平成三十年度 博士論文

高分子トランジスタを用いた内部ノイズを有する デバイスシステムにおける確率共鳴

群馬大学 大学院理工学府 理工学専攻 物質・生命理工学領域 高分子創発機能科学研究室 学籍番号 T162A005 鈴木 喜晴

目次

第1章	序論		1	
1.1	デジタル情報処理技術の発展			
	1.1.1	微細化の限界とエネルギー問題	1	
	1.1.2	人工ニューラルネットワークによる機械学習の発展	2	
1.2	ノイズ	を利用した生物の情報処理	3	
	1.2.1	生物における確率共鳴現象........................	3	
	1.2.2	ノイズ誘起現象と生物機能との関連性...........	3	
1.3	電子デ	がイスとノイズの利用	6	
	1.3.1	ニューロン型デバイス	6	
	1.3.2	電子デバイスにおける確率共鳴現象.............	7	
	1.3.3	ノイズを利用した人工システム	8	
1.4	有機工	レクトロニクスにおけるノイズ	9	
	1.4.1	有機エレクトロニクス	9	
	1.4.2	有機電界効果トランジスタ (OFET)	11	
	1.4.3	ポリヘキシルチオフェン	13	
	1.4.4	OFET におけるノイズ	13	
1.5	本研究の位置づけ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・			
	1.5.1	内部ノイズによる確率共鳴現象に関する研究	17	
	1.5.2	望まれるシステムの特性...........................	17	
	1.5.3	本研究の目的................................	19	
参考文	献		20	
第2章	有機電	界効果トランジスタの作製および改良	29	
2.1	目的.		29	
2.2	OFET	この作製方法・電気特性測定.......................	30	
2.3	RR-P	3HT の成膜温度	31	
	2.3.1	実験方法	31	
	2.3.2	RR-P3HT 膜のモルフォロジーおよび OFET 特性	32	
2.4	周波数	[特性の改善・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	34	
	2.4.1	測定方法	34	
	2.4.2	ゲート電極幅の縮小	35	
	2.4.3	負荷抵抗と周波数特性	37	
2.5	チャネ	ル外の RR-P3HT の除去	38	

目次

2.6	OFET の大気の影響	40		
2.7	まとめ	4		
参考文	献	43		
第3章	有機電界効果トランジスタにおける確率共鳴の観測	4		
3.1	目的	4		
3.2	測定方法	4		
3.3	負荷抵抗の検討................................	4		
3.4	OFET システムにおける確率共鳴現象	4		
	3.4.1 確率共鳴現象の挙動	4		
	3.4.2 OFET システムのモデル化	4		
	3.4.3 確率共鳴の数値シミュレーションと OFET システムの構造	5		
3.5	OFET システムの非 線形性と確率共鳴現象	5		
3.6	まとめ	5		
参考文	献	5		
第4章	有機電界効果トランジスタシステムにおける内部ノイズの解析	5		
4.1	目的	5		
4.2	確率共鳴実験における内部ノイズ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5		
	4.2.1 内部ノイズの特性	5		
	4.2.2 内部ノイズの由来	6		
4.3	負荷抵抗と内部ノイズ	6		
4.4	まとめ	6		
参考又	Χ	6		
第5章	確率共鳴に及ぼす内部ノイズの効果の解析	6		
5.1	目的	6		
5.2	パラメータの規格化および相関係数の理論値	6		
5.3	内部ノイズと閾値・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	7		
5.4	内部ノイズによるロバスト性・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	7		
5.5	まとめ	7		
参考文	南代	7		
第6章	総括	8		
第7章	今後の展望	8		
付録 A	OFET を用いたドレイン接地回路の入力周波数を変えたときの出力波形			
付録 B	外部ノイズの確率分布	8		
付録 C	確率共鳴実験における正弦波と矩形波の違い	8		
付録 D	相関係数の理論値の導出	g		
D.1	外部ノイズが存在しているときの相関係数	9		

D.2	外部ノイズのないときの相関係数	94
D.3	相関係数の外部ノイズ強度に対する微分値	94
研究業績		97
謝辞		100

第1章

序論

1.1 デジタル情報処理技術の発展

1.1.1 微細化の限界とエネルギー問題

1990年代からデジタル技術が急速に発展し、今では社会を支える重要な技術となって いる。デジタル処理を担っているのは、半導体デバイスであり、現在の多くは CMOS^{†1} によって構成される [1]。CMOS の微細化・集積化技術が進んだことにより、デジタルコ ンピュータの性能が大幅に向上した。CMOS に使われる MOSFET^{†2} は、ゲート、ド レイン、ソースの 3 端子から成る電子素子であり、ゲートに印加する電気信号によって、 ソース-ドレイン間の電流をスイッチできる。MOSFET を微細化すると、駆動電圧を引 き下げ、流れる電流が減るため消費電力を抑制できる。またスイッチングに必要な電荷量 が少なくてもよくなるため、素子の高速化にもつながる。そして微細化とともに単位面積 あたりに多くの素子を集積できるようにもなった。1971年にインテル社が開発した、世 界で初のシングルチップマクロプロセッサー Intel 4004 は、2300 個のトランジスタから 成り、クロック周波数は 740kHz であった [2]。そこから 2014年には、55.6 億個のトラ ンジスタを持ち、1.6-3.7GHz で動作する Xeon E5-2600 v3 [3] をリリースし、集積化の 進展が伺える。このような半導体の集積率の増加具合は、2年で約で 2 倍になると言われ ている [4,5]。この法則をムーアの法則と呼び、これまではこの法則に従い半導体素子の 微細化は進んできた [6](Fig. 1.1)。

しかしムーアの法則に従った微細化は、まもなく破綻するとされている [5]。近年はプロセスルールがサブ 10nm であり、原子レベルのサイズに到達しようとしており、じきに物理的に実現困難なほどの微小な素子を作られる必要性が高まるためである。さらに微細化を進めていくにつれて浮上してきた問題もある。それはゲートリーク電流である [7]。本来電流が流れないはずの絶縁膜だが、薄くするとリーク電流が生じてしまう。またサブスレッショルド電流が増加するということも起こっている [7]。これによって消費電力が大きくなってしまうという問題が発生する。さらに集積度が高いことも相まって、発熱量が大きくなることも課題となっている [6](Fig. 1.1)。つまり、大きな発展を遂げてきたデジタル情報処理システムを支える半導体素子は、これまでのように微細化・集積化という戦略のみでは限界になりつつあると言える。

ー方でデジタル処理を担う半導体素子への需要は、より一層増加していくと考えられる。パソコン、スマートホンが普及しさらに、さまざまなものをインターネットへ接続し

^{†1} Complementary Metal Oxide Semiconductor; 相補 型 MOS

^{†2} Metal Oxide Semiconductor Field Effect Transistor; MOSFET:

金属/酸化物/半導体構造を 持つ電界効果トランジスタ (FET)



コミュニケーションを取れるようにするという IoT [8] ^{†3}、そしてそれらを活用して得られたビッグデータを活用しようとする動きがある [9]。これらはデジタル処理システムを利用するため、より多くの半導体素子が必要となることは想像に難くない。デジタル情報処理の活用される場面が増えるということは、それだけ半導体素子に電力が消費され、情報処理のためのエネルギー量が膨大になると予想される。そのため情報技術を発展させていくために、新たな情報処理システムの構築をしていく必要性があると言える。

