The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	高分子情報処理リザバー素子の構築と集積効果の検討
Author(s)	
Citation	令和5（2023）年度学部学生による自主研究奨励事業研究成果報告書. 2024
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/95167
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

様式６

申請先学部　　理学部　採択番号　No.7

令和５年度大阪大学未来基金「学部学生による自主研究奨励事業」研究成果報告書

ふりがな 氏　　名	シュウ　ヨウ ZHOU YANG	学部 学科	理学部化学科	学年	3 年
ふりがな 共　同 研究者氏名		学部 学科		学年	年
					年
					年
アドバイザー教員 氏名	赤井　恵	所属	理学部化学科		
研究課題名	高分子情報処理リザバー素子の構築と集積効果の検討				
研究成果の概要	研究目的、研究計画、研究方法、研究経過、研究成果等について記述すること。必要に応じて用紙を追加してもよい。（先行する研究を引用する場合は、「阪大生のためのアカデミックライティング入門」に従い、盗作剽窃にならないように引用部分を明示し文末に参考文献リストをつけること。）				

研究目的

人間の脳の仕組みを模したニューラルネットワーク計算を物理的に実現する研究が注目されている。本研究では有機電気化学トランジスタの特性を利用し、入力に対する出力信号の時間応答性や非線形性発生の条件について、入力出力信号の周波数応答性について解析することを目的とし、さらにこれらの効果を総合的に組みあわせ、高い情報処理であるリザバー計算を行なえる高分子リザバーを作製することを目指した。

研究計画

本研究のリザバーは電界重合する PEDOT(poly(3,4-ethylenedioxy-thiophene)の複雑ネットワークを情報変換素子として利用する。PEDOT ネットワークは電解質溶液に浸され、多電極間での電位印加によって生じる電解質イオンの移動により、リザバーに必用な複雑な信号応答が得られることが判っている。

本研究では有機電気化学トランジスタの特性を利用し、入力に対する出力信号の時間応答性や非線形性発生の条件について、電極形状、電解質濃度、ネットワークを作る有機高分子の形、入力出力信号の周波数応答性、またポリマーワイヤーのラマンスペクトルについて解析した。

研究方法

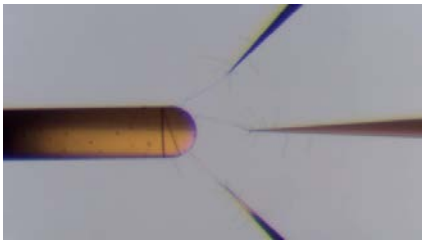
リザバーの作成：

溶液はモノマーの EDOT とドーパントの PSS を溶質として、水とアセトニトリルを溶媒とする。まず、電極基盤に EDOT:PSS 溶液を 50μL 滴下する。

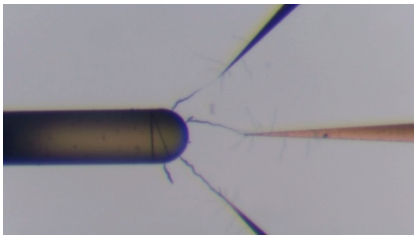
ポリマーワイヤー架橋：

矩形波交流電圧(20 kHz, 10 Vp-p)を印加する。EDOT モノマーから電子が奪われて、電解重合が進み

PEDOT が生成する。電極から PEDOT:PSS がワイヤー状に成長し、3 つの電極にそれぞれワイヤーを架橋した。PEDOT:PSS は高い伝導性と安定性を併せ持つため、様々なデバイスに広く利用されている。



非対称化：
陽極側に、2.5V, 幅 10m 秒のパルス電圧を 20 回連続印加する。(2.5V：重合、10ms：DC 重合がすすむ十分な長さ、500ms：計測時インオン電流影響を避ける)。



右の三つの電極にそれぞれ 1V 電圧の 24Hz 32Hz 50Hz の信号を入力しながら、出力信号を測定する。出力電流が非常に小さいため、Keithley で電流を一千倍増幅する。次に、PicoScope で、出力信号を FFT スペクトルに変換する。最後は、Pico から得られたデータを Python で積算して、ノイズを除去する。

