

氏名（本籍） にし おか だい き 西岡大貴（茨城県）  
学位の種類 博士（理学）  
学位記番号 甲第1317号  
学位授与の日付 2024年3月18日  
学位授与の要件 学位規則第4条第1項該当  
学位論文題目 固固界面における電気二重層効果を利用する  
イオンゲーティングリザーバーの開発

論文審査委員 （主査）教授 遠山 貴巳  
教授 伊藤 哲明 教授 木下健太郎  
准教授 樋口 透 教授 長谷川幹雄  
客員准教授 土屋 敬志

## 論文内容の要旨

高速で効率的な情報処理が可能な機械学習モデルであるリザーバーコンピューティングを物理系で実装した物理リザーバーコンピューティング(Physical Reservoir Computing: PRC)は、リザーバーが担う非線形演算を非線形な物理過程で直接計算することが可能であるため、情報処理に必要なコストを大幅に削減する枠組みとして期待されており、様々な物理デバイスによる PRC の実装が積極的に研究されている。

本論文は、固体電解質と固体電子材料の界面で形成される電気二重層効果によるキャリア密度の特徴的な変調を利用した全固体電気二重層トランジスタの物理リザーバー（イオンゲーティングリザーバー(Ion-Gating Reservoir: IGR)）の開発と性能評価に関する研究成果である。

第1章では、序論として現在の人工知能(AI)技術の基礎として、基本的な機械学習モデルであるニューラルネットワークの原理、リザーバーコンピューティングおよびリザーバーの役割と要求される性能、様々な実装例を交えながら物理リザーバーコンピューティングの優位性や現状の課題について記述した。次に、先行研究であるイオン液体電解質を用いた電気化学セル型 PRC について、デバイス構造と性能および問題点を提起した。序論の最後には、リチウム固体電解質/ダイヤモンドから成る固体電気二重層トランジスタの固固界面での電気二重層効果について論じ本論文の目的を述べた。

近年の AI 技術の進歩は目覚ましく、認識問題などの特定のタスクについては人間の能力を凌駕しつつあるため、社会の様々な分野で積極的に利用され、我々の生活の利便性に

らゆる面で大きな恩恵をもたらしている。こうした進歩は、深層学習をはじめとする技術革新に支えられており、ネットワークモデルの大規模化と膨大なデータの学習のもと成り立つ。

現状、従来型コンピュータで脳機能を模擬する AI 計算を行う試みは、消費電力増大等の課題に直面している。これを解決する手段として、物理系に内在する非線形ダイナミクスを直接的に情報処理に利用する PRC が注目されている。PRC は物理系からなるリザーバ部分と読み出し部分から構成され、リザーバには非線形性・高次元性・短期記憶が必要とされる。これらを満足する物理系として、様々な物理デバイスによる実装が報告されているが、高い計算性能と小体積(高集積性)の両立は困難であり、実用化にとって大きな課題となっている。

近年、電気化学現象に基づく複雑で多様な非線形ダイナミクスを利用する PRC は、優れた性能を発揮するとともに、材料の種類や組み合わせによって様々な特徴を有する物理リザーバが提案されている。これまで数多く報告されているイオン液体などの液体電解質を電気化学セルに利用する物理リザーバでは、高い計算性能を有するものの、液漏れによる発火・低集積性等の実用上の問題点が存在する。

本研究の目的は、安全性・高集積性・高い計算性能を有する PRC を実現するために、固体リチウム電解質と水素終端ダイヤモンドチャネルからなる電気二重層トランジスタを作製し、固固界面での電気二重層効果を利用する IGR で計算性能を評価することである。本章では、チャネル材料にイオンが挿入される全固体の酸化還元型トランジスタと対比させて、全固体電気二重層トランジスタの研究報告を紹介し、入出力特性の再現性と安定性に優れた PRC として高い計算性能を有する可能性について論じている。

第 2 章では、実験方法として、マイクロプラズマ気相成長法・電子線蒸着法による水素終端ダイヤモンドの作製法、フォトリソグラフィによる微細加工法、パルスレーザー体積露法による固体電解質膜の作製法について記述している。Li-Si-Zr-O リチウム電解質層のイオン伝導度は、交流インピーダンス法にて評価しており、その原理と諸特性について記述している。次に、画像認識タスク・二次非線形変換タスク・二次非線形自己回帰移動平均モデルの予想タスクの性能評価を行う上で、重要となる線形回帰・リッジ回帰・勾配降下法の各学習アルゴリズムについて詳細に記述している。また、固固界面での電子とイオンの動的挙動を知るために行った物理シミュレーション法である有限要素解析法について記述している。