1.1.2 人工ニューラルネットワークによる機械学習の発展

2012 年に Google が深層学習によって、教師なし学習で猫を認識することができた [10]。 同じく 2012 年に、画像認識コンテスト ILSVRC^{†4} で深層学習を用いた AlexNex が [10] 二位と大差をつけて優勝した。これらのことをきっかけとして、深層学習に注目が集 まった。

深層学習は、生物の脳から着想を得てつくられた人工ニューラルネットワークを使って いる [11]。さまざまなシナプスから入力された信号の和が、ニューロンの閾値を超える と、ニューロンが大きな出力を出す。そしてシナプスには、それぞれ重みづけがされてい る。このような神経細胞の特徴を取り入れ、入力層と出力層の間に多数の隠れ層を持つも のが深層学習である。つまり生物の情報処理機構の一部を取り込むことによって、新たな 機能が得られたということになる。

しかしこのような機械学習においても、基盤となっているのはデジタル技術である。機 械学習に利用されるハードウェアは、CPU, GPU, FPGA, ASIC^{†5}のようなデジタル ベースの半導体素子である [12]。機械学習を行うためには、処理能力の高いハードウェア が必要となり、半導体素子の性能向上が要求される。

Figure 1.1: マイクロプロセッ サチップあたりのトランジスタ 数とチップのクロック周波数の 推移。過去 50 年にわたって、 ムーアの法則に従いトランジス タ数が増えてきた。同様にクロ ック周波数も上がってきたが、 発熱の問題のため 2004 年で頭 打ちとなっている。: [6]

^{†3} Internet of Things; モノ のインターネット

^{†4} ImageNet Large-Scale Visual Recognition Challenge; ILSVRC

^{†5} central processing unit; CPU,

graphics processing unit; GPU,

field-programmable gate ar-

 $\operatorname{ray};\,\operatorname{FPGA},$

application specific integrated circuit; ASIC

1.2 ノイズを利用した生物の情報処理

1.2.1 生物における確率共鳴現象

情報処理システムである生物の脳は、デジタルコンピュータと比較してその消費電力量 が小さい [13]。これの一翼を担っているのは、外部や内部のノイズの利用であるとされて いる [14]。ノイズを利用できるメカニズムとして、最も研究されているものは確率共鳴 現象⁺⁶である [15,16]。確率共鳴現象とは、ノイズを印加することによって信号伝達パ フォーマンスが向上する現象のことである。例えば、システムの持つ閾値を超えられない ような、微弱な入力信号がシステムに入っていた場合、システムは出力信号を出せない が、入力信号と同時にノイズを加えることにより、システムは入力信号に対応した出力を 出すことができることがある (Fig. 1.2)。このような現象が確率共鳴である。生物の感覚

> input threshold output

without noise

with noise

系において、実験的にこの現象が確認されている。例えば Douglass らはザリガニの尾に ある機械受容器細胞に、微弱信号パルスを印加し、そのときの細胞のスパイク活性を観測 した [17]。微弱信号パルスと同時にノイズを印加したところ、出力パルスの信号雑音比 (SNR)の増加が確認され、生体において確率共鳴現象が起こることが確認された。そして ザリガニは圧力波を利用した確率共鳴により、捕食者を感知すると考えられている [18]。 またヘラチョウザメのプランクトンの捕食 [19]、コオロギの天敵の感知 [20] にも確率共 鳴が利用されているのではないかと考えられている。他にも、ラットを使った確率共鳴の 実験も行われている [21,22]。

人間を対象とした確率共鳴の実験も行われている。視覚 [23] や接触感覚 [24]、バラン スコントロール能力 [25] がノイズによって向上することが確認された。ここまで述べた 結果から、通常は感知・認識できないような微弱な信号を、外部に存在するノイズを利用 することによって検出している可能性がある。

1.2.2 ノイズ誘起現象と生物機能との関連性

生物における情報処理を担っているニューロンの挙動は数理モデルによって再現されて いる。ニューロンモデルを使った研究によって、興奮性システムにおいても確率共鳴が起 こることがわかっており、多様な条件下で確認されている。Collins らは、フィッツヒュー 南雲 (FHN) ニューロンモデル^{†7}を並列化し、出力を加算するネットワークを作り、個々 のニューロンに独立なノイズを印加することを行った [26]。つまり空間的に多数存在する 出力信号を積算するということを行っている。その結果、並列化する数を増やすに従い、 Figure 1.2: 閾値未満の信号を 入力されているシステムの確率 共鳴の例。ノイズなしでは入力 は閾値を超えられないため、出 力が得られないが、ノイズを印 加することによって出力信号が 得られる。

^{†6} stochastic resonance

^{†7} The FitzHugh-Nagumo model



Figure 1.3: (left) N 個の興奮性ユニット (EU_i) からなる加算ネットワーク。それぞれの EU_i(i = 1, 2, ..., N) はフィッツヒュー南雲ニューロンであ り、独立なガウスホワイトノイズ ξ_i と共通の信号 S(t) が入力されている。(right) N 個のそれぞれのユニットに入力するガウスホワイトノイズの強度 (2D) に対する、ネットワークの出力信号 $R_{\Sigma}(t)$ と入力信号 S(t) 間の相関値 C_3 。並列化数 N の増加に伴って、相関値が増加し、2D が大きくなっても 高い値で維持されている。: [26]

確率共鳴の効果が増強されると共に、一度上がった信号伝達パフォーマンスは、ノイズ強 度をさらに大きくしても高いまま維持されることが示された。このモデルは Collins モデ ルと呼ばれている。Collins モデルのように並列化をすることにより、確率共鳴による信 号伝達の信頼性が上がるとともに、信号伝達能力向上に利用できるノイズの強度範囲を広 くすることができることを意味する。

さらに単純閾値系^{†8}を並列化したモデルにおいて、入力信号がノイズなしで閾値を超 えている条件のときでも確率共鳴がみられることが知られている。これを閾上確率共鳴^{†9} と呼ぶ [27-29]。入力信号が閾値以上の条件では、多くの場合はノイズを印加しても確率 共鳴がみられない [30,31]。しかし上記のような系においては、入力信号が大きいときで あってもノイズが信号伝達を向上させることができ、確率共鳴が適用できるのは微弱信号 のみではないということを意味する。

また複数の周波数成分から成る閾値未満の信号を入力したときにも、同時にノイズを入れると確率共鳴が起こることが知られている。異なる二つの周波数 $f_1 \ge f_2$ を足し合わせた信号とともに印加するノイズ強度を増加していくと、最適なノイズ強度においてビート周波数 $(f_1 - f_2)$ 成分が助長される [32]。ただし確率共鳴による信号の増強量は、ビート周波数にのみに依存するのではなく、それぞれの入力周波数 f_1, f_2 にも影響を受ける。

