J. Zang, M. Mostovoy, Y. Tokura, N. Nagaosa, “Thermally driven ratchet motion of a skyrmion microcrystal and topological magnon Hall effect” Nature Materials **13**, 241–246 (2014).

(2)特許出願

研究期間累積件数:2件

1.

発 明 者: 望月維人

発明の名称: スキルミオン生成装置、スキルミオン生成方法、および磁気記憶装置

出 願 人: 国立研究開発法人科学技術振興機構

出 願 日: 2015/3/31

出 願 番 号: 2015-072079

2.

発 明 者: 岡村嘉大、賀川史敬、関真一郎、久保田将司、石渡晋太郎、小野瀬佳文、
望月維人、十倉好紀、川崎雅司

発明の名称: 電磁波の透過率制御方法、電磁波の透過率制御デバイス

出 願 人: 国立研究開発法人科学技術振興機構

出 願 日: 2013/11/20

出 願 番 号: 2013-240064

(3)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

学会発表

- 59th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials (MMM 2014)
題目: Thermally Driven Ratchet Motion of a Skyrmion Microcrystal and Topological Magnon Hall Effect
(Hilton Hawaiian Village, Honolulu, Hawaii, 2014 年 11 月 3-8 日)
- International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES 2014)
題目: Magnon Current-Driven Dynamics of Magnetic Skyrmions in Chiral-Lattice Magnets (Grenoble France, 2014 年 7 月 7-11 日)
- 2014 American Physical Society (APS) March Meeting
題目: Theoretical Studies on Dynamical Phenomena of Magnetic Skyrmions
(Denver, Colorado 2014 年 3 月 4 日)

受賞

- 受賞日: 2014 年 3 月 27 日
表彰名称: 日本物理学会若手奨励賞(領域 8)
業績題目: 「マルチフェロイック Mn ペロブスカイトの電気磁気現象に関する理論研究」
主催団体: (一社)日本物理学会
- 受賞日: 2015 年 4 月 15 日
表彰名称: 科学技術分野の文部科学大臣表彰若手科学者賞
業績題目: 「マグノン励起による磁性制御の理論研究」
主催団体: 文部科学省

著作物(著書)

1. M. Mochizuki 他 ``Topological Structures in Ferroic Materials: Domain Walls, Skyrmions and Vortices” (Springer Series in Materials Science, edited by J. Seidel), Chapter contribution (Chapter title: Current-Driven Dynamics of Skyrmions)
ISBN 978-3-319-25301-5
2. S. Seki, M. Mochizuki ``Skyrmions in Magnetic Materials” (Springer Briefs in Physics)
ISBN 978-3-319-24651-2

著作物(解説記事)

1. 望月維人 「スキルミオンを作る・消す・動かす」 日本磁気学会報「まぐね」第 10 巻第 4 号 (2015 年 8 月号特集記事) pp. 192-198.
2. 望月維人、関真一郎 「絶縁体中の磁気スキルミオン相が示す電気磁気ダイナミクス」 日本物理学会誌 第 69 巻第 3 号 (2014 年 3 月号「解説」) pp. 132-139.
3. 望月維人、永長直人 「磁気スキルミオンが示す特異な熱励起・電流誘起ダイナミクス」 固体物理 第 49 巻第 3 号 (2014 年 3 月号「トピックス」) pp. 25(125)-35(135).

プレスリリース

1. 「夢の多機能電子素材 新しい制御手法の基礎原理を世界で初めて確立ー電気と磁気を兼ね備える多機能素材の活用ーに光ー」(2015 年 6 月 5 日)
2. 「キラル磁性体中の「スキルミオン」が示す回転現象を発見ー高密度・省電力メモリ素子への応用に向けスキルミオンの制御法にめどー」(2014 年 1 月 26 日)

その他

1. さきがけ「ナノエレ複合領域」ニュースレター第1号 (2014 年 6 月 26 日)
「電子スピンの作る磁気渦「スキルミオン」を光や電子線の照射により制御する方法を発見」
2. 理化学研究所 Research Highlight (2014 年 3 月 20 日)
「Dance of the skyrmions: Turning magnetic whirls using an electron beam」
<http://www.riken.jp/en/research/rikenresearch/highlights/7739/>

研究報告書

「水素終端IV族原子層を用いた室温動作新機能素子の創成」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 平成25年10月～平成29年3月

研究者: 安武 裕輔

1. 研究のねらい

現代の高度情報化社会は、洗練された微細加工技術による究極的なシリコン集積技術により支えられてきた。一方、原子レベルに及ぶ究極的な微細化の先にあるシリコン CMOS の限界を打破する試みとしてIV族半導体(シリコン・ゲルマニウム)の機能向上が要求されている。さらにシリコンフォトンクスに代表されるシリコン基板上光電子融合回路による低消費電力・超高スループット信号伝達を実現する上でも、間接遷移IV族半導体への光機能付与が期待されている。IV族元素である炭素単原子層から構成されるグラフェンによる究極的な低次元化によるバンド改変・機能発現は、他物質による原子層構造形成と新規物性探索の指針を与えた。一方シリコン・ゲルマニウム単原子層(シリセン・ゲルマネン)はスピン軌道相互作用による新規物性への期待がありながら、未結合手(ダングリングボンド)が活性であり大気安定性や成長基板の制限など課題がある。ダングリングボンドを化学修飾基による終端処理可能であればIV族原子層材料の大気安定性を確保するとともに、化学修飾基選択によるバンド構造制御が期待できる。またシリコン CMOS 技術との融合を指向する上でシリコン基板上での結晶成長技術の確立は重要である。本研究は、分子線エピタキシによるIV族半導体結晶成長とアルカリ土類金属の(デ)インターカレーション技術の融合によりシリコン基板上における化学修飾ゲルマニウム原子層(ゲルマナン)構造の作製方法の確立を行い、IV族半導体のバンド構造改変による直接遷移・高移動度化を目的とした材料開発と機能評価を行った。環境親和性の高いIV族半導体を用いた多彩なバンド構造の実現は CMOS 技術融和によるデバイス性能向上のみならず、製造・廃棄の生体・環境負荷を抑制し、脱レアアース・グリーンテクノロジーなど持続可能社会への貢献が期待できる。

2. 研究成果

(1) 概要

本研究は、IV族半導体、特にゲルマニウムを基本材料として、化学修飾ゲルマニウム原子層を用いた新機能素子の創成を目的とする。化学修飾ゲルマニウム原子層は(1)ダングリングボンド被覆による大気安定性、(2)間接遷移から直接遷移型へのバンド構造変化による光機能発現と移動度向上が期待される(図 1)。一方結晶成長は粉末試料などと限定的であり、微細加工など他技術融合に向けてシリコン基板上での結晶成長技術の確立が必須である。そこで本研究では A.シリコン基板上への化学修飾ゲルマニウム結晶成長技術の確立、B.ゲルマ

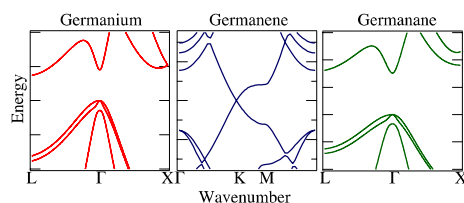


図1 結晶構造によるバンド分散変化
(左)バルク Ge, (中央)Ge 単原子層,
(右)化学修飾 Ge 原子層のバンド構造

ナン化学修飾基選択によるバンド端変調の実証、C.水素終端ゲルマナンの伝導特性評価の3つのテーマに関する研究をすすめた。

研究テーマ A として固体ソース分子線エピタキシ(MBE)によるシリコン基板上への化学修飾IV族半導体結晶成長手法の確立を行った。化学修飾IV族原子層構造を作製する上でIV族原子層間にアルカリ土類金属をインターカレートした Zintl 相(Ca(IV族元素)_2)構造の形成が重要である。これまで CaGe_2 結晶成長は①CaとGeを真空封入した石英管の加熱、②Ge基板への反応性エピタキシなどが報告されていたが結晶サイズ、制御性ともに課題があった。そこでまず、固体ソース分子線エピタキシによるCaとGeの交互蒸着法を用いて2インチシリコン基板上への CaGe_2 結晶成長手法を開発した。またCa介在Geエピタキシ方法の開拓により(1)ゲルマニウムのStranski-Krastanovモードの回避、(2) CaGe 触媒効果によるゲルマニウムワイヤ形成、(3)Caサーファクタント・インターカレント効果によるシリコン基板上 CaGe_2 結晶成長に成功した。

研究テーマ B として化学修飾ゲルマニウム原子層構造の作製と化学修飾基選択によるバンド構造変化の実証を行った。化学修飾ゲルマニウム原子層構造は結晶成長した。フォトルミネッセンスから化学修飾基に依存した発光ピークを観測し、化学修飾基選択によるバンド構造変調を実証した。

