

単分子強誘電体素子の開発

研究代表者

西原 禎文 広島大学大学院理学研究科 准教授



1. 研究の背景と達成目標

昨今のIT技術の進歩によってデータストレージメディアに対する高密度化・大容量化のニーズはますます高まっている。しかし、微小化に伴う磁気記録密度は、近々、限界に達すると指摘されている。ところが1993年に D. Gatteschi らによって磁性体分野に新風を巻き起こす重要な成果が発表された。単一分子であたかも強磁性体のような履歴現象を示す「単分子磁石」の発見である【*Nature*, **365**, 141 (1993)】。「単分子磁石」の発見は記録密度限界の突破口を開いただけでなく、量子コンピュータなどへ応用も指摘されている。一方、強誘電体は強磁性体よりも広範なデバイス応用が可能であるが、単分子磁石と同様の機構を持つ「単分子強誘電素子」は未だ報告されていない。

このような背景の中、我々は世界に先駆けて単一分子で強誘電的な性質を示す究極の強誘電体「単分子強誘電素子」の開発を目指した。素子の開発には、カプセル状の形体を有するポリオキソメタレート分子【以降、POM 分子とする】を用いる。POM 分子の内部には、エネルギー障壁 (U) によって隔てられた結晶学的に2箇所のイオン安定サイトがあり、そこに1つの金属イオンが格納されている【図1a】。申請者は、このエネルギー構造を利用することで、単一分子であたかも強誘電的な振る舞いを示す分子素子の可能性を見出し、本事業を通して①単分子誘電素子のパフォーマンス向上、②単分子誘電素子の機能開拓、③デバイス化を達成し、新産業基盤の創出を目指した。

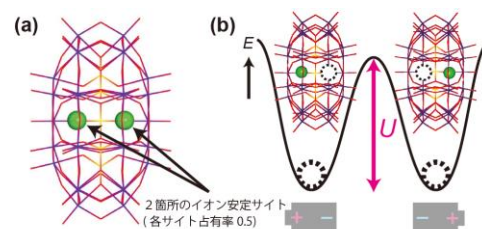


図1. (a) 2箇所のイオン安定サイトを有する POM の構造。(b) 2箇所のイオン安定サイトに起因する二極小ポテンシャル構造。

2. 主な研究成果と社会、学術へのインパクト

- ・本事業を通して、単一分子で恰も強誘電体の様に振る舞う「単分子誘電体」の開発に世界で初めて成功した(現在、論文投稿中。特願:2016-165693、2015-095553)。
- ・室温以上で単分子分極ヒステリシスを確認できたことから、実装素子として産業界から強く期待されている。実際、多くの企業との共同研究を開始している状況である。
- ・「単分子誘電体」を不揮発性記録媒体として用いることで、記録密度限界【1Tbit/inch²】を1000倍以上向上させることが可能となる。実際、FET 型不揮発性メモリのプロトタイプ作製に成功し、トランジスタ特性を確認している。
- ・分子デザインによって、分極性能や分極ヒステリシス発現温度の制御が可能であることを示した。

3. 研究成果

初段階として、金属イオンを内包した POM 分子の詳細な誘電測定を行った。その結果、明確な強誘電転移を示さないにも関わらず、室温以下で分極ヒステリシスが観測された。また、自発分極の発現も確認されたことから、

本系が単一分子で分極ヒステリシスを示すことが明らかとなった。次段階として、分子デザインを駆使した物性制御に取り組んだ。具体的な成果として、POM 分子フレームの還元 (*Chem. Lett.*, **46**, 602, 2017) や内包イオンの価数調節によって、分子分極の制御や分極ヒステリシスの発現温度の制御を達成した。さらに、単一分子で磁気・分極ヒステリシスを示す単分子マルチフェロイック物質の合成にも世界に先駆けて成功した。また、最終段階に位置付けていた単分子誘電メモリデバイスの作製についても取り組んだ。具体的には、電界効果トランジスタ (FET) に単分子誘電体を組み込んだ素子の作製を行った【図2】。現時点で、明確なトランジスタ性能の発現を確認しており、今後、メモリとしての性能を評価していく予定である。