さらに高調波からなる信号と同時にノイズを入れた研究も存在する [33,34]。入力信号 の複数の周波数成分が kf_0 , $(k+1)f_0$,..., $(k+n)f_0$ (k > 0) のときに、ノイズ強度を大き くしていくと基本周波数成分 f_0 が出現する (Fig.1.4)。つまり入力信号には存在しない 周波数成分が、ノイズの印加によって出現したことになる。この現象はゴースト確率共 鳴^{†10} と呼ばれる。ゴースト確率共鳴は、入力信号が非調和信号のときにでも起こる。入 力信号成分が $f_1 = kf_0 + \Delta f$, $f_2 = (k+1)f_0 + \Delta f$, ..., $f_n = (k+n)f_0 + \Delta f$ のときに ノイズを印加すると、出力には $f_r = f_0 + \Delta f/(k+1/2)$ 成分が出現する。このような現 象は、生物における実験においても確認されており [35,36]、聴覚末梢で複雑な音のピッ チを感知することができるメカニズムなのではないかと言われている。このように確率共 鳴現象は、伝達する情報を補うことに一役買っている可能性がある。

^{†8} ヘヴィサイド関数 $y = \theta(x)$ によってモデル化されたもの $(x: 入力, y: 出力, \theta_i: 閾値)$



^{†9} suprathreshold stochastic resonance

^{†10} ghost stochastic resonance



基本的な確率共鳴現象の原理は、閾値を超えられない入力信号を、ノイズの助けによっ て超えられるようにするというものである。つまりニューロンにおいては、受けている 信号が閾値以下のために発火できないニューロンを、ノイズによって発火させるという ことになる。このことから、ノイズには興奮性(活性化)の効果を持つということが感じ 取れる。一方で、ノイズによる抑制性の効果も確認されている。ホジキン・ハックスレー (HH)ニューロンモデル^{†11} にノイズを印加すると、最適ノイズ強度のときにニューロン の発火頻度が最小になることが報告された [37–39]。通常の確率共鳴現象では、横軸を印 加ノイズ強度、縦軸を信号伝達パフォーマンスとしたときに、増加しながら極大値をとり、 そこから減少していく釣り鐘型カーブを描くグラフがみられる。しかしこの報告では、横 軸に印加ノイズ強度、縦軸に発火頻度をとったときに、一度減少したあと極小値をとり、 その後増加するというカーブがみられた。このように多くの確率共鳴現象における釣り鐘 型を上下反転した挙動を示すことから、インバース確率共鳴^{†12} と言われる (Fig.1.6)。実 際の生体システムとしては、イカの軸索においてこの現象が確認されている [40]。



Figure 1.4: 二つの周波数 (f_1, f_2) からなる入力をしたときの、 ノイズの分散 σ に対する、 f_0, f_1 および f_2 のスパイク間隔が観 測される確率。入力していない 低調波 f_0 において、最も大き い共鳴がみられる。 $(f_0 = 1\text{Hz}, f_1 = 2\text{Hz}, f_2 = 3\text{Hz})$: [33]

^{†11} Hodgkin-Huxley neural model

 $^{\dagger 12}$ inverse stochastic resonance

Figure 1.5: HH ニューロンモデ ルにおける、ノイズレベル σ に 対するスパイクの平均数 N(100trials)。3 種類の平均電流強度 (平均入力電流密度 μ)の入力電 流を与えたときの結果が示され ている。: [37]

多数の興奮性・抑制性のニューロンによるネットワークにおいても確率共鳴が有効であ

^{†13} leaky integrate-and-fire model; LIF model

るという報告がある [41]。この研究ではリークを有する積分発火 (LIF) ニューロンモデ ル^{†13}を用いており、それぞれのニューロン間の結合強度の分布はロングテールであり、 多数の弱い結合と少数の強い結合が存在している。一つのニューロンに着目すると、多数 の弱い結合からの信号によってノイズを作り出し、少数の強い結合の信号を強めることが 確認された。ニューラルネットワークにおいても同様に、まばらに存在する強い結合を 通って信号が伝達され、他の多数存在する弱い結合からの入力によってそれが補助されて いることが確かめられている。このことから、ネットワークレベルで確率共鳴現象が信号 伝達に寄与していることと、多数存在する弱いシナプス結合が確率共鳴のために利用され る可能性が示唆された。

ここまで述べてきた確率共鳴現象は、入力に対して非線形的に応答する非線形応答シ ステムに信号が入力されているときに起こる現象である。一方で入力信号が存在しなく ても、ノイズを印加することによってシステムが準周期的な応答を示すようになる、コ ヒーレンス共鳴という現象がある。HH ニューロンモデル [42,43], FHN ニューロンモデ ル [44-46], Izhikevich ニューロンモデル [47] といった興奮可能システムで確認されてい る。発火がほとんど起こっていないニューロンに、ノイズを印加していくと発火の頻度が 増加していき、最適なノイズ強度のときではその周期性が高くなり、コヒーレンス共鳴が 発現する。

以上のように多くの数理モデルを用いたシミュレーションを用いた研究によって、 ニューロンでは内部・外部からのノイズを有効に活用できることが示された。このことか ら生物の情報処理を行う脳において、信号の検出や情報処理のために確率共鳴現象やその 他のノイズ誘起現象が寄与しているのではないかと言われている。しかし実際に生物の機 能を発現する上で、脳での情報処理過程に確率共鳴現象が利用されているのかについて は、未だによくわかっていない [48]。生体システムを利用したほとんどの確率共鳴の実験 では、外部からノイズとなる刺激を印加し、その時の応答を調べることによってノイズの 効果を調べている。しかし生物は外部ノイズを加えることがなくても、感覚器官からの十 分大きな刺激を感知し、認識・判断して柔軟に行動できる。つまり脳としての機能は、外 部からのノイズがなくても維持される。そのため実験的に確かめられた生物での確率共鳴 は、生物の感覚神経を非線形応答システムとして扱い、その応答を確認したに過ぎないと 言える。以上のことから、脳の機能に確率共鳴現象が活用されているとするならば、シス テム内部からのノイズを利用していると考える方が妥当である。しかし生体内の内部ノイ ズによって確率共鳴現象が起こっているか否かを確認するには、生物が情報処理を行って いるときに内部ノイズ強度をコントロールできなければならない。生体内の内部ノイズを 制御する方法がない限りは、明確に生体情報処理に確率共鳴が寄与しているかどうかは分 からない。

1.3 電子デバイスとノイズの利用

1.3.1 ニューロン型デバイス

脳の理解、さらにその仕組みを取り入れるため、脳のような仕組みを持つコンピュータの開発が試みられてきた [49,50]。そこで CMOS テクノロジーを使った人工シナプスが 作られたが [51,52]、活性電位を表現するための構造が煩雑であり、エネルギー消費量が 大きくなるとともに、物理的に大きくなってしまうという問題があった。そこで、フロー ティングゲート構造のシリコンベースのトランジスタ [53,54] や、メモリスタ [55–58]、 強誘電デバイス [59,60]、相転移メモリ [61–63]、FET [63–67] といった異なる構造のデ バイスが提案されてきた。最近では、相互接続性が高く、低エネルギー駆動のシナプスデ バイスも報告され [68]、多くの無機シナプスデバイス [69–74] やネットワーク [75,76] が 開発されている。