第 3 章では、全固体電気二重層トランジスタの作製と基本的な電気特性について記述している。本研究で作製した全固体電気二重層トランジスタは、リザーバの高次元性を実現するために、水素終端ダイヤモンド上に 8 つの異なる長さを持つ独立したチャネル(ドレイン・ソース間の長さ)からなり、ソースおよびゲート電極は各チャネル共通とした多端子構造である。各チャネルで直流 I-V 特性はオーミック性を有し、抵抗値はチャネル長に比例して増加すること、LSZO 電解質層の Li<sup>+</sup>イオン伝導度は、 $4.1 \times 10^{-9}$  S/cm と既報の値と一致することから、目的とするデバイスが作製できたことを示している。また、ゲート電圧印加によるドレイン電流とゲート電流応答は、固固界面に形成される電気二重層効果により、

共に3~4桁の大きな抵抗変動を有し、ドレイン電流に顕著なチャンネル長依存性が見られた。これは、ゲート・ドレイン電流共にチャンネル長に大きく依存する  $\text{Li}_x\text{WO}_3$  チャンネル層に用いた全固体酸化還元型トランジスタとは異なっている。以上の結果より、パルス電圧に対する応答速度も踏まえ、全固体電気二重層トランジスタを IGR として優れた特性を示す可能性について示唆を加えている。

第4章では、全固体電気二重層トランジスタの物理リザーバーの性能評価と機構予測について記述している。画像認識タスクによる性能評価は、汎用性のある MNIST データセットの手書き数字を用いて行い、本研究で作製した IGR は、試験データセットに対して 88.8% の認識正答率であった。これは、三層ニューラルネットワークで報告された 95% の認識正答率には及ばないが、学習する重みの数を 1/400 まで削減できた点では優れた IGR であることを確認した。時系列認識タスクとして、二次非線形方程式変換タスクと二次非線形自己回帰移動平均モデルの予測タスクを行った。これらのタスクにおいて、二次の非線形性や短期記憶を有する入出力関係を精度良く再現し、試験データセットに対しても良好な予測誤差（正規化平均二乗誤差：0.020）で目標波形を予測することに成功した。このことは、固体電気二重層効果に基づく IGR の特異な電気応答が情報処理に有効な非線形性と短期記憶を有することを意味するとともに、他の物理リザーバーと比較して、再現性良く、優れた計算機能を有していることを示している。

本研究で作製した全固体の IGR の高い計算性能の起源と非線形ダイナミクスのメカニズムを明らかにするために、有限要素解析によるイオンと電子のシミュレーションを行った。ゲート電圧パルスとして入力された信号は、電解質とチャンネルの固固界面で、ホールとイオンの複雑かつ不規則な電荷分布パターンとして現れることを明らかにした。こうした電荷パターンの分布が、IGR の多様なチャンネルを有する短期記憶性と情報処理に有効な疑似シナプス応答の起源であることを明らかにした。

第5章では本論文を総括した。ダイヤモンド基板上に作製した水素終端ダイヤモンドチャンネルと Li-Si-Zr-O リチウム電解質層を積層させた全固体二重層トランジスタの作製は、ゲート電圧印加により、固固界面での電気二重層効果によるキャリア変動が確認される。物理リザーバーの性能評価として行った二次非線形方程式変換タスクと二次非線形自己回帰移動平均モデルの予測タスクの解析において、二次の非線形性や短期記憶を有する入出力関係を精度良く再現し、正規化平均二乗誤差：0.020) で目標波形を予測することに成功している。有限要素解析による物理シミュレーションにおいて、電解質チャンネルの固固界面で、ホールとイオンの複雑かつ不規則な電荷分布パターンとして観測されたことから、IGR の多様なチャンネルを有する短期記憶性と情報処理に有効な疑似シナプス応答の起源であると考察している。以上の結果は、効率的な情報処理デバイスの発展に貢献し、持続可能な社会かつ人類社会のあらゆる分野に大きく貢献するものと考えられる。

