「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

-2018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 一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。

- 事後評価対象の研究課題・研究者名
 件数: 10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」領域に設けた選考委員 10 名の協力を得て、研究総括が行う。
- 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/info1128/index.html (第一期)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

ー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
対象数	152件	30件	11件

備考:

2015年度採択課題のうち、以下は今年度事後評価対象としない。

・太田 実雄研究者:研究を早期終了し昨年度事後評価実施済みのため。



- 5. 研究実施期間 2015年10月~2019年3月
- 6. 領域の活動状況 領域会議:7回 研究総括の研究実施場所訪問:20回
- 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)

- 2018年11月 評価会開催(第11回領域会議で実施)
- 2019年 1月 研究総括による事後評価
- 2019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)相手機関との研究交流状況(外国の研究機関等と共同して研究を実施するものに限る。)

※世界レベルの若手研究リーダーの輩出の観点から、本さきがけ研究が、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。

9. 評価結果

総論

今回課題評価の対象となる研究者は、2015 年度に採択された三期生11名の研究者の内、昨年度早期終 了した1名を除く10名の研究者である。研究分野は低電圧トランジスタやメモリなどの研究から、生体搭載エ レクトロニクス、バイオセンサー、ニューロ配線を目指した研究まで、これまで採択数が少なかった分野の研 究課題、レイヤー間連携や異分野交流等を意識して採択した。当初の目標が達成できなかった課題もあるが、 サイトビジットや領域会議を通じて研究課題を見直した結果、さきがけ領域として、期待通りの成果を出したと 評価できる。外部発表総数は招待講演117件を含む530件にのぼり後掲のとおり賞も多く受賞している。

主な成果として例示すると、小林研究者は、強誘電体特性を持つ酸化ハフニウムを用いた負性容量トラン ジスタの研究において、分極反転がサブスレショルド係数の改善をもたらすことを直接的に関係づけることに 成功、服部研究者は、線幅 100nm、電極間幅 150nm の VO₂ ナノ細線を作成し薄膜試料では観察されなかっ た急峻なステップ状抵抗変化を観察することに成功、それぞれ、低電圧動作トランジスタ実現への道を切り拓 いた。また後藤研究者は、絶縁体である磁性酸化物イットリウム鉄ガーネット(YIG)の薄膜を用いて、電子の 流れではなく電子のスピン情報を媒体としたスピン波位相干渉の原理に基づく論理演算素子の実証に成功し 新しいスピントロニクスデバイス展開の可能性を示した。一方で、藤枝研究者は生体組織に搭載可能なナノエ レクトロニクスの研究において無線給電・発光素子のインプランタブルデバイスを開発し、マウスの担がんを 消失させることに成功、高橋一浩研究者は、サスペンディッドグラフェンのたわみを検出する「光干渉型分子 間カセンサ」を開発し抗原−抗体反応を基にしたバイオセンサへ展開、ターゲットとなる物質 1ng/ml 以下の検 出可能性をもつ高感度なバイオセンサの開発に成功している。さらに赤井研究者は、有機ポリマー材料を指 定された電極端子間に、その導電性を変化させ成長させる事に成功、ニューラルネットワークの学習シナプス 端子として利用できることを実証している。

これらの成果は、さきがけ研究者本人の努力によるものであるが、CREST/さきがけ領域アドバイザーとの 意見交換、さきがけ研究者間のレイヤー連携と異分野交流が功を奏して得られたものと考えており、領域とし て狙い通りに運営できたと考えている。

1. 赤井 恵 研究者 「ポリマー配線を用いたニューラルネットワーク型情報回路の創成」 評価結果



本研究課題は、空間を自由に配線出来る可塑性を持った有機ポリマー材料を用い、ニューラルネットワー クアルゴリズムを基礎とした、物理的にも柔らかい情報認識回路の創成を目的とした。

結果、PEDOT:PSS(以下ポリマー配線)の成長条件(ワイヤー径と周波数依存性)と成長制御方法を開発し、 PEDOT:PSS ワイヤー4 入力1 出力 AND OR 論理回路による成長制御回路の基本動作と9×6の双方向機械 学習システムによる学習動作原理の確認、54 対電極におけるオートエンコーダー9 ビット3 文字の3 ビットへ の特徴抽出と大規模(180 端子)学習システムを構築することに成功した。ポリマー配線の成長機構の解明を 検討しながら、マイコンボードを用いてポリマー配線デバイスで学習を行ったのは新規性があり、学術的に一 定の成果が出たという点で、ほぼ目標は達成できたと考える。

当初の基本動作確認までは順調に進んだが、デモ作製の方に関心が向いた段階で、3次元配線、ネットワ ーク数の拡大、新材料開発等を手がけ、実験が上手く進まない時期があった。ポリマー配線の成長原理が未 解明なまま応用に進んだことが要因であり、途中から見直したことで研究の進め方としてはリカバリができた と考える。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は、評価できる段階に至らなかった。 提案当初掲げた課題「有機材料による情報処理回路ができることが、どのような社会的意味を持つのか」に ついて、もう少しその可能性を示せると波及効果があったと思われる。また、本研究者が唱えている"フィジ カル AI"技術へのパラダイムシフトについては、将来の可能性として有用性を示し続けることが重要と考える。

他のさきがけ研究生の研究分野や専門性との違いがある中で、領域会議内で議論を切磋琢磨しチャレン ジする姿勢ができた事は特筆に値する。今後の発展性について、リザーバコンピューティングへの応用例とし て CNT と組み合わせたアプローチを提案し、Nature Communications に採択された。一つの方向性を示すも のとして評価できる。ただ、リザーバコンピューティングも光デバイスなど様々なアプローチがあり本研究の価 値が何処にあるのか常に冷静に俯瞰しながら進めて欲しい。

2.後藤 太一 研究者 「極薄磁性酸化物中におけるスピン波位相干渉を用いた多入出力演算素子の開 発」

評価結果

本研究課題は、スピン波位相干渉の原理に基づく論理演算素子を、絶縁体である磁性酸化物イットリウム 鉄ガーネット(YIG)の薄膜を用いて実証し、電子の流れではなく、電子中の自由度の一つであるスピンの位相 を情報キャリアとして伝える新しいスピントロニクスデバイスを実現しようとするものである。

膜厚 10μm 程度の比較的厚い YIG 膜を用いて、センチメートルオーダーのデバイスを作製し、スピン波位 相干渉がきちんと動作することを確認した。さらに、四端子素子を作製して、スピン波の干渉に基づく AND・ OR などの演算動作を実証した。これらの研究において、スピン波の反射により複雑な干渉効果が発生し、デ バイスの雑音となることを突きとめ、これを防ぐために YIG スピン波導波路の両端に金の薄膜を付けることを 考案し、実際に余分な反射を防ぐことができることを確かめた。並行して、素子として使える広い面積にわたり YIG 薄膜単結晶を形成する技術を国際共同研究も役立てて確立し、世界的に見ても最高品質の YIG 薄膜を 実現した。この成果を利用して、膜厚 100nm 程度の薄膜 YIG 単結晶膜を用いてミクロンオーダーのスピン波 干渉デバイスを作製し、スピン波位相干渉デバイスのサイズを大幅にスケールダウンできることを示した。現 時点では四端子で多入力には至っていないし、まだ改善すべき点はあるものの、当初予想していなかった問 題点を一つ一つ克服し、目標通りの成果を得たことは非常に高い評価に値する。

得られた研究成果が科学技術面で大きな波及効果を有していることは、Scientific Reports に3件の論文を 発表するなど質の高いジャーナルに多くの論文を発表していることからもうかがい知ることができる。国際会 議の招待講演、プレスリリース、特許出願も高いレベルで行われており、「さきがけ」期間中に、様々な学会の 優秀論文賞や講演奨励賞を受賞している。「さきがけ」の研究が契機になり、新概念のスピン波位相干渉デ バイスが低消費電力ピントロニクスデバイスとして今後発展していくことが期待され、数年で社会実装まで行く ことができれば、社会・経済に与える影響も大きい。

「さきがけ」期間を通して、内外の研究機関と大変活発な研究交流が行われたこと、さらに、「さきがけ」内の 研究者と共同研究をスタートし、スピン波位相干渉デバイスに関して、その性能をさらに向上させる取り組み が企画されていることも評価に値する。「さきがけ」での研究活動が次の飛躍につながっており、好ましい方向 に展開している。

以上をまとめると、当初の計画通りに順調に目標を達成し、外部発表も含めて高いレベルの業績をあげた。 さらに、「さきがけ」期間中に新しい展開も出てきており、総合的に判断して極めて高いレベルの成果が得られ たと考える。

3. 小林 正治 研究者 「超低消費電力動作に向けたゲート絶縁膜の負性容量による急峻スロープトランジ



スタ技術の開発とナノワイヤ構造への応用」

評価結果

本研究課題は、低電圧動作する Steep Slope トランジスタの実現に向けて、負性容量 FET(NC-FET)のデバ イスシミュレータの構築と設計手法を確立、CMOS プロセスと整合性の良い強誘電性 HfO2薄膜プロセスの開 発を行い、強誘電性 HfO2を用いたナノワイヤ型 NC-FET の試作・実用性を検証することであった。しかし、サ イトビジット後、デバイス実証に関しては、ナノワイヤ型にこだわらずプレーナ型 NCFET プロセスを開発すると ともに、Deep sub-Vth での急峻スロープ化のためのメカニズムを解明することに変更した。

その結果、HfO₂薄膜材料の開発、NC-FET のモデリングによる設計指針、速度限界明確化、NC-FET の動 作実証に各項目にわたって世界の Steep Slope による低消費電力トランジスタ研究フィールドをリードする成 果が得られた。特に NC-FET 動作のモデリングと設計指針の提案とスケーラビリティの証明に関する成果に ついては学会でも高く評価され APEX でのレビュー論文招待、Best Paper Award of IEEE Transaction on Nanotechnology の受賞など、この分野でのトップランナーとしての評価を得るに到っている。NC-FET 動作の 理解が進んだという視点で目標達成に至ったと評価できる。ナノワイヤ型への応用は実現しなかったが、限ら れた研究環境の中で無理にスケーリングや新構造を追求するよりも、きちんとした形で動作メカニズムやスケ ーラビリティの検証を行うほうが重要であるというサイトビジットでの合意を受けての研究方針変更は、学会か らの評価を見ても適切であったと考えられる。また、強誘電性 HfO₂を用いた不揮発性 SRAM や新メモリに関 する提案は当初の目標にない想定外の成果であった。今回得られた NC-FET に関する知見(強誘電性ハフニ ア作成プロセスも含む)を生かしたスケーラビリティやその他の微細化、高性能化手法、新規素子構造も含め た今後の提案に期待したい。

IoT の本格化に望んで Steep Slope ロジックトランジスタの必要性が高まっており、その一候補として期待されている NC-FET につき、学会をリードする形でモデリングやスケーラビリティに関する研究が進んだのはこのフィールドの技術向上に大きく貢献したといえる。ただし、NC-FET が早期に実用化されるかどうかは単に性能だけではなく、歩留まりや信頼性など経済性につながるパラメータや、なにより産業界の方針に大きく左右される。この意味で、今回の成果をもとに企業との共同研究などの推進による産業界への働きかけに今後いっそう期待したい。さらに最先端ロジックのテクノロジーに関しては国内各社が撤退しているが、今回メモリに関する提案があったのは重要と考える。強誘電性メモリの産業的需要がどれだけあるかは難しいところであるが、微細化、低価格化の道筋まで含む高付加価値やたとえばニューラルネットワークへの応用などの新規アプリケーションに関しても今後の継続的提案に期待したい。

さきがけ研究を通じて、学会のオピニオンリーダーとしての立ち位置を確保する結果となっており、今後 Steep Slope ロジックデバイスだけでなく、エレクトロニクスデバイス全般への発言力強化に期待したい。その 意味では IEDM Sub-committee に任命されたことも良い機会として活用されることを期待したいし、メモリフィ ールドでの発言力強化もふくめ、デバイス全体の大型研究者として期待する。

4. 高橋 一浩 研究者 「光干渉型分子間カセンサによる高感度マルチバイオマーカー検出システム」 評価結果

本研究課題は、CMOS イメージセンサの各画素上に集積化した MEMS ファブリペロー干渉計を用いて、タン パク質をはじめとする生体分子同士にはたらく分子間力をとらえることにより、標識を用いずに分子を検出す ることを目的とした。

ナノ薄膜のたわみを検出する「光干渉型分子間カセンサ」を開発し、抗原-抗体反応を基にしたバイオセン サヘ展開させ、ターゲットとなる物質 1ng/ml 以下の検出可能性をもつ高感度なバイオセンサを開発した。この 光干渉型センサは、ダイヤフラム部にヤング率の低い材料を用いることで、分子吸着時に発生するストレスの 応答特性を計測する原理と説明されている。ダイヤフラム部に、エラストマーシートやサスペンディッドグラフェ ンなどの適用、抗体固定化方法を工夫するといった検討を行って、バイオセンサを開発した。これらの材料物 性を変化させることで、感度が向上できることを示した。目標の「マルチバイオマーカー検出システムの実現」 に関しては、32×32 イメージセンサの試作が完了しており一定の評価ができるが、このマルチセンサをバイオ マーカー検出システムへ発展させることが期待される。

腫瘍マーカーなどの短時間で安価な検出への要請は強く、新しいアイデアによるセンサ、特にマルチバイ オマーカーを検出するシステム開発は、社会的、経済的に大きなインパクトが期待できる。生体分子固定化技 術は、タンパク質工学や生命科学の研究者でもその制御は難しいとされている。物理、エレクトロニクス分野 の研究者が、バイオセンサの開発をする際、ここを理解して異分野発展につなげることが必要と思われる。そ の意味で、難しさを理解できるまで努力をしたと評価できる。テニュアトラックへの転身もあり、飛躍につながっ ている。



今後の展開としては、検出感度に着目するとともに、マーカー分子以外の干渉分子の影響、さらに検出メカ ニズムの原理検証を実施することが、「光干渉型分子間カセンサ」を抗原-抗体反応を基盤としたバイオセン サとして開発するうえで必要と考える。サスペンディッドグラフェンなど材料を変えた場合も、その原理に従い センサを設計することで、「マルチバイオマーカー検出システム」が実現でき、実用化にも期待がもてる。

5. 高橋 圭 研究者「高移動度二次元酸化物構造による非散逸電流デバイスの創成」 評価結果

本研究課題は、量子異常ホール効果の自発磁化により量子化する端電流状態が、エネルギーを消費しな い非散逸流として利用できるとのアイディアの下、超伝導と並んでエネルギーロスのない電流を作り、それを 用いた革新的な電子デバイスの実現を目指した。研究課題の当初設定が非常に魅力的で挑戦的であったが、 進捗状況が芳しくなく、サイトビジットを通じて、酸化物強相関分野における新規材料開発と学理の追求に焦 点をあてることとした。

結果、ガスソースMBEのもつ高度な実験技術を駆使することにより、酸化物の磁性半導体 EuTiO₃について 高品質な単結晶薄膜を作製することに成功し、その移動度を最大で 3200 cm²V⁻¹s⁻¹ にまで向上させた。これ により、磁化に比例しないトポロジカル異常ホール効果の発見や、強磁性状態において完全にスピン偏極し ていると思われる二次元電子系において磁気抵抗が量子振動するシュブニコフ-ド・ハース(SdH)効果の観察 にも成功したことが特筆される。このような、世界初といえる特殊な条件下における量子伝導状態の実現は、 物理学の観点で学術的な価値が高く重要な成果であると評価する。

当初目的のデバイス開発からの適切なタイミングで学理の追求への軌道修正の結果、最終的にはいくつ かの注目すべき成果を上げることができている。トポロジカル物質科学が盛り上がりを見せる中、その分野に おける大多数の研究者とは異なる独自の方向性として、「薄膜」「酸化物」「強相関」という切りロで研究展開し たことが功を奏したと言える。今後、二次元化によるホール効果の量子化、更にはその先にある分数量子ホ ール効果によって新しい準粒子状態を創成できる可能性などへと、大きなゴールを目指した挑戦を続けてい って欲しい。さきがけ研究の中で応用を目指した研究を横目で見ながら純粋基礎研究を進めてきたことが、今 後の研究に活かされていくことに期待している。

6. 竹内 尚輝 研究者 「極限的エネルギー効率を有する超伝導可逆計算機の開発」 評価結果

本研究課題は、極限的エネルギー効率を有する超伝導可逆計算機の実現を目指し、断熱磁束量子パラメトロン(AQFP)ロジックの可逆性と消費エネルギーの関係の解明、可逆磁束量子パラメトロン(RQFP)ゲートを 含む可逆セルライブラリの構築、可逆加算器の設計と動作実証、そして AQFP ロジックの低電力及び高速動 作実証を目的とした。

結果、AQFPの可逆性と消費エネルギーの関係を解明し、不要な情報の削除によりエネルギー散逸の下限 値が決まることを確認、RQFPゲートを含む可逆セルライブラリを構築、可逆全加算器の設計と作製及び動作 実証に成功し2.0x10⁻²⁰J@5GHz(非可逆回路の47%)を達成した。さらに、可逆8-bit加算器の設計と試作を行 い、その動作実証に成功した。AQFPロジックの低電力性及び高速動作性を実験的に評価しつつ、消費エネ ルギーを数値計算し(プロセスの改善を見込む)、CMOSや従来型超伝導ロジックRSFQに比べて4~6桁優 れてエネルギー効率(素子あたり~10⁻³¹J-s)で動作する可能性を示し、全体的にはほぼ目標通りの成果が 出ていると考えられる。

研究開発当初はやや理論検討が先行し設計実証が遅れぎみであったが、結果的に、可逆全加算器と可逆 8-bit 加算器の設計と動作実証に成功し、進め方は基本的に適切であったと考える。

超伝導素子を用いた回路研究は長い歴史があるが、実用化されたのは限定的な分野である。本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)について、まだ評価できる段階にないが、 CMOS 技術の限界がささやかれる中で、昨今の量子コンピュータに代表される非ノイマン型情報処理技術として、今後大きなブレークスルーとなる可能性を秘めている。様々な方式が検討される中で、本研究は、 100,000 接合規模の回路を 5 GHz で動作させても 1 µW 以内の電力で収めることができ、量子コンピュータの開発にも応用できると期待される。また本研究者は、アメーバ型ハードウエアや多数決スピントロにクスな ど、さきがけ領域内のレイヤー間の共同研究を活発に進めるとともに、科研費基盤(S)や NEDO の超伝導量子 コンピュータのプロジェクトが採択される等、今後の応用につながる研究計画が構築されており、高く評価でき る。量子コンピュータにも様々なアーキテクチャがあり、本研究の成果を活かしていくためには、特定技術にカ スタマイズしすぎず、外部動向を常に把握し、ハードウエアだけでなくアルゴリズムやソフトウェアなど技術を 俯瞰して2~3年単位で見直しながらタイムリに進めることが重要であると考える。



7. 服部 梓 研究者 「遷移金属酸化物のナノ空間 3 次元制御による省エネルギー駆動機能選択的相変化 デバイス創製」

評価結果

本研究課題は、独自の作製技術により、強相関電子系遷移金属酸化物からなるナノ構造体を作製し、電 子相ドメインをナノ空間中に閉じ込めることで、金属-絶縁体相転移に伴う抵抗変化の急峻化させ、さらには、 その現象を用いた省エネルギーデバイスの創製を目指した。強相関電子系物質において、相転移に伴う抵抗 変化は大変に大きく、新奇デバイス応用に向けた研究が盛んになされてきたものの、例えば、トランジスタ応 用に関しては、実用に供することができる温度特性や電流-電圧特性が得られないという根本的な課題は解 決されていなかった。このような背景がある中、デバイスの大きさを相転移に関与するドメインの大きさと同程 度にすることで、単一電子相の一次相転移に由来するステップ状抵抗変化をデバイスの ON/OFF 動作として 取り出すというアイデアの実証を目指した。研究開始当初は、外部発表に急かされることなく、ナノ構造体作 製に関わる技術開発に、地道に取り組まれた。当初計画にあった材料群を用いたデバイスに関しては、それ らの特性評価を十分な再現性を持って行うことができず、副研究総括やアドバイザーとも意見交換を行い、結 果として、対象物質を変更することとした。さきがけ研究ならではの、研究進捗管理の在り方であったと前向き にとらえている。歩留まりの向上を図るための材料選択に、強相関電子系物質に対する考察が必要となった ことからも明らかなように、技術開発と研究開発が両輪として推進された好例と考えられる。

最終的に、線幅100nm、電極間幅150nmのVO₂ナノ細線において、薄膜試料では観察されなかった急峻な ステップ状抵抗変化を観察することに成功した。計算上では、この試料の被測定部分に存在するナノ電子相 は10個程度と推定されており、本研究の主目標であった「単一電子相の一次相転移に由来するステップ状抵 抗変化を、デバイスのナノ構造化によって抽出する」ことに成功している。評価できる点としては、一般に加工 困難と言われる遷移金属酸化物の、高品質な3次元立体ナノ加工技術を確立したこと、強相関電子系金属 酸化物における単一ドメインによる電子相閉じ込め効果における相変化に伴う急峻な高抵抗変化を得て、そ の効果を実験的に実証したこと、微細加工による特性劣化によると思われる歩留まりの悪さが明らかになり、 比較的早い段階で材料系を変更したことが上げられる。また、比較的加工の容易な酸化物を見極め、徹底し て加工技術の向上に努めたことにより、具体的に急峻で高抵抗変化な測定結果につなげることが出来た点で、 戦略的に適切であったと思われる。

不足してたと思われる点は、新しい Steep Slope Device の実現という目標には至っていないこと、絶縁膜を 介した動作の可否を見極めることも重要な目標であったはずであるが未達となったこと、強相関電子系物質 がデバイスに応用できるか、応用する必要があるかという本質的な疑問については進展が見られていないこ とである。強相関電子系物質に対して、単なるスイッチの研究開発を行っているだけでは、電子デバイス応用 への途は限定的となる。CMOS 置き換えを目指すなら、それを想定したベンチマークを行い、どのような利点 があるかを明確にすべきであると思われる。サイズ、急峻性、スピード(ドライブカ)、消費電力といった通常の 性能で CMOS に比肩する性能が得られないなら、特異な性質を生かした新しい応用を視野に入れると良いと 思われる。実用可能性が高いと思われるデバイス、例えば、センサや発電・蓄電素子につなげることを視野に 入れて研究を継続すれば、本さきがけ研究の伸びしろが生まれ、科学技術分野、あるいは、社会・経済への 波及効果を議論できるレベルに到達できる可能性がある。

さきがけ研究終了後においても研究開発のスピード落とすことなく、独自の加工スキルを"何の"応用のためには"どの"レベルまで高める必要があるかを見極め、具体的な応用可能性を示して頂きたい。イオン液体を FET 動作測定のために用いたが、化学的変質等も考慮したうえで、今後の対策を示すことができれば、同様の技術を用いて物性研究を行っている研究者に資する情報になると期待される。

8. 藤枝 俊宣 研究者 「移植用培養生体組織に搭載可能なナノエレクトロニクスの創成」 評価結果

本研究課題は、高分子ナノ薄膜の製造技術とプリンテッドエレクトロニクスを融合させることで、生体組織に 装着可能な電子化ナノ薄膜(『プリンテッドナノ薄膜』と命名)の創製を目指した。

高分子ナノ薄膜の柔軟性ならびに接着性に着目し、高分子ナノ薄膜の製造技術を確立、高分子ナノ薄膜 に様々なプリンテッドエレクトロニクスを組み合わせ、シールのようにして生体組織に貼り付け、エレクトロニク スデバイスとして駆動することを示した。特筆すべき成果としては、無線給電式 LED を伸縮性ナノ薄膜(医療 用シリコーンゴム)と生体模倣型高分子のポリドーパミン(PDA)と組み合わせたデバイスを開発、LED チップ (赤・緑)をマウス皮下に埋植し、無線給電用アンテナ(13.56 MHz)を用いることで、体内で LED を点灯させるこ とに成功し、世界初の「生体埋め込み型光がん治療デバイス」を開発したことが上げられる。この成果は



Nature Biomedical Engineering に掲載された。その他、ナノ薄膜を針状としたフレキシブル神経電極の作製し、 神経細胞への光刺激と活動電位のその場計測が可能であることを示した。またグラフェンフレークの層状構 造を用い、柔軟性を有するナノ薄膜状アンテナコイルを作製し、生体組織に搭載可能な無線給電式発熱デバ イスなども開発した。査読付き論文 13 本、特許 8 件、受賞 4 件と優れた業績が得られている。

当初の目的とした移植臓器の診断という成果までは達成されていないが、生体へ適応できるナノ薄膜をエ レクトロニクスデバイスとして用いる際に必要な要素技術が確立されたことが成果として大きい。ナノ薄膜技術 を医療応用に展開できることを示した成果として、これからのナノエレクトロニクス分野の科学技術、社会への 波及効果は大きいと考える。本研究者は、学外との連携も含め自分の専門外の研究者とうまく連携し、多様 なアプローチを行っており適切に研究を進めたといえる。できれば材料選定や膜厚等のデバイスパラメータ選 定の基準を明確にし、今後の材料探索やデバイス構造多様化に備えるデータを明らかにしてほしい。共同研 究もさきがけ内で生まれており、東工大テニュアトラック講師への転身もあり、飛躍につながったと言える。

生体内生理活性物質を生体内で計測する技術は、物質選択性、感度、技術的な課題以外にも、ガイドライン策定、安全性の検証・認証(標準化)等、数多くの研究とは直接関係の無い様々な課題があり、難しい技術である。今後、さきがけでの研究交流や知見を生かして、生体内で駆動するエレクトロニクスデバイスの技術 開発を引き続き研究してもらいたい。本さきがけ内外の連携を一層拡大して医療応用にとどまらない成果が 出ることも期待したい。

9. 牧 英之 研究者 「ナノカーボン光・電子量子デバイス開発と量子暗号通信応用」 評価結果

本研究課題は、一般光ファイバー網を介した小型量子暗号システムの開発のため、ナノカーボン材料に注 目し、まずは、カーボンナノチューブ(CNT)の室温・通信波長で動作する高品質な単一光子源の実証を目指 し、さらに、シリコンフォトニクスなどのチップ高集積光技術との融合によるナノカーボンデバイスの構築という チャレンジングな研究に挑戦した。

本研究の成果は、単一 CNT の分子修飾による光子閉じ込め効果の可能性を提示し、加えてシリコンフォト ニクスの独自測定技術の構築を行い、その結果、ナノカーボン材料と融合可能なシリコンフォトニクスデバイ スの可能性の提唱まで漕ぎ着けた点である。当初の目標であった CNT の単一光子の効率的発現源としての 実証、シリコンフォトニクスとの融合作動の実証には到らなかった。しかしながら、CNT 構造に対応した効率的 単一光子発生の理論的シミュレーション手法を独自に確立し、今後の単一光子発現実験条件の絞り込みを 行っており、今後の実験方針に繋げている点は評価される。

想定していなかった成果としては、グラフェンを用い、シリコンチップ上での電流注入型発光素子の開発に 成功し、ナノカーボン素子が光通信に応用可能であることを示した。さらに、CNTをテンプレートとして、超伝導 ナノワイヤーの開発に成功し、1 次元超伝導現象を観測した点が挙げられる。これらの研究は、Nature Communications などの論文掲載や特許などの成果として発表され、プレス発表なども活発に行い、研究者と しての認知度向上に繋がった。

研究の進め方の観点からは、いくつもの重いテーマを平行して進めた結果、最も集中すべきシリコンフォト ニクス上での CNT の単一光子発現に到れなかった。これは、中間時期において他の競合グループにより分 子修飾した CNT の高品質な単一光子発現実証の Nature 発表が先行してしまったため、研究の重心をシフト せざるを得なかったためと考慮されるが、全体的に研究テーマが発散してしまった感は否めない。

近年の量子コンピュータの出現と急激な研究進展により、現代の情報社会を支える暗号技術が脅かされて いる。今後さらなるセキュリティーが保障されたネットワーク社会を拡大実現してゆくための絶対安全な技術と して、光子の量子性を用いた量子暗号通信が注目されている。今後のシナリオとしては、このさきがけ研究で 立ち上げたそれぞれの要素技術の融合を集中的・効率的に実現させ、CNT、グラフェンによる単一光子発現 による量子暗号通信システムの実現達成に向け、世界を先導する存在として活躍して頂きたい。

10. 吉村 哲 研究者「電界書込み型の超低消費電力磁気メモリの開発」 評価結果

本研究課題は、次世代の情報記録デバイスとして注目を集めている磁性ナノワイヤ型レーストラックメモリ において、強磁性かつ強誘電特性を有する薄膜材料を記録媒体として用いる新規電界書き込み型の大容 量・低消費電力磁気メモリを実現することを目的としている。当初目標は、磁気記録用強磁性・強誘電薄膜材 料の開発と電界書き込み型磁気記録の実証、記録媒体用強磁性薄膜の開発と記録ビットの高速移動、再生 素子用強磁性薄膜の開発と低エラーレートの読み出し実証、そしてこれら薄膜の積層膜の形成・総合化によ る電界書き込みメモリの実現であった。しかし、研究リソース(マンパワー及び研究設備)が十分でなく進捗が



遅れ気味であったこと、研究が発散気味であったことから、サイトビジット時に計画見直しを行い、電界書き込 みの実証に注力することとした。

その結果、強磁性・強誘電薄膜の高品質化(大きな飽和磁化と保持力)を行い、静的な電界印加による磁 化反転・書き込みを実現することができた。さらに、動的書き込み検出のための装置検討の中できわめて大き な磁気 Kerr 効果を得た。計画変更後の目標に対してはほぼ目標を達成したと言えるが、動的な電界印加に よる磁化反転・書き込みは確認できていない。また電界書き込みについては、意図しない電流注入が行われ ていないことの確認が必要である。大きな磁気 Kerr 効果が得られた点は想定外の成果として評価できるが、 原因は未解明であり、プラズマ増強効果の可能性も否定できない。原因解明と併せて、本技術を用いた動的 書き込み動作実証を残された期間内にぜひ実現してほしい。