研究経過
最初は測定系由来の倍音があったため、それを除去するために測定系のファンクションジェネレーターや Keithley や PicoScope などの配線やパラメーターを試行錯誤しながら改善し、測定系由来の倍音を除去することができた。
また、溶液由来の倍音を避けるため、入力の周波数の調整を行なって、本研究の解析に適切な周波数（24Hz 32Hz 50Hz）を決めた。
また、FFT スペクトルのノイズを抑えるため PicoScope の各パラメーターの調整を行い、測定回数を増やし積算することでノイズを抑えた。
実験環境を整えた上、入力に対する出力の非線形応答の測定を行なった。
ポリマーワイヤー架橋後の出力側からは、入力信号のみならず、倍音と結合音が現れた。つまり、PEDOT:PSS ポリマーワイヤーを架橋することで、出力から入力信号の非線型写像が現れたとわった。
また、非対称化したポリマーワイヤーはより高い周波数の倍音と結合音が生じた。つまり、非対称化することで、さらに高次元な非線形変換ができることがわかった。入力からの高調波の生成は、デバイスが高次元の写像を示し、これはリザバーコンピューティングを高精度で達成するために不可欠である。

研究成果

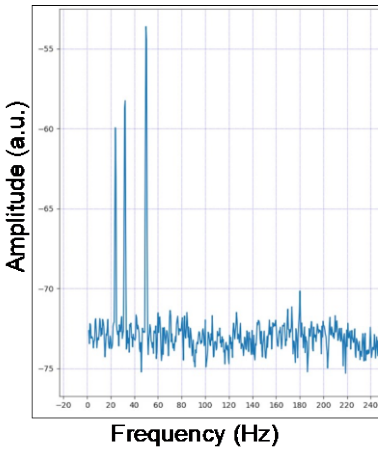


図 1 リザバーが溶液のみの場合の出力 FFT スペクトル

FFT スペクトルより、出力からは入力信号の周波数しか見られなかった。つまり、溶液は単純に抵抗であるため出力は入力の線形写像となる。このようなリザバーには計算能力がない。

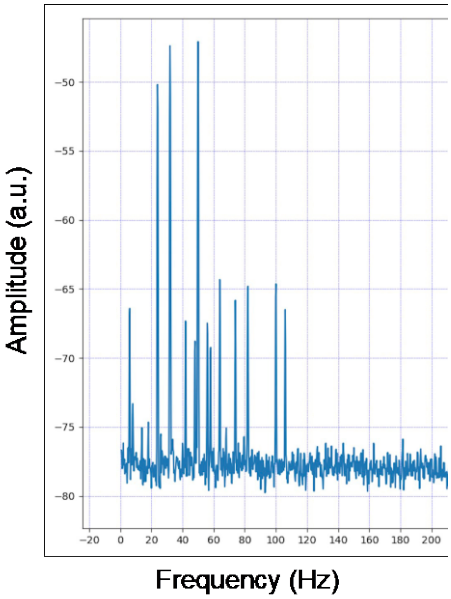


図 2 リザバーがワイヤー架橋した場合の出力 FFT スペクトル

図 2 に示された通り、ポリマーワイヤー架橋後の出力側からは、入力信号のみならず、倍音と結合音が現れた。つまり、PEDOT:PSS ポリマーワイヤーを架橋することで、出力から入力信号の非線型写像が現れたとわった。