さらに有機材料特有のフレキシブル性や伸縮可能な性質から、複雑な情報処理を必要としながらもフレキシブルさを有するニューロモルフィックシステム(例えば、フレキシブルインテリジェントシステム[77,78])の構築のために有機シナプスデバイスが有望視されている[79]。多数のセンサー・電子デバイスを集積したシステムでは、大量の入力信号を処理する必要があり、ニューラルネットワーク状のアーキテクチャがより適していると考えられている[77,80]。

脳で行われているような情報のエンコーディング、貯蓄、強化という処理に、シナプス 可塑性が重要であると考えられている [81]。そのためシナプス可塑性の原理を説明する Hebb 則 [82] や、スパイクタイミング依存可塑性 [83] を再現するような、ニューロモル フィックデバイスの開発が行われている [84]。

一方で、確率的な応答をするというニューロンの特性を模倣した電子素子も提案されて いる。例えば、単層カーボンナノチューブ (SWNT) とポリオキソメタレート分子によっ て、ノイズを含むスパイクを発生させる、ニューロン型分子ネットワークが報告されて いる [85]。CMOS ベースのデバイスに LED を組み込み、ランダムパルス生成を可能に したデバイスも存在する [86]。またノイズ源は内在していないものの、CMOS 回路ベー ス [87]、VLSI によるニューロン [88] や半導体ニューロン [89] においては、外部から電圧 ノイズを加算することによって、確率共鳴現象が確認されている。半導体ニューロンでは 確率共鳴のみでなく、コヒーレンス共鳴と確率的同期に関係した出力周波数のロックもみ られている [89]。

1.3.2 電子デバイスにおける確率共鳴現象

多くのニューロン型デバイスのようなスパイクを発生させる興奮性システムでない電子 素子や回路であっても、確率共鳴現象が起こることが知られている。例えば、ヒステリシ ス特性を示し二つの閾値を持つシュミットトリガにおける確率共鳴の研究報告がある。そ れまで確率共鳴の研究対象として頻繁に扱われた二重井戸ポテンシャルモデルに相当する 系であることが示され、閾値が一つのみ持つ単安定システムに比べて確率共鳴の効果が大 きいということが分かっている。

また小型で集積化が容易であり、室温で動作し扱いやすい系であるとし、GaAsナノワ イヤFETに注目し、確率共鳴現象を扱った報告がある [90,91]。並列させた系において 確率共鳴を引き起こし、GaAsナノワイヤFETを用いて Collins モデルを再現したもの では、ノイズによる信号伝達性能の上昇量が並列化数によって大きくなることが確認され た [90]。それに伴い、線形応答素子の並列化したパターンと比較しても優位になることが 示された。しかし GaAsナノワイヤFET の閾値や、印加するノイズ強度によっては線形 素子の性能を上回ることができないという問題点があった。そこで並列化する素子のそれ ぞれの閾値を意図的にばらばらにするということを行った [91]。それによって上記のよう な状況であっても、GaAs ナノワイヤ FET による非線形応答システムは、線形応答シス テムとほぼ同等か、それよりも高いパフォーマンスを維持することができた。従来までの デジタル機器に利用されている電子デバイスは、性能のばらつきを抑えるように製造され てきたが、確率共鳴現象を利用したシステムにおいては、逆に素子間のばらつきがポジ ティブに働く可能性があることが示唆された。

また非線形応答特性を示す単層カーボンナノチューブ (SWNT) に、ノイズ源としてリ ンモリブデン酸 ($H_3PMo_{12}O_{40}$)を吸着させることによって、確率共鳴現象のような挙動 がみられたことが報告された [92]。その他にもトンネルダイオード [93]、カーボンナノ チューブトランジスタ [94–97]、MOSFET [98]、VO₂ 薄膜デバイス [99] 等において確率 共鳴現象が観測されている。

1.3.3 ノイズを利用した人工システム

Table 1.1: 真理值表

		input set	
	(0,0)	$_{/(1,0)}^{(0,1)}$	(1,1)
NAND	1	1	0
NOR	1	0	0
AND	0	0	1
OR	0	1	1

^{†14} logical stochastic resonance

Figure 1.6: NOR 論理演算が 行える確率 P(NOR)(left, z tem)と NAND 論理演算が行える確 率 P(NAND)(right, z tem)のノ イズ強度 D(x tem) と DC 入力 値 C(y tem)依存性。 $C \sim 0 o$ ときに NOR 演算が行える確率 が高く、 $C \sim -1$ のときには NAND 演算が行える確率が高 い。: [100] デジタル信号処理システムに直接、確率共鳴を利用しようとする研究がある。コン ピュータシステムの縮小化、処理速度の高速化に伴い、ノイズの存在が避けられなくなっ てきた状況に合わせ、ノイジーなシステムを想定し、そのような環境であっても確率共鳴 現象を利用し、論理回路が動作し得ることが報告されている[100,101]。論理回路は二つ の入力に対応した出力を返すものであるが、閾値を持つ非線形応答システムでもあるた め、確率共鳴が起こり得る系であると言える。報告されているモデルでは、1か0の二つ のデジタル入力を足し合わせた信号を、二つの閾値を持つ双安定システムに入力し、同時 に一定強度のノイズを印加しながら論理演算(Table.1.1)を行う。このときのノイズ強度 は小さすぎても、大きすぎても論理回路は機能しなくなり、ロジカル確率共鳴^{†14}と呼ば れている。さらにこのときの入力バイアス(または閾値)によって NAND と NOR の、 または AND と OR の論理演算を切り替えることができることができることが示された。



音声・画像処理においてランダム信号が利用されることがある。それは、アナログ-デ ジタル (A-D) 変換によって生じる不具合を改善させるときに用いられるディザと呼ばれ る処理において利用される [102,103]。アナログ信号は連続的な数値を扱うが、デジタル 化する過程で離散的な数値へと丸め込む必要がでてくる。このときに事前にアナログ信号 に乱数を加えることによって、A-D 変換によって生じる量子化誤差を小さくする処理が ディザである。ディザによって、A-D 変換器の非線形特性の改善を行い、変換精度を向上 させたり、A-D 変換に伴ってできた意図しない周期性・高調波成分を減らすことが行われ る。ディザは、閾値を持つ静的な非線形応答システム (A-D 変換器)に入力する信号に、



Figure 1.7: (a) ナノワイヤ FET における確率共鳴の応答 (bottom) と、それを利用した EMG 検出の概念図 (top)。前腕部から信号を検出するとき に、同時に観測されるノイズをを確率共鳴に利用し、EMG 検出を行っている。(b) 異なる閾値 $V_{\rm th}$ から成る FET ネットワークと均一な閾値 $V_{\rm th}$ から 成る FET ネットワークのそれぞれを使って測定された、出力 SNR(信号対雑音比)の筋張力強度依存性。不均一な閾値のネットワークを用いることに よって、筋張力強度を変えても広い範囲で高い SNR が維持された。: [106]