研究の進め方については、サイトビジット時の研究計画の見直しは妥当であった。研究リソースが十分でな く厳しい研究環境であるハンディを、他研究機関や、さきがけメンバーとの積極的な共同研究により補った点 は評価できる。ただ、もう少し効率的で的を絞った研究遂行が望ましかった。研究成果の科学技術及び社会・ 経済への波及効果に関しては、電界書き込みの静的な基本動作を確認した段階であり、現時点では波及効 果は見通せない。しかし今後の研究進捗により、当初目標が達成できれば波及効果は期待できる。ただその ためには成果のタイミングが重要であり、早急な研究進捗が必須である。

本さきがけ研究を通して共同研究を推進し、装置の工夫等を行った点で一定の成長がみられるが、飛躍的 な成長には至っていない。なお本さきがけで導入した装置を、秋田大学地方創生センターで共用装置として活 用する計画は、創成センターの活性化に貢献するものであり、さきがけ研究の目的とする研究者個人の成長 とは異なるが、地域研究拠点の創成につながるものとして評価できる。

10. 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)富士通研究所 名誉フェロー

領域アドバイザー(五十音順。所属、役職は2019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 名誉教授
- 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 教授
- 平山 祥郎 東北大学大学院理学研究科 教授
- 福島 伸 (株)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)デバイスイノベーションセンタ グループリーダー・主席研究員

(参考)

件数はいずれも、2019年3月末現在。

(1) 外部発表件数

	国内	国 際	計
論 文	6	79	85
口頭	228	209	437
その他	6	2	8
合 計	240	290	530

(2)特許出願件数

国内	国際	計
17	6	23

(3)受賞等



·小林 正治

Best paper award of IEEE Transaction on Nanotechnology (2018/7/25)

IEEE EDS Japan Joint Chapter Student Award (Experimental Study on the Role of Polarization Switching in Subthreshold) (2019/1/25)

IEEE EDS Japan Joint Chapter Student Award (Scalability Study on Ferroelectric-HfO2 Tunnel Junction Memory Based on Non-equilibrium Green Function Method with Self-consistent Potential) (2019/1/25)

・後藤 太一

Magnetics and Optics Research International Symposium (MORIS), Best Poster Award "Demonstration of Q-switch laser using magnetooptical garnet" (2015/12/1)

電子情報通信学会 磁気記録・情報ストレージ研究専門委員会 委員長賞 (2016/3/4)

日本レーザー学会, 論文発表奨励賞(2016/5/31)

- 一般社団法人 電気学会 優秀論文発表賞(基礎・材料・共通部門表彰)(磁性フォトニック結晶の広角化 に 関する研究) (2016/9/5)

ー般社団法人 電気学会 優秀論文発表賞(磁性ガーネットを用いたレーストラック型オンチップ光アイソレ 一タの開発)(2016/9/5)

応用物理学会 講演奨励賞(磁気ドメインを利用した薄膜Qスイッチレーザー)(2017/3/14)

応用物理学会 講演奨励賞(イットリウム鉄ガーネットを用いたΨ型スピン波位相緩衝器の作製) (2017/3/14)

一般社団法人 電気学会 基礎·材料·共通部門表彰 優秀論文発表賞 (2017/9/19)

IEEE Nagoya Section Young Researcher Award (2017/12/23)

第12回わかしゃち奨励賞(基礎研究部門)最優秀賞(2018/1/30)

Outstanding Reviewer Awards 2017(英国物理学会)(2018/2/24)

一般社団法人 電気学会 優秀論文発表賞(基礎·材料·共通部門表彰)(2018/9/4)

·竹内 尚輝

電子情報通信学会超伝導エレクトロニクス研究会奨励賞(2016/1/21)

•服部 梓

2018 年度大阪大学賞 若手教員部門(2018/11/19)

日本表面真空学会 講演奨励賞(若手研究者部門)(2019/2/6 決定)

•藤枝 俊宣

田中貴金属記念財団 2016 年度「貴金属に関わる研究助成金」萌芽賞(2017/3/31) 日本バイオマテリアル学会 2017 年度科学奨励賞(2017/11/20) 文部科学大臣表彰若手科学者賞(2018/4/17) 2018 年度早稲田大学リサーチアワード(国際研究発信力)(2018/12/3) Royal Society of Chemistry Journal: Biomaterials Science, Biomaterials Science Emerging Investigators 2019 (2019/1/3)

•牧 英之

第45回(2018年秋季)応用物理学会講演奨励賞(2018/12/1)

·吉村 哲

マツダ研究助成奨励賞(2016/9/22 公開)

(4)招待講演

国際 60件

国内 57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

研究者氏名	研究課題名	現職(2019年3月末現在)	研究費
(参加形態)	(研究実施場所)	(応募時所属)	(百万円)
赤井 恵 (兼任)	ポリマー配線を用いたニューラルネットワー ク型情報回路の創成 (大阪大学)	大阪大学大学院工学研究科 助教 (同上)	33
後藤 太一 (兼任)	極薄磁性酸化物中におけるスピン波位相干 渉を用いた多入出力演算素子の開発 (豊橋技術科学大学)	豊橋技術科学大学大学院工学研究 科 助教 (同上)	40
小林 正治 (兼任)	超低消費電力動作に向けたゲート絶縁膜の 負性容量による急峻スロープトランジスタ技 術の開発とナノワイヤ構造への応用 (東京大学)	東京大学生産技術研究所 准教授 (同上)	36
高橋 一浩 (兼任)	光干渉型分子間力センサによる高感度マル チバイオマーカー検出システム (豊橋技術科学大学)	豊橋技術科学大学大学院工学研究 科 准教授 (同上 テニュアトラック講師)	33
高橋 圭 (兼任)	高移動度二次元酸化物構造による非散逸 電流デバイスの創成 (理化学研究所)	理化学研究所創発物性科学研究セン ター 上級研究員 (同上)	35
竹内 尚輝 (兼任)	極限的エネルギー効率を有する超伝導可逆 計算機の開発 (横浜国立大学)	横浜国立大学先端科学高等研究院 特任教員(准教授) (同上)	33
服部 梓 (兼任)	遷移金属酸化物のナノ空間 3 次元制御によ る省エネルギー駆動機能選択的相変化デバ イス創製 (大阪大学)	大阪大学産業科学研究所 助教 (同上)	35
藤枝 俊宣 (兼任)	移植用培養生体組織に搭載可能なナノエレ クトロニクスの創成 (東京工業大学)	東京工業大学生命理工学院 講師 (早稲田大学理工学術院 助教)	38
牧 英之 (兼任)	ナノカーボン光・電子量子デバイス開発と量 子暗号通信応用 (慶應義塾大学)	慶應義塾大学理工学部物理情報工 学科 准教授 (同上)	40
吉村 哲 (兼任)		秋田大学大学院理工学研究科 准教 授 (秋田大学大学院工学資源学研究科 准教授)	31



研究報告書

「ポリマー配線を用いたニューラルネットワーク型情報回路の創成」 研究タイプ:通常型 研究期間: 2015 年 10 月~2019 年 3 月 研究者: 赤井 恵

1. 研究のねらい

近年、脳の優れた特性、高効率な消費電力性、環境適応力、認識力、判断力に学ぶ新しい 情報処理技術が、既存のコンピューターではこなせなかった問題を解決するニューラルネットワー ク型人工知能(AI)として盛んに利用され始めている。しかしながら、今の人工知能はコンピュータ ープログラムであり、そのフレームワークはノイマン型コンピューターの範疇から出ることはない。 計算アルゴリズムとしてのニューラルネットワークは並列性やメモリ計算の構造を保持しており、 本来ならば省エネルギー特性や小型化といった恩恵を享受すべきところ、計算部とメモリが分離 している現行のノイマン型計算機の中で動く以上、その更新すべき情報量の多さから莫大な電力 を消費する定めから逃れられない。ニューラルネットワークをより効率的に、また様々な現実の状 況に適合させて利用する為には、現在の半導体技術を用いない新規な仕組みと材料を用いた、 物理的にニューラルネットワークアーキテクチャを全体的、もしくは部分的に実現した"フィジカル AI"技術へのパラダイムシフトが求められている。

本研究は空間を自由に配線出来る可塑性を持った有機ポリマー材料を用い、ニューラルネットワークアルゴリズムを基礎とした、物理的にも柔らかい情報認識回路の創成を提案することを提案する。本研究で用いる導電性高分子は、単量体溶液の中の指向性の高い重合反応として、まるで神経細胞ニューロンのように溶液内の自由空間をワイヤー状に成長する。これらのポリマーワイヤーは、もちろん実際の神経細胞のように複雑な機能を持つわけではないが、指定された電極端子間に指向性を持って成長し、その導電性を変化させ保持する「不揮発性の抵抗変化メモリ」であり、ニューラルネットワークのシナプスとして利用することが出来る。本研究で用いたPEDOT:PSS は、材料としての制御性や堅牢性も高く、機械学習によって成長させたニューラルネットワーク構造は安定に利用することが可能である。

フィジカルニューラルネッワーク構築を目的とする研究は、世界的にも固体メモリスタのクロ スバー構造を用いた研究が隆盛であるが、本研究は空間を自由に配線し、安価で生体親和性の 高い有機材料を用い、将来の"フィジカル AI"実現へ向けた異なる視点からの新しいアプローチ とコンセプトを提供する。

2. 研究成果

(1)概要

本研究は 2 つの研究テーマによって構成された。第一に「ポリマー配線成長の機構解明 と制御」、第二に「機械学習を用いたポリマー配線ニューラルネットワークの構築」である。こ れらは同時進行的に、相補的に行われた。

1) ポリマー配線成長の機構解明と制御

電解重合をする導電性高分子は、単量体溶液内における電解集中によってワイヤー状に



成長する。本研究ではその成長機構を精査し、PEDOT:PSS が最も配線の制御性に富むと 結論し、PEDOT:PSS ワイヤー成長の機構解明と制御を目的として研究を進めた。第一に<u>ワ</u> イヤー径の周波数依存性を見出した。これは矩形波電圧印加における成長先端の単量体 酸化がまず起き、その後にワイヤー表面全体の成長が起っていることを示唆している。ま た、一定の高周波数高電圧条件を満した場合に、<u>電極間に複数本のワイヤーが成長させる</u> ことが可能であることを発見した。これは、学習に必須な抵抗変化メモリとして利用可能な線 形増加かつ大きな変化幅の抵抗変化を実現することに繋がった。

2) 機械学習を用いたポリマー配線ニューラルネットワークの構築

研究初期には、自作電気回路とマイコン制御による機械学習システムを構築し、教師あり 単純パーセプトロンアルゴリズムを用いた、PEDOT:PSS ワイヤー<u>4 入力 1 出力 AND OR 論</u> <u>理回路の作成を達成した。次に、電気回路基盤ボードとマイコン制御による 9×6 の双方向</u> 機械学習システムを構築し、54 対電極における<u>オートエンコーダー回路を構築し、9 ビット 3</u> <u>文字の3ビットへの特徴抽出に成功</u>した。制御する機械学習による CMOS 以外の材料への ニューラルネットワーク構築の報告は未だ数が少なく貴重な結果である。

ポリマーを利用する利点として、3 次元空間で自由配線をすることにより、既存のクロス バー研究で困難とされている部分配線によって、効率的にニューラルネットワークを形成出 来るという理由があった。しかしながら二次元の平面電極を用いた多岐配線には成功したも のの、3 次元配線の制御には到達しなかった。原理的には配線が可能であると考えられる 為、端子作製技術の革新が必要であると考えている。

また、カーボンナノチューブ(CNT)と分子を用いた関連研究において、CNT/分子ランダム ネットワークがリカレントニューラルネットワークの一つである"リザーバー計算"となる可能 性があることを示唆した。導電性ポリマー抵抗変化素子は数十から数百で十分機能するとさ れる"リザーバー計算の読み出し端子重み"の実現に最適であると考えられる。本研究の最 終段階としては、将来の機器内実利用を想定し、90 端子を搭載した 2cm 角の PEDOT:PSS 抵抗変化メモリアレーチップを作製した。

(2)詳細

1)ポリマー配線成長の機構解明と制御 2)機械学習を用いたポリマー配線ニューラルネット ワークの構築、に関する主な結果はまだ論文を投稿出来ていない。よって殆どの重要な内 容や図が論文に使用される。よって主要な結果の詳細は<u>2*非公開の研究成果</u>に記載する。

3 次元空間での自由配線は、既存のクロ スバー研究で困難とされている部分配線を 実現する上で本研究の重要なテーマであっ た。図 1 に示すように、二次元の平面電極 を用いた多岐配線ではそのプログラム制御 に成功したものの、3 次元配線には成功し なかった。図 2 に 400 μ m ピッチの 3 × 3 電 極の作製例と空間溶液中での配線例を示 す。原理的には配線が可能であると考えら



図2 3次元電極の作製例(左)と空中配線例(右)



れる為、端子作製技術の革新が必要であると考えている。

将来の機器内実利用を想定し、90 端子を搭載した 2cm 角の PEDOT:PSS 抵抗変化メモ リアレーチップを作製した。学習制御機構に簡単に接続可能で一挙に 90 端子の抵抗変化を 制御可能である。先端の曲率半径 30 µm、ギャップ長 50 µm の金電極 90 対が約 400 µm ピッチで並んでいる。端子以外の配線全体は溶液との接触を避ける為にポリイミドによって 皮膜されている。さらに電気回路基盤ボードとマイコン制御による 180 端子まで材料に機械 学習可能なシステムを構築した。物質への印加信号は外部信号を利用するのでポリマー以 外のいろんな材料に適応が可能である。抵抗変化を基本としているので、テスト電圧を印加 し微小電流を検出する。

3. 今後の展開

カーボンナノチューブ(CNT)と分子を用いた関連研究において、CNT/分子ランダムネット ワークがリカレントニューラルネットワークの一つである"リザーバー計算"となる可能性がある ことを示唆した。導電性ポリマー抵抗変化素子は"リザーバー計算"の読み出し端子重み"の 実現に最適であると考えている。深層学習ニューラルネットワークでは何千何万何億といった 全体のシナプス学習更新が必要である。一方で"リザーバー計算"では数十から数百の学習 シナプスで複雑な問題に十分機能する。ナノ材料"リザーバー"の開発をこれから進めていくと 共に、現在存在するソフト材料"リザーバー"へ接合し、現実の学習と実機搭載を目指していき たい。

4. 自己評価

研究目的として挙げた「空間を自由に配線出来る可塑性を持った有機ポリマー材料を用い、 ニューラルネットワークアルゴリズムを基礎とした、物理的にも柔らかい情報回路を創成する。」 という目標は、「有機ポリマー材料を用い、ニューラルネットワーク情報回路を作る」という部分 は54 対電極におけるオートエンコーダー回路を構築し、9 ビット3 文字の3 ビットへの特徴抽 出に成功した。ことによって成し遂げたと考えている。しかしながら、制御システムの開発とオ ペレーションばかりに夢中になって、ワイヤーの詳細な成長機構はあまり返り見なかった。こ の部分は、論文として徐々に発表しておくべきだったかと思う。

研究成果は機械学習による CMOS 以外の材料へのニューラルネットワーク構築の報告 は未だ数が少なく貴重な結果であることを鑑みると、十分に新しいコンセプトと材料を披露した という意味で科学技術、社会的には十分意味がある。経済の観点から認められるにはまだ需 要を発掘するには至っていない。

- 5. 主な研究成果リスト
 - (1)論文(原著論文)発表

1. H. Tanaka, M. Akai-Kasaya, A. Termeh Yousefi, L. Hong, L. Fu, H. Tamukoh, D. Tanaka, T. Asai, and T. Ogawa, "A Molecular Neuromorphic Network Device consisting of Single-Walled Carbon Nanotubes complexed with Polyoxometalate" Nature Communication, (2018), 9, 2693–2699,



2. H. Fujii, A. Setiadi, Y. Kuwahara, and M. Akai-Kasaya <u>,</u> "Single walled carbon nanotubebased stochastic resonance device with molecular self-noise source ", Applied Physics Letters, (2017), 111, 133501-133505.

3. A. Setiadi, H. Fujii, S. Kasai, K. Yamashita, T. Ogawa, T. Ikuta, Y. Kanai, K. Matsumoto, Y. Kuwaharaa and <u>M. Akai-Kasaya</u>, "Room-temperature discrete-charge-fluctuation dynamics of a single molecule adsorbed on a carbon nanotube", Nanoscale, (2017), **9**, 10674-10683. 4.赤井恵, 「ポリマーが織り成すニューラルネットワーク」高分子 4 月号 特集 表面・界面の 構造がキワ立つ高分子 (2017), 67, 192

(2)特許出願

なし

(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] M. Akai-Kasaya, Wataru Hikita, Yuji Kuwahara and Tetsuya Asai, "On the Growing Polymer Neural Networks" CMOS Emerging Technologies Research 2017 Symposium, Warsaw, Poland (May 28-30, 2017)
- [2] M. Akai-Kasaya, "Towards Neuromorphic Device and Computing from Molecular Nanotechnology", Second International Conference on Material Science (ICMS-2017), Tripura, University, Tripura, India (Feb. 14-20, 2017).
- [3] M. Akai-Kasaya, "Complemental Neural Network Built of Growing Polymer Wire" CCMR Inchon Korea (June. 2018)
- [4] M. Akai-Kasaya, " Use of Room-Temperature Molecular Noise improves Signal Detection in Single Walled Carbon Nanotube Device", NORTA, Tarragona, Spain, (Sept. 2018)

総説·著作

- [1] <u>赤井恵</u>,「ポリマーが織り成すニューラルネットワーク」高分子 4 月号 特集 表面・界面の 構造がキワ立つ高分子トピック Vol.67, No.4, p.192 (2018).
- [2] <u>M. Akai-Kasaya</u>, "Coulomb-blockade in low-dimensional organic conductors", Chapter 6, Molecular Architectonics, T. Ogawa and C. Joachim, Eds., Advances in Atom and Single Molecule Machines Series, Springer Berlin / Heidelberg, (2017).

プレスリリース

- [1] "脳の神経に似た電気信号 炭素材料使い再現 九州工大ら"日経産業新聞(2018年7月1 8日) "大阪大学 カーボンナノチューブと分子の乱雑ネットワークが神経様スパイク発火を 可能に"日経バイオテク(Web)(2018年7月18日)
- [2] "Brain function partly replicated by nanomaterials" (2018年7月12-14日), 科学情報We



bサイト: ScienceDaily, Phys.org, NanoWerk, (他 8件)一般情報Webサイト: SPINOff CO M, AZOnano, (他 4件 + a)

- [3] "Creative Use of Noise Brings Bio-Inspired Electronic Improvement"、米国物理学協会AIP からプレスリリース(2017年9月25日)、米国電気工学技術学会誌 IEEE SPECTRU M に紹介記事(2017年10月4日)、科学情報Webサイト: Phys.org, ScienceDaily, Eletronic 360,(他 3件)、一般情報Webサイト: YouTube, R&D, AZOnano,(他 4件 +α)
- [4] "CNT素子内への有機分子導入で分子種ごとに特性周波数をもつ雑音が発生"マイナビニ ューステクノロジー(Web) (2017年6月23日)
- [5] "Signature analysis of single molecules using their noise signals" (2017年7月11日)、 科学情報Webサイト: ScienceDaily, ScienceNewsline, Phys.org, (他 3件)、一般情報We bサイト: R&D, AZOnano, (他 4件 + α)



研究報告書

「極薄磁性酸化物中におけるスピン波位相干渉を用いた多入出力演算素子の開 発」

研究タイプ:通常型 研究期間: 2015 年 10 月~2019 年 3 月 研究者:後藤太一

1. 研究のねらい

近年爆発的に成長する情報化社会は、より低消費電力、より高速、より小型な電子デバイ スを要求しているが、これまでの半導体集積回路の微細化や高集積化による高性能化(デナ ードのスケーリング則とムーアの法則)だけでは、これらの要求に対応しきれない現状にある。 これは、電子を移動することによって得られる「電流」を使う電子デバイスの宿命であり、そも そも電子を移動しないで動作するデバイスが実現できれば、大きな技術革新が期待できる。そ こで、本研究では、電子を移動せずとも、電子中の自由度の一つであるスピンの位相を情報 キャリアとして伝えるデバイスを作製することで、この現状の打開策を示すことを目指した。

特に、極薄の磁性酸化物(絶縁体)中を伝搬するスピン波(あるいは、スピン波スピン流)は、 波長が原理上ナノメートルオーダーにまで短縮可能である。これは光の波長よりも短く、電子 のド・ブロイ波長よりも長い絶妙な大きさである。そのため、電子回路形成の基盤技術をその まま用いて、光回路のように波の性質を利用した、これまでのデザインルールに縛られないデ バイスが実現可能と考えた。また、絶縁体中を伝搬する情報であるため、電子を移動せずとも、 情報を伝えられる。そのため、極めて低い消費電力であり、発熱の少ない高集積度のデバイ スが開発できると期待できる。本研究では、これら利点を、多入出力スピン波位相干渉素子を 形成することで実証し、スピン波回路の礎を築くことをねらった。

2. 研究成果

(1)概要

本研究では、極薄の磁性酸化物材料を伝搬するスピン波の位相干渉現象を使った新しい論 理演算素子のデモンストレーションを目指し、実際に、素材・デバイス・システムの探査・動作実 証・新規発想を行った。

本研究の「素材」を担ったのは、「極薄の磁性酸化物材料の形成技術の確立」である。スピン 波の低散逸材料として広く知られているイットリウム鉄ガーネット(YIG)膜を、素子として使える 面積で均一な単結晶として形成技術を確立し、デバイス開発に十分な数量を形成した。YIG は、スピン波の伝搬距離が長い材料であるため、世界的に重宝されているが、日本国内で単 結晶ライクの性能が担保されたYIG薄膜を形成する研究者は、研究開始当初いなかった。これ は基盤技術であり、これを確立することで、デバイスおよびシステムへの展開が可能になった。

そして、本研究の「デバイス」を担ったのは、YIG 膜を使ったロジック素子の形成である。想定 される実デバイスと同じサイズの三次元モデルに、有限体積法を適用することで、スピン波の 伝搬状態や、スピン波位相干渉の状態などを、静的な磁気特性と動的な磁気特性を結びつけ て計算できる手法を確立し、デバイスのデザインツールとして、使える方法を確立した。このデ



ザインに基づき、極薄の YIG 膜を使って位相干渉素子の作製・動作実証を行った。その結果、 NAND、NOR、XNOR ゲート機能を、YIG 膜を世界にさきがけて実証することに成功した。

最後に、本研究の「システム」として、スピン波回路を使ったより複雑な回路「全加算器」のデ ザインを発想した。領域会議等のさきがけ研究者内の交流会で、他レイヤーの研究者に興味 を共有し、異なる研究分野の知見を本研究テーマに集約することで、本システムに結びつい た。本発想には、さきがけ研究期間の NanoTech2018 展示会とJST フェアでの試作デバイスの 展示や、Science For Society(SciFoS)活動、共同フィージビリティスタディ(FS)の活動の成果 の一部であるとも考えている。

これらを総合的に、ときに並行して、遂行し、当初掲げた目的の多入カスピン波位相干渉素子を形成・動作実証した。さらに、当初掲げた目標以上の成果となる、スピン波回路を使った全加算器や、新しい導波路構造を発想し、次の研究段階につながるスピン波回路の礎を築いた。

(2)詳細

研究テーマA「三端子厚膜スピン波位相干渉器の実証」

最初に、厚さが 10µm ほどの、いわゆる厚膜のスピン波媒体を使って、スピン波の位相干渉 デバイスのコンセプトの一部を実証した。図 1 に、形成した三端子厚膜スピン波位相干渉器を 示す。イットリウム鉄ガーネット(Yttrium iron garnet, YIG)を三本の電極上に装荷することで、ス ピン波を励起・検出をした。両側の入力①と②からスピン波を流し、中央で、位相干渉すること で、XNOR のロジック動作を確認した。ここで、利用したスピン波は、後々複雑化することを想定 し、前進体積スピン波と呼ばれる、面内のあらゆる方向に伝播可能なスピン波を使用した。し かし、このスピン波は、面内の等方性がよいがために、ノイズが大きいという難点があり、ほと んど使われていなかった。そこで、私は、図2のように、YIG の両端に金薄膜を成膜することで、 効率よくスピン波の反射を抑制することができ、その結果、ノイズを劇的に抑えることに成功し た。これは、位相干渉をしたときに、特に強く現れる。図3に示すのは、金薄膜が YIG の両端に あるときとないときの、位相干渉結果である。金薄膜がスピン波のノイズを抑制しており、その 結果、安定した位相干渉を起こし、ON 状態と OFF 状態を、明確に分離することに成功している のが分かる。



このように、スピン波回路に必須となる前進体積スピン波を使うための、ノイズの抑制方法を 確立した上で、XNOR動作を確認した。

図1 作製した三端子厚膜スピン波位相干渉器の写真





図2 媒体の違いが及ぼすスピン波への影響。磁性金属(a)の中を伝わるスピン波は、エネル ギー損失が大きく伝わるスピン波が弱くなってしまう。エネルギー損失の少ない磁性絶縁体を 用いた場合であっても、金膜のない(b)では磁性絶縁体の端の部分で反射するため余分な波 ができてしまい、重ねあわせが乱れてしまう。一方金膜をつけた(c)では端の部分での反射が 抑えられて波の重ね合わせが乱されない。



図3 図2で手前の入力信号と奥の入力信号を重ね合わせてその中心での磁場の強度を電気 信号に変えて測定した結果。金膜を用いていない場合(a)と金膜を用いた場合(b)でのオン状 態(重ねあわせで強めあう状態)とオフ状態(重ねあわせで弱めあう状態)の強度の違い。金膜 を用いていない場合は反射などで起こる余分な波のために重ねあわせが乱され、オン状態と オフ状態が重なってしまうところもあり、論理演算素子として機能できない。一方金膜を用いた (b)の場合は余分な波を除去しているため重ねあわせがきれいに起こってオン状態とオフ状態 を完全に区別することができる。

研究テーマB「四端子厚膜スピン波 AND と OR の実証」

それまで、基本的な位相干渉実験に留まっていた上記を発展させ、実際のコンピューターの 構成単位の一つである演算素子を電子回路と同じように実現することを行った。本研究では、 YIG 厚膜をフォークの形(Ψ型)に加工し、すべての演算パターンを1つの素子の組み合わせで 実現できる「完全性」を持った論理演算素子を作製し、その動作を実証した。導波路を金薄膜 で覆い、スピン波線の幅を狭くすることで、単一波長のスピン波(だけが伝わるよう(シングルモ ード導波路となるよう)に形成して、信号処理に不要なスピン波の発生を抑制した。電子回路で は、幅や高さ、長さといった形状は、オームの法則によって比例や反比例として働き、扱いやす



いが、スピン波では、ある一定の幅では急激に余分なスピン波が増えたり、適切な長さにしな ければ位相干渉が乱れたりする。つまり、形状に対する非線形な応答を持つため、扱いが容 易ではなかった。そこで、本研究では、この点を解明・理解してデバイスを設計・作製することに 成功した。具体的には、実モデルと同サイズのモデルを三次元で作り、これを、静磁近似を適 用して有限体積法によって解くことによって、スピン波伝搬が計算できるので、YIGの形状や金 薄膜の厚さを変化して、適切な構造を探査した後に、形成に着手した。形成した四端子厚膜ス ピン波素子は、図4のように、3つの入力と1つの出力をもつ。波が持つ強度と位相の2つの独 立した情報のうち、この素子は位相の状態を入力し、演算の結果を位相の状態として出力す る。これにより、同素子は、多段化することが可能になり、応用上極めて重要な要件を満たした ことになる。さらに、入力3の端子の位相を0かπに変化すると、ANDか ORのどちからの機能 を選択できる点も応用上の利点と言える。これは、多数決論理回路であることと同意であり、こ れも、より複雑な演算素子実現のために極めて重要である。



以上より、四端子の位相干渉デバイスが、当初予定通りに実証できたと言える。

図4 四端子厚膜スピン波 ANDとOR。3つの入力端子からスピン波を入力すると、位相干渉部 で重ね合わされたスピン波は、自動的に、出力端子に演算結果を出力する。



図5 四端子厚膜スピン波素子の入出力波形。0 とπは波の位相を表す。入力 C が 0 のとき AND を表し、π のとき OR を表す。NOT は、出力ポートの位置を半波長分ずらすことで簡単に 実現できるため、これは、NAND、NOR を実現できたと言っても差し支えない。位相出力である ため、これは多段化できる素子である。



研究テーマC「薄膜イットリウム鉄ガーネットの形成」

スピン波回路の短波長化、集積化には、導波路材料の薄膜化が必須であるが、もっとも損失 が少ない材料として知られる YIG の薄膜化は困難とされ、デバイス応用にまで至っている例は 本研究開始時点で全くなかった。そこで、パルスレーザー堆積法と、単結晶薄膜 X 線回折装置 を駆使し、デバイス応用に資する厚さ数十ナノメートルの YIG 膜を形成した。得られた膜は、面 内・面直の両方向で単結晶と呼べる高品質なものであった。また、磁気特性も、バルク YIG に 匹敵するものが得られている。

研究テーマD「薄膜イットリウム鉄ガーネットを用いた演算素子の実証」

上記で得られた薄膜 YIG を三端子、四端子のスピン波位相干渉素子に適用した。本結果は 論文投稿中であり、結果の掲載は控えたいが、概要をここに示す。上述の単結晶 YIG 膜を、導 波路状に、電子線描画装置を用いてパターニングし、この上部にコプレーナウェブガイドを形成 した。コプレーナウェブガイドで励起されたスピン波は、導波路を伝わり、ほとんど、上記の厚膜 スピン波導波路と同じように振る舞った。結果として、同じ機能を、単純に1万分の1程度小型 化することに成功している。これは、三端子・四端子素子の両方で見られており、膜特性を単結 晶ライクに維持することができれば、高集積化が可能で、スケール則が成り立つことを示してい る。

以上のように、厚膜 YIG を用いてデバイスコンセプトを実証し、極薄の YIG 膜の形成技術を 確立、その後、薄膜 YIG においても、厚膜 YIG と同程度の性能を実証することに成功した。した がって、当初の予定したデバイスの必須デモンストレーション項目をクリアし、スピン波回路の 礎を築けたといえる。

3. 今後の展開

今後は、さきがけ研究期間中に育ったスピン波にまつわるネットワークを強化し、現実社会 に実装される機能をチップレベルで融合する研究を進める。素子サイズ・集積度などの性能 値の議論・改善は当然進めるが、ケースは限られるが半導体回路よりも優れた場面を見出し たため、この強みを生かした、社会・産業界へ展開する方法・アイデアを検討・試験に挑戦し ていきたい。

4. 自己評価

当初の計画どおりの成果が得られた。同時に、部分的に当初の想定を超えた成果が得られた。当初の想定を超えた部分は、特に、他の研究者、産業界の研究者らとの自由な交流 による刺激・指摘・議論にところが大きいと考えている。

本研究は当初から、極めて大量の入力端子が想定されるケースへの応用展開を想定して おり、本研究によってその礎が確立されたと言っていい。研究開始当初は、物理的興味に留 まっていたスピン波に関する研究が、本研究により、工学的議論が可能なレイヤーの研究に まで押し上げることができたと見ている。実際、NAND、NOR が実証されたことで、論理演算 における完全性が満たされたため、次のステップである全加算器に相当する機能をスピン波 回路で実現する段階へ展開する明確な道筋が本研究によって示され、実際にそれに必要な



研究体制の議論・構築に進んでいる。今後の展開に私自身、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. N. Kanazawa, T. Goto, K. Sekiguchi, A. B. Granovsky, C. A. Ross, H. Takagi, Y. Nakamura, and M. Inoue, "Demonstration of a robust magnonic spin wave interferometer," Sci. Rep. 6, 30268 (2016).