研究テーマ C として水素終端ゲルマニウム原子多層膜(ゲルマナン)の伝導特性評価を行った。これまでゲルマナン結晶は粉末試料がほとんどのため、電極形成の困難さから電気伝導に関する報告は限定的であり、温度依存性、磁場依存性、3端子構造によるゲート変調などは未踏であった。そこでイオン液体をゲート絶縁体に用いた電気二重層トランジスタ(EDLT)を作製し、電気伝導特性評価を行ったところ、明瞭なゲート変調を初めて観測し、磁気抵抗測定からバンド構造変調による高移動度化を示唆する結果を得た。

(2) 詳細

A) シリコン基板上への化学修飾IV族半導体結晶成長手法の確立

化学修飾IV族原子層構造はIV族原子層間にアルカリ土類金属(Ca)をインターカレートしたZintl相を形成後、溶液によるトポタクティック反応によりCaを除去し、IV族原子層構造を保持したままダングリングボンドを化学修飾することで作製する(図2)。

Zintl相(Ca(IV族元素)_2)結晶は、CaとGeを真空封入した石英管の加熱・徐冷により作製されていたが、粉末形状、また結晶成長時間が1週間程度、トポタクティック反応に要する時間も1週間から10日、と長時間を必要とする。もしMBEを用いたシリコン基板上へのZintl相結晶成長が可能なら、(1)結晶サイズの大面積化・結晶性向上、(2)薄膜化による反応時間短縮、(3)電極形成などのプロセス簡便化が期待できる。これまで

CaGe_2 結晶成長に関しては固相・反応性エピタキシ、Ca・Ge 共蒸着などが報告されていたが、 CaGe 相混在や膜厚制御が困難といった問題があった。

そこで、固体ソース分子線エピタキシによるCaとGeの原子層交互蒸着法を用いて2インチシリコン基板上への CaGe_2 結晶成長手法を行った。Ge層数はRHEEDパ

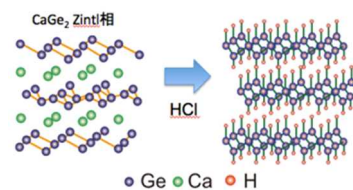


図2 化学修飾Ge原子層作製法

タンから、Caは基板温度をある程度高温に設定することでCa単層成長が可能である。まずCa

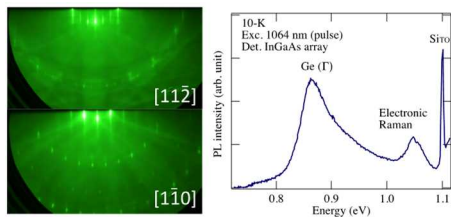


図3 Ca 介在 Ge エピタキシ
(左)Si/Ca/Ge の RHEED パタン (右)Ge 薄膜 PL

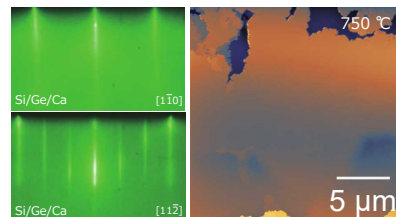


図4 Si 上 CaGe₂ 薄膜
CaGe₂ の(左)RHEED パタン (右)AFM 像

上の Ge 成長モード観測のため、Si/Ca(単層)/Ge(50nm)構造の Ca 介在 Ge エピタキシを試みた。通常 Si 上 Ge は格子不整合のため Stranski-Krastanov モード型成長となるが、Ca 介在効果により RHEED パタンは 2D 成長していることを発見した(図 3)。成長した Ge の発光観察から Ge 結晶の形成を確認した。また基板温度制御によりCaGe 触媒効果によるゲルマニウムワイヤ形成、そして、Ca サーファクタント・インターカレント効果によるシリコン基板上 CaGe₂ 結晶成長に成功した(図4)。AFM 像・光学顕微鏡から評価した CaGe₂ 結晶サイズとして 20~50μm 四方程度が得られた。

B)化学修飾基選択によるゲルマナンバンド構造変調

化学修飾ゲルマニウム原子層構造は結晶成長した CaGe₂ 薄膜を塩酸(HCl)、ヨードメタン(CH₃I)、ヨードエタン(C₂H₅I)などに浸漬することで塩素やヨウ素により Ca をデインタカレートし、Ge 原子層表面を水素やメチル基、エチル基で終端することで作製できる(トポタクティック反応、図 2)。CaGe₂ 薄膜は酸化されやすいため低温、またはアルゴンガス雰囲気下で反応を行った。通常バルクゲルマニウムの発光は室温では間接遷移端由来蛍光が 0.66 eV、直接遷移端由来蛍光が 0.8 eV 付近に発光ピークが観測される。一方、化学修飾処理したゲルマニウム原子層膜では 1.5 eV から 1.9 eV に発光ピークが観測され、原子層構造形成と化学終端処理によるバルクからのバンド構造改変を実証した。また 500 ps 程度の発光寿命が観測され直接遷移化を示唆しているが、結晶欠陥の影響などを含め詳細な評価が必要である。

フッ素化処理によりインターカレートした Ca を CaF₂ へと変化させることが報告されている。本研究で構築した分子線エピタキシによる精密層数制御技術を用いることで絶縁層 CaF₂ 上への新規IV族原子層構造作製が可能となる。そこで Si 上 CaGe₂ 薄膜を BF₄⁻イオン含有液体中で加熱処理を行いカルシウムのフッ化処理を行ったところ Si 基板上で CaF₂ 絶縁層に挟まれた Ge 層構造構築に成

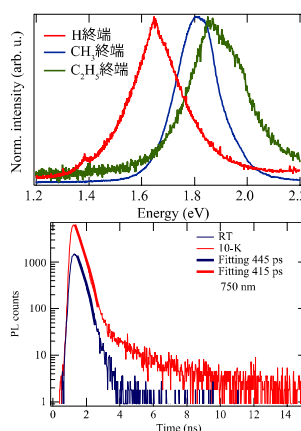


図5 化学修飾ゲルマナンの発光スペクトル(上図)と蛍光寿命(下図)

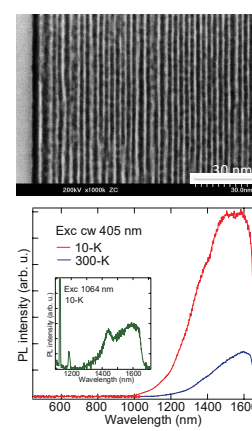


図6 フッ素処理 CaGe₂ の断面 TEM(上図)と発光スペクトル(下図)

功し、フォトルミネッセンスから Ge 量子構造由来の発光を観察した(図 6)。

C)イオン液体を用いたゲルマナン電気二重層トランジスタの作製

ゲルマナン構造により間接遷移型 Ge のバンド構造が「点にバンド端を有する直接遷移端への変換が期待され、それにとまなう移動度向上が予測される。そこでシリコン基板上にエピタキシャル成長した CaGe₂ 結晶に HCl 処理を施した後、金属電極(Au/Ti)パタンを形成後、イオン液体(DEME-TFSI)を用いた電気二重層トランジスタを作製した。室温においてアンバイポーラなトランジスタ特性を初めて観測した(非公開研究成果)。ホール測定から室温における電子移動度は 28 cm²/Vs 程度となり、予測より低い結果となったがこれは電極パタンが数百 μm と大きく、複数グレインをまたいだ測定となっているためである。一方磁気抵抗測定から 150K でゲート電圧印加状態において 4700cm²/Vs 程度のホール移動度が観測された。デバイス歩留まりからサンプル数が十分ではないが複数グレインをまたいでいるにもかかわらずこの値はゲルマナンを用いた高機能素子を志向する上で期待のもてる結果である。

3. 今後の展開

エレクトロニクス基盤材料であるIV族半導体の機能向上に対する要求は恒常的である。今後も本研究で開拓した技術を用いて化学修飾IV族原子層材料の電気的・光学的特性の機能向上を追求する。とくにメチル終端系は溶液反応の歩留まりにまだ難があるが、大気安定性・発光強度などは優れており、伝導特性においても電場・磁場・歪印加環境下におけるトポロジカル物性の発現が期待されているものの未踏である。またバンド構造変調の直接的な証明も必須である。そのためトランジスタ・LED などデバイス作製と併せて、光電子分光・走査型トンネル顕微鏡などによる観察を通してIV族原子層材料の物性評価をすすめ、次世代エレクトロニクス基盤材料を目指して、研究を展開していきたい。

4. 評価

(1)自己評価

(研究者)