ノイズを加えることによってシステムの信号伝達性能を改善しているように、確率共鳴現 象を応用した技術であると言える [104,105]。

身体の表面から、微弱な生体信号の検出を行うときに、確率共鳴を利用しようとする 試みがある。GaAsナノワイヤ FET を並列化させたシステムを用いることによって、生 体からのノイズを利用した確率共鳴現象を使い、上腕から筋電図を得ることを行ってい る [106]。生体由来のノイズを活用することによって、SNRの高い信号を検出することが できたことが報告された (Fig.1.7)。心電図測定に一般的に使われる双極誘導法では、二 つの電極によってノイズを相殺する仕組みのため、両電極のバランスが重要となり、人の 動きに弱い一方で、確率共鳴現象を利用したこの方法であれば、動きにも強く比較的容易 に微弱な生体信号が測定できるとしている。

1.4 有機エレクトロニクスにおけるノイズ

1.4.1 有機エレクトロニクス

既存の電子機器のほとんどに組み込まれているのは無機材料によって作られた電子素子 であるが、その代替となるとして有機材料に注目が集まり、有機エレクトロニクスに関す る多くの研究が行われている。有機半導体はフレキシブル、軽量、低コストで成膜できる という、無機材料にはない利点がある [107,108]。これは共有結合による強い結合を持つ 無機半導体と異なり、有機半導体は分子同士が弱いファンデルワールス力によって凝集し てできていることに由来する。結合が弱いため、比較的低温で蒸着でき、溶媒に可溶な材 料も多いためスピンコート法 [109] や印刷 [110] を用いることもでき、低コストで素子作



Figure 1.8: 代表的な有機半導体である、dinaphtho[2,3-b:2',3'-f]thieno[3,2-b]thiophene (DNTT), copper hexadecafluorophthalocyanine (F₁₆CuPc), naphthalenetetracarboxylic dianhydride (NTCDA), 6,13-bis(triisopropylsilylethynyl)pentacene (TIPS-PEN), 5,11-bis(triethylsilylethiynyl)anthradithiophene (TES-ADT), 2,7-dioctyl[1]benzothieno[3,2-b][1]benzothiophene (C₈-BTBT), poly(3hexylthiophene) (P3HT), poly[9,9-dioctylfluorene-co-bithiophene] (F₈T₂), poly(3,3"'-dialkylquaterthiophene) (PQT-12) の化学構造。

製が可能になる。また官能基をカスタマイズすることにより、化学的性質を多様に変化 させることができ、分子軌道のエネルギー準位や溶解性をコントロールすることもでき る [111,112]。一方で分子間相互作用が小さいため、電荷キャリアの輸送効率が低くなる 傾向にある。低分子の加熱蒸着や高分子の溶媒プロセスなどを用いて成膜された有機半 導体膜には、非晶 (アモルファス)、多結晶が混在し、単結晶薄膜は形成しにくい [113] 。 そして構造的に無秩序性を有し、電荷トラップ形成によるエネルギー的無秩序も作り出 す [114] 。

有機半導体を用いたデバイスとしては、有機発光ダイオード (OLED^{†15})[115]、有機 太陽電池 (OPV^{†16})[116]、有機電界効果トランジスタ (OFET^{†17})[117] がある。また 有機特有のフレキシブル・軽量な性質から電子ペーパーや RFID^{†18} への応用も試みられ ている。

半導体の特性を示す代表的な低分子材料としては、ペンタセン、ジナフトチエノチオ フェン (DNTT)、ヘキサデカフルオロフタロシアニン銅 (F₁₆CuPc)、ナフタレンテト ラカルボン酸 (NTCDA)、溶媒に可溶なものとして 6,13-ビス (トリイソプロピルシリル エチニル) ペンタセン (TIPS-PEN)、5,11-ビス (トリエチルシリルエチニル) アントラ ジチオフェン (TES-ADT)、2,7-ジフェニル [1] ベンゾチエノ [3,2-b][1] ベンゾチオフェ ン (C₈-BTBT)、また高分子材料としては、ポリ (3-ヘキシルチオフェン) (P3HT)、ポ リ [(9,9-ジオクチルフルオレニル-2,7-ジイル)-co-ビチオフェン] (F₈T₂)、ポリ (3,3"・ジ ドデシルクアテルチオフェン) (PQT-12) が挙げられる [118,119](Fig.1.8)。有機半導体 分子の多くは 共役系ユニットを持ち、非局在化した 電子による分子間の結合により、 HOMO-LUMO エネルギーギャップが小さくなっている。

 $^{\dagger 15}$ organic light emitting diode

^{†16} organic photovoltaics

^{†17} organic field effect transistor; OFET:

organic thinfilm transistor; OTFT (有機薄膜トランジス タ)とも呼ばれるが、本論文 では OFET に統一する

^{†18} ratio frequency identifier



Figure 1.9: (a) トップゲート型 OFET の構造。ゲート、ドレイン、ソースの3つの電極を持ち、半導体膜と絶縁膜により構成される。(b) ゲート電圧 による電界効果のない状態。半導体層-絶縁体層界面にチャネルが形成されず、電荷キャリアはドレイン-ソース間を移動しづらく、OFET は Off 状態となる。(c) ゲート電圧による電界効果が効いている状態。半導体層-絶縁体相界面にチャネルが形成され、電荷キャリアはドレイン-ソース間を移動しやす くなり、OFET は On 状態となる。



Figure 1.10: (left) p型 OFET の出力特性 (ドレイン-ソース電流 $I_{\rm DS}$ vs. ドレイン-ソース電圧 $V_{\rm DS}$)の例。 $V_{\rm DS}$ を大きくしていくと線形領域から 飽和領域に入る。また $V_{\rm GS}$ を印加していくと電界効果により $I_{\rm DS}$ が増加する。(right) 伝達特性 (ドレイン-ソース電流 $I_{\rm DS}$ vs. ゲート-ドレイン電圧 $V_{\rm GS}$)の例。出力特性のグラフにおける $V_{\rm DS}$ を一定とし、横軸に $V_{\rm GS}$ をとったグラフであり、 $I_{\rm DS}$ が流れ出す閾値がみられる。閾値未満のときの電流 を Off 電流、閾値以上のときの電流を On 電流と呼ぶ。

1.4.2 有機電界効果トランジスタ (OFET)

代表的な有機半導体デバイスの一つである有機電界効果トランジスタ (OFET) は、電 気的に電流値(抵抗値)を制御できるスイッチである。ディスプレイバックプレーン、メ モリ、アクチュエータ、物理的または化学的センサへの応用に利用されている。

OFET の構造は MOSFET と似ており、ソース、ドレイン、ゲートの3つの電極を持ち、ソースとゲートは半導体層、ソース(ドレイン)とゲートは絶縁層によってそれぞれ 隔てられている (Fig. 1.9(a))。ゲート電極が半導体層・絶縁層の上にある構造をトップ ゲート構造といい、下にある構造をボトムゲート型構造と呼ぶ。また有機層に対してソースとドレイン電極が上にあるものをトップコンタクト、下にあるものをボトムコンタク トと呼ぶ。したがって電極の位置によって4種類の OFET 構造を取り得る。OFET に おける3つの電極は、一般的に金属が使用される。そのため半導体-金属が直接接触して