2. T. Goto, D. H. Kim, X. Sun, M. C. Onbasli, J. M. Florez, S. P. Ong, P. Vargas, K. Ackland, P. Stamenov, N. M. Aimon, M. Inoue, H. L. Tuller, G. F. Dionne, J. M. D. Coey, and C. A. Ross, "Magnetism and Faraday rotation in oxygen-deficient polycrystalline and single-crystal iron-substituted strontium titanate," Phys. Rev. Applied 7, 024006 (2017).

N. Kanazawa, T. Goto, K. Sekiguchi, A. B. Granovsky, C. A. Ross, H. Takagi, Y. Nakamura,
 H. Uchida, and M. Inoue, "The role of Snell's law for a magnonic majority gate," Sci. Rep. 7, 7898 (2017).

4. T. Yoshimoto, T. Goto, H. Takagi, Y. Nakamura, H. Uchida, C. A. Ross, and M. Inoue, "Thermally stable amorphous tantalum yttrium oxide with low IR absorption for magnetophotonic devices," Sci. Rep. 7, 13805 (2017).

5. T. Yoshimoto, T. Goto, K. Shimada, B. Iwamoto, Y. Nakamura, H. Uchida, C. A. Ross, and M. Inoue, "Static and Dynamic Magnetic Properties of Single-Crystalline Yttrium Iron Garnet Films Epitaxially Grown on Three Garnet Substrates," Adv. Electron. Mater. 4, 1800106 (2018).

(2)特許出願

研究期間累積件数:3件(公開前の出願件名については件数のみ記載) 1. 発明者:後藤太一,井上光輝,高木宏幸,平等拓範 発明の名称:Qスイッチ固体レーザー装置 出願人:豊橋技術科学大学,分子科学研究所 出願日:2015/10/21 出願番号:特願2015-207278

2.

発明者:井上光輝,後藤太一,岡嶋伸吾,樋口之雄,長谷川隆
発明の名称:スピン波位相変調装置
出願人:株式会社村田製作所,豊橋技術科学大学
出願日:2016/8/31
出願番号:特願2016-169364

3.

発 明 者:後藤太一,井上光輝 発明の名称:スピン波回路ならびにアドレスエンコーダおよびアドレスデコーダ



出 願 人: 豊橋技術科学大学 出 願 日: 2016/3/8 出 願 番号: 特願 2016-044967

(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

- T. Goto, N. Kanazawa, K. Sekiguchi, A. B. Granovsky, C. A. Ross, H. Takagi, Y. Nakamura, and M. Inoue, "Spin wave interference using forward volume mode in yttrium iron garnet," in Euro-Asian Symposium Trends in Magnetism (EASTMAG), (Federal Agency of Research Organizations, Siberian Federal University, Krasnoyarsk, Russia, 2016), p. I1.9, [Invited].
- T. Goto, R. Morimoto, J. W. Pritchard, H. Takagi, Y. Nakamura, H. Uchida, M. Mina, T. Taira, and M. Inoue, "Magnetooptical Q-switch lasers generating kW order pulses based on domain motions in rare-earth iron garnet," in Institute of Electrical and Electronics Engineers (IEEE) International Magnetics Conference (Intermag), (Convention centre Dublin, Dublin, Ireland, 2017), pp. 1678 (HC-1603), [Invited].
- T. Goto, R. Morimoto, H. Takagi, Y. Nakamura, P. B. Lim, H. Uchida, and M. Inoue, "The Magnetooptical Q-switch laser generating 1 kW pulses," in Magnetics Society of Japan (MSJ) Special Meeting on Spin Electronics(Magnetics Society of Japan (MSJ), Nagoya Univ., Nagoya, Japan, 2017), [Invited].
- T. Goto, K. Sekiguchi, C. A. Ross, A. B. Granovsky, H. Takagi, Y. Nakamura, H. Uchida, and M. Inoue, "Logic gates using forward volume spin waves based on yttrium iron garnets," in Moscow International Symposium on Magnetism (MISM), (Moscow State University, Moscow State University, Moscow, Russia, 2017), pp. 3RP-E-4, [Invited].
- T. Goto, K. Sekiguchi, A. B. Granovsky, C. A. Ross, Y. Nakamura, H. Uchida, and M. Inoue, "Spin wave circuits using forward volume mode in yttrium iron garnet," in International Conference on Magnetism (ICM), (Institute of Electrical and Electronics Engineers (IEEE), Moscone Center, San Francisco, California, USA, 2018), pp. E4–01, [Invited].

●受賞

- 1. 後藤太一、一般社団法人 レーザー学会、論文発表奨励賞、(2016年5月31日)
- 2. 後藤太一、一般社団法人 電気学会、優秀論文発表賞、(2016年9月5日)
- 3. 後藤太一、公益社団法人 応用物理学会、講演奨励賞、(2017年3月14日)
- Taichi Goto、The Institute of Electrical and Electronic Engineers (IEEE) Nagoya Section、 IEEE Nagoya Section Young Researcher Award、A(2017 年 12 月 23 日)
- 5. 後藤太一、愛知県、第12回わかしゃち奨励賞(基礎研究部門)最優秀賞、(2018年1月 30日)
- 6. Taichi Goto、英国物理学会出版局、Outstanding Reviewer Awards 2017、(2018 年 2 月 24 日)



 7. 後藤太一、一般社団法人 電気学会、優秀論文発表賞(基礎・材料・共通部門表彰)、 (2018年9月4日)

●著作物

- 1. 後藤太一、井上光輝、「マグノニック結晶を用いた電流センサの開発」、Annual Report of The Murata、31、73-80、(2016).
- 後藤太一、「ライダー応用向け磁気光学効果を使った薄膜 Q スイッチレーザー」、科学技 術交流ニュース、24、1、14、(2017).
- 3. 後藤太一、「2.2 高密度磁気ホログラム記録」、電気学会技術報告 フォトンとマグノンを 活用した最先端研究、1440、4-10、(2018).

●プレスリリース

- JST、豊橋技術科学大学、慶應義塾大学の共同プレスリリース、「スピン波を使った最高 性能の位相干渉器を開発~金の膜を用いてエネルギー損失100分の1を実現~」、 (2016 年 7 月 22 日)
- 2. JST、豊橋技術科学大学、慶應義塾大学の共同プレスリリース、「磁気の性質を使って論 理演算を実現~電流を流さない新しいコンピューターが期待~」、(2017 年 8 月 11 日)



研究報告書

「超低消費電力動作に向けたゲート絶縁膜の負性容量による急峻スロープトランジ スタ技術の開発とナノワイヤ構造への応用」

研究タイプ:通常型 研究期間: 2015 年 10 月~2019 年 3 月 研究者: 小林 正治

1. 研究のねらい(1000 字未満)

IoT 時代においてはクラウドにおけるハイエンドサーバからエッジにおけるセンサノードデバ イスにいたるまで増々多くのコンピューティングデバイスが必要となる。特にエッジデバイスの 数は今後数兆個になるとも試算されており必然的に低消費電力であることが求められる。究 極的に環境発電で動作させるのであればエッジデバイスの消費電力は 1μW 以下であることが 求められ、今後 10 倍~100 倍の低消費電力化が必要となる。デバイス研究者として将来の IoT 応用に向けた超低消費電力デバイスを新しい機能性ナノ材料で開拓することをねらう。

エッジデバイスは基本的に間欠動作でありほとんどの時間待機状態である。待機時の消費 電力はトランジスタおよびメモリにおけるリーク電力が支配的となる。このリーク電力を抑える ための方針として大きく2つ考えられる。一つ目は、オン特性を保ちながらオフ電流を削減でき る急峻サブスレショルド係数トランジスタである。特に強誘電体をゲート絶縁膜とする負性容量 トランジスタは高いオン電流と CMOS プロセスとの高い整合性から注目されている。二つ目は、 待機時には電源を切り復帰時には素早くデータを戻して通常動作にするノーマリーオフコンピ ューティングを不揮発性メモリで実現することである。

最近、強誘電性がHfO2で発見された。この新しい機能性材料はCMOSでよく使われるTiN、 TaN や W といった配線材料と組み合わせて、わずか数 nm でも強誘電性を示す革新的なナノ 薄膜材料である。強誘電体 HfO2 を用いることで、負性容量トランジスタの実現が極めて現実 的なものとなるとともに、高速・低消費電力という特徴をもっている強誘電体メモリの復権の兆 しが見える。強誘電体 HfO2 によって超低消費電力トランジスタおよびメモリは新展開をむかえ ている。

本研究では、強誘電体 HfO₂ を用いた負性容量トランジスタのデバイス物理を解明し、デバ イス設計や回路・システム設計のためのデバイスモデリングを行う。さらに強誘電体 HfO₂ 薄膜 プロセスを開発しトランジスタを試作、デバイス物理の実験的検証を行う。強誘電体メモリに関 しては IoT デバイスの電源管理技術として有望な強誘電体 HfO₂ 不揮発性 SRAM の設計と試 作・実証を行う。さらにこれまでの強誘電体メモリにはない大容量を実現しうる強誘電体トンネ ル接合メモリのデバイス物理を解明し、高性能動作の実証を行う。



2. 研究成果

(1)概要

本研究のテーマは大きく分けて2つあり、CMOS プロセスと整合性の高い新機能性材料で ある強誘電体 HfO2 を用いて、①強誘電体ナノ薄膜をゲート絶縁膜とする負性容量トランジス タ(NCFET)のデバイス物理の解明とデバイス動作実証、②電源管理または低消費電力・大容 量ストレージメモリに向けた強誘電体不揮発性メモリの提案と実証、である。

①負性容量トランジスタに関する研究成果

- 強誘電体 HfO2 薄膜形成技術を確立した。さきがけ研究費によって所有する ALD 装置を 大幅に改良することができ、また新たに導入したアニール装置によって、多様でかつ安定 な成膜プロセスが可能となった。
- 先端 CMOS 技術であるフィン FET やナノワイヤ FET を用いた NCFET のモデリング・シミ ュレーションを行い、微細化でサイズ制約の厳しい条件でも急峻スロープを有する NCFET として設計できることを明らかにした。
- ・ NCFET の動作速度は強誘電体分極反転のダイナミクスによって律速されうることを提唱、NCFET のデバイス高速化のための材料開発の指針を提案した。
- ・ これまで別々に研究が進められてきた NCFET とトンネル FET を融合させることで超急峻 スロープトランジスタが実現可能であることを提案・検証した。
- ・ 強誘電体 HfO₂ ゲート絶縁膜トランジスタの試作プロセスを開発、電流オンオフ比が通常の MOS トランジスタに比べて 10 倍以上向上した。
- これまでのNCFETの実験結果報告を総合して、NCFETにおける急峻スロープ発現のメカ ニズムとして分極反転のダイナミクスとサブスレショルド領域における空乏層の形成が重 要であることを提唱、実験によって裏付けた。

②強誘電体不揮発性メモリに関する研究成果

- 従来の CMOS SRAM 上に強誘電体 HfO₂ キャパシタを集積する不揮発性 SRAMを提案した。実際に設計・試作を行い、電源オンオフ前後のデータの待機・復帰動作を実証した。
- 強誘電体 HfO2を用いた強誘電体トンネル接合(FTJ)メモリの設計指針を明らかにし、設計 を実現するための FTJ 試作プロセスを開発、電流オンオフ比 30 以上でかつ多値動作す る FTJ メモリセルの動作実証をおこなった。さらに自己整合ポテンシャルと非平衡グリーン関数法による電流計算のフレームワークを構築、20nm 径まで良好な特性を有したまま 微細化可能であることを明らかにした。

(2)詳細

本研究のテーマは大きく分けて2つあり、CMOS プロセスと整合性の高い新機能性材料で ある強誘電体 HfO₂を用いて、①強誘電体ナノ薄膜をゲート絶縁膜とする負性容量トランジス タ(NCFET)のデバイス物理の解明とデバイス動作実証、②電源管理または低消費電力・大容 量ストレージメモリに向けた強誘電体不揮発性メモリの提案と実証、である。さきがけ応募お よび研究開始時点では①のみを研究テーマとしており、かつ最終的には NCFET をナノワイヤ 型で動作実証することをねらっていた。しかし研究を進めるにつれて、NCFET の動作原理は 完全に解明されていないことがわかり、サイトビジットで議論した結果、NCFET のデバイス物 理の解明をねらう研究へ方針を変更した。また強誘電体 HfO₂のメモリ応用の可能性が高く期



待も大きいことから、NCFET の研究と並行して②の新しい強誘電体不揮発性メモリの研究も テーマとして研究を進める方針となった。

研究テーマ A「強誘電体ナノ薄膜をゲート絶縁膜とする負性容量トランジスタ(NCFET)のデバ イス物理の解明とデバイス動作実証」

(1) NCFET のデバイスシミュレータの構築と設計手法の確立

目標:ヒステリシスなし, >1MHz 動作, Ion/Ioff の 10 倍向上に向けた設計

本研究では先端 CMOS 技術であるフィン FET およびナノワイヤ FET で NCFET において、微細化 でサイズ制約の厳しい条件でも急峻スロープを有 する NCFET として設計できることを明らかにした (論文 1、3、発表 2、4)。具体的にはゲート長が 10nm 以下でナノワイヤピッチが 15nm 以下でも設 計スペースが存在することを明らかにした(図1)。



次にモデルを動特性がシミュレーションできるよ

図1 ナノワイヤ NCFET の構造と電流オンオ フ比のゲート絶縁膜に対する等高線図。ゲート長 制約を点線で示している。

う拡張した。その結果動作速度は強誘電体分極反転のダイナミクスによって律速されうること がわかり、NCFET のデバイス高速化のための材料開発の指針を提案した(論文 3、発表 1)。 以上により、静特性と動特性において NCFET のモデリングを行うことで目標を達成できた。 想定外の成果として、これまで別々に研究が進められた NCFET とトンネル FET を融合させ ることで超急峻スロープトランジスタが実現可能であることを提案・検証した(論文 2、発表 2)。

(2) 強誘電性 HfO2 薄膜およびプレーナ型 NCFET プロセスの開発

目標 : 10nm 以下のナノ薄膜強誘電性 HfO2の開発, Ion/Ioffの 10 倍向上実証

本研究ではまず、強誘電体 HfO₂ 薄膜形成 技術を確立することに専念した。さきがけ研究 費によって所有する ALD 装置を大幅に改良す ることができ、また新たに導入したアニール装 置によって、多様でかつ安定な成膜プロセス が可能となった(論文 3)。



図 2 左: 試作した NCFET と MOSFET の I_d - V_g 特性比較。右: 代表的なデータとのベンチマーク結果。

続いて強誘電体 HfO₂ ゲート絶縁膜トランジスタの試作プロセスを開発した。本研究では強 誘電体部と FET 部を独立に設計し作りこめる金属-強誘電体-金属-ゲート絶縁膜-半導体 (MFMIS)型 FET をゲートラストプロセスで試作した。評価の結果、サブスレショルド係数が 20mV/dec で電流オンオフ比が通常の MOS トランジスタに比べて 10 倍以上向上した(図2)。 この急峻スロープ発現のメカニズムとしては強誘電体の分極反転のダイナミクスと電荷注入 によって FET チャネルの表面ポテンシャルが増幅されたことによる(発表 5)。

以上により、高品質な強誘電体 HfO₂ プロセスを開発、ゲートラストプロセスで作製した NCFET において I_{on}/I_{off}の 10 倍向上を実現、そのメカニズムを明らかにし、目標を達成した。 (3) 深いサブスレショルド領域での急峻スロープ化のメカニズムの解明

目標:実測を再現するモデルの構築および設計指針の確立

本研究での実験結果とこれまで報告されてきた NCFET の実験結果を総合した結果、 NCFET の急峻スロープの発現の起源としては従来理論による静的な負性容量の効果のほか に、強誘電体の自発分極反転のダイナミクスを伴う動的・過渡的な負性容量の効果が大きな



影響を及ぼす可能性があり得る(図3)。具体 的には分極反転が起こることで分極反転電流 を自由電荷電流が十分速やかにスクリーニン グできない場合、脱分極場が生じ実効的に表 面ポテンシャルが増幅するというモデルであ る。この時重要であるのはサブスレショルド領 域での空乏層領域の形成であることを提唱し た(論文 4、5、発表 3、4)。従来の静的な理論



図3 左:動的なモデルで NCFET の急峻スロープ 発現を説明する図。右:動的なモデルによるシミュ レーション結果。

では空乏層容量が小さすぎて容量マッチングがとれず理論と実験が乖離していたが、動的な 理論では空乏層容量が小さいことで脱分極場を誘起し急峻スロープが深いサブスレショルド 領域で起こりうる。この動的なモデルを検証すべく、強誘電体に加えて反強誘電体をゲート絶 縁膜とするトランジスタを試作、電荷注入の効果を考慮しながら自発分極の反転を高精度な ゲート電流のその場測定することによって、自発分極反転と空乏層容量の形成によってサブ スレショルド係数が急峻になることを実験的に明らかにした(発表 5)。

以上により、これまでの実測を再現する動的な NCFET のデバイスモデルを提案、さらに基礎的な実験によってモデルの検証を行い、目標を達成した。

研究テーマ B「電源管理または低消費電力・大容量ストレージメモリに向けた強誘電体不揮 発性メモリの提案と実証」

(1) IoT デバイスの電源管理技術としての強誘電体 HfO2 不揮発性 SRAM の開発

不揮発性 SRAM 自体は 20 年ほど前に研究 開発が行われていたが、当時と比べて IoT と いうアプリケーションと強誘電体 HfO2 の発見 により、不揮発性 SRAM が見直される兆しが ある。本研究では強誘電体 HfO2 キャパシタを CMOS SRAM 上に集積した不揮発性 SRAMを 提案。実際に設計と試作を行い、最も重要な



図4 左: 強誘電体不揮発性 SRAM の回路図。右: 強誘電体 HfO₂キャパシタを実際に集積して試作した 不揮発性 SRAM の顕微鏡写真。

電源オンオフ前後のデータの待機・復帰動作の動作実証に成功した(論文 6、7、発表 6、8)。 (2) 強誘電体 HfO2トンネル接合(FTJ)メモリの設計指針の確立とデバイス動作実証

FTJ メモリは PZT などの従来の強誘電体を 用いた実験は進んでいるが、強誘電体 HfO2を 用いた研究は少なく、デバイス設計指針や微 細化可能性は十分に明らかになっていない。 本研究ではまず、高い抵抗オンオフ比を実現 するためのデバイスの設計指針を明らかに し、その設計を実現するためのプロセス技術を 開発、実際に4nmの強誘電体 HfO2でこれまで



図5 左:試作した強誘電体 HfO₂ FTJ メモリの読出 し電流。右:代表的なデータとのベンチマーク結果。

の報告よりも低電圧書き込み可能で抵抗オンオフ比 30 以上、多値動作する FTJ の実証に成 功した(論文 8、9、発表 7、9)。さらに、自己整合ポテンシャルと非平衡グリーン関数法による 電流計算フレームワークを構築、読み出し電流・抵抗オンオフ比・保持特性のトレードオフを 考慮しながら 20nm 径まで強誘電体 HfO₂ FTJ メモリが微細化可能であることを明らかにした



(発表 10)。

3. 今後の展開

今後の展開を下の線表にまとめた。



NCFET が本当に CMOS 技術のパフォーマンスブースターとなりうるかを見極める必要がある。 そのためにも NCFET の新たなモデルについて,実験データに基づくさらなる検証が必要である。 具体例としては、MFIS 型+Si チャネルで界面准位を低減することで電荷注入と分極反転の影響 を切り分ける実験を行う.酸化物チャネル材料,2次元材料での検討も進め、宮田 CREST では 微細化・Moore 則以降の半導体デバイスによる価値創出を目指した研究も行っていく。

研究室の戦略とリソースの関係上 FeFET メモリへの取り組みが遅れてしまった. FeFET の需要は混載メモリ応用で高い. フロントエンド集積化プロセスと高温信頼性の観点で研究を継続していく. 日本の半導体産業に向けて出口が見いだせるようヒヤリングを続けながら進めていく.

FTJ は大容量化が期待できるが、本研究でのデバイス構造は高い読出し電流とオンオフ比を 実現できる反面、セレクタが必要になる.また信頼性の観点では書き込み耐性が悪い.今回構 築したフレームワークを用いて改めてセレクタレスの構造がとれないか検討する.また信頼性劣 化のメカニズム解明と改善手法を検討する.

強誘電体 HfO₂メモリの新しいコンピューティング技術への応用に向けて、さきがけ2期生の河 野先生とシリコン神経ネットワークに関する共同研究を始める。

4. 自己評価

・ 研究目的の達成状況

2. の研究詳細で説明したように、当初の研究目的から変更を行った。この判断は正しかった と考える。現在でも NCFET のデバイス物理に関する議論は続いており、ナノワイヤへ応用する 前にしっかりとデバイス物理を解明することが重要である。変更後の研究目的に対する目標は 概ね達成できたといえる。それぞれの研究項目で論文・発表を行い、十分な対外発表ができた。 負性容量トランジスタに関しては特に電子デバイスで最も権威のある<u>IEDMで2件発表</u>を行うこと ができ研究成果が大いに評価されたものと思われる。



想定外の研究成果もあげることができた。特に NCFET と TFET の融合技術に関する発表論文 は <u>IEEE の Best paper award を受賞</u>した。メモリに関する研究成果も当初の目的からすると想定 外ではあったが、強誘電体 HfO₂メモリの重要性をいち早く認識して研究に取り組んだことは正し かったと考える。強誘電体 HfO₂メモリに関しても <u>VLSI symposium および IEDM でそれぞれ 1 件</u> <u>ずつ発表</u>を行うことができた。研究成果が評価され、<u>2018 年より IEDM の Memory Technology の</u> <u>sub-committee メンバーとして活動</u>する機会に恵まれた。

研究の進め方(実施体制・研究費執行状況)

さきがけには小林が企業から大学に移ってまもなく参加したこともあり、それ以前の私の研究 開発テーマとはほとんど連続性がなく、特に実験に関しては一から立ち上げたといえる。

本さきがけ研究で作成してきた線表を下図に示す。青が計画、黒が実施、緑が進捗である。



本研究期間中にデバイス試作の環境を整備することに尽力した。東大生研のクリーンルーム ではシリコン系と非シリコン系で別れているが、本研究では 2 つを同時に利用することが必要で ある。クロスコンタミネーションを防ぎかつ柔軟に作業ができるようプロトコルを作成した。

本研究は小林と研究室の学生を中心にした研究体制をとってきた。東大生研では学生は大学 院生からしか入学できないため、集積デバイスの研究方法については基本的に一から指導する 必要がある。幸い大変優秀でやる気のある学生が研究室に入ってきてくれたおかげで、小林が モデリングの基礎やデバイス試作方法を直接指導することで、彼らが独立して研究できるように なった。反省点としては、少ない人数に対して本研究のテーマが広いため、各学生へ複数のテー マを割り当てることになってしまい負担が大きかったことが挙げられる。

研究費は備品、消耗品、旅費、その他必要経費に関して概ね過不足なく実施できたといえる。 ただし想定外にクリーンルーム自体の整備に時間がかかってしまい、装置によっては購入を翌 年に先送りすることになってしまった。さきがけで研究費を柔軟に運用さえていただいたことを大 変感謝している。増額申請を受理していただいたおかげでALDトラップを導入することができ、現



在 ALD 装置を安定かつ安全に運用できている。SciFos 活動を現在行っており旅費分を増額して いただき大変助かった。

研究成果の科学技術および社会経済への波及効果(今後の見込み)

CMOS トランジスタの集積度は着実に上がっているものの、性能向上が頭打ちになっているの は周知の事実である。今後も微細化の恩恵を受けるためにはオン電流の向上とオフ電流の低減 を実現する急峻サブスレショルド係数トランジスタの実現が望まれている。実際に IRDS ロードマ ップの 2017 年版では 2030 年までにシステムの要請としてサブスレショルド係数が 60mV/dec を 切る必要があることが示されている。NCFET は現時点で最も有望な急峻スロープトランジスタ技 術であり、さきがけ研究申請当初に比べて飛躍的に注目度が上がった。NCFET は、輸送特性は 拡散・ドリフト電流であるがゲートによる表面ポテンシャルの変調効果が従来と大きく異なり、デ バイス物理および設計の指針が大きく異なる。さきがけでの研究成果である、強誘電体の材料 特性を考慮したデバイス物理とモデルそしてデバイス設計指針は、NCFET の CMOS パフォーマ ンスブースターとしての可能性を評価する上で極めて重要である。今後 IoT デバイスは数兆個を 超える普及が試算されており低消費電力 CMOS トランジスタとして NCFET が実際に導入された 場合の社会経済への波及効果は極めて大きい。

メモリ技術に関しても更なる大容量化・低消費電力化を目指した研究開発がメモリメーカを中心 に進められている。メモリギャップを埋めるストレージクラスメモリは特にデータスループットが要 求されるハイエンドサーバで重要であり、低消費電力メモリはエッジデバイスにおいても重要とな る。強誘電体 HfO2メモリは CMOS プロセスと整合性が高く、2 端子・3 端子、容量型・抵抗型と、 選択肢が広く、今後爆発的に普及する可能性が高い。さきがけの研究成果である、強誘電体 HfO2 不揮発性メモリの提案・設計・プロトタイプ実証は特に電源管理技術としての有用性を示す ものであり、強誘電体 HfO2 FTJ メモリの設計・実証および微細化に向けた指針は強誘電体メモ リの大容量化の可能性を示すものであり、両者とも今後の強誘電体メモリの研究開発を促進す る重要な成果といえる。本研究成果をもとにインメモリコンピューティングという形で新しいコンピ ューティング技術が発展し、アクセレレーターのイノベーションにつながる可能性がある。

レイヤー間の研究者の連携

- レイヤー間勉強会に積極的に参加した。実際に 2016 年 11 月 1 日と 2017 年の 12 月
 15 日の 2 回講演を行い有意義な議論を行うことができた。
- > さきがけのメンバーに依頼され学会・研究会で講演した。2018年1月20日には2期生の長田さんの依頼で電子デバイス界面テクノロジー研究会で講演した。また2018年11月21日には3期生の服部先生の依頼で日本表面学会で講演した。これまで参加したことのない学会で講演・議論することで新たな知見を得ることができた。
- 1 期生の宮田先生・岡田さんとともに CREST「二次元機能性原子・分子薄膜の創製と 利用に資する基盤技術の創出」領域への応募に際して企画立案に参画。無事に「原子 層へテロ構造の完全制御成長と超低消費電力・3次元集積デバイスの創出」テーマと して採択された。さきがけ終了後にこちらの CREST で、2 次元材料と強誘電体の組み 合わせで新しいデバイス技術の創出に向けて研究を行う。
- 3 期生藤枝先生とともに科研費で「神経活動電位・伝達物質を多重同時計測可能なナ ノ薄膜状ワイヤレスプローブの創製」というテーマで応募し、無事採択された。現在藤



枝先生の生体適合ナノシートを基礎として脳神経活動の計測とその無線化を目指す研 究を行っている。将来的には集積化技術をいかに生体計測・医療技術に生かせるかを 化学・医学分野と議論していく。

- 2 期生河野先生とともに科研費で「次世代脳互換AIのためのシリコン神経ネットワーク プラットフォーム」というテーマで応募し、結果を待っているところである。河野先生の脳 神経模倣シリコン神経ネットワーク技術と小林のメモリ技術との融合により、より柔軟に 数理モデルの実装でき高エネルギー効率なハードウェアプラットフォームの創生に向 けた研究を行う。
- 5. 主な研究成果リスト

(1)論文(原著論文)発表

研究テーマA「強誘電体ナノ薄膜をゲート絶縁膜とする負性容量トランジスタ(NCFET)のデバイス 物理の解明とデバイス動作実証」

- M. Kobayashi and T. Hiramoto, "On device design for steep-slope negative-capacitance field-effect-transistor operating at sub-0.2V supply voltage with ferroelectric HfO₂ thin film", AIP Advances, 2016, 6(2), 025113.
- M. Kobayashi, K. Jang, N. Ueyama, and T. Hiramoto, "Negative Capacitance for Boosting Tunnel FET Performance", IEEE Transactions on Nanotechnology, 2017, 16(2), pp. 253-258.
- 3. (Invited) M. Kobayashi, "A perspective on steep-subthreshold-slope negative-capacitance field-effect transistor", Applied Physics Express, 2018, 11, 110101.