化学修飾IV族原子材料の創成と機能発現として、結晶成長技術の確立から、LED・レーザーなどの発光素子、トランジスタ作製による高電子移動度の実証までを目的として、研究をすすめて頂いた。結晶成長装置が無い状態からの開始であったが、固体ソース分子線エピタキシ装置導入から支援していただき、シリコン基板上への Ca と Ge に関する MBE を確立し、IV族結晶成長技術に関して新たな知見を得ることができ、いくつかの新規構造の作製手法をさがけ研究で確立することができた。これらの手法は今後他の結晶成長、インターカレーション法として広がりをもつものである。一方、結晶成長へ固執するあまり、LED や FET 作製への展開が遅れたことは反省すべきである。また本研究は状況的に本研究者一人でほとんどすすめる事になってしまい、デバイスプロセスの試行回数や構造評価、外部発表が不十分な点があり、人員配置を含め反省すべき点である。新規材料開拓という点ではシリコン基板上でいくつかの新規化学修飾ゲルマナンの作製に初めて成功し発光観察を通じてバンド変調・直接遷移化を示唆する結果をえたことはIV族半導体材料への光機能付与という観点からインパクトは大きい。伝導特性においても水素終端ゲルマナンにおいて初めて両極性 FET 動作を実証し、高電子移動度材料が要求されている SiCMOS 分野への寄与が期待できる。

(2) 研究総括評価(本研究課題について、研究期間中に実施された、年2回の領域会議での評価フィードバックを踏まえつつ、以下の通り、事後評価を行った)。

(研究総括)

原子層 2 次元系(グラフェンなど)の概念を半導体エレクトロニクスを中心材料であるシリコンに拡張して、新しい電子材料シリセン(シリコン原子層膜)を実現する試みが脚光を浴びているが、本研究はさらにその先を行くゲルマニウム原子層膜に取り組む挑戦的でユニークな「さきがけ」らしい研究である。

具体的には、ゲルマニウムのグラフェン様化合物であるゲルマネンを水素終端したゲルマナンを高品質に広い面積で作製し、エレクトロニクス応用への基礎を確立する研究を推進した。作製した膜では、さらなる検討が必要であるが、直接遷移の理論予測と矛盾しない室温発光が観測され、ゲルマナンを絶縁膜上に転写した試料などで電氣的測定も徐々に可能になりつつある。

Ca を用いたエピタキシャル成長には独自性も認められ、物性評価が可能なサイズ・形状のゲルマナン作製に成功し、新しい 2 次元物質としての可能性を開いたことは評価に値する。「さきがけ」スタート当初は試行錯誤が多かったが、MBE に Ca 用 K-cell を導入したことにより、研究進捗状況が好転した。ゲルマナン、ゲルマニウムなどの間接-直接遷移端のエネルギー差が小さい材料では、バレー内緩和・バレー間散乱が光学特性に及ぼす影響が大きいですが、ゲルマニウムを用いて、半導体材料全般に適用可能なバレー緩和過程を含めた吸収、発光特性の理解を進めるなど、関連する成果もあげた。

ゲルマニウム単原子層がきちんとできていることが様々な物性測定から明らかになれば、科学的な基礎研究としてのインパクトは非常に高く、単層で室温発光していることが確認できれば発光素子、スピン量子デバイスへの展開の可能性も拓ける。得られた水素(あるいはメチル)終端ゲルマニウム単原子結晶の物性評価を継続して、高いレベルの公表論文にまとめることを期待したい。「さきがけ」で培った研究者ネットワークを利用してデバイス、回路、アーキテクチャの各レイヤーと連携する方向を考えると、よりインパクトのある原子層半導体の研究進展が期待される。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. T. Sakamoto, S. Hayashi, Y. Yasutake, and S. Fukatsu: “An alternative route for efficient optical indirect-gap excitation in Ge”, Appl. Phys. Lett. **105**, 042101[1-3] (2014).
2. F. Omura, Y. Yasutake, and S. Fukatsu; “Photoluminescence from a quantum well in a ghost cavity” Appl. Phys. Express **9**, 032402[1-3] (2016).

(2) 特許出願

研究期間累積件数: 0件

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

1. Y. Yasutake and S. Fukatsu "Valleytronic photonics in Ge-based structures"
EMN Meeting on Quantum Technology (Beijing, April 15) (2015). (Invited)
2. Y. Yasutake and S. Fukatsu, "Epitaxial growth of methyl-terminated germanene
multilayers on silicon"
PacifiChem2015, 1349 (Hawaii Convention Center, Honolulu, Hawaii, USA)

研究報告書

「強誘電体と機能性酸化物の融合による不揮発ナノエレクトロニクス」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 平成25年10月～平成29年3月

研究者: 山田 浩之

1. 研究のねらい

近年多くの低消費電力不揮発性メモリが開発され、注目されている。本研究課題の研究対象は、「強誘電トンネル接合(Ferroelectric Tunnel Junction; FTJ)」、即ち厚さ数ナノメートルの強誘電体をトンネルバリア層に用いた二端子素子である(図1)。FTJ の接合抵抗は、トンネルバリア内の強誘電分極に依存して変化させることができ、本研究課題の位置付けは、この「抵抗スイッチング現象」をもちいて新規不揮発メモリに“参入”するための基盤創成である。

既存の不揮発性メモリ技術の中で、FTJ と同様な構造・メモリ機能を有する素子としては、遷移金属酸化物を金属電極で挟んだキャパシターを用いた抵抗変化型メモリ、いわゆる ReRAM が広く知られている。しかし ReRAM では、抵抗スイッチング現象が金属イオンや酸素欠損の移動により発現するため、様々なボトルネックが存在する。一方、FTJ では接合抵抗が強誘電分極反転により変化する。本研究課題ではこの物理的起源を活かした高機能メモリ特性の創出、具体的には、強誘電性に由来した、いわば電子的機構ならではの高い信頼性・再現性の良い制御性を特徴とする抵抗スイッチング動作の実現が第一の研究の狙いである。

また酸化物強誘電体を記憶素子に用いた不揮発性メモリとしては、FeRAM が実用化されている。しかし FeRAM では、特性がキャパシターに蓄えられた電荷量によるため、本質的に高密度化が困難である。一方 FTJ では強誘電分極の面密度がデバイスの状態変数となる。このことからFTJは微小素子でのスイッチング動作、および素子面積にスケールした低消費電力化の実現が期待され、これも注力すべき課題とした。

さらに、FTJ メモリの実用化に向けて、シリコンプラットフォームでの構築は不可欠である。しかしながら、典型的強誘電体はペロブスカイト構造をもつ酸化物である。これがネックとなり研究開始当初においてペロブスカイト以外の基板を用いたFTJに関する報告例は皆無であった。そこで本さがけ研究期間においては、FTJ 作製の Si 基板上での作製技術の創出を、さらなる研究目標とした。

以上の提案課題を遂行するため本研究課題においては、FTJ すなわち強誘電体ベースのヘテロ構造におけるÅスケールの界面の評価・構造制御から FTJ の微細化・メモリ特性の評価に至るまで、広範に及ぶ基礎研究を推進した。

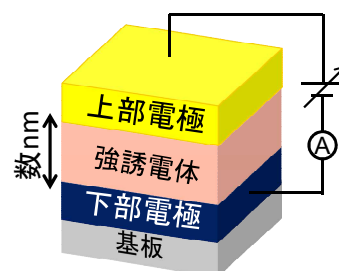


図1: FTJ の模式図

2. 研究成果

(1) 概要

FTJにおける抵抗スイッチング現象の発現機構に関しては、未だ十分には解明されていない。そこで本研究課題では、典型的なペロブスカイト強誘電体 BaTiO_3 (BTO)をトンネルバリア層として用いた FTJ を対象に、BTO/電極層界面の微視的状态に着目し、Åスケールの機能発現メカニズム解明と制御に先ず取組んだ。その結果、抵抗スイッチング特性が BTO 表面、つまり上部電極と接している界面構造に大きく依存し、BTO 表面を制御することにより抵抗スイッチング比が著しく向上できることを発見した。これを基に、FTJ における抵抗スイッチングにおいて、界面が如何なる役割を果たしているのか、理解を深めた。

高機能化への戦略としては、電極材料の探索・改良にも取り組んだ。本研究課題では、強誘電メモリ(FeRAM)の特性向上においても有用性が知られている電気伝導性酸化物を基に FTJ に適した電極材料を探索し、これを上部電極に用いた「全酸化物型 FTJ」を提案し、開発に成功した。その結果、パルス電圧入力による ON/OFF スwitchングを繰返した際、ON, OFF状態の抵抗値のバラつきが極めて低い“きれいな”抵抗スイッチングが発現した(図2)。