おり、そこで生じる欠陥の密度が高くなると、電荷注入障壁となり [120]、接触抵抗とな る。短チャネルデバイスでは、この値がチャネル抵抗と同等かそれ以上になると言われ ている。無機トランジスタである MOSFET やアモルファスシリコン (a-Si)FET におけ るソース・ドレインは OFET と異なり、高密度な電荷領域となるように局所的にドープ された半導体である [121]。MOSFET ではゲートに電場を印加し、半導体層に反転層を 形成することによってソース-ドレイン間にチャネルを形成し、導電状態にする。一方で OFET では、ゲート電圧によって半導体層に蓄積層を形成してチャネルをつくる (Fig. 1.9(c))。そのため、p型半導体を用いた場合はゲートにマイナス電圧を、n型半導体を用 いた場合はプラス電圧を印加することによって、チャネルが形成される。半導体層-絶縁 層界面にチャネルが形成されているときに、ドレイン-ソース電圧 V_{DS} を印加していくと 線形的にドレイン-ソース電流 I_{DS} が増加していく(線形領域)。MOSFET の理論を使う と、線形領域での挙動は

$$I_{\rm DS} = -\frac{W}{L} \mu C_{\rm i} \left[(V_{\rm GS} - V_{\rm th}) V_{\rm DS} - \frac{V_{\rm DS}^2}{2} \right]$$
(1.1)

によって表現される (W: チャネル幅、L: チャネル長、 C_i : 絶縁層の単位面積当たりの静電容量、 V_{GS} :ゲート-ソース電圧、 V_{th} :閾値電圧、 μ : 移動度) [122–124]。ただしここでは p型デバイスであると仮定している。さらに V_{DS} を印加し $V_{DS} < V_{GS} - V_{th}$ となると、ドレイン側のチャネルがピンチオフ^{†19}になり、 I_{DS} が V_{DS} に依存しなくなるため I_{DS} が飽和する (飽和領域)。飽和領域では、

^{†19} 蓄積層のない領域が生じ る状態

$$I_{\rm DS} = -\frac{W}{2L} \mu C_{\rm i} (V_{\rm GS} - V_{\rm th})^2$$
(1.2)

と表される。半導体層にチャネルを形成し始め、導電状態になるような $V_{
m GS}$ の値が閾値 電圧 $V_{
m th}$ である。 $V_{
m GS}$ が閾値未満 ($V_{
m GS}>V_{
m th}$)のときは、

$$I_{\rm DS} = 0 \tag{1.3}$$

で表される。 $V_{\rm DS}$ を一定として伝達特性 ($I_{\rm DS}$ vs. $V_{\rm GS}$ のグラフ)を描くと、 $V_{\rm GS} \leq V_{\rm th}$ で $I_{\rm DS}$ が流れる On 状態、 $V_{\rm GS} > V_{\rm th}$ で $I_{\rm DS}$ が流れない Off 状態が見られ (p型デバイス の場合)、閾値を持つような非線形特性を示す (Fig.1.10(right))。Eqs.1.1,1.2,1.3 を用い て、p型 OFET の出力特性および伝達特性をプロットすると Fig.1.10 の通りのカーブが 描けられ、定性的な OFET の電気特性を再現することができる。しかし Eqs.1.1,1.2,1.3 で示されるモデルは、OFET の特性を大まかに表現することができるが、厳密に再現でき ないことも多く、さまざまなモデルが提案されている [125–129]。

OFET の実用化への課題の一つとして挙げられているのは移動度である [118]。1986 年に作製された、ポリチオフェンによる OFET は移動度が 10^{-5} cm²/Vs であり [130]、 非常に小さな値であった。近年では、1cm²/Vs 以上の移動度の OFET が報告されてお り、a-Si FET と同程度以上の移動度が達成されつつある。(Si TFT: 0.5-1cm²/Vs [131]) しかし無機 FET と比較すると OFET は移動度や On-Off 比 ^{†20}の値が小さくなる傾向に あり、On 状態において入力する電圧の値を切り替えても、出力値の変化が小さいデバイ スとなる。すなわち入力する電圧信号が大きくなければ On 状態-Off 状態を十分に切り替 えることができず、入力に対する敏感さ・応答性が低くなりがちである。

^{†20} On 電流と Off 電流の値 の比

1.4.3 ポリヘキシルチオフェン

ポリアルキルチオフェンの一つである、ポリ(3-ヘキシルチオフェン)[P3HT] は高分 子半導体としてよく利用される。立体障害の小さいチオフェン環によって高い平面性を 保ち、分子間の - スタッキングにより共役系を拡張でき、さらに自己組織化により高 い結晶化度を比較的容易に達成できるため、高いホール移動度を示す [132]。 P3HT 分 子はドナー・アクセプター部分を持たず、ドナーアクセプター高分子半導体と比較して バンドギャップが大きい [116]。しかし P3HT はドナーアクセプター高分子よりガラス転 移温度 T_q が低く、比較的脆くない材料であり、高い引張弾性率を持つ [133]。そのため 電子デバイスの作製途中や使用中にクラックが発生したり、材料同士の接着面がはがれ たりすることが少ない。P3HT はレジオレギュラリティが高いと秩序ドメイン形成に影 響し [134]、移動度が増加する [132]。高いレジオレギュラリティ、すなわちポリマーユ ニットの head-to-tail 結合 (Fig.1.11(top)) の割合が多いと、非局在化した分子軌道が、 隣り合う高分子鎖間でより重なるようになり、電荷輸送が促進される。レジオレギュラリ ティの高い、レジオレギュラー P3HT [RR-P3HT](Fig.1.12) を用いた OFET では、0.05-0.1cm²/Vsの移動度が確認されている[132]。さらに欠陥のないレジオレギュラリティ 100%のP3HTによるOFETでは1.2cm²/Vsが確認された [135]。一方でhead-to-tail 結合と heat-to-head 結合 (tail-to-tail 結合)が不規則に存在するレジオレギュラリティの 低いレジオランダム P3HT [RRa-P3HT] では、チオフェン環のねじれによる無秩序性が 増加し、不規則なパッキングになり、移動度が低くなる $(10^{-5} - 10^{-4} \text{cm}^2/\text{Vs})$ [136]。

P3HT 中の電荷キャリアの伝導性には異方性がある [132]。P3HT での主鎖に沿った移 動度は高く、結晶子は最も高い移動度を示す。また - スタッキング方向への移動度は、 P3HT の側鎖に平行な方向に比べて高い。そのため結晶化度や微結晶の向きを制御する ことが、電気特性制御のために重要になる。P3HT の結晶化度・結晶の配向方向は、レジ オレギュラリティ、分子量、基板表面の親水性、キャスト溶媒の影響を受けることがわ かっている [137]。分子量が大きいと、基板上にチオフェン環が立っている edge-on 構造 よりも、倒れている face-on 構造が優位になる。またバルクでは face-on リッチに、薄膜 では edge-on リッチになる傾向があり、さらにキャスト溶媒の揮発性が高いと face-on 構 造になりやすい。edge-on 構造は熱力学的に安定であり、face-on 構造は速度論的に安定 であると考えられている。