研究テーマ B「電源管理または低消費電力・大容量ストレージメモリに向けた強誘電体不揮発性 メモリの提案と実証」

- M. Kobayashi, N. Ueyama, K. Jang, and T. Hiramoto, "Experimental Demonstration of a Nonvolatile SRAM With Ferroelectric HfO₂ Capacitor for Normally Off Application", IEEE Journal of Electron Device Society, 2018, 6(1), pp. 280–285.
- M. Kobayashi, Y. Tagawa, F. Mo, T. Saraya and T. Hiramoto, "Ferroelectric HfO₂ Tunnel Junction Memory with High TER and Multi-level Operation Featuring Metal Replacement Process", IEEE Journal of Electron Device Society, published online on Dec.11 2018.

(2)特許出願

研究期間累積件数:0件(公開前の出願件名については件数のみ記載)

(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

研究テーマA「強誘電体ナノ薄膜をゲート絶縁膜とする負性容量トランジスタ(NCFET)のデバイス 物理の解明とデバイス動作実証」



- M. Kobayashi, N. Ueyama, K. Jang, and T. Hiramoto, "Experimental Study on Polarization-Limited Operation Speed of Negative Capacitance FET with Ferroelectric HfO₂", IEEE International Electron Device Meeting (IEDM) 2016, 2016, pp. 314–317.
- C. Jin, K. Jang, T. Saraya, T. Hiramoto, and M. Kobayashi, "Experimental Study on the Role of Polarization Switching in Subthreshold Characteristics of HfO₂-based Ferroelectric and Anti-ferroelectric FET", IEEE International Electron Device Meeting 2018, pp. 723–726 (2018).

研究テーマB「電源管理または低消費電力・大容量ストレージメモリに向けた強誘電体不揮発性 メモリの提案と実証」

- M. Kobayashi, N. Ueyama, and T. Hiramoto, "A Nonvolatile SRAM Integrated with Ferroelectric HfO₂ Capacitor for Normally-Off and Ultralow Power IoT Application", IEEE VLSI Symposium 2017, 2017, pp. 156–157.
- M. Kobayashi, Y. Tagawa, M. Fei, T. Saraya, T. Hiramoto, "Device and Process Design for HfO₂-Based Ferroelectric Tunnel Junction Memory with Large Tunneling Electroresistance Effect and Multi-level Cell", IEEE Silicon Nano Workshop 2018, pp. 29-30.
- F. Mo, Y. Tagawa, T. Saraya, T. Hiramoto, and M. Kobayashi, "Scalability Study on Ferroelectric-HfO₂ Tunnel Junction Memory Based on Non-equilibrium Green Function Method with Self-consistent Potential", IEEE International Electron Device Meeting 2018, pp. 372-375 (2018).

受賞

1. M. Kobayashi, N. Ueyama, K. Jang, and T. Hiramoto, IEEE Nanotechnology Council Best paper award, "Negative Capacitance for Booting Tunnel FET Performance"

プレスリリース

1. 強誘電体二酸化ハフニウムを用いたトランジスターとメモリーの動作メカニズムを解明 ~微細化と超低消費電力化へ前進~ (2018/12/3)



研究報告書

「光干渉型分子間カセンサによる高感度マルチバイオマーカー検出システム」 研究タイプ:通常型 研究期間: 2015年10月~2019年3月 研究者: 髙橋 一浩

1. 研究のねらい

本研究では CMOS イメージセンサの各画素上に集積化した MEMS ファブリペロー干渉計を 用いて、タンパク質をはじめとする生体分子同士にはたらく分子間力をとらえることにより、標 識を用いずに分子を検出することを目的としている。センサ機能面への分子の吸着によるス トレス変化を検出する本方式では、材料・トランスデューサ・信号処理回路の 3 つのアプロー チによって、従来方式を 2 桁以上上回る超高感度分子間力検出、および超ハイスループット分子スク リーニングが可能である見積もりを得た。

本提案では、センサの超高感度化により腫瘍マーカー基準値である1 ng/mL の濃度を1 分以内の検出、および1000~1 万ピクセルの並列処理を目的に以下の項目に取り組む。

- (1) 低ヤング率高分子膜の薄膜化による表面ストレス応答の 10 倍向上
- (2) 光干渉トランスデューサの信号伝達特性の 10 倍向上
- (3) CMOS イメージセンサ技術を用いた低ノイズ、低消費電力信号処理、1000~10 万ピクセ ルの並列処理によるハイスループットマーカー検出の実現
- 以上の課題遂行による成果物として、検出時間の 100 分の 1 への時間短縮と、マルチマーカ 一検出により、桁違いの情報処理エネルギー効率の向上を実現する。

2. 研究成果

(1)概要

光干渉型表面応カセンサにおいて可動膜として用いる材料は、ヤング率が高く変形量の小 さい半導体に限定されず、ソフトマテリアルを用いて分子吸着に対する変形量を増大させるこ とが可能である。また、表面応カセンサは膜厚の2 乗に反比例して検出感度が向上するた め、可動膜の薄膜化による感度向上も期待できる。そこで可動膜材料として、パリレンC、ポリ スチレンーポリブタジエンーポリスチレントリブロック共重合体(SBS)、グラフェンの3 種類の 膜をセンシング材料として作製を行い、各材料によって形成したサスペンデット膜により MEMS 光干渉計の形成に成功した。特にサスペンデットグラフェンを利用した表面応カセンサ では、解析的な応力検出下限が3桁向上できることが示唆された。

光の干渉を利用する提案技術は、干渉スペクトルを鋭くするほど膜変位に対する透過率の 変化は急峻になるため、信号変換効率は波長選択性の設計により向上することができる。可 動膜の上部および下部基板上に反射率を向上する膜厚 50 nm の金ハーフミラーを一体化し、 6.6 倍の信号変換効率を有するセンサの作製に成功した。

MEMS 光センサを CMOS イメージセンサの各画素上に形成することによって、多項目の分子を同時に、かつ短時間にスクリーニング処理することができる。CMOS 検出回路一体化型



のセンサチップを作製し、光反射スペクトル変化とセンサ部で受光した光信号を信号処理回 路で電流-電圧変化し、電圧-時間変化測定を行った。チップをエタノール雰囲気中に暴露し たときの反射光強度変化と、出力電圧の時間変化が一致していることから、膜の変形量を電 圧で出力できていることが示せた。さらに、32×32 イメージセンサを作製し、各画素に入射した 光の強度変化を画像出力として取得可能な測定システムを構築した。

バイオマーカー分子の検出のため、ダイヤフラム直径 300 µm の 150 nm PMMA/100 nm パリレン C 膜上でヒト血清アルブミン(HSA)をモデル分子として抗原抗体反応評価を行った。 HSA の終濃度は 10⁻⁹~10⁻¹⁵ g/ml として滴下 25 分後の最大波長シフト量を比較したところ、 濃度に依存して波長シフトが変化する様子が確認され、1 fg/ml の抗原に対しても生理食塩水 との有意差が示された。ここで応答が確認できた検出下限濃度は、蛍光標識法で最も感度の 良い digital ELISA に近い数値(検出限界 60 ag/mL)であり、原理的に多項目の検出が不可能 な digital ELISA 技術に対して、単素子でその検出下限に迫る値を取得できた。

(2)詳細

研究テーマ A「サスペンデット膜形成技術の確立」

シリコン基板上に CVD 法により成長した 100 nm のパリレンCを基板から剥離し、キャビティ を形成した被転写基板に転写を行うことにより、パリレン C の可動膜の形成を行った。このと き、被転写基板側には同じくCVDで成膜を行ったパリレンCをバインダとして使用し、パリレン C同士を接着させ、160 度以上で加熱を行い、強固な接着力が得られることを確認した(図1 (a))。なお、パリレンC膜上には 150 nm 程度のポリメタクリル酸メチル (PMMA)を成膜してお り、UV/O3によって表面を酸化することによりカルボキシル基を形成し、このカルボキシル基を 利用して抗体分子の固定化を行う。

次に、エラストマー材料である SBS をナノ薄膜化したシートを使って、光干渉センサの作製 を行った[JJAP 57, 010302 (2018)]。 膜厚 600 nm の SBS ナノシートを用いて作製した干渉計 の反射スペクトルから、エアギャップ長のフィッティングを行ったところ、2.42 µm のエアギャップ でよい一致が見られた。エラストマーを使用することにより従来のパリレンCを用いたセンサと

比較し応力感度が7倍 程度向上する結果が得 られた。

表面応カセンサは膜 厚の2乗に反比例して 検出感度が向上するた め、グラフェンの自立構 造を作製し、可動膜材 料とすることで単位面 積当たりのストレス感



図 1 (a)パリレン C, (b)SBS, (c)グラフェンを用いた光干渉セ ンサ

度は大幅な向上が期待できる。銅箔上に CVD 成長したグラフェンを、PMMAを支持膜としてピックアップし、シリコン基板に転写を行うことによって、キャビティが封止された自立ラフェン構造を作製した。図1(c)に示すように自立グラフェンが形成された箇所に光干渉が発生してお



り、青い干渉色が確認できる。光干渉の理論式を用いて、基板と自立グラフェンとのギャップ 長をパラメータとして数値計算を行ったところ、設計値に近い 375 nm の時に測定したスペクト ルとの一致が見られ、ギャップ長を光干渉測定によって評価できることが分かった。 研究テーマ B「光干渉トランスデューサ技術の確立」

光の干渉を利用して吸着分子の反発力による膜の変形を高感度に検出する MEMS 光干渉 型センサは、干渉スペクトルを鋭くするほど、膜変位に対する透過率の変化は急峻になるため、信号変換効率は波長選択性の設計により向上することができる。干渉計の波長選択性

は、エアギャップを挟んで対向する材料表面の反 射率に依存するため、可動膜のパリレンCの上部 および下部基板上に膜厚 50 nm の金ハーフミラー を一体化した。分光測定を行った結果、近赤外波 長領域においてミラーの無い光干渉計と製作した 光干渉計の反射スペクトル勾配を比較すると、6.6 倍急峻になっている結果が得られたことから、高 い信号変換効率を有する MEMS 光干渉計の作製 に成功した(図 2)[JMM]。



研究テーマ C「イメージセンサ回路による並列処 理技術の確立」

膜変形時の光強度変化の検出には、微細化・高集積化された CMOS イメージセンサの信 号処理技術を用いることができる。吸着分子間の反発力を信号変換する MEMS 光干渉計を CMOS イメージセンサの各画素上に形成することによって、多項目のターゲット分子を同時 に、かつ短時間にスクリーニング処理することが期待できる。CMOS 検出回路一体化型のセ ンサチップを作製し、光反射スペクトル変化とセンサ部で受光した光信号を信号処理回路で 電流-電圧変化し、電圧-時間変化測定を行った(図 3(a))。波長 530 nm の単波長光源を使用 し、チップをエタノール雰囲気中に暴露したときの反射光強度変化と、出力電圧の時間変化 が一致していることから、膜の変形応答を電圧変換できていることが示せた[Sensors 18, 138 (2018)]。さらに、32×32 イメージセンサを作製し、各画素に入射した光の強度変化を画像出力 として取得可能な測定システムを構築した(図 3(b))。



図 3 (a) CMOS-MEMS センサ (b) 32x32 イメ ージセンサの素子



バイオマーカー分子の検出のため、ダイヤフラム 直径 300 µm の 150 nm PMMA/100 nm パリレン C 膜上でヒト血清アルブミン(HSA)をモデル分子として 抗原抗体反応評価を行った。抗原溶液を加える際に は、ブロッキング処理まで行ったセンサチップを生理 食塩水(PBS)中において膜の動きが発生しないよう に安定化を行った後に、HSA 抗原を溶かした PBS を 注入した。終濃度が 1 pg/ml になるように HSA 抗原 溶液を滴下した場合の反射特性では、干渉ピークが 25 分経過後に約 35 nm レッドシフトする様子が得ら れた。HSA 抗原濃度の依存性を評価した結果を図 4 に示す。HSA の終濃度は 10⁻⁹~10⁻¹⁵ g/ml として 25 分後の最大波長シフトをプロットしたところ、濃度に依 存して波長シフトが変化する様子が確認され、1 fg/mlの抗原に対してもPBSとの有意差が示された。

自立グラフェン上での分子修飾は、π スタッキング によってグラフェン表面に結合する 1-ピレンブタン酸 スクシンイミジルエステル(PBSE)を介して抗体修飾を 行った。BSA 抗体を修飾したサスペンデットグラフェ ンに対し、濃度 100 ng/mL の BSA 抗原溶液と 10 µg/mL の HSA 溶液にそれぞれチップを入れて分子 吸着による表面応力応答を測定した。直径 6 μm の 自立グラフェンにおける反射測定を行い、HSA 溶液 中で 19 nm, BSA 抗原液中で 43 nm のピークシフトが 得られた。これは 100 倍の濃度の HSA よりも、BSA 抗原が抗原抗体反応で多く吸着し、自立グラフェン が大きく上方向に膨らんだ結果であると考えられる。



図6 他方式との比較

これらの結果から自立グラフェンにおける選択的分子検出を実験的に示せた。

ここで応答が確認できた検出下限濃度は、蛍光標識法で最も感度の良い digital ELISA に 近い数値(検出限界 60 ag/mL)であり、原理的に多項目の検出が不可能な digital ELISA 技術 に対して、単素子でその検出下限に迫る値を取得できた。

3. 今後の展開

さきがけ研究期間では、抗原分子濃度の検出下限 1 fg/mL が得られ、この数値は非標 識バイオセンサとしてはこれまでに実現されていない値であるが、Digital ELISA と比較すると 一桁程度の差がある。光干渉センサの可動膜として検討した 3 種類の可動膜材料中、抗原 抗体反応を最も安定的に評価することができた PMMA/パリレン膜は、材料の感度的には最 も劣るため、SBS やグラフェン膜上で適切な界面構築を行うことにより単素子で Digital ELISA の検出限界を上回る性能が期待できる。また、提案する表面応力センサは分子の吸着によ るストレス変化を検出する原理を用いているため、応答の原理的には、夾雑物の影響が少な


い検出原理である。このため、血液サンプルの測定などを行い、夾雑物による影響を評価す ることにより、検査における前処理を経ずとも使用可能な簡易測定チップ実現に向けた評価 を進める。さらに、ユーザーのもとヘセンサチップを供給するためには検出回路との一体化が 必要である。そのためファウンダリ試作による検出回路上へ MEMS ポストプロセスを行ってバ イオセンシング動作を実証し、ディスポーザブル CMOS-MEMS チップの量産化によって、抗原 抗体反応によるセンサ応答の並列処理を行うことができ、包括的なデータ取得が期待でき る。

4. 自己評価

さきがけの課題提案段階で、目標としたマーカー分子の検出下限 1 ng/mL に対して、得ら れた数値はその 100 万分の1の1 fg/mL であり、当初の目標を大幅に上回る性能を実現でき た。また、CMOS イメージセンサ技術との融合により、32x32 アレイセンサの画像出力による 解析システムの構築を実現し、マーカーのマルチ検出に向けたプラットフォームを確立できた。 ー方で、分子の選択性や素子毎の抗体塗り分け技術は改善の余地があり、可動膜(特にエ ラストマー、グラフェン)上の生体分子界面構築技術の充実が求められる。

- 5. 主な研究成果リスト
 - (1)論文(原著論文)発表
 - H. Kumagai, N. Sato, S. Takeoka, K. Sawada, T. Fujie, and <u>K. Takahashi</u>, "Optomechanical characterization of freestanding stretchable nanosheet based on polystyrene-polybutadiene- polystyrene copolymer," *Applied Physics Express*, 2017, vol. 10, no. 1, 011601.
 - S. Maruyama, T. Hizawa, <u>K. Takahashi</u>, and K. Sawada, "Optical-interferometry-based CMOS-MEMS sensor transduced by stress-induced nanomechanical deflection," *Sensors*, 2018, vol. 18, 138.
 - <u>K. Takahashi</u>, H. Ishida, and K. Sawada, "Vacuum-sealed microcavity formed from suspended graphene by using a low-pressure dry transfer technique," *Applied Physics Letters*, **2018**, vol. 112, 041901.
 - T. Takahashi, T. Hizawa, N. Misawa, M. Taki, K. Sawada, and <u>K. Takahashi</u>, "Surface stress sensor based on MEMS Fabry-Perot interferometer with high wavelength selectivity for label-free biosensing," *Journal of Micromechanics and Microengineering*, **2018**, *vol.28*, *no.* 5, 054002.
 - <u>K. Takahashi</u>, T. Fujie, R. Teramoto, I. Takahashi, N. Sato, S. Teraoka, and K. Sawada, "Elastomer-based MEMS optical interferometric transducer for highly sensitive surface stress sensing," *MRS Communications, in press.*



(2)特許出願

研究期間累積件数1件(公開前の出願件名については件数のみ記載)

(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. <u>K. Takahashi</u>, "MEMS optical interferometric surface-stress sensor for multi-biomarker detection," The Irago Conference 2016, 1-2 Nov. 2016 (Invited)
- <u>K. Takahashi</u>, T. Fujie, N, Sato, S. Takeoka, K. Sawada, "An elastomer-based MEMS Fabry-Perot interferometer for physical and biological sensing by dry transfer technique," 30th IEEE Conference on Micro Electro Mechanical Systems (MEMS 2017), January 22 - 26, 2017, Las Vegas, NV, USA, pp. 704-707.
- H. Ishida, T. Iwata, K. Sawada, <u>K. Takahashi</u>, "Development of graphene drum resonator with nanocavity by low-pressure dry transfer technique," 30th IEEE Conference on Micro Electro Mechanical Systems (MEMS 2017), January 22 – 26, 2017, Las Vegas, NV, USA, pp. 928–931.
- T. Takahashi, T. Hizawa, N. Misawa, M. Taki, K. Sawada, and K. Takahashi, "Fabry-Perot interferometric surface-stress sensor with high wavelength selectivity for label-free biosensing," The 19th Int. Conf. on Solid-State Sensors, Actuators and Microsystems (Transducers 2017), June 18-22, 2017, Kaohsiung, Taiwan, pp. 476-479.
- S. Kidane, H. Ishida, K. Sawada, and <u>K. Takahashi</u>, "Optical interferometry-based surface stress sensor using suspended graphene," 2018 Int. Conf. on Optical MEMS an Nanophotonics 2018 (OMN 2018), July 29–Aug. 2, 2018, Lausanne, Switzerland, TH3.4



研究報告書

「高移動度二次元酸化物構造による非散逸電流デバイスの創成」 研究タイプ:通常型 研究期間: 2015年10月~2019年3月 研究者: 高橋 圭

1. 研究のねらい

電子デバイスにおいて非散逸電子流の応用は、世界が目指すべき持続可能社会にむけ た課題であり物性物理学の主題でもある。強磁性トポロジカル絶縁体において最近実証され た量子異常ホール効果の自発磁化により量子化する端電流状態が、エネルギーを消費しな い非散逸流として応用できると注目した。量子異常ホール効果では、強磁性の磁壁に沿って スピン偏極したカイラルエッジ流が生じている。この磁壁を外場で制御できれば非散逸電流で 組まれた論理回路の量子化された情報(電力を消費せずに取り出せる)を磁区のコントロー ルによって制御することができ、非散逸電流を使ったデバイスの可能性が広がる。

最近、研究者は二次元領域だけ電子ドープしたデルタドープ SrTiO₃の二次元電子で電子 相関の強い d 電子で初めて量子ホール効果を実現した。本研究では、量子異常ホール効果 を、強磁性トポロジカル絶縁体の表面状態ではなく SrTiO₃の二次元電子を強磁性化すること で目指す。磁性層を La ドープ SrTiO₃層に積層し近接効果により二次元電子を強磁性化し量 子化異常ホール効果を実現させる。磁性層には SrTiO₃と同じ結晶構造で格子定数も一致し ている反強磁性体 EuTiO₃をドーピングにより強磁性化し用いることを計画している。多彩な物 性を示す遷移金属酸化物を用いた非散逸量子伝導現象の実現は分野を大きく発展させると 期待する。

量子異常ホール効果では、端電流が強磁性の磁区境界の磁壁に沿って流れるため強磁 性ドメインのパターンによって量子化抵抗がデジタルに変化する。したがって、磁区パターン 制御による量子抵抗変化を利用した非散逸電流メモリーデバイス応用が可能になる。まず、 外部磁場掃引によって自発的に発生する磁区パターンを観察し磁壁と量子化抵抗の関係を 解明し、量子化異常ホール効果の端電流によるメモリーデバイスの読み込みの研究を行う。 このメモリーデバイスの書き込みは磁性層 EuTiO₃の磁区の制御、磁壁の駆動によって実現 する。本研究では、SrTiO₃の二次元電子上の EuTiO₃の磁壁の特性を理解することで磁壁駆 動による書き込み制御の可能性も調べる。

2. 研究成果

(1)概要

酸化物薄膜構造により強磁性二次元電子を作製し、量子異常ホール効果を実現し将来の非 散逸量子デバイスに道筋を与えることを目標に研究を進めた。反強磁性体 EuTiO₃に La を置換 して電子ドープした薄膜を、研究者が開発したガスソース MBE によって高品質化・高移動度化 することを軸に酸化物磁性半導体の量子伝導の可能性を模索した。

研究の初期段階において、この系の異常ホール効果を詳細に調べた(テーマ A)。格子定数 の小さなLSAT 基板上に圧縮歪み薄膜の異常ホール効果において、磁化過程で磁化曲線から 大きくずれる成分が発現した。これは、圧縮歪みによって結晶場分裂した 2 種類のバンドが交



差するワイル・ノードとフェルミエネルギーの位置関係が磁化過程において変化し、それに伴っ て異常ホール効果の値と符号が変化するためであることを理論的に説明した。この成果はこれ まで観測できなかった新しい異常ホール効果であり論文(主な研究成果リスト5)で発表した が、この異常ホール効果の値自体は小さく量子化は困難であると分かった。そこで、量子異常 ホール効果実現の目標から、強磁性電子の磁場中での量子ホール効果の観察を実現し、新し い量子伝導現象を将来の非散逸量子デバイスに繋げることに目標を変えた。

量子伝導観察に向けて、SrTiO₃ 基板上に高温で歪みのない薄膜を成長しさらなる高移動度 化に成功した(テーマ B)。最高移動度は 3200 cm²V⁻¹s⁻¹に到達し、強磁性状態で磁気抵抗が 振動するシュブニコフ-ド・ハース(SdH)振動の観察に成功した。バンド計算から伝導電子はス ピンが完全に偏極いることが示唆され、SdH 振動の角度依存性からスピン偏極した3つの異な るバンドのうちの2つのバンドが振動に寄与していることが分かった。この成果は、磁性半導体 を高移動度化し量子伝導を観測した初めての結果で、今後、スピン偏極二次元電子の量子ホ ール効果という新たな現象の実現と強相関電子の量子伝導研究への展開が期待される。

(2)詳細

研究テーマ A「磁性半導体 La ドープ EuTiO3の異常ホール効果」(主な研究成果リスト5)

本研究の当初の目的である「量子異常ホール効果」を磁性酸化物で実現するために、反強 磁性体 EuTiO₃ に注目した。まず、EuTiO₃ 薄膜を格子定数の小さな LSAT 基板上に薄膜を合成 した。ガスソース分子線エピタキシーによる成長によって、過去のパルスレーザー堆積(PLD) 薄膜に比べて移動度が一桁高い薄膜の成長に成功した(図 2)。予想以上に La ドープ EuTiO₃ 薄膜自体の特性が良いことが分かったので、当初の計画の SrTiO₃とEuTiO₃の接合によるスピ ン偏極伝導電子を作る研究から、La ドープ EuTiO₃ 薄膜の異常ホール効果を調べて二次元化 に進む計画に方針を変更した。

得られた EuTiO3 薄膜の異常ホール効果の磁場依存性を測定したところ、これまでの移動度 の小さな薄膜とは異なる振る舞いが見られた。図1E に、実験結果を示す。Eu の磁気モーメント が反強磁性から強磁性の磁気秩序にそろう磁化過程(0~3T)で、通常の磁性体の異常ホール 効果は右軸で示した磁化(青線)に比例するのに対して、異常ホール効果(赤線)が、水色で示 したように磁化曲線から大きくずれる成分が発現している。この磁化に比例しない成分の起源 を理論的に調べた。圧縮歪みによって結晶場分裂した2種類のバンドのそれぞれにおいて、ゼ ロ磁場での反強磁性状態では上向きスピンと下向きスピンの分散関係は重なっている(図 3A)。磁場を加えると、上向きスピンバンドと下向きスピンの分散関係は重なっている(図 3A)。磁場を加えると、上向きスピンバンドと下向きスピンバンドがエネルギー的に上下に分裂 (ゼーマン分裂)する幅が大きくなっていき、磁化が飽和する3T以上では変化がなくなる。この 磁化過程中のゼーマン分裂の変化により「ワイル・ノード」と呼ばれるバンド交差点が8 個生じ る。このワイル・ノードとフェルミエネルギーの位置関係によって異常ホール効果の値と符号が 変化するため、図 3E のように B, C の状態では異常ホール効果は負の値をとるが、そのワイ ル・ノードの位置がフェルミエネルギーより低くなる D では正の値をとる。そのためこのフェルミ エネルギーでは、異常ホール効果が、加えた磁場に対して非単調な図 1E の実験結果を再現 する曲線になる。つまり、ゼーマン分裂がわずかに変化しただけで、ワイル・ノードが創発する



磁気単極子のエネルギー位置が変化して、電子の軌道を変調したといえる。

また、移動度が小さく電子が外因的な散乱を受けやすいと測定にかからなくなることも示され、この異常ホール効果は、今回得られた移動度の高い薄膜で初めて明らかになった現象である。このように興味深い成果が得られたが、EuTiO3系の異常ホール効果の絶対値が小さく、本来の目的であった量子異常ホール効果の実現は困難であることも分かった。



図1: 典型的な異常ホール効果の振る舞い(E) とバンド構造の関係。 A~D は磁化過程におけるバンド構造の変化。結晶場分裂した2種類のバンド(A)は、磁 化の増加によってそれぞれがゼーマン分裂してB, C, Dと上下に徐々に分裂し、ワイル・ノ ード(バンド交差点)を形成する。その際に発生する異常ホール効果を計算すると、異常ホ ール効果の磁場依存性が算出でき、Eの実験結果の変化と良く一致する。

研究テーマ B「強磁性電子による量子ホール効果を目指した研究」

量子異常ホール効果を実現し、その非散逸端電流を研究するという当初の目的は研究テーマAにより困難であるということが分かったので、スピン偏極した電子による新しい量子ホール効果の実現に目標を変更した。テーマAの格子定数の小さなLSAT基板上の圧縮歪み薄膜の最高移動度 300 cm²V⁻¹s⁻¹よりさらに移動度を向上させ、量子伝導が観察可能な 1000 cm²V⁻¹s⁻¹以上にしてスピン偏極した電子による量子ホール効果の観察を目指した。

SrTiO₃基板上のSrTiO₃/La-EuTiO₃/SrTiO₃構造を高温成長で作製することによって、移動度 が約3000 cm²V⁻¹s⁻¹を越える試料が得られるようになった。EuTiO₃とSrTiO₃の格子定数が同じ であり格子ミスマッチがなく、SrTiO₃のキャップ層によりEuTiO₃のペロブスカイト構造を安定化さ せたことが高温成長を可能にした1つの理由である。上下にペロブスカイト構造のSrTiO₃があ ることでEuTiO₃構造が安定化するため、成長中に形成される酸素欠損を埋めるポストアニー ル時に異相の析出もなくなった。図2に2Kでの移動度のキャリア密度依存性を示した。PLD 薄膜に比べて2桁も移動度が向上したのが分かる。この高移動度薄膜の磁気抵抗曲線を図に 示した。反強磁性から強磁性にスピンがそろう過程では負の磁気抵抗、強磁性状態では通常 のローレンツカによる正の磁気抵抗に加えて明瞭に振動が発現することが分かった。



この振動している電子がスピン偏極しているのかどうかを確かめるためにバンド計算を行っ た。その結果、完全にスピン偏極した3つのバンドに電子が入っているという結果を得た。図4 に示したように印加磁場の角度を変化させて SdH 振動の周波数からバンドのフェルミ面の形を 調べたところ、2つのバンドの寄与から振動していることが分かった。さらに、その2つの周波数 の角度依存性はバンド計算から予想される依存性とよく一致しており、確かにこの量子伝導電 子はスピン偏極した電子であることが分かった。この成果は、磁性半導体を高移動度化し量子 伝導を観測した初めての結果で、今後、二次元化し量子ホール効果を実現すれば、スピン偏 極二次元電子の量子ホール効果という新たな現象の発見と強相関電子の量子伝導研究への 展開が期待される。



図2:LaドープEuTiO3薄膜の移動度。 過去の PLD 薄膜に比べて2桁も移動 度が向上した。



図3:高移動度 EuTiO3 薄膜の磁気抵抗曲線。5 T 以上で量子振動が明瞭に見える。



面直から60度傾けた時 の SdH 振動。2つの周 波数の振動が干渉して いるのが分かる。(右) 振動の周波数の角度 依存性。点線がバンド 計算の2つのバンドの

3. 今後の展開

当初目的の量子異常ホール効果の実現と非散逸流のデバイス検証は達成出来なかった ものの、ガスソース MBE 酸化物薄膜のポテンシャルを生かした EuTiO』薄膜の高品質化によ り、これまで例のなかった磁性半導体に関する多くの成果が得られた。特に、スピン偏極電子 による磁気抵抗量子振動の実現はスピンエレクトロニクス分野へのインパクトも大きく、二次 元化による量子ホール効果の実現が期待される。スピン偏極した電子から得られる分数量子 ホール効果では新しい準粒子を作りだせる可能性も示唆されている。

この成果には、スピン偏極した電子相関の強い電子系物質の高品質薄膜化が重要な役割



を果たした。今後、EuTiO3や SrTiO3のチタン酸化物だけでなく、他の遷移金属酸化物の成長 にこのガスソーMBE を応用する。これまで不純物や欠陥準位によって伝導が取り出せないト ポロジカル電子状態、新量子物性をこの薄膜技術によって解決し、強相関電子の量子伝導 研究を大きく進展させる。次世代を担う新量子材料合成の基盤技術になると期待する。

4. 自己評価

当初の目的の、酸化物二次元構造による量子異常ホール効果で非散逸流デバイスの研 究を進めることはできなかった。しかし、その過程で、EuTiO3を高移動度磁性半導体としての ポテンシャルを飛躍的に向上させ、量子伝導まで明瞭に観察した成果は、多くの注目を集め る成果であると考える。その点で、研究期間の前半で、異常ホール効果の量子化に固執する ことなく、EuTiO3の高移動度化に注力し新たな伝導現象を発見したことは結果的には良かっ たと考える。研究費について、納期の関係で初年度には間に合わなかったものの、2年目に 全予算の9割をかけてガスソース分子線エピタキシー装置を購入した。今後の研究に大いに 役立つ装置を立ち上げることが出来た。

これらの研究成果は、ここ数年で盛んになっているトポロジカル絶縁体やトポロジカル物質 の量子物性研究を電子相関の強い酸化物で始めた研究成果と位置付けられる。トポロジカ ル量子技術は文科省の平成30年度の戦略目標に選定されており、今後飛躍的に発展して いく科学技術であると予想される。次世代電子技術の主流がこのような量子技術になり、高 度化した快適な社会を支えると期待すると、本研究成果は基盤技術として価値が高いものに なるだろう。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文) 発表

1. M. Mogi, R. Yoshimi, A. Tsukazaki, K. Yasuda, Y. Kozuka, <u>K. S. Takahashi</u>, M. Kawasaki, and Y. Tokura, "Magnetic modulation doping in topological insulators toward higher-temperature quantum anomalous Hall effect", *Appl. Phys. Lett.* 107, 182401 (2015).