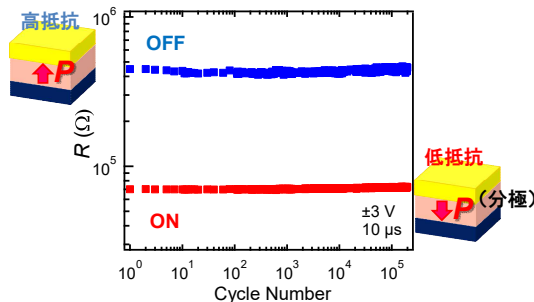


図2: パルス電圧印加による FTJ 素子のデータ (抵抗値) 書換え特性

また本研究課題では電子ビームリソグラフィ(EBL)による FTJ の微細化を実施し、サブ μm 以下の FTJ 素子において抵抗スイッチング動作を観測した。書き換えに必要な電流量は面積にスケールして低くなり、トップクラスの低消費電力不揮発性メモリとしての可能性を明らかにした。また ON, OFF 各状態における抵抗値の、素子ごとのバラつき・ウェーハ間のバラつきは、微細化素子においても小さいことを実証した。さらに実用レベルを超える高い書換え特性(Endurance)を達成した。

さらに本研究課題では Si 基板上での FTJ 作製に取り組んだ。独自のバッファー層を開発し、これにより、均一性・平坦性に優れ、結晶性の高い BTO 超薄膜の積層を実現した。これにより Si 基板上では初となる FTJ 素子構築と抵抗変化メモリ機能の実証に成功した。

(2) 詳細

【1】FTJ 高機能化のための基盤技術

(1-1) FTJ 界面の解明と制御 (論文¹、特許¹)

本研究課題においては先ず、下部電極であるペロブスカイト伝導体(SrRuO_3 , $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ [LSMO])、バリア層としてペロブスカイト強誘電体 BTO の原子レベル平坦エピタキシャル単結晶薄膜をパルスレーザ堆積法により作製した。その上に単体金属(Co,Pt)を上部電極としたヘテロ構造を典型的 FTJ として系統的に作製し、電流-電圧特性を評価した。また内殻光電子分光と STEM-EELS による FTJ の電極/BTO 界面の定量的評価を実施した。その結果、FTJ の抵抗スイッチング特性が BTO 終端面(上部電極と接している界面)に強く依存し、 TiO_2 (B)面

か BaO(A)面かで、分極と抵抗状態の対応関係(電流 I -電圧(V)特性におけるヒステリシスの向き)が逆転することを発見した(図3)。

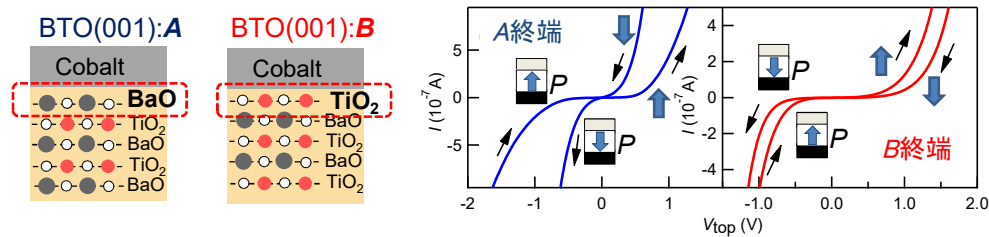


図3: FTJ の抵抗スイッチング特性(I - V 特性のヒステリシス)における終端面効果

さらにBTO層の上に酸化バリウムを堆積し、得られたヘテロ構造薄膜を超純水処理することにより、BTO表面が均一にBaO(A)終端されることも発見した。この終端制御BTOを用いたCo/BTO/LSMO-FTJでは、分極方向に依存した抵抗スイッチング比が100,000%を超えることが分かり、界面エンジニアリングによる特性向上を実証した(図4)。

この現象は、FTJの抵抗スイッチングは上下電極のキャリア濃度(≒強誘電電荷の遮蔽長)の差によるとする従来モデル(Zuravlev, PRL 94, 246802 (2005))だけでは理解できない。我々は、界面において形成される常誘電層(dead layer)が、電極材料の結合性に依存するという第一原理計算結果(Stengel, Nat. Mater., 8, 392(2009))に着目し、これを基に抵抗スイッチング動作モデルを構築、メモリ機能発現に不可欠な界面バンド構造について知見を得、前期研究の主要な目標を達成した。

(1-2)全酸化物FTJの作製(特許³)

従来技術によるFTJにおいては、上部電極としてCo, Ptなどの金属膜が用いられている。しかしこれらの金属は、ON/OFF繰返しに伴う電極の酸化や界面の劣化が発生するなどの問題がある。そこで本研究課題では、FTJの上部電極に適した電気伝導性酸化物を探索し、RuO₂のアモルファス薄膜を上部電極に用いた全酸化物FTJ(下部電極はLSMO)を開発した。その結果、パルス電圧入力によるON/OFFの繰返しに伴う高抵抗・低抵抗状態の抵抗値のバラつきが著しく低減した。図2に示したように、ON/OFFを25万サイクル繰返し時の抵抗値のバラつき(標準偏差)はOFF状態で3%弱、ON状態で2%であり、極めて安定した抵抗スイッチングが発現した。本研究結果は、目的であったFTJの全酸化物化により、「抵抗スイッチングの繰返しに伴う抵抗値のバラつき増大」というReRAMにおけるserious issueの解決策として、FTJメモリが有用であることを示したといえる。

【2】FTJの微細化

FTJの微細化プロセスを立上げ、(1)EBL描画によるレジストのドット形成と、(2)エッチング、(3)層間絶縁膜の堆積、(4)リフトオフ、(5)アッシングにより微細化を行った。その後、素

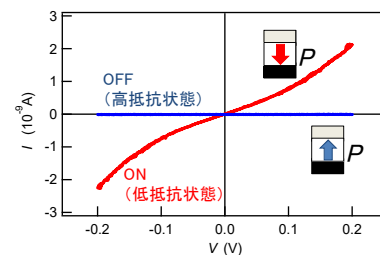


図4: A終端化したBTOを用いたCo/BTO/LSMO-FTJにおける巨大な抵抗変化メモリ機能

子特性評価のための上下電極へのコンタクトパッドを作製した。本さがけ研究期間内においては、最終目標であったサブ 100nm は未達であるものの、最小描画サイズ 100nm までの微小 FTJ 作製に成功し(図 5a)、強誘電性由来の抵抗スイッチング観測に成功した。図 5b は描画サイズ 100nm の Co/BTO/LSMO-FTJ において、パルス電圧入力による抵抗値の ON/OFF 繰返し(100 回)を 30 個の接合で評価したものである。抵抗値のバラつきは 20%程度と小さく、微細化によるバラつきの増大はないといえる。また書換えに必要な電圧を印加した際に素子に流れる電流は、500nm では数十 μA であったが、100nm はサブ μA 以下にまで低減し、ReRAM の一種である CBRAM (Kim et al., APL96, 053106 (2010)) に匹敵する消費電力の低さが示された。また、Endurance は 10^6 程度であるが、(1-2) で報告した酸化物上部電極を用いることで更に向上した(図 S1; 次頁)。本研究成果により、FeRAM 以上に微細化可能で、低消費電力(低電流駆動)、同時に、素子間のバラつきが小さいという FTJ メモリの特長が明らかになった。

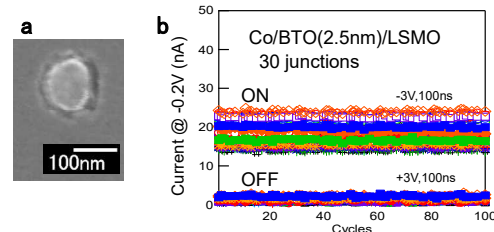


図5: (a)微小 FTJ (描画サイズ 100nm) SEM の像@リフトオフ直後。(b) 100nm-FTJ の抵抗スイッチング動作(素子間のバラつき)。

【3】シリコンプラットフォームへの FTJ 構築・作製技術の創出 (論文²、特許²)

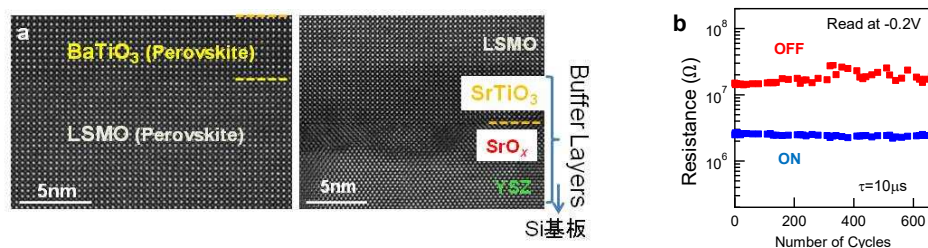


図6: (a) BTO/LSMO/バッファ層[SrTiO₃/SrO_x/YSZ]/Si(001)の STEM 像。
(b) Co/BTO/LSMO/バッファ層/Si(001)-FTJ における抵抗変化メモリ特性