1.4.4 OFET におけるノイズ

半導体デバイスでは電気的なノイズが確認される [138]。有機半導体デバイスで確認されているノイズには、熱ノイズ、ショットノイズ、ランダムテレグラフノイズ、1/f (^{†21}) ノイズがある [139]。その中でも多くの OFET において確認されているのは 1/f ノイズである [140]。1/f ノイズはそのスペクトルが 1/f の傾きを持つノイズであり、低周波ノイズと呼ばれることもあるが、その発生原因はよくわかっていない。MOSFET を含む 無機トランジスタで確認されている Hooge の経験的関係 [141,142] は OFET のノイズ解析にも利用される。Hooge の経験的関係は

$$\frac{S_R}{R^2} = \frac{S_I}{I^2} = \frac{S_V}{V^2} = \frac{\alpha_{\rm H}}{fN_c}$$
(1.4)

C₆H₁₃ S head-to-tail C₆H₁₃ C₆H₁₃ head-to-head C₆H₁₃ head-to-head C₆H₁₃ c₆H₁₃ c₆H₁₃

Figure 1.11: (top)head-to-tail, (middle)headto-head, (bottom)tail-to-tail 結合 の 3-ヘキシルチオフェン二量体



Figure 1.12: RR-P3HT の化学構 造式

 $^{\dagger 21}$ f: frequency



Figure 1.13: 無機デバイスと有 機トランジスタの、規格化され た低周波ノイズ K_F とチャネル 面積の関係性。有機トランジス タ (OTFT)の低周波ノイズが無 機デバイスと比べて大きい傾向 が確認される。: [140]

> で示される。 S_R/R^2 , S_I/I^2 , S_V/V^2 はそれぞれ、抵抗,電流,電圧の相対ノイズ強度であ り、 $\alpha_{\rm H}$ は Hooge パラメータ、 N_c は材料中の自由電荷キャリアの総数を示す。定数 $\alpha_{\rm H}$ は結晶化度、材料の種類以外にも、温度や磁場に依存することが知られているが、 $\alpha_{\rm H}$ が 大きいほどノイズ強度が大きく、不均一で無秩序な構造を持つ系であるほど大きい傾向に ある。均一でオーミックな試料での $\alpha_{\rm H}$ は、およそ 2×10^{-3} またはその 2 オーダー以内 の値をとるが、強い不均一性・無秩序性を持つものでは 2×10^{-1} よりもとても大きい値 となる。有機半導体デバイスでは多くの場合、後者に該当し、無機デバイスと比較して 1/f ノイズが大きい傾向にある (Fig.1.14) [140]。

> OFET における 1/f ノイズの原因としては、移動度ゆらぎまたはキャリア数ゆらぎに 由来していると考えられており、Hoogeの経験的関係から導かれる関係式

$$\frac{S_I}{I^2} \propto \frac{1}{N_c} = \frac{q\mu\rho}{V} \tag{1.5}$$

がしばしば利用される。ここで μ 、 ρ 、Vはそれぞれ自由キャリアの移動度、抵抗率、抵抗体の体積である。ペンタセントランジスタを扱った研究では、 $\alpha_{\rm H} = 0.01 - 0.08 \text{ on } 1/f$ ノイズが観測され [143]、移動度ゆらぎが優勢であると考えられた [144]。またポリ (3-ヘ キサデシルチオフェン)^{†22}トランジスタの低周波ノイズは、ホッピング伝導過程による 移動度ゆらぎ由来であると示唆された [145]。

一方で結晶粒界でのキャリアトラップ-デトラップにより、キャリア数ゆらぎが生じる とされている [146]。 $1/f^{\gamma}$ ノイズの γ は、OFET の線形領域から飽和領域にかけて増加 することが確認されているが [147,148]、これは結晶粒界での深いトラップを巻き込むよ うになったためであると説明されている [148]。飽和領域で駆動している OFET はピン

^{†22} poly(3-hexadecyl thiophene)

チオフによりドレイン近傍の半導体中に蓄積層が形成されておらず、フェルミレベルが HOMO-LUMO ギャップ中央付近に位置し、HOMO 付近の深いトラップがエネルギー的 にフェルミ準位に接近する。これにより、キャリアがトラップ準位を占めるようになり、 熱的なトラップ-でトラップ過程が促進される。このトラップ-でトラップ過程がノイズ発 生に効いてくる。この深いトラップでの電荷トラップ-デトラップは遅いプロセスである ため、γが増加するということになる。

OFET の 1/f ノイズと移動度と膜厚に関する研究報告もある。半導体層の積み重ねる 数を変えることによって活性層の厚さを変化させ、移動度を変えることによってノイズ強 度への影響を調べている [149]。その結果、膜厚が 20nm 以下のときではノイズ強度と移 動度の関係は $S_I/I^2 \propto \mu^{-\omega}$ となることが分かった。導電性成分と絶縁性成分を混ぜ合わ せたパーコレーションモデルでは $S_I/I^2 \propto \rho^{\omega}$ の関係になることが知られているが、電荷 キャリア密度を一定と仮定すると、実験的に確認された関係はパーコレーションモデルに 従う。したがって空間的にランダムに分布した結晶粒界による抵抗性障壁の存在が、ホッ ピング伝導に寄与しノイズ発生に効いていることが説明される。

さらに、電圧依存性トラップ充填メカニズムにおいてもパーコレーション効果がみられ ることが示されている [150]。Au/ペンタセン/Al 構造の縦型ダイオードでは、空間電荷 制限電流^{†23} (SCLC) 挙動を示すことが知られており [151]、電圧印加に伴い電流特性が変 化し、オーミック領域、トラップ充填領域、SCLC 領域と呼ばれる区間に分けられる。そ れぞれの領域における電流ノイズは異なる電圧依存性を示すことが確認されている。オー ミック領域での電流ノイズ強度は電圧に依存せず (Fig.1.14(a))、トラップ充填領域では 電圧に比例し (Fig.1.14(b))、SCLC 領域では電圧に反比例する (Fig.1.14(c))。すなわち トラップ充填領域においてノイズ強度が最大となる。この挙動はパーコレーションモデル を使って説明することができる。印加電場によるドリフト伝導が起こるオーミック領域で は、半導体が導電状態であるとして扱い (Fig.1.14(a))、SCLC 領域では深いトラップがす べて注入した電荷によって埋められているため、絶縁状態であるとして考えることができ る (Fig.1.14(c))。そのオーミック領域と SCLC 領域の中間であるトラップ充填^{†24} 領域 では、半導体が導電成分と絶縁成分によるパーコレーション構造になっているとみなし、 この構造によって大きなノイズが発生したと説明できる (Fig.1.14(b))。