2. Y. Matsubara, <u>K. S. Takahashi</u>, M. S. Bahramy, Y. Kozuka, D. Maryenko, J. Falson, A. Tsukazaki, Y. Tokura, and M. Kawasaki, "Observation of the quantum Hall effect in •-doped SrTiO₃", *Nature Communications* **7**, 11631 (2016).

3. <u>K. S. Takahashi</u>, Y. Matsubara, M. S. Bahramy, N. Ogawa, D. Hashizume, Y. Tokura, and M. Kawasaki, "Polar metal phase stabilized in strained La-doped BaTiO₃ films" *Scientific Report* **7**, 4631 (2017).

4. K. Yasuda, M. Mogi, R. Yoshimi, A. Tsukazaki, <u>K. S. Takahashi</u>, M. Kawasaki, F. Kagawa, and Y. Tokura, "Quantized chiral edge conduction on domain walls of a magnetic topological insulator" *Science* **358**, 1311 (2017).

 K. S. Takahashi, H. Ishizuka, T. Murata, Q. Y. Wang, Y. Tokura, N. Nagaosa, M. Kawasaki, "Anomalous Hall effect derived from multiple Weyl nodes in high-mobility EuTiO₃ films" *Science Advances* 4, eaar7880 (2018).



(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)

学会発表

- 1. 第 63 回応用物理学会春季学術講演会シンポジウム(招待講演), 2016 年 3 月 20 日, 東 エ大大岡山キャンパス「ガスソース MBE 高品質酸化物薄膜で拓く酸化物エレクトロニク ス」
- 2. 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会(一般講演), 2017.9.5, 福岡国際会議場,「LSAT 基板上圧縮歪み Eu1--、La、TiO3 薄膜の磁気輸送特性」
- 3. 第78回応用物理学会秋季学術講演会(一般講演), 2017.9.5, 福岡国際会議場,「EuTiO₃の量子井戸構造による高移動度化と磁気輸送特性」
- APS March Meeting 2018 (Contributed talk), 2018.3.5, Los Angeles, California, U.S.A. "Anomalous Hall effect in high mobility La doped EuTiO₃ films on LSAT substrates grown by gas source molecular beam epitaxy"
- 25th International workshop on oxide electronics (Contributed talk), 2018.10.3, Les Diablerets, Switzerland "Quantum transport in the films of a magnetic semiconductor EuTiO₃"

プレスリリース

- 1. 「遷移金属酸化物で量子ホール効果を実現-強い電子同士の反発力を用いた量子デバ イスへ道-」(2016 年 5 月 27 日) <u>http://www.riken.jp/pr/press/2016/20160527_2/</u>
- 2.「磁性半導体の磁気単極子による電子の伝導制御一新たなスピントロニクス機能に道筋 一」(2018 年 7 月 21 日) <u>http://www.riken.jp/pr/press/2016/20160527_2/</u>



研究報告書

「極限的エネルギー効率を有する超伝導可逆計算機の開発」

研究タイプ:通常型 研究期間: 2015 年 10 月~2019 年 3 月 研究者: 竹内 尚輝

1. 研究のねらい

「可逆計算機」では、熱力学的に可逆な過程で論理演算を行うことができるため、準静的に 動作させた際に、無限小の消費エネルギーで演算を行うことが可能である。このため可逆計 算機は、究極的に高いエネルギー効率を有した計算機として考えられてきた。しかしながら、 可逆計算機に関する研究は理論研究が先行しており、デバイスや回路等のハードウェアレベ ルでの研究例は非常に少ない。このような状況の下、私は超伝導体を用いた可逆論理ゲート (可逆計算機を構成する基本的なコンポーネント)を提案した。超伝導可逆論理ゲートは論理 的にも物理的にも可逆なゲートであり、論理状態を準静的にスイッチさせることが可能である。 そのため、準静過程において、無限小の消費エネルギーで論理演算を行うことができる。本研 究では、超伝導可逆論理ゲートを用いることで、究極的なエネルギー効率を有した可逆計算 機の実現を目指す。

本研究は、最初に理論的な検討を行い、回路の可逆性と消費エネルギーの関係を明らか にする。次に、可逆計算機を設計するために必要な論理ゲートを含む、可逆セルライブラリを 構築する。最終的に、可逆セルライブラリを用いて 8-bit 可逆加算器の設計、作製、及び動作 実証を行い、可逆計算機をハードウェアレベルで実現する。また、消費エネルギーの評価を行 い、極限的に高いエネルギー効率(接合あたり~10⁻³¹ J·s)が可逆計算により得られることを示 す。

2. 研究成果

(1)概要

本研究で用いる超伝導可逆論理ゲートは可逆磁束量子パラメトロン(RQFP)と呼ばれ、断 熱磁束量子パラメトロン(AQFP)と呼ばれる超伝導ロジックにより構成される。AQFP は、80 年 代に東京大学の後藤らによって開発された QFPを基に、論理状態のスイッチを断熱過程に近 づけることで低電力化を実現したロジックである。本研究では、次の4つの研究テーマを遂行 した: (A) AQFP ロジックの可逆性と消費エネルギーの関係の解明、(B) RQFP ゲートを含む可 逆セルライブラリの構築、(C) 可逆加算器の設計と動作実証、(D) AQFP ロジックの低電力及 び高速動作実証。

テーマAでは、不可逆なAQFP 論理ゲートではどのようなメカニズムで非断熱的な消費エネ ルギーが生じるのか、不要な演算結果を消すためにはどの程度の消費エネルギーが生じる のか、等の理論的検討を行った。テーマBでは、RQFP ゲートの設計及び動作実証を行った。 また、設計した RQFP ゲートを基に、AND や OR 等の基本的な論理演算を行う可逆ゲートを設 計、さらに動作実証を行い、可逆論理ゲートにより構成されるセルライブラリを構築した。テー マCでは、テーマBで構築した可逆セルライブラリを用いて、可逆全加算器及び可逆 8-bit 加



算器の設計並びに動作実証を行った。また、可逆全加算器及び可逆 8-bit 加算器の消費エネ ルギーを数値計算により評価した。その結果、プロセスの改善を見込むと、素子あたりわずか ~10⁻³¹ J·s の微小なエネルギー遅延積で動作することがわかった。テーマ D では、可逆ゲート を構成する AQFP ロジックの低電力性及び高速動作性を実験的に評価した。 (2)詳細

研究テーマ A「AQFP ロジックの可逆性と消費エネルギーの関係の解明」

AQFP 単体(バッファ)は可逆回路であるが、一般的な論理ゲートである AND や OR ゲート等 を AQFP で構成すると、論理ゲート全体としては不可逆になる。一方、同じく AQFP で構成され る RQFP ゲートは、ゲート全体を見ても可逆性を維持できる。つまり、同じ最小構成要素 (AQFP)を用いても、AQFP 同士の接続方法により、論理ゲート全体として可逆的になる場合 もあれば、不可逆的になる場合もある。そこで、AQFP の状態変数(ジョセフソン接合の位相 差)の時間発展をシミュレーションにより解析し、RQFP ゲートの可逆性の実証、及び不可逆ゲ ートではどのようなメカニズムで不可逆過程が現れるのかを解明した。結論としては、RQFP ゲートの状態変数は準静的に変化することが可能であり、たしかに熱力学的に可逆であるこ とが分かった。また、不可逆ゲートに関しては、AQFP 同士の相互作用により、非断熱的な過 程が発生することが分かった(研究成果リスト 論文 5)。

上記より、RQFPゲートが確かに可逆的に論理演算を行えることが分かったが、RQFPゲート を用いて回路を設計するためには、演算だけではなく情報の消去についても考察をしなけれ ばならない。そこで、AQFPに書き込んだ1bitの情報をどこにもコピーせずに消去した場合の 発熱量をシミュレーションにより求め、情報消去に伴う消費エネルギーを明らかにした。シミュ レーションの結果、4.2 K において1bit あたり $k_{\rm B}$ Tln2 = 4.0 × 10⁻²³ J ($k_{\rm B}$: ボルツマン定数、T: 温度)というわずかな消費エネルギーが必要であることが分かった(研究成果リスト 論文 2)。

以上より、研究目標であった、AQFP ロジックの可逆性と消費エネルギーの関係の解明を達成した。

研究テーマ B「RQFP ゲートを含む可逆セルライブラリの構築」

RQFP ゲートのレイアウト設計を行い、産業技術総合研究所(AIST)の提供するニオブ超伝 導集積回路プロセスを用いて RQFP ゲートのファンクションテスト回路を作製した。作製した回 路の動作テストを液体へリウム中で行い、正常論理動作を確認した。

RQFP ゲートは、3入力3出力のゲートであり、入力をa、b、c、出力をx、y、zとすると、 x = ¬ab+bc+c¬a、y = a¬b+¬bc+ca、z = ab+b¬c+¬ca という論理演算を行う。また、入力 b を 1 に固定することで、y = ca となり、a と c の論理積を計算することができる。そこで、定数入力 や論理否定の位置や個数を変更することで、様々な種類の可逆論理ゲートを設計し、セルラ イブラリを構築した。ここで、RQFP をベースとした論理演算では不要な計算結果が排出され る。しかしながら、テーマAより十分小さな消費エネルギー(1 bit あたり k_B Tln2)で情報を削除 できることがわかっているため、不要な計算結果はそのまま削除するように各論理ゲートは設 計された。設計した可逆ゲートのうち、RQFPをベースとした AND ゲート(RAND ゲート)、RQFP をベースにした多数決ゲート(RMAJ ゲート)を含むテスト回路を AIST のプロセスを用いて作



製し、液体ヘリウム中で動作実証に成功した。

以上より、研究目標であった、可逆セルライブラリの構築を達成した。

研究テーマC「可逆加算器の設計と動作実証」

研究テーマBで設計した可逆セルライブラリ中の論理ゲートを用いて、可逆全加算器と可逆 8-bit 加算器の設計を行った。また、両加算器をAIST のプロセスを用いて作製し、動作テスト を液体ヘリウム中で行った。可逆全加算器は、すべてのデータパターンにおいて正常動作を 確認した。一方、可逆8-bit 加算器は正常動作を確認することができなかった。原因としては、 作製チップ毎に出力結果が異なっていることや、エラーレートが高い出力ビットが確認できた ことから、チップ作製によるパラメータばらつきの影響を受けていると考えられる。解決策とし て、バラツキに対してよりロバストになるように、RQFP ゲート及び可逆論理ゲートのレイアウト の再設計を行った。RQFP ゲートを構成するAQFP は、不要な磁気結合があると回路パラメー タマージンを低減するため、不要な結合を取り除くように超伝導シールドを各ゲートに導入し た。これにより、RQFP 及び可逆論理ゲートのロバスト性を向上させることができたと考えられ る。再設計した可逆論理ゲートを用いて可逆8-bit 加算器を再度設計・作製し、正常動作を確 認することに成功した。

可逆全加算器及び可逆 8-bit 加算器の消費エネルギーをシミュレーションにより見積もり、 通常の不可逆 AQFP ゲート(AND や OR 等)で設計された加算器と比較を行った。可逆全加算 器の 5 GHz 動作の際の消費エネルギーは、演算あたり 2.0×10⁻²⁰ J であり、通常の全加算器 の 47%程度の消費エネルギーであった。また、可逆 8-bit 加算器の 5 GHz 動作の際の消費エ ネルギーは、演算あたり 7.0×10⁻¹⁹ J であり、通常の 8-bit 加算器の 49%程度であった。さら に、プロセスの改善による消費エネルギーの変化についても考察を行った。これまで用いてい た AIST のプロセスでは、ジョセフソン接合のQ値は 14 であるが、他機関からはQ値が 28 の ジョセフソン接合も報告されている。そこで、ジョセフソン接合のQ値を 28 にして再度消費エネ ルギーを計算したところ、可逆 8-bit 加算器の消費エネルギーは、演算あたり 4.2×10⁻¹⁹ J ま で低減できることが分かった。ここで、接合あたりの平均消費エネルギーは、わずか 4.7×10⁻²² J であり、そのエネルギー遅延積は 9.3×10⁻³² J·s(プランク定数の 100 倍程度)で あることが分かった。

以上より、数値目標であった、接合あたり^{~10⁻³¹} J·s というエネルギー効率を達成することが できた。また、可逆 8-bit 加算器を実際に作製し、動作実証に成功した。

研究テーマ D「AQFP ロジックの低電力及び高速動作実証」

これまでは、RQFP ゲート及び AQFP ロジックの消費エネルギーはシミュレーションにより評価をしてきた。そこで、AQFP ロジックの消費エネルギーを実験的に評価し、シミュレーション結果と比較することで、これまでの消費エネルギーの見積もりの妥当性を検証した。AQFP 論理ゲートを用いて通常の 8-bit 加算器を設計し、AIST のプロセスを用いて作製した、8-bit 加算器に5 GHz マイクロ波を供給し、マイクロ波パワーの変化量から、8-bit 加算器の消費エネル ギーを測定した。本測定により、8-bit 加算器の消費エネルギーは、演算あたり1.5×10⁻¹⁸ J であることがわかり、シミュレーション結果(1.5×10⁻¹⁸ J)と非常によく一致することが分かった



(研究成果リスト 論文 1)。よって、これまでのシミュレーションによる消費エネルギーの見積も りが妥当であることが示された。

また、GHz 帯での高速動作に関してもこれまではシミュレーションにより実証を行っていたため、実際に AQFP 回路を GHz 帯で動作させた。最初に、高速動作を行うために必要な高速インターフェイス回路を設計、作製し、AQFP バッファの 2 Gbps エラーフリー動作を実証した(研究成果リスト 論文 4)。さらに、8-bit 加算器に高速インターフェイス回路を接続し、1 GHz での 正常動作を確認した。

以上より、研究目標であった AQFP ロジックの低電力及び高速動作実証を達成した。

3. 今後の展開

本研究により、超伝導ロジックである AQFP に可逆計算を導入することで、接合あたり 9.3 ×10⁻³² J·s という極めて小さいエネルギー遅延積で動作可能であることが示された。この値 は、半導体 CMOS(~10⁻²⁶ J·s)や従来型超伝導ロジックである RSFQ(~10⁻²⁸ J·s)に比べて桁 違いに小さい。また、例えば 100.000 接合規模(D-Wave Systems 社の 2.000 量子ビットシステ ムに相当)の超伝導可逆回路を5 GHz で動作させても、その消費電力はわずか 0.2 μW であ り、希釈冷凍機の冷却能力(~uW)に収まる。この特徴を活かし、本研究で得られた超伝導可 逆回路を、極低温下での超伝導アナログデバイス(光子検出器や量子ビット)を制御するため のデジタル信号処理回路として展開する。具体的には、科研費・基盤(S)「超伝導シングルフ オトンカメラによる革新的イメージング技術の創出」(2018~2022年度、代表: 寺井(NICT))で は、超伝導光子検出器の読み出し回路として AQFP 及び RQFP を利用し、単一光子レベルの 感度を有するイメージセンサの実現を目指す。原理実証として、シングルピクセルの光子検 出器の状態をAQFP回路で読み出せることを冷凍機中で実証した(研究成果リスト 論文3)。 また、NEDO「超電導パラメトロン素子を用いた量子アニーリング技術の研究開発」(2018~ 2022 年度、全体統括: NEC)では、超伝導量子ビットの制御回路として AQFP 及び RQFP を利 用し、量子アニーリングマシンの実現を目指す。これらのアプリケーションに向けて、さきがけ 終了後2、3年で、数1,000~10,000 接合規模の可逆回路の動作実証を目指す。

4. 自己評価

●目標達成状況

すべての研究テーマに関しては、概ね目標を達成できたと考えている。テーマ C に関しては、 最初の試作では可逆 8-bit 加算器の動作実証に至らなかったが、可逆論理ゲートのレイアウ トを見直すことで、動作実証に至った。本研究を通じて、AQFP 及び RQFP を用いることで可 逆回路をハードウェアレベルで実現できること、並びに超伝導可逆回路の優れたエネルギー 効率(接合あたり 9.3 × 10⁻³² J·s)を示すことができたと考えている。

●研究費執行状況

研究費は主に、超伝導回路の測定に必要となる機器(オシロスコープ、シグナルジェネレー タ、電圧源、等)への購入に用いた。

●研究成果の波及効果

本研究成果を、極低温下の超伝導アナログデバイスを制御するためのデジタル信号処理 回路として展開する、単一光子検出器や量子ビット等の超伝導アナログデバイスは、他の材



料では実現できない物理的特徴を有しており、情報通信技術の発展に寄与すると期待され ている。しかしながら、超伝導アナログデバイスは極低温まで冷やさなければならないため、 使用できるケーブル数等の制限から高集積化が困難であった。そこで、本研究によって得ら れた超伝導可逆回路を上記の超伝導アナログデバイスの制御回路として用いることで、冷凍 器内で完結したシステムを構築することができる。具体的には、スケーラブルな単一光子イメ ージセンサや量子コンピュータ等の開発に、本研究成果を活用したい。

さきがけ研究を通じて、様々な共同研究を始めることができた。本領域は、デバイスからア ルゴリズムまで幅広い技術レイヤーの集まった領域であり、私自身の技術レイヤーは回路設 計という中間的な技術レイヤーである。そのため、自身から見て上流のレイヤー(アルゴリズ ム、システム)の研究者、下流のレイヤー(デバイス、材料)の研究者、その両方と研究を行う ことを一つの目標としていた。結果として、上流レイヤーの研究者である慶大・青野先生(1期 生)や東工大・原先生(1期生)とは、アメーバ型ハードウェアの開発という共同研究を始める ことができた(研究成果リスト 特許 1)。また、下流レイヤーの研究者である豊橋技科大・後 藤先生(3 期生)とは、本研究成果のスピントロニクスへの応用というテーマで共同研究を始 めることができた。上記の共同研究は、さきがけ研究終了後も積極的に継続して行く。以上よ り、本領域の特色である多様な技術レイヤーという点を活かすことができたと考えている。

5. 主な研究成果リスト

(1)論文(原著論文)発表

- N. Takeuchi, T. Yamae, C. L. Ayala, H. Suzuki, and N. Yoshikawa. An adiabatic superconductor 8-bit adder with 24k_BT energy dissipation per junction. Applied Physics Letters. 2019, 114, 042602 (5pp)
- 2. N. Takeuchi and N. Yoshikawa. Minimum energy dissipation required for a logically irreversible operation. **Physical Review E**. 2018, 97, 12124 (5pp)
- N. Takeuchi, T. Yamashita, S. Miyajima, S. Miki, N. Yoshikawa, and H. Terai. Adiabatic quantum-flux-parametron interface for the readout of superconducting nanowire single-photon detectors. Optics Express. 2017, 97, 32650–32658
- N. Takeuchi, H. Suzuki, and N. Yoshikawa. Measurement of low bit-error-rates of adiabatic quantum-flux-parametron logic using a superconductor voltage driver. Applied Physics Letters. 2017, 110, 202601 (4pp)
- N. Takeuchi, Y. Yamanashi, and N. Yoshikawa. Reversibility and energy dissipation in adiabatic superconductor logic. Scientific Reports. 2017, 121, 75 (12pp)

(2)特許出願

研究期間累積件数:2件(公開前の出願件名については件数のみ記載)

- (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. 横浜国立大学, "新型超伝導回路を用いた超低電力集積回路の実証に成功 ~高性能コン
 - ピュータの 大 幅 な 低 消 費 電 力 化 を 可 能 に ~", 2019 年 1 月 .



http://www.ynu.ac.jp/hus/koho/21503/detail.html

2. 奨励賞, 電子情報通信学会超伝導エレクトロニクス研究会, 2016年1月.

- N. Takeuchi, C. Ayala, Q. Xu, Y. Yamanashi, and N. Yoshikawa, "Current Progress in Adiabatic Quantum Flux Parametron," *The 30th International Symposium on Superconductivity (ISS 2017)*, Iino Hall and Conference Center, Tokyo, Dec. 2017 (Oral). 招待講演
- 4. N. Takeuchi, C. Ayala, Q. Xu, F. China, N. Tsuji, T. Narama, T. Ortlepp, Y. Yamanashi, and N. Yoshikawa, "Recent Progress towards Energy-Efficient Microprocessors Using AQFP Logic," *The 5th International Conference on Superconductivity and Magnetism (ICSM 2016)*, Fethiye, Turkey, Apr. 2016 (Oral). 招待講演
- 5. 竹内 尚輝, "超伝導デバイスによる可逆計算," 2016 年電子情報通信学会総合大会,九 州大学,福岡県, 2016 年 3 月. 招待講演



研究報告書

「遷移金属酸化物のナノ空間 3 次元制御による省エネルギー駆動機能選択的相変 化デバイス創製」

研究タイプ:通常型 研究期間: 2015 年 10 月~2018 年 3 月 研究者: 服部 梓

1. 研究のねらい

遷移金属酸化物は電子間の相互作用が強い強相関電子系物質群であり、電子の持って いる電荷の自由度に加え、スピンや軌道の自由度および電子-格子の相互作用が物理的性 質に重要な役割を担っている。例えば、バナジウム、ニッケル、マンガンの酸化物でみられる 金属-絶縁体相転移では、僅かな摂動(温度、磁場、キャリア濃度)で絶縁体状態は雪崩的に 融解し、金属相、強磁性、高温超伝導へ相転移する。相転移に伴う抵抗変化は劇的で 10³-10⁵ にも及ぶため、エレクトロニクスとして制御して次世代デバイス創製を実現するという 研究が盛んにおこなわれている。しかし強相関酸化物では通常の均質な半導体とは異なり、 電子の性質特性は物質中で均一に分布せず、集合・相分離してナノメートルサイズのドメイン として存在し、この電子の集団的な振る舞いの結果できるナノ電子相の挙動が系全体の物性 を決めている。ナノ電子相は10-100 nm スケールで材料中に共存するためこれまで主流のバ ルク・薄膜研究では平均的な情報しか得られておらず、巨大相転移特性などの物性の起源



図1 研究概要。強相関酸化物のナノ相分離現象を背景とし、ナノ構造化によりナノ電子相を 隔離、電界効果により単一電子相の相転移を制御する。

は明らかでなく、またデバイスとしての制御技術も確立できていない。

研究者の独自ナノ構造作製技術により機能発現の最小単位であるナノ電子相ドメイン (10-100 nm)をナノ空間中に閉じ込め、隔離した状態で物性を抽出することで、抵抗の steep step 変化の観察に成功した。これは、相転移特性の起源であるナノ電子相ドメインの機能を 抽出し、応答性が増加した効果をデバイス機能として取り込むことが出来ることを意味してい る。本研究では、独自のナノ構造化技術によりナノ空間中に電子相を閉じ込めることで電子 相関効果の最小単位にアクセスし、ナノ電子相の相転移を電子制御する方法論を確立し、単 一電子相の一次相転移に由来するステップ抵抗変化をデバイスの On/Off 動作に直結させる



ことで、超省エネルギー駆動の steep slope 動作の実証に取り組む(図 1)。

2. 研究成果

(1)概要

金属-絶縁体転移を示す強相関酸化物(La,Pr,Ca)MnO₃ (LPCMO)、VO₂、ReNiO₃(Re=Nd, Sm) を対象として、独自技術によりナノ電子相サイズ以下の数十-100 nm サイズのナノ構造体の 創製に成功した。THz 時間領域分光法を用いてナノ細線中のナノ電子相の相転移特性(転移 点分布)と伝導特性の定量的関係を解明した。またナノ空間サイズ制御により、試料中のナノ 電子相数を制御し応答性(抵抗変化の急峻性)を操作できることを実証した。さらに、NdNiO₃ で は 100 nm の細線構造において初めて単一電子相の相転移に由来するステップ抵抗変化の 観察に成功した。

ナノ電子相の電子制御技術構築のために、SmNiO₃をチャネルとし、イオン液体をゲート絶 縁体として用いた電界効果トランジスにおいて、抵抗変調の起源である酸化還元反応と V_G印 加条件に依存した抵抗変調率の定量的関係を明らかにした。これにより V_G 印加条件の選択 で 3 桁に及ぶワイドレンジな範囲で任意の抵抗変調が得られ多段階不揮発的かつ柔軟な変 調動作を実現した。チャネルサイズの低下による抵抗変調の高効率化も実証した。上記の研 究を通じてナノ構造創製技術の精度を、実験開始時の数十 nm から数 nm 以下へと格段に向 上させ、3 次元すべての方向で 10 nm でのナノデバイス構造が実現し、単一電子相の相転移 の電界制御へと展開させていく。

(2)詳細

研究テーマ(A): (La,Pr,Ca)MnO3ナノ細線での電子相変化制御電子技術の構築

・(La,Pr,Ca)MnO3ナノ電子相の特性分布の解明

強相関電子系酸化物では、ナノ相分離したドメイン状態が 巨大応答の本質を担っており、巨大磁気抵抗効果を発現す る(La,Pr,Ca)MnO3 (LPCMO)では、強相関領域で数十-数百 nm サイズの強磁性金属相・電荷秩序絶縁体相の電子相が 共存することが報告されている。単一ナノドメインの金属-絶 縁体転移(MIT)特性やその動的特性の解明は、ドメインのデ バイス動作制御につながる。相分離状態での伝導度は金属 相と絶縁体相の分布で決まる伝導経路によるが、通常の伝 導測定では伝導度と組成分布を同時に導出することはでき ない。そこで光と電波の中間の周波数をもつテラヘルツ(THz) 波を用いた THz 時間領域分光(THz-TDS)計測により、MIT 過 程の伝導ダイナミクス解明に取り組み、定量的な伝導度変化 と相状態の割合変化の導出法の確立に成功した。10-250 K の温度領域で THz-TDS 測定(0.5-3.5 THz)から、図 2(a)の様 に LPCMO の THz 伝導度を得た。温度の上昇に伴い伝導度 が低下しており、系の金属から絶縁体へと転移したことに対 応している。金属、絶縁体両相の伝導度への貢献度(組成 比)を定量導出するために、金属-絶縁体合成モデルを提案



図 2 (a)LPCMO ナノ細線試 料(挿入図)の THz 伝導度。 導出した(b)金属相の体積 比率と(c)dc 伝導度。



し、フィティングにより金属相と絶縁体相の dc 伝導度(•0^M, •0^l)、及び金属相の体積割合 X(7) の導出を行った。本手法により、金属-絶縁体転移過程の定量的な伝導度変化と相状態の割 合変化の同時導出を実現した(図 2(b)-(c))。

・(La,Pr,Ca)MnO3 ナノ細線電界効果トランジスタ

電界による単一電子相の絶縁体-金属転移制御を目的として、50-100 nm 線幅の LPCMO ナノウォール細線をチャネル、イオン液体とゲート絶縁体としたナノ細線電界効果トランジスタ を作製に取り組んだ。イオン液体ゲートは巨大な電界を印加できるとともに、三次元的ナノ構 造に対しコンフォーマルにゲートを作製できる点で有効である。独自のナノ細線創製技術によ り、線幅 80 nm の LPCMO ナノウォール細線をチャネルに持つトランジスタ構造を創製した(図 3(a))。ナノ細線トランジスタのゲート電圧印加時のチャネルの抵抗の温度依存性(R-T)を図 3(c)に示す。-2 V 印加により転移温度の高温シフト、抵抗変化率の減少が観測され、LPCMO



図 3 (a)LPCMO ナノ細線トランジスタと(b)チャネ ル部分の細線構造。(c)電界印加時の RT 曲線。

し単一電子相サイズが減少したためであると考えている。 研究テーマ(B):ナノ構造増感効果の最大化

・VO2極微ナノ細線でのナノ電子相個数制御による応答率変調の実現

独自に開発した原子層精度立体造形技術を、金属室温近傍で絶縁体から金属へと急峻か つ巨大な抵抗変化を伴って転移(IMT)する VO₂ へと適応し、人工制御ナノ構造体での物性研 究へと展開させた。VO₂ の転移過程ではナノ相分離現象が見られ、金属相と絶縁相が 10¹-10³ nm サイズで共存するため、その大きさ以下のサイズの VO₂ 試料はナノ電子相の閉じ

込め効果からバルクや薄膜に はない特性を示し、非常に大 きな注目を集めている。従来 法では不可能な数十 nm サイ ズの極微ナノ細線構造におい て、物性の起源であるナノ電 子相転移特性の直接評価と、 電子相数制御による応答性 の急峻化を実現した。