## 論文審査の結果の要旨

現在、従来型コンピュータで脳機能を模擬する AI 計算の試みは、消費電力の増大等の問題のため難しいとされており、物理系に内在する非線形ダイナミクスを直接的に情報処理に利用する物理リザーブコンピューティングが注目されている。この実現のためには、物理系からなるリザーブ部分において、非線形性・高次元性・短期記憶性が必要である。これらを満足する物理系として、電気化学現象に基づく複雑で多様な非線形ダイナミクスを利用する物理リザーブは、優れた計算性能と共に、材料の組み合わせにより様々な特徴を有することが提案されている。これまで数多く報告されているイオン液体を利用する電気化学セルの物理リザーブは、高い計算性能を有するが、発火・低集積性等の問題があり、実用化にとって大きな課題となっている。

この様な背景の下、本論文は、8 つの長さを持つ独立したチャンネルを有するリチウム固体電解質/ダイヤモンドから成る全固体電気二重層トランジスタについて、ゲート電圧による電流応答の評価、画像認識・時系列認識タスクによる全固体物理リザーブの計算性能の評価、有限要素解析による固固界面で電荷分布シミュレーションの研究成果を報告している。本論文は、和文で全5章から構成されている。

第1章では、「序論」として、基本的な機械学習モデルであるニューラルネットワークの原理、リザーブコンピューティングおよびリザーブの役割と要求される性能、先行研究であるイオン液体電解質を用いた電気化学型リザーブ素子の課題、物理リザーブとして全固体電気二重層トランジスタの固固界面の電気二重層効果による電流応答を用いることの優位性について記述している。これらの背景と課題を踏まえ、序論の最後に研究目的を述べている。

第2章では、本研究で用いたダイヤモンド基板上的水素終端ダイヤモンド膜とリチウム固体電解質膜の作製法、全固体電気二重層トランジスタの作製に必要な微細加工プロセス、交流インピーダンス法によるイオン伝導度・パルス印加による電流応答の計測手法の原理、画像認識タスク・二次非線形変換タスク・二次非線形自己回帰移動平均モデルの性能評価タスクの学習アルゴリズムについて述べている。

第3章では、ダイヤモンド膜上に8つの長さを持つ独立したチャンネルからなる全固体電気二重層トランジスタの電気特性に関する研究成果について述べている。各チャンネルで、直流 I-V 特性はオーミック性を有し、抵抗値はチャンネル長に比例して増加すること、リチウム固体電解質層のリチウムイオン伝導度は既報の値と一致することから、目的とするデバイスが作製できたことを示している。ゲート電圧印加による電流応答は、固固界面に形成される電気二重層効果により、3~4桁の大きな電流変調を有し、入力パルスに対して非線形性・短期記憶性を有する電流応答を示している。以上の結果に基づき、全固体電気二重層トランジスタが物理リザーブとして優れた特性を示す可能性について論じている。

第4章では、全固体電気二重層トランジスタの物理リザーバーの性能評価と機構予測について記述している。MNIST データセットの手書き数字を用いた画像認識タスクでは、試験データセットに対して 88.8%の高い認識正答率を得ている。また、時系列認識タスクとして行った二次非線形方程式変換タスクでは  $0.208 \times 10^{-3}$  の正規化平均二乗誤差、二次非線形自己回帰移動平均モデルの予測タスクでは 0.020 の正規化平均二乗誤差であり、二次の非線形性や短期記憶を有する入出力関係を精度良く再現し、試験データセットに対して、極めて小さい誤差で目標波形を予測することに成功している。以上の高い計算性能の起源と非線形ダイナミクスのメカニズムを明らかにするために行った有限要素解析による電荷分布シミュレーションでは、ダイヤモンドとリチウム固体電解質の固固界面で、時間と共に変化するホールとイオンの不均一な電荷分布パターンが得られたことから、時間と共に変化する多様なチャンネルが、全固体電気二重層トランジスタの高い計算性能を有する物理リザーバー性能の主要因になっていると考察している。

第5章では、本論文のまとめが述べられている。

以上のように、ダイヤモンド基板上に水素終端ダイヤモンド膜とリチウム固体電解質膜を積層させた全固体電気二重層トランジスタについて、固固界面にて電気二重層効果による特異な電流変調と時間と共に変化する不均一な電荷分布の存在を明らかにし、画像認識・時系列認識タスクによるリザーバー計算性能を有することを示した本論文の研究結果は、物理学および応用物理学的な見地から高く評価されるべきである。よって、審査委員会は、本論文が博士（理学）の学位論文として十分に価値あるものと認める。