FTJにおける抵抗スイッチングを実現するためには、膜厚が均一で低欠陥密度の強誘電体超薄膜が必要である。ペロブスカイト酸化物である強誘電体の場合、酸化物単結晶以外の基板、とりわけ Si 上での構築は、結晶構造の違いや界面の化学反応発生などから、これまで作製困難とされてきた。本研究課題では、Si(001)上に、従来技術では到達不可能な高品質の強誘電体薄膜の作製を目指した。その結果、SrTiO₃, SrO_x, YSZ の3層からなる独自の複合バッファ層を開発し(図6a)、その上に良質な BTO/LSMO ヘテロ構造、具体的には、RHEED 振動によりBTO膜厚を一層目から厳密に制御できて、均一性に優れ、平坦度2 Åの界面を有し、格子不整合による欠陥が皆無で、完全(001)配向のエピタキシャル構造作製に成功した。この Si 上 BTO 薄膜は、3nm 厚でも室温強誘電性を示し、また 40nm 厚ではバルク単結晶並みの残留分極が観測された。これにより Si 基板上での FTJ 素子(Co/BTO/LSMO)作製とパルス電圧入力による抵抗変化メモリ機能の実証に初めて成功し(図6b)、シリコンプラットフォームでの構築にむけた基礎技術として、本さがけ研究期間内における目標を達成した。

3. 今後の展開

本研究課題の成果・意義をまとめると、微細化可能性・低消費電力・高 Endurance・抵抗値の (ON/OFF サイクル間、接合間、ウェーハ間における) バラつきの小ささといった FTJ における抵抗スイッチング現象の特長を明らかにしたといえる。今後は EBL プロセスの改良により、接合間、ウェーハ間のバラつきは更に改善するものと期待される。また本研究課題の成果である界面制御技術を用いて、微小素子においてもスイッチング比を巨大化し、多値化の可能性も検討したい。一方で他の不揮発メモリ原理に比して FTJ の本質的に制御困難な点は、保持特性と高い接合抵抗(低い読出し電流)にあり、本研究課題で道筋をつけることのできた電極材料開発・界面機能解明をより詳細にすすめ、特性向上を目指す。また、本研究課題により、FTJ は Si 上でも作製可能であることを実証した。今後はメモリデバイスとして FTJ を実装するために、シリコンプラグ等を介して CMOS 上に形成する必要がある。本研究課題で得られた異種基板上での作製手法を改良・発展させることにより、集積化のための積層技術構築を目指す。

4. 評価

(1) 自己評価

(研究者)

● 研究目的の達成状況:

本研究課題の開始当初に提案した研究項目、すなわち FTJ における①界面の解明と制御、②電極材料の探索(全酸化物 FTJ の作製)、③微細化、④Si 上の作製については、上記報告のとおり、いずれも3年間で着実な進捗が得られたと確信している。しかし、研究成果の論文発表においてインパクトファクターに拘りすぎたり、SciFoS 活動を研究開始間もない時期に実施したりして、3年で戦略目標を達成するための時間の総合的マネジメントが不十分であった。結果として、想定外の困難が多かった微細化に関してはサイズや特性の一部が未達に終わった。そもそも研究開始当初の状況として、ReRAM の性能が格段に進歩していた時期と重なったこと、FTJ の研究の歴史が浅いことを考えると、目標設定自体に苦労したともいえる。しかしながら、本研究領域の重要な戦略目標である既存デバイスに対する優位性、すなわち本研究課題においては特に ReRAM のメモリ特性に比しての特長に関しては、「さきがけ」でしか成しえない独創的な研究推進と先生方とのディスカッションにより、上記報告のとおり複数の potential を提示するまでに至り、本研究領域における基本的な使命は果たしたと自負している。

● 研究の進め方(研究実施体制及び研究費執行状況):

FTJ の素子特性の評価装置など、必要な設備は第一年次早々に購入し、十分な環境で研究が行えるよう、速やかに準備した。また研究期間前半は NIMS 微細構造プラットフォームを利用した STEM-EELS 測定や、KEK を利用した内殻光電子分光測定による“基礎固め”にも注力した。近隣他研究者の協力を得ることで、完全でない準備状況においても多くの成果が出せるよう、多角的に研究を推進した。

第二年次以降では研究補助員を1名雇用して速やかに協力研究体制を構築した。また

第三年次以降は、NIMS 微細加工プラットフォームを利用してEBLに着手した。NIMS が近隣に所在することを生かして、EBL は技術代行ではなく、技術を習得した上での自由機器利用として実施し、研究の効率を上げた。これらの研究実施体制構築への猛烈な努力と効率的な研究費執行により、微細化研究などの後期研究を加速した。

- 研究成果の科学技術及び社会・経済への波及効果(今後の見込みを含む)

近年の不揮発性メモリ業界では、DRAM とフラッシュメモリの性能ギャップを埋める“ストレージクラスメモリ”の開発が急務であり、ReRAM はそれに適したメモリ機能を有しているとされている。本さがけのテーマである FTJ を利用したメモリは、より信頼性の高い低消費電力抵抗変化型メモリとしてその有力候補となり、メモリ階層の変革が不可欠な低消費電力・高速の大規模データ処理システムにおいて本研究成果が社会経済に貢献することが期待された。しかしながら、本研究成果だけでは FTJ メモリの産業利用への道筋を明確にしたとは言えず、またそれは 3 年間の個人研究の容量を超えるものであるとの考えから、社会経済への還元という意識が希薄になってしまった点は否めない。

一方で、本さがけ研究による既発表論文は、発表直後から多くの被引用件数を記録しているなど、学術研究として注目されつつある。本研究課題により得られた強誘電界面・薄膜に関する独創的な知的財産が、今後世界の多くの研究者に刺激を与え、研究代表者の牽引の下、新たな基礎研究の芽を育てる礎になると自負している。

よって今後は、本さがけ研究成果を基にして、産業界とのコミュニケーションを深め、より社会実装に適した接合系の開発、また社会のニーズにマッチした強誘電接合の機能探索などを多角的に検討すべきことが、本さがけ研究の社会・経済への貢献につながると考える。

(2) 研究総括評価(本研究課題について、研究期間中に実施された、年2回の領域会議での評価フィードバックを踏まえつつ、以下の通り、事後評価を行った)。

(研究総括)

当初の目的である強誘電トンネル接合界面の物性特製の関係把握、電極材料に伴う特性の変化、微細化・多値化の検討に加えシリコンデバイスとしての成立性の検討について当初の目標をほぼ達成した。特に RuO_2 を用いたエデュランス大幅向上を見出したこと、100nm 程度の微細化素子での動作実証、Si 基板上への展開の可能性検証については BTO 強誘電体を用いた素子では初めての結果であり、学問的成果、産業界へのインパクトいずれの観点でも評価できる。さがけ研究としての要件は十分に満たしているものと判断する。

また論文掲載、国際学会講演の件数も多く、学会レベルのインパクトとしては非常に高いものと判断するが、デバイス業界へのインパクトが高いジャーナル、国際学会での成果報告が少ない。さがけレベルの研究においても、産業界へのインパクトという点では、成果発表の戦略という点で今後の留意点と思われる。

本研究が研究者としての飛躍につながったかという観点については、強誘電体ダイオードという分野で多くの発表を行うことで、本分野のトップランナーの一人として独自のポジションを確立したことは間違いない。

この分野がややニッチな領域となっているのは現時点では産業界での開発は行われてい

るが社外との交流はないことに起因しており、いかにアカデミア、国研での研究を実用結びつけるかは、本研究の当初からの課題であり、必ずしも研究者一人の責任ではない。したがって、今後の一層の飛躍のためにはデバイスとしての応用、すなわち新しいメモリ分野の開拓を実行するコミュニティへの参画が強く望まれよう。

その際、本研究で実施した強誘電体ダイオードを直接生かすことはできないかもしれないが、今回得られた界面研究の成果が活かせる形で研究領域を牽引することを期待する。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

- | |
|---|
| 1. H. Yamada, A. Tsurumaki-Fukuchi, M. Kobayashi, T. Nagai, Y. Toyosaki, H. Kumigashira, A. Sawa, “Strong surface-termination effect on electroresistance in ferroelectric tunnel junctions”, Advanced Functional Materials, 2015, vol. 15, 2708–2714 |
| 2. H. Yamada, Y. Toyosaki, A. Sawa, “Coherent epitaxy of a ferroelectric heterostructure on a trilayered buffer for integration into silicon”, Advanced Electronic Materials, 2016, vol. 2 1500334–1–6 |
| 3. L. Liu, A. Tsurumaki-Fukuchi, H. Yamada, A. Sawa, “Ca doping dependence of resistive switching characteristics in ferroelectric capacitors comprising Ca-doped BiFeO ₃ ” Journal of Applied Physics, 2015, vol. 118, 204104 –1–5. |
| 4. A. Tsurumaki-Fukuchi, H. Yamada, A. Sawa, “Resistive switching characteristics in dielectric/ferroelectric composite devices improved by post-thermal annealing at relatively low temperature ”, Applied Physics Letters, 2014, vol. 104, 092903–1–4 |

(2) 特許出願

研究期間累積件数: 3 件

1.