3次元立体基板側面への積 層技術を用いて、線幅 40 nm



図 4 100 nm 線幅 VO2の RT 曲線(上段)と抵抗変化率(下 段)。電極間距離(a)2 μm から(b)150 nm にすることで抵抗 の急峻化がみられる。

という通常の加工限界以下サイズの VO2 面内ヘテロナノウォール細線構造を実現した。ナノ

JEINT

薄膜トランジスタと同様の電界効果を示 した。これらの観測結果は、キャリアが ホールである LPCMO のホール濃度増 加に起因している。マンガン酸化物系 のトランジスタでは最小となる 80 nm 細 線で電界効果による最大抵抗比 13 倍 の変化の観測に成功したが、期待して いた単一電子相由来のステップ変化は 得られなかった。これはデバイス作製プ ロセスにおいてチャネルの結晶性低下 ウォール細線(100 nm 線幅、2 ·m 長さ)の伝導特性評価では、340 K から 360 K で IMT に伴う 抵抗変化を示し、薄膜では観測されなかった微小な抵抗の飛びが観測された(図 4(a))。これ は細線中にナノ電子相が閉じ込められていることに由来し、電子相の大きさは約 50 nm と見 積もられた。応答性の急峻化のために、長さを 150 nm まで減少させることで、応答性が 30 倍 以上向上した step 抵抗変化を実現した(図 4(b))。これは細線試料の測定領域内に含まれるナ ノ電子相数が約 160 個から 10 個に減少したことに対応する。この結果は数十 nm サイズのナ ノ電子相が Steep Slope デバイスとしての機能を有することを示しており、ナノ構造のデザイン により試料中のナノ電子相数を制御することで、チャネルの伝導特性を予測・操作できること を実証した。

・ReNiO₃ (Re=Nd, Sm)ナノ細線でのナノ構造増感効果の観察

VO2や Mn 酸化物と同様に、ごく最近ニッケル酸化物においても MIT 過程において相分離

現象があると数件の報告がされた。しかしその電子 相の物性は明らかになっていない。線幅 100 nm の 単一 NdNiO₃ ナノ細線の伝導特性を行ったところ、 図 5 のように階段状の抵抗変化が観察された。階 段状の抵抗変化は細線中にナノ電子相が閉じ込め られていること、すなわち電子相の閉じ込め効果に 由来する。これは、ニッケル酸化物単一ナノ細線で 初めてとなるマルチステップな抵抗変化、すなわち ナノ構造増感効果を観測したものである。ナノ電子 相のサイズの定量的評価のため、ランダムレジスタ ーネットワークを用いたシミュレーションを行い、電 子相の大きさは 30-50 nm と見積もられた。以上の ように、ニッケル酸化物でナノ相分離現象の存在を



図 5 100 nm 線幅の NdNiO₃単一ナノ 細線の RT 曲線。冷却(青)、昇温(赤) 過程ともにステップ抵抗変化がみら れる。

示し、ナノ電子相の伝導特性評価に初めて成功した。SmNiO3 でも同様にステップ抵抗変化を 観察しており、ReNiO3が良い候補材料であることが明らかになった。 ・原子層精度の立体造形技術の構築



図6 初めて実現した 3 次元立体側面の原子レベル構図評価結果:(a)RHEED 像、 (b)STM 像。(c)産総研との共同研究で実現した 10 nm のギャップを持つ電極構造。

3 次元構造作製では表面に加え側面構造の制御も必要である。2 次元基板表面でのみ用 いられてきた表面科学的手法を任意の方向に対して適応可能とし、あらゆる方向に存在する 3 次元表面に対し、原子層レベルで制御したナノ構造造形技術と立体表面構造の原子オーダ 一直接観察技術により、次世代の立体デバイス実現を可能とする技術要素の確立を行った。 ドライエッチング、湿式エッチング、真空での表面処理を組み合わせた3次元立体造形手法を 構築し、表面構造計測技術である高速反射電子線回折(RHEED)、走査型トンネル電子顕微



鏡(STM)の3次元展開により垂直に切り立った立体表面である側面の原子レベルでの構造評価]を可能とした(図 6(a)-(b))。これにより、これまでは走査型電子顕微鏡(SEM)などの間接的で精度がせいぜい数 nm という側面構造のラフネス評価を、直接的にかつ原子 1 個分の 0.1 nm の精度で原子構造の観察が可能となり、3 次元立体加工技術のパラメーター制御へとフィードバックすることが出来た。その結果、世界で初めて 3 次元立体形状 Si 構造において原子レベル制御した側面構造の創製に成功した。またチャネルサイズ低下(各辺 10 nm 以下)実現のため、産業総合研究所のグループとの共同研究によりチャネル長さ方向である電極間距離を数十 nm サイズまで縮めたナノギャップ電極の作製に成功した(図 6 (c))。



研究テーマ(C):室温動作 steep slope デバイス動作の実 証

SmNiO₃ (SNO)をチャネル、イオン液体をゲート絶縁体 としたトランジスタでは、SNO の酸化還元反応に由来し た多段階不揮発的な抵抗変調が確認される。ワイドレン ジでの精密な抵抗変調のために、電圧印可条件: V(電 圧の大きさ: Vg, デバイス温度: T, 電圧印可時間: t)に依 存した抵抗変調率を系統的に調べた(図 7(a))。酸化還元 反応と抵抗変調率の定量的関係を解明し、精密制御に 必要なパラメーターの同定を行うことで電圧印加条件 V(Vg, T, t)の選択により1桁から4桁に及ぶワイドレン ジで不揮発的な抵抗変調を精密に制御することに成功 した(図 7(b))。またチャネルサイズ低減により抵抗変調に 必要なゲート電圧が大幅に低減(3 V→1 V)することが分 かった。10-100 nm サイズの電子相であることに起因す ると考えており、ナノ細線チャネルデバイス化への有用 な指針となる。

3. 今後の展開

これまで3次元構造の立体的な表面である側面構造を原子レベルで観察する手法は皆無 であり、3次元側面構造のサブ nm スケールでのキャラクタリゼーション法の確立と原子レベ ル制御した側面構造の創製の実証はこれまでの加工、造形、構造評価技術の常識を刷新す る卓越した成果となる。デバイスの積層土台である基板構造を2次元平坦から3次元立体構 造への転換を可能とするポテンシャルを秘めている。この3次元立体造形技術を難加工材料 であり微細化の実現が遅れている強相関金属酸化物群に適応することで機能発現の最小単 位であるナノ電子相の相転移の電界制御の実現は、これまで魅力的ではあるが操作が難し くポテンシャルが充分引き出せていなかった強相関金属酸化物に対して、その物性操作法を 実証するという先導的な立ち位置である。

目標としているナノ電子相の相転移の電界制御には、本研究で達成したチャネルサイズの 低減による単一電子相の一次相転移に由来した steep slope 動作のナノ空間中への閉じ込 めに加え、ゲート絶縁層をイオン液体から高誘電率の固体ゲート層へと転換が必要であると 考えられる。固体ゲートを介した電界効果による単一電子相の絶縁体→金属相転移を実現



する電子相制御技術の構築を達成することにより、強相関電子系酸化物材料のナノデバイス 展開が見込まれる。

4. 自己評価

当初の計画通り、ナノ造形技術の精度は 10 倍以上に向上し目標は達成した。ナノ電子相の相転移特性解明については、VO2、ReNiO3 (Re=Nd, Sm)でのナノ構造増感効果を観察、制御するなどほぼ達成できている。一方、ナノ細線デバイス作製プロセスでの予期しなかったチャネル劣化により、プロトタイプ物質(La,Pr,Ca)MnO3 での実験が長引き、最終的には中止をした。また、ゲート絶縁体として用いたイオン液体でのチャネル材料によっておこる電気化学的反応により、ナノ細線試料での高効率な抵抗変調は実現したものの、当初の計画であるナノ電子相の相転移制御までは実現に至らなかった。さきがけ領域内の共同研究により、デバイスプロセス、構造改良の指針を得ており、研究の継続によって、単一電子相の相転移の電界制御が実現できると考えている。

強相関金属酸化物を対象としたほとんどの研究はマクロサイズの試料を対象としており、そ のためナノ電子相(物性発現の最小単位)を考慮している例もあるが、直接的な制御できない 状況である。相転移や原子移動を制御することによる抵抗変化を用いた素子開発が盛んに行 われている中、電子相転移の大きさ、即ち、ナノサイズのドメイン構造と同程度の素子サイズ にした時に、その電子相転移そのものがどのように素子特性に反映されるのかについては、 議論が不十分な状況であった。本研究の意義は、酸化物の微細加工に関する技術的課題を 乗り越えることで、この疑問に答える道筋を示したところにある。課題としては、その相転移の 電界印加の時間応答に関する知見を得られていないところであるが、研究の継続により、最 新の IRDS ロードマップで提言されている、相分離を示す強相関電子系物質群のデバイス化、 例えば Mott FET 具現化、への指針を与える成果になり得る。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文) 発表

 T. V. A. Ngyuen, A. N. Hattori, M. Nagai, T. Nakamura, M. Ashida, H. Tanaka, "Electrical transport properties of (La,Pr,Ca)MnO₃ nanowires investigated using terahertz time domain spectroscopy" Journal of Applied Physics (2016) 119, 125102-1-4.

2. A. N. Hattori, S. Takemoto, K. Hattori, H. Daimon, H. Tanaka, "Methods of creating and observing atomically reconstructed vertical Si{100}, {110}, and {111} side surfaces" Appl. Phys. Express (2016) 9, 085501-1-4.

3. S. Tsubota, A. N. Hattori, T. Nakamura, Y. Azuma, Y. Majima, H. Tanaka, "Enhancement of discrete changes in resistance in engineered VO₂ heterointerface nanowall wire" Appl. Phys. Express, (2017), 10, 115001–1–4.

4. S. Takemoto, A. N. Hattori, K. Hattori, H. Tanaka, H. Daimon, "Electric transport properties for three-dimensional angular-interconnects of Au wires crossing facet edges of atomically-flat Si{111} surfaces" Jpn. J. Appl. Phys. (2018), 57, 085503-1-4.

5. A. N. Hattori, H. Nakazawa, T. Nakamura, H. Tanaka, "Fabrication of the Electric Double Layer Transistor with (La,Pr,Ca)MnO₃ Nanowall Wire Channel" Mod. Phys. Lett. B, 32 (2018)



1840058-1-7.

(2)特許出願

研究期間累積件数:0件(公開前の出願件名については件数のみ記載)

(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. A. N. Hattori *et al.*, "Construction of well-defined 3D transition metal oxides nanostructures and their novel properties" (Invited) The Collaborative Conference on Crystal Growth (2015)
- 2. A. N. Hattori *et al.*, "Construction of well-defined 3D transition metal oxides nanostructures and their novel properties" (Invited) The 18th International Conference on Crystal Growth and Epitaxy (2016)
- 3. 服部 梓、「立体側面を起点とした3次元ナノ構造造形」(招待)、第77回応用物理学会秋季学 術講演会(2015年9月)
- 4. 服部 梓ら、「THz 時間領域分光による強相関マンガン酸化物ナノ電子相の伝導特性評価」 (招待)、第 64 回応用物理学会春季学術講演会(2017 年 3 月)
- 5. A. N. Hattori *et al.*, "A discrete resistance change in the 3D nanostructured metal oxide due to the nano-confinement effect" (Invited) NanoWorld Conference-2018 (2018)

【受賞】

1.大阪大学賞(若手教員部門) 2018 年 11 月



研究報告書

「移植用培養生体組織に搭載可能なナノエレクトロニクスの創成」

研究タイプ:通常型 研究期間: 2015 年 10 月~2019 年 3 月 研究者:藤枝 俊宣

1. 研究のねらい

再生医療のような先進医療や医科学研究の高度化に向けて、患者への負担が少なく使用 可能な医療機器を開発することは、QOL(Quality of Life)の向上のため、また、QOL向上を支 えるための高精度な生体情報収集を実現するうえで重要な課題である。とりわけ先進医療を 誰もが享受できる社会の創成が期待される一方で、安心・安全な医療機器の普及に関しては 2014 年の改正薬事法施行に伴う医療機器承認プロセスの高速化に伴い喫緊の解決すべき 課題である。また、我が国の強みであるナノエレクトロニクスや有機エレクトロニクスの進展を 鑑みると、低侵襲な医療機器開発への応用が期待される。この点において、埋め込み型や装 着型デバイスを用いて無線通信による医療機器の制御・管理が可能になれば、疾病の診断 や早期発見、あるいは、日常生活環境下での低侵襲な治療が実現すると期待される。このこ とは、長期入院の回避や入院期間の短縮化に繋がり、医療費の削減にも有望である。

翻って、我々の生体組織を鑑みると、器官・組織・細胞と階層的に構成され、各階層間は細 胞外マトリックス(ECM)が繋いでいる。ECM は生体分子からなる巨大な二次元分子集合体で あり、物質拡散や力学特性を変化させることで、隣接する細胞集団の動的な情報(接着・移 動・増殖・分化)を伝達する役割を果たす。これに対して、我々は高分子の自己組織化や微細 加工技術を駆使することで、人工系において ECM レベルの超薄性(膜厚:数十〜数百ナノメ ートル)を再現し、医療用途の自己支持性高分子ナノ薄膜を技術体系化してきた。また、高分 子ナノ薄膜の柔軟性と密着性を利用すれば、生体組織の物性に適合可能な「柔らかい」エレ クトロニクスの創製が期待される。

そこで、本研究では高分子ナノ薄膜と機能性インクの印刷技術を融合させることで、生体貼 付型デバイスの創製を目指した。すなわち、印刷技術を用いて機能性ナノ薄膜を開発し、これ を生体環境下でも作動できるように表面改質することで、生体機能の計測や制御を試みた。 具体的には、①高分子の自己組織化と印刷技術を融合させることで、機能性ナノ薄膜の製造 方法について検討した。次に、②ナノ薄膜上への電子回路や機能性分子の実装および生体 環境下での動作性を評価した。最終的には、③各種ナノ薄膜による生体機能の計測・制御実 験を通じて、医療応用に向けた素材・デバイス・システムのそれぞれに係る要件を検証した。

2. 研究成果

(1)概要

IC や LED に代表されるエレクトロニクス産業は成熟の途を極めており、小型かつ高性能な 素子を容易に入手できる時代になった。とりわけ医科学研究の高度化に向けて、患者や動物 に低侵襲に使用可能な医療機器の開発において、ナノエレクトロニクスの果たす役割は極め て大きい。例えば、生体外からの医療機器の情報制御や管理が実現すれば、埋込型(インプ



ランタブル)や装着型(ウェアラブル)医療・ヘルスケアデバイスへの応用が期待される。

このような背景のもと、本研究では、硬いエレクトロニクスと柔らかい生体を繋ぐための「インターフェース」として高分子ナノ薄膜の利用を想起し、高分子ナノ薄膜と印刷技術を組み合わせることで、身体に取り付けて生体機能を計測・制御可能なデバイス(『プリンテッドナノ薄膜』と命名)の創製を目的とした(*Biomater. Sci.*, in press (2019).)。具体的には、研究テーマA: 生体接着性ナノ薄膜の開発と光がん治療への応用、B:ナノ薄膜からなる神経電極の開発、 C:ナノ薄膜状アンテナコイルからなる無線式発熱デバイスの開発、および、D:ナノシート温度計を用いた *in vivo* 生体イメージングについて取り組んだ。

下記の研究成果は、来るべき再生医療社会に向けて、手術、在宅療養、社会復帰後まで 生体機能を維持・管理可能な医療機器開発における基盤技術になるものと期待される。



(2)詳細

研究テーマA「生体接着性ナノ薄膜の開発と光がん治療への応用」

本研究では、生体模倣型高分子であるポリドーパミンを表面修飾した生体接着性ナノ薄膜を開発し、光がん治療(光線力学療法:PDT)への埋め込み型発光デバイスの有用性を示した(特許出願)。生体接着性ナノ薄膜(PDMS 製)にて封止した近距離無線(NFC)発光式 LED(赤・緑)チップを、がん細胞を皮内に移植した 担腫瘍モデルマウスの皮下に貼付した(図1)。マウスケージ下に設置した無線給電用アンテナ(13.56 MHz)を用いることで、マウス体内に埋植した LED チップを点灯できることを確認した。次に、PDTで用いられる光増感剤(フォトフリン, 8 mg/kg)を投与し、10 日間連続的に腫瘍に光照射した際の腫瘍サイズの変化を計測した。フォトフリン投与群において、埋植した LED 光源による局所的 光照射が、高い治癒効果を示すことが明らかとなり、緑光源の場合は腫瘍10 個中 6 個、赤光源の場合は 10 個中 1 個が根治し潰瘍化させることに成功した(*Nat. Biomed. Eng.*, **3**, 27–36 (2019).)。



図1 光がん治療の概念 と生体接着性ナノ薄膜を 用いて無線 LED チップを 埋め込んだ担腫瘍マウス (論文2を改編して引用).

本研究の特筆すべき点として、①今回使用した緑および赤色 LED の光強度(< 100 μ W/cm²)は、従来の PDT で用いられているレーザー光の光強度(> 100 mW/cm²)の 1000 分 の1であったこと、②従来の PDT では、組織透過性が低いことから検討されてこなかった緑光 源を用いて抗腫瘍効果を示せたことが挙げられる。組織接着性ナノ薄膜を利用した埋め込み



型発光デバイスによる「低出力・長時間」光線力学療法であるメトロノーミック PDT(mPDT)は、 過度のレーザー光照射による組織温度の過剰上昇や周囲臓器の熱障害に伴う副作用を防ぐ だけでなく、光の波長依存的な組織透過性の問題も克服できるため、難治性の深部がんに対 する PDT の適用範囲の拡大が期待される。

研究テーマB「ナノ薄膜からなる神経電極の開発」

脳組織に対して神経電極の低侵襲な穿刺を目指す べく、柔らかい高分子ナノ薄膜とインクジェット印刷技術 を組み合わせることでフレキシブルな神経電極を開発 した(図2)。ナノ薄膜表面にインクジェット印刷にて微細 配線(幅約 50 μm)を印刷した。この時、ナノ薄膜の柔軟 性を利用して、電極先端部を螺旋状にねじることで、厚 さ6 µm, 幅 3 mm のシート形状を直径 200-300 µm の針 状に成型し、脳内に穿刺可能な固さに加工した(図2)。



クタブル神経電極.

次に、針先端部に電極構造を形成するため、刃物(例:ハサミ・カミソリ)による電極作製法 を利用して微小電極の露出を試みた(幅約 100 µm, 厚さ約 120 nm)。この時、神経電極のイン ピーダンスは800 kΩ-3 MΩ (at 10 Hz)であり、単一神経細胞の計測に求められる値が得られ た。次に、神経電極をラット脳内に穿刺し、単一神経細胞の in vivoスパイクを計測した。マイク ロ CT にて脳内の電極構造を観察したところ、針状の電極構造を維持したまま脳内に留まる 様子が認められた。さらに、オプトジェネティクスに向けて、直径 500 µm の光ファイバにシート 状神経電極を巻き付けることで、神経細胞への光刺激と活動電位のその場計測が可能なオ プトロードを開発した。ChR2 発現ラットの海馬部に穿刺し、青色光 (波長:470 nm)にて光刺激 したところ、誘起された単一神経細胞の in vivo スパイクを計測することに成功した (ACS Appl. Bio Mater, in press (2019).)

研究テーマC「ナノ薄膜状アンテナコイルからなる無線式発熱デバイスの開発」

電磁誘導や共振現象を利用して金属コイル に起電力を生じさせる無線給電は、導線を媒介 することなくデバイスへの電力供給を可能にす る電力伝送技術である。

本研究では、層状物質であるグラフェンフレ ークに着目し、ガラス基板上にインクジェット印 刷にてグラフェンフレーク、次いで、金ナノイン クを積層させたアンテナコイルを形成した。次 に、ガラス基板からアンテナコイルを支持膜法 にてポリ乳酸ナノ薄膜(膜厚 182 nm)に転写す ることで、柔軟性を有する薄膜状アンテナコイル(総膜厚: < 2 μm)を作製した(図3)。



図3 生体組織に搭載可能なナノ薄膜状アンテナ コイルと無線給電による加熱

この時、ファンデルワールスカで堆積するグラフェンフレーク層が分離することにより、印刷 配線が導電性を維持したままガラス基板からナノ薄膜に転写される現象を見出した(特許出 願・論文準備中)。次に、薄膜状アンテナコイルにチップ LED を搭載することで薄膜状の発光



デバイス(共振周波数: 33.0 MHz)を作製した。デバイスは柔軟性に優れ、折り曲げた状態でも 無線給電(20 Vp-p, 30 MHz)にて青色 LED を点灯できた(放射照度 1.22 W/m², 給電距離 3 mm)。また、印刷配線のみを用いて回路を閉じることで、無線給電式の発熱デバイスを開発し た。このデバイスを PDMS 薄膜にて封止したところ、生体組織表面(肝臓)で作動させることに も成功した(発熱温度:43°C)。本研究は、生体内への光源の設置や生体外からの無線通信 による薬剤徐放制御・センサ作動にも有用な技術であり、次世代の診断・治療用デバイスへ の応用が期待される。

研究テーマD「ナノシート温度計を用いた in vivo 生体イメージング」

細胞・組織・器官(臓器)から構成される生体 システムの統合的な理解には、生体特有の物 理的・機械的性質に馴染んで生体情報を計測 するイメージングツールの開発が不可欠であ る。そこで、ナノシートの構成素材に温度感受 性色素と非感受性色素をそれぞれ導入するこ とで、筋組織の発熱をマッピング可能な「ナノシ ート温度計」を開発した。

具体的には、温度感受性色素である Eu-tris (dinaphthoyImethane)- bis-trioctyIphosphine



図4 温度計ナノシートを用いた昆虫筋肉組織の 温度マッピング(論文4を改編して引用).

oxide (EuDT)と温度非感受性色素であるローダミン 800 (Rho800)をそれぞれ担持した 2 枚の ナノシートを製膜した(各膜厚: 160 nm)。各ナノシートを重ね合わせて対象とする生体組織に 貼付することでレシオメトリック型のナノシート温度計を開発した(図4)。このナノシート温度計 をカブトムシ(Dicronorrhina derbyana)の背部筋肉(飛翔筋; dorsal longitudinal muscle (DLM)) に貼付し、蛍光実体顕微鏡下にて EuDT および Rho800 の蛍光像を別々取得してレシオメトリ ックな処理を施すと温度の分布がリアルタイムで計測できた。カブトムシに飛翔行動を促した ところ、筋繊維によっては最大でおよそ 5°C 近くの発熱が飛翔前に起きていることが明らかと なった。また、ナノシートの発光変化を通じて細胞数個から組織全体までを同視野内で計測で きた(ACS Appl. Mater. Interfaces, 8, 33377-33385 (2016).)。

感受性色素の種類は温度以外にもナノシートを構成する高分子と相溶する条件を満たせ ば良いので、ナノシートと色素の組み合わせによって、酸素、pH や代謝物など様々な物理化 学的情報を生体組織上でイメージングする新しいセンサが期待される。

3. 今後の展開

本研究を通じて、「プリンテッドナノ薄膜」という基盤技術を構築できたので、今後は「生体と 機械の融合」を目標に、ナノエレ研究者(センサ・無線計測)や情報科学(ICT)分野の研究者と 連携して分野横断型の研究に挑戦したい。また、埋め込み型デバイスは生体内という特殊な 環境中(湿潤, pH, イオン, 体温)で安全に作動する必要があるため、エレクトロニクスを生体内 に実装するための要素技術開発(防水・電源・無線)は引き続き JST 内でも検討すべき課題と 考えられる。



4. 自己評価

【研究目的の達成状況】

本研究では、プリンテッドエレクトロニクスと高分子ナノ薄膜を組み合わせることで、生体組 織に取り付けて作動可能なデバイス(生体計測・治療・給電・通信技術)の開発を目的とした。 研究計画は概ね順調であり、「プリンテッドナノ薄膜」という生体とデバイスの融合技術を構築 し、①生体接着性ナノ薄膜の開発と光がん治療応用、②ナノ薄膜からなる神経電極の開発、 ③ナノ薄膜状アンテナコイルの開発という具体的な成果物が特許出願や論文発表を通じて 生まれた。特に、当該デバイスの医療応用に踏み込むことで、がん治療分野における無線給 電式発光デバイスの有用性を示し、*Nature Biomedical Engineering* 誌での論文発表や JST からのプレスリリース:「世界初の光がん治療用埋め込みデバイス」に至った。さらに、本研究 は埋め込み型デバイスだけでなく、スポーツ科学向けの装着型(ウェアラブル)デバイスにも 有用であることを見出し、生体と機械の融合技術の開発がより一層進むものと期待される。

【研究の進め方(研究実施体制及び研究費執行状況)】

さきがけ研究期間を通じて、独立して研究を実施できる体制であった。特に、早稲田大学 先進理工学部生命医科学科武岡研究室の大学院生に参加してもらった点は研究遂行の上 で非常に大きな支援となった。また、期間を通じての研究費は潤沢な状況にあり、必要に応 じて追加支援制度を利用することで、研究遂行に必須となる装置類を調達できた。

【研究成果の科学技術及び社会・経済への波及効果】

本研究を通じて、「プリンテッドナノ薄膜」という基盤技術を構築できたので、今後は生体と 機械の融合を目標に、ナノエレ研究者(センサ・無線計測)やICT分野の研究者と連携するこ とで、CREST研究にも展開してゆきたい。とりわけ、埋め込み型デバイスのように生体と機械 (デバイス)が接する界面には、材料・デバイスの設計論や生体反応の制御も含めて整備す べき課題が数多くあり、多様な研究者の参画が求められる。この点において、今後はソフトロ ボティクスのような柔らかい生体を対象とする素材・デバイス・システムの開発が必要になる と考えられ、潜在的に産業的利用価値の高い科学技術が生まれるものと予想される。

5. 主な研究成果リスト

(1)論文(原著論文)発表

- Yamagishi, K., Takeoka, S., <u>Fujie, T.*</u>(Corresponding). Printed Nanofilms Mechanically Conforming to Living Bodies. *Biomater. Sci.*, in press (DOI: 10.1039/C8BM01290C). Themed Collection: *Biomaterials Science Emerging Investigators 2019.*
- Yamagishi, K., Kirino, I., Takahashi, I., Amano, H., Takeoka, S., Morimoto, Y.*, <u>Fujie,</u> <u>T*(Corresponding)</u>. Tissue-adhesive wirelessly powered optoelectronic device for metronomic photodynamic cancer therapy. *Nat. Biomed. Eng.*, 3, 27-36 (2019). Highlighted by "*EurekAlert!*".
- Kokubo, N., Arake, M., Yamagishi, K, Morimoto, Y., Takeoka, S., Ohta, H., <u>Fujie,</u> <u>T.*(Corresponding)</u>. Inkjet-Printed Neural Electrodes with Mechanically Gradient



Structure. ACS Appl. Bio Mater., in press (DOI: 10.1021/acsabm.8b00574).

- Miyagawa, T., <u>Fujie, T.*</u>(Corresponding), Ferdinandus, Vo Doan, T. T., Sato, H.*, Takeoka, S.* Glue-free stacked luminescent nanosheets enable high resolution ratiometric temperature mapping in living small animals. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 8, 33377-33385 (2016). Highlighted by "ACS Editors' Choice".
- <u>Fujie, T.*</u>(Corresponding). Development of free-standing polymer nanosheets for advanced medical and health-care applications. *Polym. J.*, 48, 773-780 (2016). Focus Review Collection and Selected for Cover Art.

(2)特許出願

研究期間累積件数:8件(公開前の出願件名については件数のみ記載) 1. 発明者:藤枝俊宣,鉄祐磨,小久保奈々,武岡真司 発明の名称:生体用電極および生体用電極の製造方法 出願人:早稲田大学 出願日:2017/9/1 出願番号:特願2017-168271

2

発明者:藤枝俊宣,山岸健人,佐藤信孝,高橋功,武岡真司発明の名称:高い接着性を有する非水溶性自立性薄膜
出願人:早稲田大学
出願日:2017/4/25
出願番号:PCT/JP2017/16283

3.

発明者:藤枝俊宣,宮川拓也,山岸健人,武岡真司,新井敏,鈴木団,佐藤 裕崇, VO DOAN Tat Thang, Ferdinandus

- 発明の名称:超薄膜光ルミネッセンスセンサー
- 出 願 人: 早稲田大学·南洋理工大学
- 出願日: 2016/10/28
- 出 願 番 号: PCT/JP2016/82056

(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(海外招待講演リスト)】

- [1] <u>Fujie, T.</u> Ultra-Flexible Polymer Nanosheet for Bio and Electronics Applications, First International Conference on 4D Materials and Systems. (2018.8.29., Yonezawa).
- [2] <u>Fujie, T.</u> Polymer Nanosheets as Flexible Building Blocks for Bio-Hybrid Systems, The 40th Annual International Conference of the IEEE Engineering in Medicine and Biology Society (EMBS). (2018.7.17., Honolulu).
- [3] <u>Fujie, T.</u> Development of Printed Nanofilms for Bio-Integrated Devices, 35th International Conference of Photopolymer Science and Technology (ICPST). (2018.6.28., Makuhari).
- [4] <u>Fujie, T.</u> Printed Nanofilms for Biomonitoring Technologies, International Conference on Molecular Electronics and Devices (IC ME&D 2018). (2018.5.11., Daegu).



[5] <u>Fujie, T.</u>, Free-Standing Polymer Nanosheet for Bio-Monitoring Technologies. LbL 2017 Conference (2017.6.18., Seoul).

【受賞】

- [1] 平成 30 年度科学技術分野の文部科学大臣表彰 若手科学者賞:「プリンテッドナノ薄膜の創製と生体計測制御に関する研究」(2018 年 4 月 10 日).
- [2] 日本バイオマテリアル学会 2017 年度バイオマテリアル科学奨励賞:「生体計測・制御シ ステムに向けたプリンテッドナノ薄膜の創製」(2017 年 11 月 20 日).
- [3] 一般財団法人田中貴金属記念財団 貴金属に関わる研究助成金(萌芽賞):「オプトジェ ネティクスに向けた無線給電式インジェクタブル発光デバイスの開発」(2016 年 3 月 31 日).