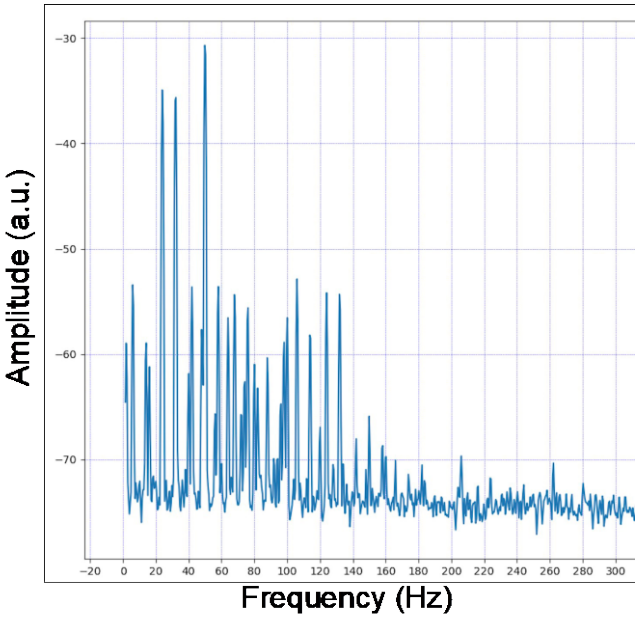


図 3 リザバーがワイヤーをフォーミングした場合の出力 FFT スペクトル

図 3 に示された通り、フォーミングしたポリマーワイヤーはより高い周波数の倍音と結合音が生じた。つまり、フォーミングすることで、さらに高次元な非線形変換ができることがわかった。入力からの高調波の生成は、デバイスが高次元の写像を示し、これはリザバーコンピューティングを高精度で達成するために不可欠である。

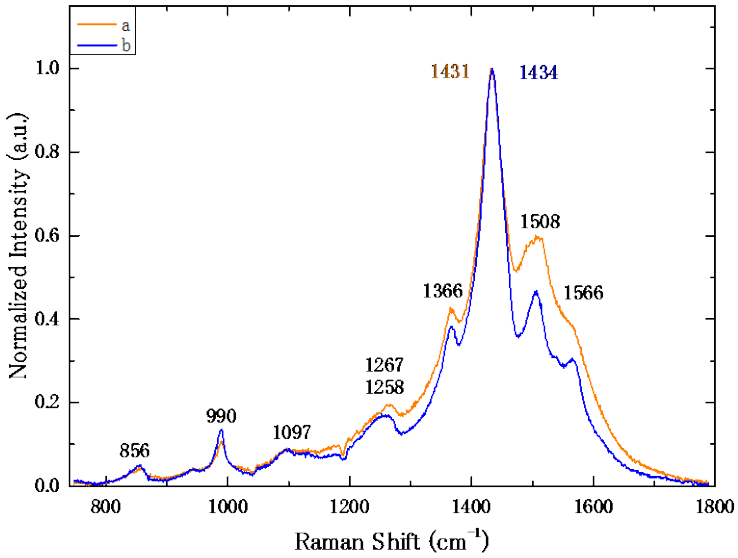


図 4 陽極近傍と陰極近傍のワイヤーを比較したラマンスペクトル

PEDOT はキノイド型とベンゾイド型の 2 つの共鳴構造を持つ。キノイド型ではαα’炭素の結合上に

共役π電子が存在し、より線形的な構造を持っていて、キノイド構造の方の剛直性が高く、PEDOT 鎖間の強い相互作用を可能にし、高い電荷キャリア移動度を実現する。
1434cm-1のピークはαβ炭素二重結合の対称伸縮に帰属する。このピークはGaussian 関数のfittingによって分離することができ、左のピークがキノイド、右のピークがベンゾイドを表す。キノイドの割合が増えるにつれて、ピークが低い波数へシフトすることがわかる。
次に、990 ピークはαα’βの変角振動に起因するもので、スペクトルによると、PSS 濃度の増加とともに減少していることがわかった。これは、モノマー環の間の曲がりが小さくなることを意味し、つまり、線型的な構造を持つキノイド構造の割合が高くなることを意味する。
1267 から 1566 までのピークについては、酸化状態であるキノイドの方が、これらのピーク強度が高くなるという報告もある。しかし、酸化状態の共鳴構造を考慮するなど複雑な解析が必要になるので、今回は詳細な解析までは行わなかった。
よって、陽極近傍のワイヤーがよりキノイド相を持ち、ドーピング状態が高いことがわかる。
したがって、非対称化により、ポリマーワイヤー内のニュートラル、ポーラロン、バイポーラロンの分布が非対称になる。そのため、入力側と出力側でドーピング反応速度と脱ドーピング反応速度が異なり、リザーバーとして高い非線形性が生じると考えられる。

まとめ：

結論

非対称化により、OECT はより高次元の非線形変換が可能であることがわかった。
この高次元非線形変換性能は、PEDOT ワイヤー中の中性子、ポーラロン、バイポーラロンの非対称分布によって生み出される。

展望

波形生成タスク、NARMA タスク、メモリキャパシティタスクを通して、非対称化 OECT のリザーバ計算能力を評価する。

様式６

申請先学部　　理学部　採択番号　No.7