発 明 者: 山田 浩之、福地 厚、澤 彰仁
 発明の名称: 不揮発性メモリ素子とその製造方法
 出 願 人: 産業技術総合研究所
 出 願 日: 2014/7/23
 出 願 番 号: 特願 2014-149390

2.

発 明 者: 山田 浩之、澤 彰仁
 発明の名称: ペロブスカイト酸化物薄膜の作製方法およびこれを利用したメモリ素子
 出 願 人: 産業技術総合研究所
 出 願 日: 2015/1/7
 出 願 番 号: 特願 2015-001745

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

【招待講演】

1. 「強誘電トンネル接合における抵抗スイッチング現象」
ATI 新世代研究所 界面ナノ科学研究会（愛知県蒲郡市、11 Apr 2014）
2. 「光電子分光で読み解く強誘電トンネル抵抗スイッチング」
「多自由度放射光 X 線二色性分光による強相関係界面新規電子相の研究」研究会（静岡県熱海市, 13 July 2015）
3. 「強誘電トンネル抵抗スイッチング現象」
誘電体研究委員会 第 134 回定例会（東工大、東京都目黒区、26 Sep 2014）
4. “Resistive Switching in Ferroelectric Junctions”
the 1st China-Japan-Korea RRAM and Functional Oxide Workshop (CAS, Beijing, China, 16 Jan 2014)
5. “Growth- and Interface- Control for Ferroelectric Tunnel Junctions”
CEMS Topical Meeting on Oxide Interfaces 2015 (RIKEN, Wako, Saitama, Japan, 05 Nov 2015)
6. 「強誘電トンネル接合のナノスケール界面キャラクタリゼーション」
共用・計測合同シンポジウム(NIMS、茨城県つくば市、4 Mar, 2016)

研究報告書

「単一電子量子回路の集積化へ向けた基盤技術の開発」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 平成25年10月～平成29年3月

研究者: 山本 倫久

1. 研究のねらい

現代の電子機器を支える演算回路では、電流に伴って発生するジュール発熱とエネルギー散逸が大きな問題となっている。この問題に対処すべく、シリコンのトランジスタデバイスとは異なる動作原理を持つデバイスの開発が世界中で進められている。例えば、スピンエレクトロニクス、マルチフェロイクスなどは、電荷とは異なる新しい自由度を利用する試みである。しかし、こうしたデバイスの動作概念のほとんどは、依然として古典力学的な自由度を用いたものであり、状態の緩和に伴う熱へのエネルギー散逸が避けられない。一方、エネルギー散逸のない量子力学的な自由度の処理によって従来の計算機では不可能な高速並列処理を行う「量子計算機」の開発が、最近、様々な物理系で行われるようになった。しかし、高度な技術が必要な量子計算機では、量子系のエネルギー散逸はないものの、現状ではその制御系(高周波エレクトロニクス)で大きなエネルギー消費と大掛かりなインフラストラクチャの構築が避けられない構成となっている。

本研究では、半導体中を伝搬する電子の量子状態(量子情報)を制御することによって構成され、電子あるいは量子力学的な情報の伝搬に原理的にエネルギー散逸を伴わない「量子回路」の開発を将来的な目標に定め、その集積化のための基盤技術を開発することを目的とした。この量子回路では、トランジスタ構造に近い半導体回路で、ゲート電圧を操作しながら電流を注入するだけで量子情報処理を実行できる。また、伝搬する電子が電子間相互作用によってその量子状態を失うことを避けるために、空乏化したチャネル中を伝搬する単一電子の量子状態を制御する新しい量子回路を提案し、単一電子の量子状態(単一量子ビット)が定義される「単一電子干渉」の高い精度での制御を目指した。それに加え、2 電子の干渉が関与する 2 量子ビット演算の実現も目標とし、それに必要な技術の開発を行った。ここでは、これらの量子ビット制御を 90%程度の精度で行うことを具体的な目標とした。こうした技術の開発は、大型計算機サーバーなどへの使用が見込まれる量子回路を用いた低消費電力システムの開発に留まらず、現在開発が進められているものに比べて圧倒的に小さなインフラストラクチャーで構成される新しいタイプの量子計算機を実現するための指針や要素技術の開発に繋がるものである。

2. 研究成果

(1) 概要

伝搬する電子の量子状態として、電子が 2 経路干渉計のどちらの経路に存在するかで定義される電荷状態(飛行電荷量子ビット)と、電子の自転に対応する量子 2 準位系であるスピン(飛行スピン量子ビット)を対象として、これらを高い精度で制御・伝送するための要素技術を開発した。目標値には至らなかったが、空乏化した量子回路を用いることにより、単一飛行

電荷量子ビットの制御精度を、従来の 8%から 60-80%程度まで高めることができた(投稿予定)。一方で、飛行電荷量子ビットの 2 量子ビット演算は達成できなかった。飛行スピン量子ビットに関しては、2 量子ビット操作に関連して、スピン量子もつれ対の空間的な分離を 90%近い効率で達成することができた(投稿予定)。これは、量子計算に不可欠な非局所量子もつれ状態の生成に相当する。既存の技術として確立されつつある単一電子スピン量子ビットの制御やそのコヒーレントな長距離伝送技術(成果リスト 2)、スピン読み出し技術などと合わせることで、電子系では未だに達成されていないベル測定(量子もつれの厳密な証明、投稿準備中)やユニバーサルな量子計算が可能になる。

また、これらの主要な成果を得る過程で、飛行量子ビット集積化に必要な技術や知見が多く得られた。飛行電荷量子ビットに関しては、伝搬する電子の波動関数の位相を伝達できることが飛行量子ビットを制御できることと等価である。本研究では、位相の制御・検出が可能な条件を実験・理論両面から詳細に明らかにした(成果リスト 3,5)。また、位相測定技術を利用して量子ドットを介した伝導に関して成果を挙げるとともに、高い位相検出精度を確認した(成果リスト 1,4)。空乏化した干渉計における実験では、表面弾性波を利用して空乏化したチャネル中を電子を伝送する技術が大きく改善された。将来的に電子を 1 個ずつ伝送することを想定し、単一電子を離れた量子ドット間で断熱的に、従って高い効率で伝送できた。スピン量子ビットに関しては、表面弾性波で電子を伝送する直前に、電極から孤立した準安定状態にある電子スピンを操作できることを示した。また、両方に共通して、干渉計を伝搬して出力端子に到達した電子を 1 個単位で捉えることを将来的な目標にし、電流を増幅する雪崩式増幅器の開発を行い、電流が充分小さい場合に増幅率 9(目標値 10)を達成した(投稿準備中)。

(2) 詳細

研究テーマ A「飛行電荷量子ビットの制御」

(a) 波動関数の位相の制御と検出

飛行電荷量子ビットは、2 経路干渉計を伝搬する電子の各経路における存在確率と電子波の経路間の相対的な「位相」によって定義される。波動関数の位相情報を有効に制御・利用することによって、情報を非散逸に伝送できることがこの系の特徴である。まず、開発した干渉計においてこの位相情報を精密に制

御・測定するための条件(=2 経路干渉を実現する条件)の詳細を、理論計算と実験の両面から明らかにした(PRB2014、NJP2014)。過去にも波動関数の位相を取り出す試みは行われてきたが、現状では本研究の手法によってのみ信頼性のある位相制御が可能であることが示された(APL2015)。また、位相制御のデモとして、電子波が量子ドットを通過する際に得る位相の変化を精密に制御・検出できることを示した。特に、超伝導と並んで電子間相互作用効果の代表例として知られる近藤効果が量子ドット中の局在スピンと伝導電子との相互作用によって生じている場合の位相変化を調べた。この場合の位相変化が $\pi/2$ になる「近藤の位