【著作物】

[1] Yamagishi, K., Taccola, S., Takeoka, S., <u>Fujie, T.</u>*(Corresponding), Mattoli, V.*, Greco, F.* (2018) Conductive Nanosheets for Ultra-Conformable Smart Electronics (ch. 11), in Flexible and Stretchable Medical Devices (eds Takei, K.), Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim, Germany. pp.253-285.

【プレスリリース】

- [1] JSTプレスリリース,シールのように貼れる無線給電式発光デバイスを用いた光がん治療システム~生体内の暗闇に光を灯す新技術:次世代型光がん治療として期待~(2018 年7月14日). 日経産業新聞・日刊工業新聞・EurekAlert などに掲載
- 【ニュースレター】
- [1] 藤枝俊宣. 高分子ナノ薄膜による生体電子化技術の開発. さきがけニュースレター, 4, 13-14 (2018).



研究報告書

「ナノカーボン光・電子量子デバイス開発と量子暗号通信応用」

研究タイプ:通常型 研究期間: 2015 年 10 月~2019 年 3 月 研究者:牧英之

1. 研究のねらい

近年の情報化社会の急速な進展に伴って、様々なサービスや機器がインターネットを介し て行われる時代となり、従来にも増して、高いセキュリティーを確保した情報通信が要求される 新たな時代を迎えた。このようなセキュリティーを確保する重要な要素として暗号通信がある が、現在の暗号化技術は、量子コンピュータの実現により破られてしまう可能性があり、より安 全な暗号通信の実現が急務とされている。このような中、高いセキュリティーを有する暗号化 技術の一つとして、量子暗号通信が注目されている。量子暗号通信は、光の最小単位である 光子一個に情報を乗せることで絶対的に安全な暗号通信を実現する技術であり、量子力学に 関する基礎研究分野だけではなく、実用化可能な光通信技術として近年注目されている。

量子暗号通信の実用化には、光ファイバー低損失領域(通信波長帯)である波長 1.3mm 帯 や 1.55mm 帯での長距離単一光子伝送を行うため、効率よく確実に単一光子を発生させる単 一光子源が望まれている。このような単一光子発生源としては、半導体量子ドットやダイヤモ ンド中欠陥(NV 中心)などが報告されている。しかし、化合物半導体では 10K 程度の極低温で のみでしか動作しないことから高コストの冷却が必要となっていること、GaN 系や NV 中心では、 波長が可視域であり通信波長帯での発光は得ることが出来ない、といった問題を抱えており、 室温かつ通信波長帯での単一光子発生は実現できていない。一方、我々は、最近になり、カ ーボンナノチューブを用いることで、「室温・通信波長帯」において単一光子発生が可能である ことを世界で初めて示した。この成果は、カーボンナノチューブに限らず全ての物質系を含め ても世界で初めて「室温・通信波長帯」を実現した成果であり、カーボンナノチューブが量子暗 号通信に対して極めて有利な材料系であることを示した決定的な成果である。そこで本研究で は、申請者のこれらの成果をさらに進展させ、カーボンナノチューブやグラフェンといったナノカ ーボン材料を用いて、室温・通信波長帯における高効率な単一光子発生技術の構築、ナノカ ーボン材料とシリコンフォトニクスとの融合による高集積光デバイス技術構築、シリコンチップ 上量子光デバイス開発に関する研究を進めた。これにより、従来の固体半導体材料系では実 現できない、ナノカーボンデバイス独自の量子光デバイスの開発を目指した。

2. 研究成果

(1)概要

本研究では、低次元ナノカーボン材料として知られるカー ボンナノチューブやグラフェンを用いることで、室温かつ光 通信波長帯で動作可能な単一光子光源や量子暗号に向 けた要素技術となる光デバイスを提案する。ここでは、光 励起・電流注入による高効率・高歩留りの室温・通信波長



図1単一光子発生の概念図



帯単一光子発生技術を構 築するとともに、光ファイバ ー・共振器・導波路との融 合デバイスの開発、ナノカ ーボンー超伝導体複合デバ イスによる単一光子検出器 開発を進めた。これによ り、高効率の単一光子送受 信用デバイス開発やチップ 化を進めて、超小型・超高 速・低コストの量子暗号通 信技術に貢献することを目 指して研究を進めた。



図2 本研究概要

我々は、これまでの研究で、カーボンナノチューブを用いることで、「室温・通信波長帯」にお いて単一光子発生が可能であることを世界で初めて示し、カーボンナノチューブが量子暗号 通信に対して極めて有利な材料系であることを示してきた(図 1)。本研究では、申請者のこれ らの成果をさらに進展させ、より高効率な単一光子発生技術の構築を行い、光励起や電流駆 動での高い歩留りでの単一光子光源を実現する方法を提案するとともに、シリコンチップ上で のナノカーボン高集積光デバイスを実現することを目指した(図 2)。さらに、チップ上での量子 デバイス実現を目指し、ナノカーボンをテンプレートとした極細超伝導ナノワイヤーを開発し、 シリコン上での低次元超伝導特性の観測とその量子応用と目指して研究を進めた。本研究で は、シリコンチップ上でのナノカーボン光源開発、ナノカーボンテンプレートによる超伝導ナノ ワイヤー開発等に成功したが、これらの詳細を下記に示す。

(2)詳細

【シリコンチップ上でのナノカーボン光源開発】

本研究では、シリコンチップ上での光集積デバイス開発とそれによる光通信技術の構築を 目指して研究を進めてきた。その中でも、光集積デバイスの中心的な役割を果たすものが光 源技術であるが、本研究の目標である量子暗号技術といった光通信技術において、ナノカー ボン材料を用いた光源技術が光通信に用いることが可能であることを実証することは、最重 要課題である。そこで本研究では、シリコンチップ上にナノカーボン光源を集積する技術を構 築し、それらが量子光技術や光通信技術に応用可能であることを実証することを目指した。

本研究では、シリコンチップ上での光源として、グラフェンを用いた超小型・超高速な黒体放 射光源開発を行った。特性インピーダンス 50Ωに設計したコプレーナ導波路を用いた グラフェンデバイスを作製した。この発光 素子では、グラフェンに電圧を印加するこ とにより、通電加熱に伴う黒体照射により グラフェンから発光が得られた(図 3)。さら



図3 グラフェン光源の構造と発光の様子



に、本素子に対して、高速変 調した電圧信号を入力して 発光させ、発光素子の高速 応答性を評価したところ、グ ラフェンの層数に依存して図 4 に示すような高速な発光特 性が得られ、数 GHz 程度で 高速変調可能であることを実 験的に示した。このような高 速応答性の理論的モデルの 構築を進めた結果、この高



図4発光の高速応答性の実験とシミュレーション結果

速な発光は、従来の古典的な熱輸送モデルに基づく発光機構では説明することができないことを示し、これまで知られていなかった表面極性フォノンを介した量子的な遠隔熱輸送が発現していることを新たに発見し、この特異な熱輸送によって GHz オーダーの超高速のグラフェン黒体放射光源が可能であることを見出した(図 5)。また、このモデルに基づ

いて、発光素子性能のグラフェン層数依存性の理論的な解明も 進めた結果、グラフェン-基板間の接触熱コンダクタンスの違いに よって発光性能が異なることを理論的に示すことにも成功した (図 4)。

また、本研究では、ナノカーボン光源を用いた光通信実証実験 も行った。上記のグラフェン光源を用いて、通常の光通信で用い られているフォトレシーバーを利用してリアルタイムの光通信実 験を行ったところ、図6に示すように、1Mbpsでの光通信に成功し

た。この光源自体は、時間分解測定で 1GHz での 連続変調が可能であることも示されていることから (図6下図)、1GHz 程度での光通信も可能であるこ とが示唆される。また、従来の化合物半導体の光 源では実現できないような、シリコンチップ上での 超高集積光源の実現を目指したところ、図7に示す ように、ピッチ 3µm での高集積アレー光源を実証し

た。これは、ナノカーボン材料の優れた微細加工性に起因して、従来の化合物半導体での発 光素子と比べると、少なくとも 100 倍程度の高集積化が容易に実現できることを示している。 また、ナノカーボン黒体放射光源は、酸素との反応を避けるために通常の測定は真空中で行 っていたが、実用上は大気中動作が望まれるため、原子層堆積装置(ALD)によりアルミナキ ャップ層を設けて大気中動作可能な発光素子作製も試みた。その結果、図 8 に示すように、 大気中でも長時間発光特性が変わらず、安定に大気中動作可能な発光素子開発に成功し た。さらに、このような大気中動作素子が得られたことから、図 8b に示すような、光ファイバー とのダイレクトな結合も可能になったため、レンズ等の光学素子を用いない、ダイレクトな光



図5新しい熱輸送モデル



図 6 光通信実験



図7 グラフェンアレー光源



ファイバー結合を試みた。その結果、本素子が光フ ァイバーのコア径よりも小さいことを利用して、発光 素子に光ファイバーを接触させるだけで、ダイレクト に光結合可能なことを示した(図 8c)。

以上のように、従来の化合物半導体では難しいシ リコンチップ上での高集積光源技術を構築し、超高 速で高集積な光源をシリコンチップ上で実現し、実 際に光通信、大気中動作、光ファイバーダイレクト 結合、アレー化を実証した。本技術は、現在、次世 代光技術として注目されているシリコンフォトニクス への応用や、量子暗号通信用チップ開発を可能と する基本技術であり、今後、ナノカーボン材料が光 通信技術に応用可能であることを示した。



図8 大気中動作の発光の様子と光 ファイバーのダイレクト結合実験

以上のようなナノカーボン光素子とその応用に関しては、Nature Communications などの論 文への掲載、特許申請、招待講演、プレスリリースを行った。^{1,3}

【ナノカーボンテンプレートによる超伝導ナノワイヤー開発】

超伝導体は、マクロなサイズの量子現象に由来するものであることから、比較的大きなデバ イスサイズでも量子現象が発現し、量子コンピュータなどの次世代量子デバイスで主役となっ

ているが、超伝導体をさらに微細化してナノメートル オーダーとした場合、これまでのマクロな超伝導体 では知られていない新しい超伝導の量子現象が現 れ、新しい量子物理現象の観測や、高感度単一光 子光検出といった量子デバイス開発が可能となる。 しかし、超伝導体として知られる多くの材料は、半導 体デバイスと比べて微細化が困難であり、量子現 象が発現する 10 ナノメートルオーダーの低次元構 造を容易に得られないことが、低次元ナノワ イヤーを用いた量子デバイス開発を阻む障 害となっている。本研究では、架橋したカーボ ンナノチューブをテンプレートとして超伝導材 料である窒化ニオブを成長し、カーボンナノチ ューブ上に最小で約10nm幅の極細超伝導ナ ノワイヤーを形成することに成功した(図 9)。 この超伝導ナノワイヤーを電子デバイス化し Q 10 10¹ て測定したところ、低温にするほど超伝導状 熊が壊れて抵抗が上がるという超伝導ー絶縁 体転移や磁束が超伝導ナノワイヤーを横切 ってトンネルするという量子位相スリップなど





の、マクロな超伝導体では現れない特異な超伝導量子現象の観測に成功した。 以上のようなナノカーボン光素子とその応用に関しては、論文への掲載、招待講演、プレスリ リースを行った。⁵

3. 今後の展開

本研究では、ナノカーボン材料を用いることで、単一光子発生技術構築、発光素子などの 光源開発やシリコンチップ上光デバイス集積、光通信素子開発、超伝導ナノワイヤーを用いたチ ップ上量子デバイス開発を行った。これらの技術は、室温・通信波長帯で動作するシリコンフォト ニクス、シリコン上光集積回路、チップ上量子暗号素子開発を可能とする要素技術であり、今後、 集積ナノカーボン光デバイスが、シリコンテクノロジーと融合して、安全な情報通信技術の構築と それによる安全・安心な社会に貢献することが期待される。

4. 自己評価

【研究目的の達成状況】

本研究の研究開始の目標としていたナノカーボン光素子開発に関しては、目標の成果はほ ぼ得られており、目的は達成された。また、目標以上の成果も多く得られ、ナノカーボン光源に よる光通信実証により、Nature Communications などのハイインパクト誌にも掲載されたり、応 用物理学会講演奨励賞を受賞するなど、専門家から評価されるとともに、多くの特許申請も行 うことができたことから、学術的・産業的にナノカーボン光デバイスの有用性を示すことが出来 た。

【研究の進め方(研究実施体制及び研究費執行状況)】

本研究は、研究代表者を中心に研究が進められ、スムーズに研究が進み多くの成果が得られた。また、適宜学生からもサポート受けて、効率的研究を進めることができた。予算も有効に利用し、素子開発や測定に必要な物品を適切に購入して、効率よく研究を進めることができた。

【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)】

本研究により、ナノカーボン素子とシリコンテクノロジーの融合技術を実演したことから、シ リコンチップ上の集積ナノカーボン素子が開発可能であるともに、単一光子技術を集積した 量子素子も開発可能となると期待される。特に、ナノカーボンデバイスは、化合物半導体とは 異なり、「室温」「通信波長帯」で動作することから、現在の高価な量子暗号装置に変わり、ワ ンチップで一般人も利用可能な量子暗号システムを提供することが可能となり、今後実現が 必要とされている量子暗号技術の一般への普及に大きく貢献する。特に、本研究では、シリ コンチップ上に出動するグラフェン光源を開発することで、ナノカーボン光源を用いた光通信 を世界で初めて実証しており、シリコンチップ上ナノカーボン光源が光通信に応用できること を示すことに成功した。

また、ナノカーボン研究領域への波及効果も大きく、ナノカーボン材料の特異な低次元物



性を利用して、従来の固体半導体では実現できない高性能化や新規機能デバイス開発が期 待される。特に、ナノカーボン材料は、電子デバイス分野では実用化が遅れているのが現状 であるが、ナノカーボンでしか実現できない物性・機能を明らかにしていくことが、次世代の光 デバイス・電子デバイス用材料としてナノカーボンを実用化するためには重要であると考えら れ、その意味で、本研究のナノカーボン光素子は、ナノカーボン材料研究分野への波及効果 も極めて大きい。

本研究の成果により、今後、単一光子技術を非冷却で安価に構築することが可能となるこ とに加えて、新たな量子暗号配信システムの提案や、量子暗号を広く一般に普及するための ブレイクスルーとなる。情報化社会の進展によりネットワーク化が益々拡大しており、機密情 報管理・電子商取引・電子金融サービスなどの高いセキュリティー分野で量子暗号配信技術 が広く普及することで、ナノサイエンスが安全・安心なネットワーク社会の実現に貢献すること を示すことが出来る。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文) 発表

[1] T. Kumagai, N. Hirota, K. Sato, K. Namiki, <u>H. Maki</u>, and T. Tanabe, Saturable absorption by carbon nanotubes on silica microtoroids, *J. Appl. Phys.*, 123, 233104 (2018).

[2] Hongyu An, Satoshi Haku, Yusuke Kanno, Hiroyasu Nakayama, <U>Hideyuki Maki</U>, Ji Shi, and Kazuya Ando, Manipulation of spin-torque generation using ultrathin AU, Phys. Rev. Applied 9, 064016 (2018).

[3] K Yamada, M Yamada, <u>H Maki</u> and K M Itoh, Fabrication of arrays of tapered silicon micro-/nano-pillars by metal-assisted chemical etching and anisotropic wet etching, Nanotechnology, 29, 28LT01 (2018).

[4] Y. Miyoshi, Y. Fukazawa, Y. Amasaka, R. Reckmann, T. Yokoi, K. Ishida, K. Kawahara, H. Ago, <u>H. Maki</u>, High-Speed and on-Chip Graphene Blackbody Emitters for Optical Communications by Remote Heat Transfer, *Nature Communications*, 9, 1279 (2018).

[5] Hongyu An, Takeo Ohno, Yusuke Kanno, Yuito Kageyama, Yasuaki Monnai, <u>Hideyuki Maki</u>, Ji Shi, Kazuya Ando, Current-induced magnetization switching using an electrically insulating spin-torque generator, *Science Advances*, 4, 2250 (2018).

[6] K. Masuda, S. Moriyama, Y. Morita, K. Komatsu, T. Takagi, T. Hashimoto, N. Miki, T. Tanabe, and <u>H. Maki</u>, Thermal and Quantum Phase Slips in Niobium-Nitride Nanowires Based on Suspended Carbon Nanotubes, *Appl. Phys. Lett.* 108 (2016) 222601.

(2)特許出願

研究期間累積件数:7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]【招待講演】O<u>Hideyuki Maki</u>, "Nanocarbon Based Light Sources and Detectors for Integrated Optoelectronics", THE 24TH INTERNATIONAL DISPLAY WORKSHOPS (IDW '17), Sendai, 2017 年 12 月

[2]【招待講演】〇<u>Hideyuki Maki</u>, "Nanocarbon-based light emitters for optical communications", Optoelectronics and Communication Conference/International Conference on Photonics in Switching (OECC/PS 2016), Nigata, 2016 年 7 月

[3] 【招待講演】〇<u>牧英之</u>,「ナノカーボンを用いた光電子デバイス開発」,電子情報通信学会 2018 年総合大会, 2018 年 3 月.

[4] 【招待講演】〇<u>牧英之</u>,「ナノカーボンによるチップ上量子デバイス・光電子デバイス開発」第65 回応用物理学会春季学術講演会,2018年3月.

[5] 【招待講演】〇<u>牧英之</u>,「集積光・電子デバイスおよび光通信に向けたナノカーボン光源開発」, 第 50 回 FNTG 総合シンポジウム(2016) 東京大学, 2016 年 2 月 計、30 件

【受賞】

[1] 第45回(2018年秋季)応用物理学会講演奨励賞、Siチップ上での高速・高集積グラフ エン黒体放射発光素子、深澤 佑介,三好 勇輔,天坂 裕也,レックマン ロビン,横井 智 哉,河原 憲治,吾郷 浩樹,<u>牧 英之</u>

【著作物】

[1] <u>牧英之</u>、他(共著)、シリコンチップ上超小型 CNT 発光素子開発、カーボンナノチューブ・ グラフェンの応用研究最前線、株式会社エヌ・ティー・エス、第 2 編、第 5 章、第 4 節、pp. 365-370、(2016).

[2] <u>牧英之</u>、他(共著)、次世代量子暗号技術動向、Yano E plus、矢野経済研究所、105、 63-65、(2016).

【プレスリリース等】

2018 年 4 月 4 日、Optics.org、「Japanese researchers develop high-speed, on-chip graphene blackbody emitters」

2018 年 3 月 29 日、プレスリリース(慶應義塾大学)、「シリコンチップ上のグラフェン高速発 光素子を開発 ーチップ上光集積素子へ新たな道-」

2016 年 12 月 1 日、日刊工業新聞、 「グラフェン光検出器を開発-1 個で広域波長帯に対応, シリコン光回路の小型化へ」

2016 年 6 月 8 日、日刊工業新聞、「慶大など、超電導ナノワイヤで特異現象-量子デバイス 開発に道」

2016 年 6 月 1 日、プレスリリース(慶應義塾大学)、「カーボンナノチューブをテンプレートとし た世界最小クラスの超極細超伝導ナノワイヤーを実現-様々な材料系で超伝導量子デバイ スをシリコンチップ上で作製可能に-」

計 16 件



研究報告書

「電界書込み型の超低消費電力磁気メモリの開発」 研究期間: 2015年10月~2019年3月 研究者: 吉村 哲

1. 研究のねらい

超大容量・低消費電力稼働型の磁気メモリ(レーストラックメモリ)における、低消費電力書 込みを可能にする電界書込み方式の実現を最終目的とし、強磁性・強誘電薄膜(電界書込み 素子に相当)と垂直磁気異方性を有する強磁性金属薄膜(ワイヤー状記録媒体に相当)から なる2層積層膜を作製し、それに電界のみを印加することで強磁性・強誘電薄膜の磁化方向 の変化を介して強磁性金属薄膜の磁化方向を反転(磁気転写)させるデモンストレーションを 行うことを、本研究のゴールに位置付けている。尚、磁化反転の検証においては、静的な変化 のみならず、電界に対する磁化の動的な変化を観測することを目標としている。

そのために、

A-a. 大きな飽和磁化、垂直磁気異方性、大きな磁気 Kerr 効果、を有する強磁性・強誘電 薄膜を探索し、それを高品位に作製する手法を確立し、

A-b. 強磁性・強誘電薄膜の電界印加に対する磁化の動的変化を測定できる「電気磁気効果測定装置」を新規に構築し、薄膜試料の測定を行いながらその測定性能の向上を図り、

B. 強磁性・強誘電薄膜上でも垂直磁気異方性を有してかつその大きさを制御できる強磁 性金属薄膜を作製し、

C. A-a で作製した高品位および高機能な強磁性・強誘電薄膜に、B で作製した垂直磁気異 方性を有してかつその大きさを制御できる強磁性金属薄膜を成膜した2層積層膜を作製し、走 査型プローブ顕微鏡ならびに A-b で構築した「電気磁気効果測定装置」を用いて、その2層積 層膜に電界のみを印加することで強磁性・強誘電薄膜の磁化方向の変化を介して強磁性金 属薄膜の磁化方向が変化したこと(磁気転写)を、静的ならびに動的にも確認する。

2. 研究成果

(1)概要

A-a. (Bi_{1-x}Ba_x)FeO₃薄膜の成膜にあたって、反応性パルスDCスパッタリング法を用いると、 一般的な成膜方法である RF スパッタリング法を用いた場合に比較して、高品位に作製するこ とが可能となり、その結果、飽和磁化が 1.5 倍(60 → 90 emu/cm³)に増大した。また、置換元 素を Ba から La に代えた(Bi_{1-x}La_x)(Fe,Co)O₃ 薄膜においては、これまでの(Bi_{1-x}Ba_x)FeO₃ 薄膜 に比較して、飽和磁化は同等かやや小さいが、保磁力は2倍ぐらいに増大し、かつ明瞭な垂 直磁気異方性も有した。(Bi_{1-x}La_x)(Fe,Co)O₃ 薄膜において、走査型プローブ顕微鏡を用いて局 所電界書込みを行い、その部分の磁区構造を磁気力顕微鏡で観察した結果、書込んだ領域 において明瞭な磁気コントラストが得られ、0.5 µm 幅までは書込みできることが判った(磁化 の静的変化)。

A-b. 磁気 Kerr 効果測定装置と強誘電テスターとを組み合わせて構築した「電気磁気効果 測定装置」に関し、高い周波数の印加電界に対する磁化変化を高い感度で検出できるように


するため、高周波対応化、高感度化、高分解能化、を施し、強磁性・強誘電薄膜の電界印加 に対する磁化の変化を検出しようと試みたが、装置に搭載しているレーザ波長(400 nm)で は、(Bi_{1-x}La_x)(Fe,Co)O₃薄膜の磁気 Kerr 効果は非常に小さく、磁化変化は観測できなかった。 今現在、(Bi_{1-x}La_x)(Fe,Co)O₃薄膜において大きな磁気 Kerr 回転角が検出できる波長 700 nm のレーザを追加装備するなどの改良を継続している。

B. [Co/Pd] 多層膜の作製において、熱酸化膜付き Si 基板上および強磁性・強誘電薄膜上 いずれにおいても、1層あたりの膜厚や積層数を変化させることで、磁気異方性の異なる垂 直磁化薄膜の実現に成功した。そして、ワイヤー状記録媒体に適する磁気特性を有する多層 膜作製条件を特定した。

C. 高品位な(Bi_{1-x}La_x)(Fe,Co)O₃ 強磁性・強誘電薄膜上に、ワイヤー状記録媒体と同等の磁気特性を有する[Co/Pd]_n 多層膜ドット(ϕ 3~20 μ m)を成膜した2層積層膜において、走査型プローブ顕微鏡を用いて局所電界書込みを行い、その部分の磁区構造を磁気力顕微鏡で観察した結果、書込んだ領域に存在した[Co/Pd]_n 多層膜ドットの磁区構造が変化していることから、磁気転写に成功したと考えられる(磁化の静的変化)。しかし、[Co/Pd]_n 多層膜ドットの磁化の動的変化は、「A-b」に記載の原因で、観測できなかった。

(2)詳細

研究テーマ A-a「高品位・高機能な強磁性・強誘電薄膜の作製およびその特性評価」

平成28年度までは、RF スパッタリング法により、Bi-Ba-Fe-O 酸化物ターゲットを用いて、 (Bi,Ba)FeO3 薄膜の作製を行ってきが、高品位な薄膜を得ることが難しかったので、平成29年 度から、新しく製品化されたパルス DC 電源を用いた反応性スパッタリングにより、(Bi,Ba)FeO3 薄膜および(Bi,La)(Fe,Co)O3薄膜の作製を試みてきた。スパッタリングターゲットには Fe 粉末と

Ba₂Fe₂O₅ 粉末を 焼結させた導電性 ターゲットおよび Fe 粉末とCo 粉末 と LaFeO₃ 粉末を 焼結させた導電性 ターゲットをそれ ぞれ用いた。各タ ーゲットの上に5x 5x1t の Bi シート を3~6枚置い



て、薄膜の組成を変化させた。図(左)に(Bi,Ba)FeO3薄膜における飽和磁化の Bi に対する Ba 置換量依存性を、図(右)に(Bi,La)(Fe,Co)O3薄膜の飽和磁化および薄膜面垂直方向と薄面 内方向の保磁力における、Bi に対する La 置換量依存性を示す。飽和磁化に関し、 (Bi,Ba)FeO3薄膜については Ba 置換量が 50 at%程度で、(Bi,La)(Fe,Co)O3薄膜については La 置換量が 60 at%程度で、それぞれ最大を取り、それぞれの最大値は、90 emu/cm³および 70 emu/cm³であった。ここで、(Bi,Ba)FeO3薄膜については、RF スパッタリング法により作製した



場合の値も示しており、反応性パルス DC スパッタリング法で作製した場合の飽和磁化は RF スパッタリング法で作製した場合のそれより 1.5 倍も大きくなり、成膜速度も10程度速くなり、 明らかな効果が見られた。それ以上の置換量においては減少した。保磁力に関し、 (Bi,Ba)FeO₃ 薄膜については(図には示していないが)薄膜面内方向の方が薄膜面垂直方向 よりも大きくて 2 kOe 程度であった。(Bi,La)(Fe,Co)O₃ 薄膜については膜面垂直方向の方が膜 面内方向よりも大きく、かつ最大で4 kOe 以上の値が得られた。ただし、65 at%以上のLa 置換 量の増大に伴い、保磁力は大きく低下した。50~60at%までの元素置換量の増大に伴う磁気 特性の向上は Fe 原子のフェリ磁性化によるもの、65 at%以上の元素置換量における磁気特 性の劣化は構造解析の結果から第二相の生成によるもの、と考えられる。尚、パルス周波数 と成膜電力を変化させる検討もしており、パルス周波数が小さいほど、成膜電力が大きいほ ど、飽和磁化が高くなる傾向にあった。それらの要因として、数十ボルトのプラスの電圧が印 加されて成膜が行われない時間が長くなること、スパッタ粒子が高いエネルギーを持って基板 上に堆積すること、つまり、いずれも「スパッタ粒子の表面拡散の促進」に寄与するものであっ たからと考えられる。

良好な磁気特性および強誘電特性が得られた(Bi,La)(Fe,Co)O₃ 薄膜において、走査型プロ ーブ顕微鏡を用いた電界書込み、および磁気力顕微鏡(MFM)による磁区構造評価と電気力 顕微鏡(EFM)による分域構造評価を行った。MFM 測定における探針先端の磁極を「N」とし、

EFM 測定における探針先端の 電荷は「+」と「-」の両方とし た。導電性探針に-10 V の電 圧を印加し、0.5 µm 幅で 0.5 µm 間隔で2本書込みを行っ た。その後、該当箇所の MFM 測定、EFM 測定(探針に+1 V を印加)、EFM 測定(探針に-1 V を印加)、を行った。本測定 結果を右図に示す。EFM 測定 結果について、探針先端の電 荷を反転させるとそれに応じ

て像のコントラストも反転しており、書込んだ 部分の表面においてプラスの電荷が存在する ことが判る。また MFM 測定結果については、 図には示してないが、どのタイミングであって も(MFM 測定直前の EFM 測定において探針 に印加された電圧が+であっても-であって も)同様の像が得られていることから、探針先 端に電荷が残留していない状態で MFM 測定 が行われていること、書込んだ部分の表面が 磁 化 し て い る 、と 言 え る 。よっ て 、



PRESTO

(Bi,La)(Fe,Co)O3単層膜において、静的な電界印加磁化反転が観測されたと言える。

さらに、本薄膜において、どこまで細い幅で書込むことができるか検討した。500,400,300, 200,100 nm 幅で、導電性探針に-10 V の電圧を印加して書込み、その後、該当箇所の MFM 測定、EFM 測定(探針に-1 V を印加)、を行った。本測定結果およびそのラインプロファイルを 前頁下図に示す。300 nm 幅までにおいては、おおよそ設定通りの幅で書込みされているが、 それ以下の幅においては、実際に書込まれた幅が設定幅よりも大きくなる傾向にある。以上 より、想定されるワイヤー状記録媒体におけるビットの幅(100 nm 程度)に近いレベルである 300 nm 幅までの電界書込みが可能であることが判る。

研究テーマ A-b「『電気磁気効果測定装置』の新規構築」

本研究で新規に構築を試みてきた、印加電 界に対する磁気応答(動的変化)を測定する ための「電気磁気効果測定装置(右図)」にお いて、種々の薄膜試料の測定結果をふまえ て、より正確な測定を行うことができるよう、磁 気Kerr効果検出系における、レーザの変調法 の適用による高周波対応化・磁気信号の同期 検波法の適用による高 SN 比化、に加え、素 子の微細化に合わせたレーザ径の 縮小(対物レンズを×5 ⇒ ×50)、 作製した薄膜試料において大きな磁 (deg) 気Kerr効果が得られるレーザ波長 2 の変更(400 nm ⇒ 700 nm)、などの Ø× 改造を行った。この改造に関する検 討の一環で行った、磁気 Kerr 効果の レーザ波長依存性に関する実験結