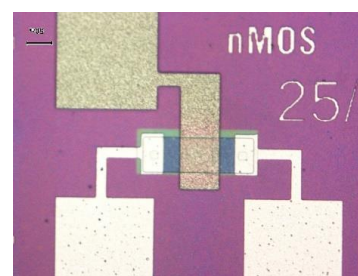


図 2. 実際に作製したメモリデバイスのプロトタイプ。FET 構造に「単分子誘電体」を埋め込んで作製した。

4. 今後の展開

当該研究の達成により、これまで不可能とされていた単一分子メモリへの道が開けた。これにより、既存の記録密度を1000倍以上向上させることが可能となる。この成果は、基礎研究であるにも関わらず多くの企業の注目を集め、これらの企業から技術的・資金的な援助を受けながら研究を進めている。特に現在、広島に拠点を置く半導体メーカーと強く連携し、広島発の分子誘電メモリ創出を目指して取り組んでいる。

5. 発表実績

1. Y. -L. Gao, S. Nishihara, K. Inoue, *Cryst. Eng. Comm.*, *accepted*.
2. M. Shiga, S. Kawaguchi, M. Fujibayashi, S. Nishihara, K. Inoue, T. Akutagawa, S. Noro, T. Nakamura, R. Tsunashima, *Dalton. Trans.*, *Accepted*.
3. A. Hayashi, M. N. K. Wihadi, H. Ota, X. López, K. Ichihashi, S. Nishihara, K. Inoue, N. Tsunoji, T. Sano, M. Sadakane, *ACS Omega*, **3**(2), 2363-2373 (2018).
4. J. Yonemura, Y. Shimamoto, T. Kida, D. Yoshizawa, Y. Kousaka, S. Nishihara, F. J. T. Goncalves, J. Akimitsu, K. Inoue, M. Hagiwara, Y. Togawa, *Phys. Rev. B*, **96**(18), 184423-1-9 (2017).
5. Y. L. Gao, K. Y. Maryunina, S. Hatano, S. Nishihara, K. Inoue, M. Kurmoo, *Cryst. Growth Des.*, **17**(9), 4893-4899 (2017) DOI: 10.1021/acs.cgd.7b00847
6. M. Haraguchi, E. Tretyakov, N. Gritsan, G. Romanenko, D. Gorbunov, A. Bogomyakov, K. Maryunina, S. Suzuki, K. Masatoshi, D. Shiomi, K. Sato, T. Takui, S. Nishihara, K. Inoue, K. Okada, *Chem. Asian J.*, **12** (22), 2929-2941 (2017).
7. Y. Nakayama, S. Nishihara, K. Inoue, T. Suzuki, M. Kurmoo, *Angew. Chem. Int. Ed.*, **56**(32), 9367-9370 (2017).
8. R. Gupta, I. Khan, F. Hussain, A. M. Bossoh, I. M. Mbomekallé, P. D. Oliveira, M. Sadakane, C. Kato, K. Ichihashi, K. Inoue, S. Nishihara, *Inorg. Chem.*, **56**(15), 8759-8767 (2017).
9. I. Nakamura, R. Tsunashima, S. Nishihara, K. Inoue, T. Akutagawa, *Chem. Commun.*, **53**, 6824-6827 (2017).
10. T. Sogo, Y. Shimamoto, Y. Kousaka, J. Akimitsu, S. Nishihara, K. Inoue, D. Yoshizawa, M. Hagiwara, M. Mito, R. L. Stamps, I. G. Bostrem, V. E. Sinitsyn, A. S. Ovchinnikov, J. Kishine, and Y. Togawa, *Phys. Rev. B*, **95**(10), 104415-1-5 (2017).