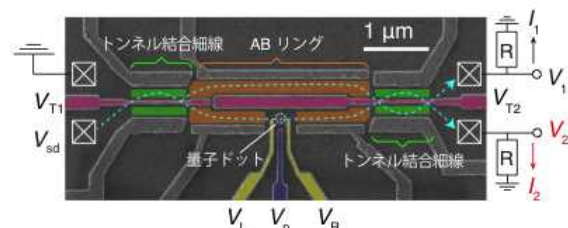


図1 量子ドットを伝搬する電子波の位相測定に利用した干渉計。出力電流 I_1, I_2 が逆位相で振動する場合に限って正しい位相測定ができる。

相シフト」の検証は、理論予測から 40 年に渡って世界中の挑戦を跳ね返してきた難題として有名である。本研究ではその検証実験に初めて成功した(PRL2014, PRB2016)。これは、電子相関の物理の歴史的な成果のひとつとして位置づけられる。

(b) 空乏化した干渉計を伝搬する単一電荷量子ビットの制御

本課題は、本研究の中心的な課題である。空乏化したチャネルへの電流の注入には、二次元電子に対して動く静電ポテンシャルの波として働く、表面を伝わる結晶の歪の波(表面弾性波)を用いた。表面弾性波によってつくられる動くポテンシャルの底にフェルミ面の下から電子を 1 個ずつ引き上げて空乏化したチャネル中に注入した。注入された単電子は、チャネル中のポテンシャル勾配において表面弾性波の動く閉じ込めポテンシャルから逃れ、単一ホットエレクトロンとして干渉しながら干渉計を伝導する。空乏化していない 2 経路干渉計における干渉の可視度(干渉に寄与する電流成分/全電流)が最大 8%程度だったのに対し、空乏化した干渉計では、目標の 90%には少し及ばないものの 60-80%程度の可視度で干渉を観測することができた(投稿予定)。また、空乏化していない干渉計における干渉信号が温度 1K 程度でほぼ消失するのに対し、空乏化した干渉計では、電子間相互作用による量子状態の損失がないことを反映して、温度 2K まで可視度の低下が見られなかった。一方で、単一電子を表面

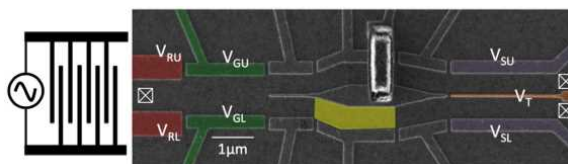


図2 空乏化した干渉計試料。ゲート電圧 V_{RU} , V_{RL} , V_{GU} , V_{GL} によって干渉計に注入する電子数を、 V_{SU} , V_{SL} , V_T によって 2 経路間のトンネル結合とポテンシャル差を調整できる。

弾性波のポテンシャル中に閉じ込めたまま干渉を捉えることはできなかった。本研究では、隣接した干渉計間のクーロン相互作用を利用して 2 量子ビット演算を実現することを提案していたが、高速のホットエレクトロンではクーロン相互作用が弱くなってしまったためにこれが難しい。2 量子ビット演算は今後の課題として残された。

(c) 単一電子単位の状態の読み出しに向けて

飛行量子ビットの操作と読み出しでは、表面弾性波の底に電子を 1 個ずつ入れて干渉させた後に平均的な電流値を測定するのではなく、1 個ずつ干渉計に注入された電子を干渉後に 1 個ずつ観測(検出)することが最終的な目標になる。そのための方法として、干渉計を量子ドットで結んで電子を純粋に 1 個ずつ伝送・検出する方法と、電子を次々に送るものの、検出を 1 個ずつ行う方法がある。

前者では、量子ドットから空乏化した経路へと単一電子を移す際に、基底状態に電子を留まらせることができるかどうかの問題である。本研究では、表面弾性波のパワーが強い場合に、それが可能であることを示した(Nanotechnology2016)。また、断熱的な場合には、電子注入のタイミングを表面弾性波のポテンシャルの底 1 個のレベルで合わせることができると、2 量子ビット演算においても有用である。

後者は、演算データを高速で集められるため、実現した場合にはより強いインパクトがある。干渉計を通過した電荷を 1 個ずつ高速(100MHz 程度)で読み取る技術の実現に向け、電子間相互作用による電子のエネルギー緩和を利用した雪崩式電流増幅器の開発を行い、増幅率 9(目標値 10)を得た(投稿準備中)。

<飛行電荷量子ビット 課題達成状況>

- ・単一電子を空乏チャネル中を伝送させる技術の開発・改良（SAWによる電子伝送）：◎
安定な量子化電流、99%を超える単一電子移送効率（断熱的移送）
Nanotechnology **27**, 204001 (2016).
- ・電子波の波動関数の位相制御（数値計算との対応、電子波位相測定）：◎
高精度制御、コヒーレント伝導の評価（伝搬する電子波の位相を測る唯一の方法）
Phys. Rev. Lett. **113**, 126601 (2014); Phys. Rev. B **89**, 125432 (2014);
New Journal of Physics **16**, 083015 (2014); Appl. Phys. Lett. **107**, 063101 (2015) (cover);
Phys. Rev. B **94**, 081303 (RC) (2016) など
- ・単一電荷量子ビットの高忠実度制御（目標:90%）：○（8% → 60-80%に改善: 投稿予定）
- ・電流増幅器の開発（目標増幅率:10）：○（増幅率: ~9）
- ・並列干渉計のクーロン相互作用を用いた2量子ビット演算：× 未達成

研究テーマ B「飛行スピン量子ビットの制御」

環境との相互作用が弱いスピンは、一般的に電荷に比べて高いコヒーレンス（量子状態を失いにくい性質）を持つことが知られている。また、飛行スピン量子ビットは、量子ドットに閉じ込められたスピン量子ビットと融合させることができる。電荷量子ビットの場合と同様に表面弾性波を用いれば、空乏化したチャネル中を、単一電子スピンを周囲の電子スピンから孤立させたまま伝送できる。

本研究では、まず、遠く離れた量子ドット間を空乏化したチャネルを介して伝送する単一電子のスピンの保存を確認した（Nature Nano.2016）。これにスピン軌道相互作用や電子スピン操作を合わせれば、任意の飛行スピン量子ビットを伝送、制御することが可能になる。更に2量子ビット操作を行うために、表面弾性波の動くポテンシャル（動く量子ドット）中に閉じ込められた2電子を伝送経路のクーロン斥力を利用して別々の経路へと分離する技術を開発した（図3参照、投稿予定）。量子ドット中の2電子の基底状態はスピン重項という量子もつれ状態であり、その分離は非局所量子もつれ状態の生成に相当する。分離効率は約87%であり、電子系では未踏のベル測定（量子もつれの厳密な証明）を行うのに充分である。

<飛行スピン量子ビット 課題達成状況>

- ・SAWで電子移送ができる準安定状態における電子スピン状態制御：◎
Phys. Rev. Lett. **115**, 096801 (2015).
- ・単一電子スピンの伝送と検出：◎ Nature Nanotechnology **11**, 672-676 (2016)
- ・分岐回路における電子対の分離（予定外、非局所量子もつれ生成）：◎ 分離効率: ~87%
- ・電子対分離を利用した非局所量子もつれ状態の検証実験提案（予定外）：◎

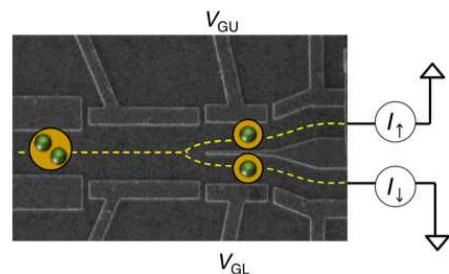


図3 電子対分離実験の試料と概念図。表面弾性波によって動く量子ドット中の2電子を、経路の分岐において別の経路中の動く量子ドットへと分離する。動く量子ドット中のクーロン相互作用によって、2電子が同時にひとつの量子ドットへと入ることを抑制している。これは、 V_{GL} , V_{GR} の関数として出力電流を観察することによって確認できる。

3. 今後の展開

本研究は、空乏化した経路を伝搬する電子の状態を制御する世界でも例のない取り組みである。本研究成果により、伝搬する電子の量子状態を制御して演算を実行する量子回路を構成するための技術要素が多く得られた。開発された量子状態制御の原理に基づいて、将来、量子計算機の全く新しいアーキテクチャが実現する可能性がある。一方で、本研究で開発された技術や知見はまだ初期段階にあり、制御精度には大きな改善の余地が残されている。