果を右図に示す。(Bi,La)(Fe,Co)O₃ 薄膜の磁気 Kerr 回転角および楕円率のレーザ波長依存 性の通り、レーザ波長が 400 nm の場合、回転角と楕円率、いずれにおいても非常に小さく/ イズレベルであったが、波長が 650~700 nm の場合において、非常に大きな回転角および楕 円率が得られていることが判った。ここで、特異点的に巨大な磁気Kerr効果が得られる一般 的な要因として、レーザ光の多重反射や表面プラズモンの影響などが挙げられる。しかし、前 者が起こっている場合は、膜厚を変化させると大きな磁気 Kerr 効果が得られる波長が変化す ると考えられるが、本薄膜の場合では膜厚を 300 nm から 200 nm、100 nm へと薄くしても大き な磁気Kerr効果が得られる波長は変化せず、かつ波長依存性がブロードになることから、本 現象が起こっている可能性は高くないと考えられる。また、後者の影響は導電性試料におい て見られる現象であり、強誘電特性が得られかつ素子抵抗が数十 MΩ以上である本薄膜は 絶縁物であることから、表面プラズモンの影響も可能性は高くないと考えられる。よって、本薄 膜の巨大な磁気Kerr効果は、本材料が有している特長であるかもしれない。そして、ここで得 られた、極めて大きな磁気 Kerr 効果(回転角2°)は、現行の光磁気材料でも導出が容易では ない値であり、本材料を新たに光磁気デバイスに適用できる可能性があることが判った。



研究テーマB「垂直磁気異方性制御が可能な金属強磁性薄膜の作製」

強磁性・強誘電薄膜上に、ワイヤー状記録媒体を想定した垂直磁気異方性を有する強磁性 金属薄膜を成膜するにあたり、その強磁性金属薄膜として、磁気転写のデモンストレーション 用に、飽和磁化および垂直磁気異方性の調整が可能とされている[Co/Pd]。多層膜を選定し

た。飽和磁化に関しては、ワイヤー状記録媒体として優れた適性を有しているスキルミオン材料と同程度の数百 emu/cm³程度になるよう、条件を固定した(CoとPdの膜厚比を1:3とした)。垂直磁気異方性を変化させるために、全膜厚を20 nm 程度にしながら積層回数を変化させた(それに伴い1層あたりの膜厚を変化させた)。その結果、右図に示すように、Coを0.7 nm、Pdを2.0 nm、として、7セット積層させた[Co/Pd]7 多層膜において、スキ



ルミオン材料と同程度の数百 Oe 程度の保磁力が得られることが判った。また、この多層膜 は、熱酸化膜付き Si 基板に成膜したものであるが、強磁性・強誘電薄膜上に成膜した場合お いても、全く同様の磁化曲線を有することを確認した。よって、研究テーマ C における磁気転 写のデモンストレーションにおいて、研究テーマ A-a の結果もふまえ、(Bi_{0.4}La_{0.6})(Fe,Co)O₃ / [Co(0.7nm)/Pd(2.0nm)]_n 2層積層膜を用いることにした。

研究テーマ C「強磁性・強誘電薄膜/強磁性金属薄膜 2層積層膜での磁化の電界反転」

上記の通り、(Bi_{0.4}La_{0.6})(Fe,Co)O₃ / [Co(0.7nm)/Pd(2.0nm)]_n 2 層積層膜を作製して、 (Bi_{0.4}La_{0.6})(Fe,Co)O₃ 薄膜の電界印加磁化反転を介して、[Co(0.7nm)/Pd(2.0nm)]_n 多層膜を磁 化反転させる(磁気転写)を試みた。まず、走査型プローブ顕微鏡を用いた静的磁気転写の 実験については、[Co(0.7nm)/Pd(2.0nm)]_n 多層膜を 2~3 µm 径のドットに微細加工して多数 配置させたものを用いた。これにより、電界を印加していないドットと印加したドットの両方の 結果を同時に見比べることができる。作製した2層積層膜およびそれに電界印加した場所に 関する模式図、そして、電界を印加する前の MFM 像、電界を印加(左側のドットのみ)した後

の MFM 像・EFM 像、 を右図に示す。再現 性の確認の意味も 含めて、2か所測定 した(2 µm 径のドット と 3 µm 径のドット)。 電 界 印 加 前 の [Co/Pd]_n 多層膜ドッ ト(左右いずれも)の MFM 像では、黒と白



PRESTO

のコントラストがランダムにみられることから、磁化が上を向いている場所と下を向いている場 所がランダムに混じっている消磁状態であることが判る。電界を印加した後の MFM 像を見る と、電界が印加されていない方(右)のドットのコントラストは何も変化はなく、電界が印加され た方のドット(左)についてはコントラスト(黒い部分)がほとんどなくなり、消磁状態から磁化状 態に変化した(磁化が下に向いた)と言える。ラインプロファイルの詳細な解析から、上向きに 磁化していた部分の 75 %程度が下向きに反転したことが判った。この結果より、 (Bi_{0.4}La_{0.6})(Fe,Co)O₃ / [Co(0.7nm)/Pd(2.0nm)]_n 2層積層膜において、静的な電界印加磁化反 転(磁気転写)が観測されたと言える。

3. 今後の展開

本研究では、強磁性・強誘電薄膜と垂直磁気異方性を有する強磁性金属薄膜からなる2層 積層膜を作製し、それに電界のみを印加することで強磁性・強誘電薄膜の磁化方向の変化を 介して強磁性金属薄膜の磁化方向を動的かつ明確に反転(磁気転写)させるデモンストレー ションを行うことを、ゴールに位置付けている。これは、強磁性・強誘電薄膜を電界書込み素子 に見立て、垂直磁気異方性を有する強磁性金属薄膜をワイヤー状記録媒体に見立て、レース トラックメモリの電界書込み機能検証を行うものである。これを真に検証するために、上記の 通り、「電気磁気効果測定装置」におけるレーザの変調周波数の検討や強磁性・強誘電薄膜 と強磁性金属薄膜との膜厚比の検討、などを行う予定である。

上記の検討における強磁性金属薄膜には、機能検証用として、小さい垂直磁気異方性を有 する[Co/Pd]。多層膜を用いた。次の段階として、デバイス性能(書込み)検証を行うために、強 磁性金属薄膜に、超低消費電力での磁気ドメイン移動が可能なスキルミオンを用いた2層積 層膜を作製および評価する。あわせて、デバイス性能(読込み)検証を行うために、フルホイス ラー合金薄膜をも用いた3層膜を作製および評価する。

また、本研究で得られた想定外の成果である、巨大な磁気 Kerr 効果を発現する強磁性・強 誘電薄膜については、光磁気デバイスに応用できる可能性がある。その一例として、8K(スー パーハイビジョン)の次の世代の技術として位置づけられている「立体映像」を表示するデバイ ス:空間光変調器がある。現在開発中の空間光変調器では、光を磁気で制御する手法として、 スピン注入磁化反転方式が考えられているが、画素数の増大や像の巨大化により素子数が 極めて多くなり、全体として莫大な電力を消費する。この空間光変調器に強磁性・強誘電薄膜 を使用し、電界磁化反転方式を適用すれば、低消費電力稼働に伴う画素数の増大や像の巨 大化を実現することができる。よって、強磁性・強誘電薄膜の応用展開の一つとして、光磁気 デバイスを検討していくことを考えている。

4. 自己評価

研究目的の達成状況:研究開始当初に掲げていた複数の開発項目に関し、途中で優先順 位の高いものだけに絞った結果、強磁性・強誘電材料薄膜の開発においては、目標の磁気特 性を得ることができ、かつ想定していなかった優れた光磁気特性も得られた。デバイス機能検 証に向け、強磁性・強誘電薄膜と小さい垂直磁気異方性を有する強磁性金属薄膜からなる2 層積層膜を作製し、走査型プローブ顕微鏡を用いた局所電界書込みにおいて強磁性金属薄 膜の磁区構造が変化していることから、本研究の最終目標の一つであった磁気転写に成功し



たと言える(磁化の静的変化)。しかしながら、ゼロからの新規構築を行ってきた「電気磁気効 果測定装置」について、想定以上の多くの改造が必要であったため、本装置での磁気転写に おける磁化の動的変化の明瞭な観測には至らなかった。改めて、新しい取り組みには時間が かかるので優先順位を考慮する必要があったことを痛感した。

研究の進め方:研究実施体制については、研究開始当初、完全に1人で全てを行っていた ので、どうしても進捗が遅かった。研究開始1年後に実験補助員をようやく確保し(秋田には物 理実験を補佐できるような人材(正社員等すでに仕事を持っている人以外)は居ないので採用 まで時間を要した。)、研究開始2年半後(今年の4月)に3名の学生が配属し、研究開始3年 経過してようやく私が居なくても実験が進むようになった。研究開始当初から、所属部局にもっ と体制強化の働きかけを行うことが必要だったかもしれない。研究費執行状況については、消 耗品の購入、実験補助員の人件費、旅費、装置の維持管理費、バランスよく適切に執行でき た。ただ、前記の「電気磁気効果測定装置」については、想定以上の多くの改造が必要であっ たので、計上していた予算では間に合わず、他の研究資金を使用しなければならない状況で あった。研究開始当初の予算申請において、ゼロから構築を行う「電気磁気効果測定装置」に ついて、開発期間のみならず費用についても、見積が甘かったと言わざるを得ない。

研究成果の科学技術及び社会・経済への波及効果: 低炭素社会および IoT 社会に向け、 革新的で超低消費電力稼働が可能な、データストレージデバイス、通信デバイス、センシング デバイス、の必要性が増してきている。磁性薄膜を用いている数多くの磁気デバイスに対して 強磁性・強誘電薄膜を適用することにより、低消費電力化、高性能化、多機能化、をもたらす 可能性が大いに有り得る。本研究では、強磁性・強誘電薄膜の磁気メモリ応用について検討 してきたが、今後は、強磁性・強誘電薄膜を通信デバイスやセンシングデバイスにも適用させ て、低炭素および IoT 化に貢献できるデバイスを創製したいと考えている。

5. 主な研究成果リスト

(1)論文(原著論文)発表

- S. Yoshimura, M. Kuppan Fabrication of highly qualified (Bi_{1-x}Ba_x)FeO₃ multiferroic thin films by using a pulsed DC reactive sputtering method and demonstration of magnetization reversal by electric field Japanese Journal of Applied Physics, Selected Topics in Applied Physics 2018, 57, 0902B7-1-5
- S. Yoshimura, Y. Sugawara, G. Egawa, H. Saito Basic Study of Electric Field Induced Magnetization Reversal of Multiferroic (Bi_{1-x}Ba_x)FeO₃ Thin Films at Room Temperature for Magnetic Recording Technology Journal of the Magnetics Society of Japan, 2018, 42-2, 11-14
- S. Yoshimura Fabrication of ε-Fe₂O₃ multiferroic thin films with high coercivity and magnetization for electric-field writing magnetic recording Proceedings of International Conference of Materials for Resources (ICMR, Akita, Japan, 2017), 490–493

(2)特許出願 研究期間累積件数:2件



1.

発明者:	吉村哲、齊藤準、町田賢司、船橋信彦、加藤大典、金城秀和、青島賢一、
	麻生慎太郎、久我淳、菊池宏
発明の名称:	強磁性強誘電型空間光変調器
出願人:	秋田大学、日本放送協会
出願日:	2016/3/31
出願番号:	特願 2016-69189
2.	
発明者:	吉村哲、齊藤準、町田賢司、船橋信彦、加藤大典、金城秀和、麻生慎太郎、
	青島賢一、久我淳、菊池宏
発明の名称:	磁気転写方式による強磁性強誘電型空間光変調器
出願人:	秋田大学、日本放送協会
出願日:	2016/3/31
出願番号:	特願 2016-69190

(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

- 吉村哲、「BiFeO3系強磁性・強誘電薄膜の局所電界印加による磁化方向制御と電界書 込み型磁気記録デバイスへの応用」、日本磁気学会第 59 回スピンエレクトロニクス専 門研究会、産業技術総合研究所、2016年7月8日
- S. Yoshimura Voltage Control of Magnetization Direction of Multiferroic Thin Films for Application to Novel Magnetic Recording Devices with Electric-Field International Conference on Materials Processing and Applications (ICMPA), Tamil Nadu, India, December 16, 2016
- S. Yoshimura High Functional Multiferroic Thin Films for Application to Novel Magnetic Recording Devices with Electric-Field Writing Method 2nd International Conference on Advances in Materials Science and Technology, Tamil Nadu, India, October 10, 2017
- S. Yoshimura, M. Kuppan High Functional Multiferroic Thin Films for Application to Novel Magnetic Devices with System of Magnetization Reversal by Electric Field Solar Quest Seminar 2018, Tokyo, Japan, May 25, 2018
- S. Yoshimura, M. Kuppan High Functional Multiferroic Thin Films for Novel Magnetic Devices with System of Magnetization Reversal by Electric Field International Workshop on Materials Technology and Applications 2018, Tamil Nadu, India, October 11, 2018

受賞

吉村哲、「革新的な電界駆動型磁気デバイスの創製に向けた高機能強磁性・強誘電薄膜 材料の探索・合成」、第 32 回(2016 年度)マツダ研究助成奨励賞、(公財)マツダ財団、2016 年 10 月 19 日

解説記事

吉村哲、「強磁性強誘電薄膜における磁化方向の電圧制御と電界記録型磁気記録デバイ スへの応用」、化学工業, 2016, Vol.67, No.11, 68-73



さきがけ「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 研究総括:横山 直樹 ((株)富士通研究所 名誉フェロー)

成長するポリマーが創ったニューラルネットワーク

赤井 恵 (大阪大学 大学院工学研究科・助教)

研究課題名:「ポリマー配線を用いたニューラルネットワーク型情報回路の創成」 研究期間: 2015.10~2019.03



図 教師がいないのに 9 ピクセルの 3 文字を読むポリマーネットワーク

成長するポリマーは神経細胞のシナプス重み変化のようにその抵抗値を変化させます。ニューラルネットワークのアルゴリズムを 利用し、機械学習法でこの成長を制御することにより、ポリマーで構成されたニューラルネットワークを形成させます。本研究では 54 本のポリマーを制御して、自動に三文字を区別することに成功しました。

人工知能は今コンピューターの中のソフトウェアとし て存在しますが、その技術は近い未来には小さな箱 に入って独立し、より我々の生活に密接に役立つよう になります。そんな未来のオンデマンドな人工知能の ハードウェア需要に対応する為に、気軽に学習可能 な新材料が必要です。それが本研究で開発した成長 する PEDOT:PSS ポリマーワイヤーです。

ポリマーは重合によって溶液内で成長しますが、任 意の時点で成長を停止させると成長は止ります。学習 後、即ち抵抗値の決定後はシステムから切りはなし、 乾燥して抵抗値を固定させ、機器の中に組みこむこと が出来ます。PEDOT:PSSの環境耐性は非常に高く、 幅広い環境下での利用が可能です。

今、ソフトウェアの面からはもちろん、ハードウェア の観点からも、脳内の仕組みに学んだ新しいニューロ モルフィック研究が進んでいます。本研究は有機ポリ マーという新規材料と、これを利用した我々の社会の 末端で動く小さな人工知能の形を提案します。

>>参考情報

1. 論文

- [1] 赤井恵「ポリマーが織り成すニューラルネットワーク」高分子 4月号 特集 表面・界面の 構造がキワ立つ高分子トピック 67, 192 (2018)
- [2] H. Tanaka, M. Akai-Kasaya, T. Asai, et al., "A Molecular Neuromorphic Network Device consisting of Single-Walled Carbon Nanotubes complexed with Polyoxometalate" Nature Communication, 9, 2693 (2018)

2. プレスリリース

"脳の神経に似た電気信号 炭素材料使い再現" 日経産業新聞 (2018年7月18日) "大阪大学 カー ボンナノチューブと分子の乱雑ネットワークが



神経様スパイク発火を可能に"日経バイオテク https://bio.nikkeibp.co.jp/atcl/release/18/07/18/05 833/



さきがけ「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 研究総括:横山 直樹(株式会社富士通研究所 名誉フェロー)

スピン波の強めあい弱めあい

後藤 太一 (豊橋技術科学大学 大学院工学研究科·助教)

研究課題名:「極薄磁性酸化物中におけるスピン波位相干渉を用いた多入出力演算素子の開発」 研究期間:2015.10~2019.3



図 絶縁体中を伝わるスピン波の強めあい

奥と手前の入力磁場によって、二つのスピン波が生まれ、磁性絶縁体の中を伝わり、中央でぶつかります。二つの波の山と山の が、ちょうどぶつかると波はもっと高くなりますが、二つの波の山と谷がぶつかると波は小さくなります。これをうまくつかうと、人々の想 像を超える革新的なデバイスができると考えられています。

最近の電子デバイスは、長時間使ったり、動画再 生など重たい情報処理をすると熱くなり、動作が遅く なったり、時には止まってしまったりすることはないで しょうか。これは、コンピュータ内部の電線が過密にな り過ぎているからかもしれません。原因を突き詰めれ ば、これは、電子を動かす情報処理の原理そのもの の問題であり、電子デバイスの宿命です。そこで、こ の問題を解決するには、デバイスの動作原理そのも のを変える必要が出てきました。

そんな中、本研究は、電子を動かさずに情報処理 を行う「スピン波を使った情報処理素子」の一部を作り、 スピン波の有用性を実証しました。電気の流れない磁 石材料である「磁性絶縁体」を作製し、これに、スピン 波を流し、位相干渉と呼ばれる波の強めあい・弱めあ いを作り出しました。例えば、強めあった状態を「1」、 弱めあった時を「0」とすることで、実際の計算をしてみ せました。

この研究を発展させれば、将来、スピン波を使った、 どれだけ使っても冷たいデバイスが世の中に広がるか もしれません。

>>参考情報

▶ 論文

- N. Kanazawa, T. Goto, et al., Sci. Rep. 20 16, 6, 30268.
- N. Kanazawa, T. Goto, et al. Sci. Rep. 201 7, 7, 7898.
- T. Yoshimoto, T. Goto, et al. Adv. Electro n. Mater. 2018 4, 1800106.

▶ 特許出願

- スピン波回路ならびにアドレスエンコーダおよび アドレスデコーダ,2016-044967(2016)
- ▶ 受賞
 - 1. 「電気学会 優秀論文発表賞」(2016)
 - 2. 「応用物理学会 講演奨励賞」(2017)
 - 「愛知県 第 12 回わかしゃち奨励賞(基礎研 究部門)最優秀賞」(2018 年)

プレスリリース

- 1. 「スピン波を使った最高性能の位相干渉器を開 発」(2016 年 7 月) https://www.jst.go.jp/pr/a nnounce/20160722/index.html
- 「磁気の性質を使って論理演算を実現」(2017 年 8 月) https://www.jst.go.jp/pr/announce/ 20170811/index.html



さきがけ「ナノエレ」研究領域 研究総括:横山 直樹(富士通研究所 名誉フェロー)

強誘電体 Hf02 で切り拓く次世代コンピューティング技術

小林 正治 (東京大学 生產技術研究所 准教授)

研究課題名:「超低消費電力動作に向けたゲート絶縁膜の負性容量による急峻スロープトランジスタ技術の開発とナノワイヤ構造への応用」 研究期間: 2015.10~2019.3



図 本研究で得られた基盤技術とデバイス技術、およびそれらが実現しうる社会

本研究では強誘電体 HfO2 を用いた低消費電力デバイスの創出に向けて、プロセス技術およびモデリング技術を確立し、この基盤技術をもとに低消費電力トランジスタ・メモリの設計およびデバイス動作実証を行った。本研究成果は自分で発電する IoT デバイスが無数に配備されることで獲得するビッグデータを活用した持続可能で安全・安心な社会の実現を可能にする。

本さきがけ研究では、強誘電体 HfO₂ という新しい 材料を用いることで、集積回路を構成するトランジスタ とメモリの特性を飛躍的に向上させることに成功しまし た。具体的には強誘電体をゲート絶縁膜とするトラン ジスタによって電流オンオフ比の10倍向上を実証し、 その起源を解明しました。また通常は揮発性メモリで ある SRAM に不揮発性を付与することで、SRAM でも 電源オフ時にデータを保持できることを実証しました。 さらに大容量メモリとして期待される強誘電体トンネル 接合メモリで、30 を超える抵抗オンオフ比と多値動作 を実現しました。以上の成果は超低消費電力マイコン や人工知能アルゴリズムのハードウェア実装につがな り、将来的には自分で発電するIoTデバイスが無数に 配備されることで獲得するビッグデータを活用した持 続可能で安心・安全な社会の実現に貢献します。

>>参考情報

▶ 論文

1. M. Kobayashi, Applied Physics Express, 11,

110101 (2018).

- C. Jin, K. Jang, T. Saraya, T. Hiramoto, a nd M. Kobayashi, IEEE International Electro n Device Meeting (IEDM) 2018, p. 723.
- M. Kobayashi, N. Ueyama, K. Jang, and T. Hiramoto, IEEE Journal of Electron Device Society, 6, 1, 280 (2018).
- M. Kobayashi, Y. Tagawa, F. Mo, T. Saray a and T. Hiramoto, IEEE Journal of Electro n Device Society, published online, Dec.11, 2018.

▶ 受賞

 M. Kobayashi et al., IEEE Nanotechnology Council Best paper award, "Negative Capac itance for Booting Tunnel FET Performance" (2018)

プレスリリース

 「強誘電体二酸化ハフニウムを用いたトランジスタ ーとメモリーの動作メカニズムを解明~微細化と 超低消費電力化へ前進~」(2018 年 12 月) <u>http://www.jst.go.jp/pr/announce/20181203/i</u> <u>ndex.html</u>



さきがけ「ナノエレクトロニクス」研究領域 研究総括:横山 直樹((株) 富士通研究所 名誉フェロー)

スマートフォンのカメラ技術で健康診断

研究者高橋 一浩 (豊橋技術科学大学 大学院工学研究科・准教授)

研究課題名:「光干渉型分子間カセンサによる高感度マルチバイオマーカー検出システム」 研究期間:2015.10 ~2019.3



カメラ素子

図ICチップ上でバイオマーカー分子を捉える検査チップ

スマートフォンのカメラ素子上で病気由来のタンパク質を検出可能な検査チップの模式図と小型測定装置の写真。マーカー分子 を吸着させる膜を原子一層から形成される原子膜を使用することにより、極めて微量のマーカー分子を微量の血液中から検出でき るようになりました。

病気の検査を簡易かつ迅速に行う方法は、正確な 診断や治療効果の検証、再発や転移の調査をするた めに極めて重要です。ごく微量の血液採取により病 気の診断が行えるようになれば、自宅で簡単・迅速・ 安価に検査が可能になります。我々は病気にかかると、 その病気に由来したタンパク質が血液中に増加しま す。この病気由来のタンパク質をバイオマーカーと呼 び、マーカーを特異的にとらえる技術を使用して病気 の検査が行われます。本研究では、ICチップ上でマ ーカー分子を特異的にとらえ、吸着の様子を電気信 号に出力する検査チップの開発を行いました。マーカ ーを吸着させる膜を原子一層から形成される原子膜 を使用することにより、極めて微量のマーカー分子を 微量の血液中から検出できるようになりました。さらに、 スマートフォンのカメラ技術と融合することによって、ス マートフォンを測定機として検査が行える技術を開発 しました。

>>参考情報

▶ 論文

- Kumagai H., et al., Applied Physics Expres s 2017, vol. 10, no. 1, 011601
- 2. Takahashi K., et al., Japanese Journal of A pplied Physics 2018, 57, 010302
- 3. Maruyama S., et al., Sensors 2018, vol. 18, 138
- Takahashi K., et al., Applied Physics Letter s 2018, vol. 112, 041901
- Takahashi T., et al., Journal of Micromech anics and Microengineering 2018, vol.28, n o. 5, 054002
- 6. Takahashi K., et al., MRS Communications accepted

▶ 受賞

 「第10回集積化 MEMS シンポジウム・優秀ポ スター賞」(2019)



さきがけ「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 研究総括:服部 梓(大阪大学 産業科学研究所・助教)

急峻応答性を持つ強相関金属酸化物ナノデバイスの作製

服部 梓 (大阪大学 產業科学研究所·助教)

研究課題名:「遷移金属酸化物のナノ空間3次元制御による省エネルギー駆動機能選択的相変化デバイス創製」 研究期間:2015.10~2019.03



図1 10 nm サイズの遷移金属酸化物立体ナノ構造のデバイス化により巨大応答性を創出

科学的知見に基づいた原子レベル(~0.1 nm)精度での立体構造制御によって特別仕立てのナノ構造体を実現し、機能発現の最 小単位であるナノ電子相の取り出しに成功しました。その優れた特性を組み込んだデバイスへと展開させ、ナノエレクトロニクス制御 を行いました。

ナノ構造作製技術は、物質開発とデバイス作製に関 する究極のテクノロジーで、ナノスケールの機能の根 源から物質を設計・作製しこれまでにない優れた機能 を創出することが実現できる技術です。これまでは2 次元平面での利用に限られていた原子レベルの構造 評価技術を3次元立体のすべての方向に対して適応 可能とし、構造観察を実現しました。その結果、世界 で初めて 0.1 nm という原子レベルで乱れの無い立体 表面の作製に成功しました[1-3]。この技術は、これま での加工、造形、構造評価技術の常識を刷新する卓 越した成果で、デバイスを作り上げる土台である基板 構造を2次元平坦から3次元立体構造への転換を可 能とします。この技術を機能性材料である金属酸化物 に用いて、マクロサイズの試料に比べて応答性を 10² -10³ 倍向上させることに成功しました[4]。ナノ構造デ バイスの作製も実現しており、ナノ構造化による増大 した応答性の制御が実現しつつあります[5]。ナノ立 体構造技術によって、今後の新しいナノ機能材料の 開拓やナノデバイス展開が可能となり、情報化技術の 更なる発展へと貢献していきます。

>>参考情報

▶ 論文

- S. Takemoto, A. N. Hattori, et al.. Jpn. J. A ppl. Phys. 2018, 57, 085503-1-4
- A. N. Hattori et al., Appl. Phys. Express, 20 16, 085501-1-4
- H. Yang, A. N. Hattori et al., Jpn. J. Appl. Phys., 2017, 56, 111301-1-4
- S. Tsubota, A. N. Hattori et al., Appl. Phys. Express, 2017, 10, 115001-1-4
- A. N. Hattori et al., Mod. Phys. Lett. B, 201 8, 32, 1840058-1-7
- ▶ 受賞
- 1. 「大阪大学賞(若手教員部門)」(2018)
- プレスリリース
- 「世界初!シリコン断崖側面構造の原子レベル観察に成功」(2017年9月) https://www.sanken.osaka-u.ac.jp/toppage/ hot_topics/topics_20170920-2/



さきがけ「ナノエレ」研究領域 研究総括:藤枝 俊宣(東京工業大学 生命理工学院・講師)

生体機能を計測・制御するプリンテッドナノ薄膜を開発

藤枝 俊宣 (東京工業大学 生命理工学院·講師)

研究課題名:「移植用培養生体組織に搭載可能なナノエレクトロニクスの創成」 研究期間: 2015.10~2019.3



図 高分子ナノ薄膜と印刷技術の融合により拓かれるバイオデバイス工学

高分子ナノ薄膜と印刷技術(グラビア・マイクロコンタクト・インクジェット)を融合させることで、プリンテッドナノ薄膜を開発。様々な 機能性インク(例:導電性高分子、ナノインク、温度応答性色素,薬剤)を高分子ナノ薄膜に印刷や担持することで、身体に取り付け て生体機能を計測・制御(センシング・イメージング・無線給電・光がん治療)することに成功しました。

未来医療の開拓に向けて、患者や動物に低侵襲 に使用可能な医療技術の開発は極めて重要です。 本研究では、細胞膜に匹敵する薄さを有する高分子 ナノ薄膜と様々な印刷技術を組み合わせることで、生 体組織に取り付けて作動可能な医療デバイス(『プリ ンテッドナノ薄膜』と命名)を開発し、先進医療に関わ る計測・治療・無線給電技術に応用しました。

具体的には、①高分子の自己組織化と印刷技術を 融合させることでナノ薄膜の機能化に向けた製造手 法を構築しました。次に、②ナノ薄膜上への電子回路 や機能性色素の搭載や生体環境下での動作性を評 価しました。さらに、③これらのナノ薄膜を生体に取り 付け、生体機能の計測制御についても検証しました。

本技術を用いて生体外からの機能制御が実現す れば、装着型や埋め込み型医療機器への応用が見 込まれます。来たるべき先進医療社会に向けて、入 院・在宅療養・社会復帰後まで生体機能を安定に計 測・制御可能なバイオデバイスの創成を目指します。

>>参考情報

▶ 論文

1. Fujie, T., et al.. Biomater. Sci. 2019,

印刷中

- 2. Fujie, T., et al.. ACS Appl. Bio Mater. 2019, 印刷中
- Fujie, T., et al., J. Biomed. Mater. Res.
 B. 2019, 印刷中
- Fujie, T., et al.. Nat. Biomed. Eng. 201
 9, 3, 27-36
- Fujie, T., et al.. Appl. Phys. Exp. 2017, 10, 087201
- 6. Fujie, T. . Polym. J. 2016, 48, 773-780

▶ 特許出願

- 1. フレキシブル電子デバイス, 2017-221880(2017)
- 2. 生体埋め込み型の無線給電型発光システム, 20 17-221712(2017)
- 3. 高い接着性を有する非水溶性自立性薄膜, PCT / JP2017/16283
- ▶ 受賞
 - 「平成 30 年度科学技術分野の文部科学大臣 表彰 若手科学者賞」(2018)
 - 2. 「日本バイオマテリアル学会 2017 年度科学奨 励賞」(2017)
- プレスリリース
- 「シールのように貼れる無線給電式発光デバイス を用いた光がん治療システム」(2018年7月) <u>http://www.jst.go.jp/pr/announce/20180717/in</u> <u>dex.html</u>