飛行電荷量子ビットに関しては、1 量子ビット演算の精度を更に高め、2 量子ビット演算を実現する必要がある。実用へと導くためには、現行のエラー訂正方法では 99%以上の精度が必要とされており、そのためには何段かの技術的、学術的なブレークスルーが必要である。ただし、飛行電荷量子ビットは、磁場掃引によってコヒーレントな信号成分(量子力学的な干渉成分)だけを抜き出すことが可能であるという特徴を有しており、それを利用すれば量子操作の要求精度の閾値は大きく下がる可能性がある。これに関しては、より理論的な検討が必要である。飛行スピン量子ビットに関しては、電子対分離の精度を高めると同時に、スピン軌道相互作用を利用した電子スピンの制御や、場合によっては量子ドットに閉じ込められた電子スピンを制御する技術と融合しながら技術開発を進める必要がある。直近の目標としては、ベル測定による非局所量子もつれの証明が挙げられる。それをステップとして、各技術要素の精度を高め、エラー訂正を含めて集積化へ向けたシステム設計を注意深く行う必要があるであろう。最近、インテル、グーグル、マイクロソフトなども量子情報処理研究に取り組み始めており、世界的に研究が行われている物理系と比較して優位性が得られる系を設計する必要がある。ここでは、設計自由度の高さ、制御速度の高さ、長距離相関の制御の容易さという飛行量子ビットの長所を積極的に利用する必要がある。

量子情報処理の実現に向けた大きな目標に加え、これらの技術開発の途中では量子もつれなどの固体の量子の性質に関する知見が多く得られるはずである。また、現在のトランジスタ動作に基づいた情報処理における発熱の問題から、大型サーバーなどでシステム全体の冷却の必要性が更に高まれば、量子計算機の開発を待たずして、低温で動作する本研究の非散逸な干渉計の出番が先に来る可能性もある。

4. 評価

(1) 自己評価

(研究者)

本研究は、集積可能な 2 経路干渉計と高効率の単一電子移送という、世界でも私たちしか有していない技術を用いて全く新しい量子回路を作り出そうという試みである。研究目的の達成状況として、電荷量子ビットの 2 量子ビット演算を達成できていないことは非常に残念であるが、その他については概ね予定通りに進められた。一方で、位相シフトの測定に関する物理的な概念の構築や電子対の空間分離、それを利用した現実的なベル測定の提案など、予想を越えた成果を出せた部分もあった。全体として、研究を開始した当初と比べると全く違う新しい世界が見えているという感覚があり、それに関しては評価できる。具体的な反省点としては、空乏化している従来とは全く異なる系において、不純物散乱の予想外に大きな影響を早い段階で十分に予測、評価できていなかったこと、これらの問題が浮かび上がったからの対処法がすぐに見つけられず、一部足踏み状態になってしまったことが挙げられる。

本研究は、私の他に大学院生 2 人(後半は 1 人)という小さな研究体制で行われた。一方で、

私が長く共同研究を行っている仏ニール研究所とは強い共同研究体制を維持し、これが技術的な支えの一部になった。特に、単一スピンの長距離伝送は、実は 8 年にも及ぶ共同研究テーマである。当初は量子ドットに閉じ込められたスピン量子ビット情報の移送方法として、仏グループが多数のゲート電極に順次電圧をかけていく、或いは表面弾性波の定在波に電子を閉じ込めて定在波の位相をずらしていく、というスキームを提案し、共同研究を持ちかけてきたことがきっかけになっている。しかし、その後、私自身が表面弾性波のパルスで電子を伝送する現行の方法を提案し、それに合わせた試料設計を行ったことで現在の研究の流れができた。そして、技術要素の開発は長く共同で行っている。また、本さがけ研究テーマである伝搬する電子の干渉を制御する「量子電子光学実験」では、私自身の提案に彼らを巻き込んだ体制になっている。その意味で、本さがけの研究テーマ全般に渡り、共同研究も含めて私が主体的な役割を果たしてきたと言える。また、2経路干渉の制御や位相変化に関しては、多くの著名な理論家との共同研究によって大きな進展があった。

本研究の課題設定に関しては、世界でも全く初の試みであり、極めて先進性の高いものである。しかし、開発された技術はまだ初期段階のもので、改善の余地が非常に大きい。また、主要な成果の多くが未発表であり、それを論文発表するなどして、その意義を世に問うことが次の重要なステップになる。将来、飛行量子ビットのスキームが社会的に波及し、役に立つかどうかは、今後の技術開発と将来多くの研究者・技術者が同スキームに注目して開発に参加するかどうかにかかっている。現段階での評価は難しいが、今後数10年かけて本研究の成果が役に立つ可能性があり、それに向けて先陣を切ったことは自己評価できる。

(2) 研究総括評価(本研究課題について、研究期間中に実施された、年2回の領域会議での評価フィードバックを踏まえつつ、以下の通り、事後評価を行った)。

(研究総括)

山本研究者は、電子波導波路での微弱な干渉電流を測定する高い技術を持っている。これを用いて本プロジェクトでは当初、空乏化したチャンネルでの単一電子の電子輸送を用いて、1および2量子ビットの精密操作を実現し将来の量子コンピュータの基礎を形成するという高い目標に挑戦した。ところが、実験を進めるうちに、空乏化したチャンネルでは、電子の不純物散乱が顕著に現れること、表面弾性波による電子輸送でホットキャリアの問題が生じることなどが、分かって来た。

そこでデバイスの改良を進める一方、電子のスピンを利用するなどの別の方向でもレベルの高い成果を模索した。この結果、80%に近いホットエレクトロンの干渉を実現し、電子の増幅率も9を実現した。更に90%に近い非局所的スピンもつれ2電子の形成に成功したと思われる。また飛行量子ビットとしての電子スピンが長距離保存されることがわかった。特に空乏化チャンネルでの電子波干渉に成功したことは評価できる。これらは直ちに量子コンピュータの実現に結びつくデータではないが、スピンを用いた飛行量子ビット型量子コンピュータの姿が見えかけて来たとも言える。

この研究テーマは3年余りで顕著な成果を期待するものではなく十年オーダーの長い視点での評価が必要なものである。実験データを理論解析することに加え、ネガティブな知見も集積することが将来の量子デバイス実現に寄与すると期待されるので、研究目的を達成したとは言いがたいが、基礎物理的知見が多く得られたので、期間内では十分な成果を達成したと言

える。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. S. Takada, M. Yamamoto, C. Bäuerle, K. Watanabe, A. Ludwig, A. D. Wieck and S. Tarucha, “Low temperature behavior of the transmission phase shift across a Kondo correlated quantum dot”, *Phys. Rev. B* **94**, 081303 (RC) (2016).
2. B. Bertrand, S. Hermelin, S. Takada, M. Yamamoto, S. Tarucha, A. Ludwig, A. D. Wieck, C. Bäuerle, and T. Meunier, “Fast spin information transfer between distant quantum dots using individual electrons”, *Nature Nanotechnology* **11**, 672–676 (2016).
3. S. Takada, M. Yamamoto, C. Bäuerle, K. Watanabe, A. Ludwig, A. D. Wieck and S. Tarucha, “Measurement of the Transmission Phase of an Electron in a Quantum Two-Path Interferometer”, *Appl. Phys. Lett.* **107**, 063101 (2015). (cover of the issue)
4. S. Takada, C. Bäuerle, M. Yamamoto, K. Watanabe, S. Hermelin, T. Meunier, A. Alex, A. Weichselbaum, J. von Delft, A. D. Wieck and S. Tarucha, “Transmission phase in the Kondo regime revealed in a two-path interferometer”, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 126601 (2014).
5. A. Aharony, S. Takada, O. Entin-Wohlman, M. Yamamoto and S. Tarucha, “Aharonov-Bohm interferometry with a tunnel-coupled wire”, *New Journal of Physics*, **16**, 083015 (2014).

(2) 特許出願

研究期間累積件数:0 件

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

1. 平成 28 年度 船井学術賞「固体中の電子相関と量子力学的自由度の制御と伝送の研究」
2. 電子1個のスピン情報の長距離伝送・検出に初めて成功 ～単一電子スピントロニクスの実現へ～ (プレスリリース)
http://www.t.u-tokyo.ac.jp/foe/press/setnws_20160603125005959539852247.html
(日刊工業新聞などで紹介される)
3. M. Yamamoto and S. Tarucha, “Manipulation of Single Flying Electrons for Quantum Electron Optics”, International Symposium on Dynamics in Artificial Quantum Systems, The University of Tokyo, Tokyo, Japan, Jan. 13 (2016) (招待講演)
4. 山本倫久, “半導体量子電子光学実験の進展”, 日本学術振興会, 先端ナノデバイス・材料テクノロジー第 151 委員会 研究会「量子ハイブリッドシステム」, 2015 年 1 月 23 日 (招待講演).
5. 近藤状態によって散乱される電子波の位相のずれを初めて観測 - 40 年前の予言を初めて実証 - (プレスリリース)
http://www.t.u-tokyo.ac.jp/foe/press/setnws_e8c60028f0bb_20140922003_jpn.html

（東京新聞、中日新聞、OPTRONICS などで紹介される）