またポリアルキルチオフェンの一つである RR-ポリ (3-デシルチオフェン)^{†25} [RR-P3DT] が意図的にノイズを発生させるための材料になる可能性があるとして注目されている [152]。Au/RR-P3DT/Au 構造の縦型素子の電流特性を調べたところ、Au/RR-P3HT/Au 素子と比較して大きな電流ゆらぎが観測された。特に印加電圧がトラップ充填転移となる電圧 ($V_{\rm TFT}$)のときに、大きな電流ノイズを出力することが分かった(Fig.1.15(right))。 $V_{\rm TFT}$ は温度の上昇とともに低下した(Fig.1.15(left))。印加電場および熱によって、いくつか存在する伝導パス間の電荷キャリアの確率的遷移が励起されるためであると考えられる。さらに RR-P3DT 内でのキャリア輸送過程では、P3DT のチオフェン環による主鎖のねじれ運動およびアルキル側鎖の分子運動が大きく関わっていることが示唆されている。秩序-無秩序相転移^{†26} (ODT)に伴う主鎖のねじれ運動により、浅いトラップが形成され、熱や電場により電荷キャリアがデトラップされることによりノイズが発生すると考えられている。

P3HT では 240 から 300K にかけて結晶 (C) 相から柔粘性結晶 (PC) 相に相転移し、 チオフェン環のねじれ運動が開始することがわかっている [153-155]。このとき約 300K ^{†23} space-charge-limited current

 $^{\dagger 24}$ trap filling transition; TFT

^{†25} regioregular poly(3decylthiophene)

^{†26} order-disorder transition



Figure 1.14: Au/テトラセン/Al 素子における相対電流ノイズのパワースペクトル密度 S(f)。(a) オーミック領域:S(f) は電圧 V によって変化しな い。(b) トラップ充填領域:トラップ充填転移の間、トラップ S(f) は V によって急激に増加する。(c) 空間電荷制限電流領域:S(f) はおおよそ 1/V に 従って減少する。(inset) 横向きの矢印は電流の向きを示している。白い領域は、キャリアが埋まったトラップを示し、 $s_{SCLC}(f)$ ノイズによって特徴づけられる絶縁的な領域である。暗い領域は、空いているトラップを示し、 s_{Ω} ノイズによって特徴づけられる導電性の領域である。:[150]

まで C 相と PC 相が共存する (Fig.1.16)。同様に P3DT でも 303 から 353K にかけて ODT が起こるが、P3HT と比較して ODT による構造変化がより電気特性に反映されて いる。このようにダイナミックな無秩序性も利用することにより、ノイズ発生源としての 材料になる可能性がある。

1.5 本研究の位置づけ

動物の情報処理機構を模倣することにより、デジタル処理システムでは実現困難であっ た機能や性能を持つシステムの構築が可能になる可能性がある。特にノイズを利用すると いう点に着目し、確率共鳴現象を取り扱い、電子システムに応用することを考える。多く の場合、システムを悪化させる不要なものと認識され、いかに排除するかが考慮されてき た。しかしノイズはあらゆる場面において存在し得るため、ノイズを許容し、ポジティブ に機能させることができれば、エネルギー消費の少ないシステムの構築へつながると言 える。



Figure 1.15: (left) Au/P3DT/Au 素子における TFT の起こる印加電圧の温度依存性。側鎖の融点 T_{SC} と T_{ODT,L} から T_{ODT,H} までの ODT のブ ロードな転移温度が灰色の領域で示されている。(right) 相対電流ノイズの印加電圧依存性。TFT 付近で大きなゆらぎがみられる。: [152]

1.5.1 内部ノイズによる確率共鳴現象に関する研究

これまで述べてきたように、多くの理論研究によって、ニューロンなどの非線形応答特 性を持つシステムモデルにおいて、さまざまな確率共鳴現象の特徴や機能が提示され、脳 の機能との関係性について調べられている。しかし実際の生物や細胞による生理学的実験 も行われているものの、内部ノイズによる確率共鳴現象の確認が困難であるため、脳での 情報処理において確率共鳴が寄与しているかについて明確になっていない。また電子シス テムによって人工ニューロンを作り出し、確率共鳴現象との関わりを調査するアプローチ もあるが、外部ノイズによる実験が大半である。ノイズ源となる分子持つ2端子デバイ ス [92] のような内部ノイズを持つシステムでの報告もあるが、ネットワーク化していく ことを考慮すると、そのシステムの拡張性は低い。トランジスタなどの実用化されている 電子デバイスでの報告も、ほとんどが外部ノイズの印加による確率共鳴である。以上のよ うに、内部ノイズを持つシステム、特にそのネットワーク化したシステムにおいて、実験 的に確率共鳴現象を扱った研究はない。

1.5.2 望まれるシステムの特性

確率共鳴現象を利用した情報処理機構について理解し、生体模倣型情報処理システムを 創ることに応用するためには、以下のような特性を持つデバイスが有効であると考えら れる。

- (a) 内部ノイズを持つ
- (b) 非線形応答特性を示す
- (c) 信号を一方向に伝達する



 Figure 1.16:
 提案されている

 P3HTの相図。
 横軸は含まれる

 相の割合を示す。: [155]

(a) 内部ノイズをデバイスが持っていれば、このノイズを利用して確率共鳴現象を引き起こし、信号伝達パフォーマンスが向上すると考えられる。特に確率共鳴の効果が増強される Collins モデルを再現する場合、並列化するそれぞれの素子には独立したノイズが必要 となるため、デバイスが固有のノイズを持つことが有用となる。また複数のデバイスによってネットワークを形成し、そのときの機能と内部ノイズによる確率共鳴現象との関わりを調べることができれば、脳機能への確率共鳴の寄与についての知見が得られる可能性がある。(b) 非線形応答特性は、確率共鳴現象を引き起こすために必要な条件であることが知られている。線形に応答するシステムではノイズを加えるとそのまま出力にノイズが現れ、システムのパフォーマンスの低下を誘発するだけである。閾値のようなポテンシャル障壁を持つシステムであれば、その障壁を超えるためにノイズをポジティブに利用でき、確率共鳴が発現する。

(c) 信号の一方向伝達は、入力信号と出力信号を分離し信号の逆流を防ぐことによっ て達成でき、シナプスの持つ特徴でもある。この機構があれば、フィードバック回路や フィードフォワード回路などのネットワークをつくることができ、単純に拡散的に信号が 広がるだけのシステムと比較して、複雑な時空間パターンをつくることができる。

電子デバイスの中で(b) 非線形応答特性を示し、(c) 信号を一方向に伝達するものとし ては、トランジスタが挙げられる。トランジスタの中でも、有機半導体を用いて作られ た有機電界効果トランジスタ(OFET)は、(a) 大きな内部ノイズを付与できる可能性が ある。入力信号として OFET にゲート電圧(V_{GS})を印加すると、ドレイン-ソース電流 (*I*_{DS})が増加するが、このときの *I*_{DS}が増加し始める閾値電圧 *V*_{th} があるように、OFET は(b) 閾値を持つ非線形応答特性を示す(Fig.1.10(right))。このような OFET のスイッ チング特性は、入力がある値(閾値)を超えると大きく応答することから、入力が閾値未 満の状態でシステム応答が小さい時に、ノイズを加えることによって閾値を超えシステム の応答性が大きくなることが予想される。すなわち OFET は確率共鳴が起こることが期 待できるシステムである。

また絶縁膜の存在により、V_{GS}への入力インピーダンスは非常に高く、電界効果による電圧-電流変換を行うため、出力信号の逆流を防ぎ(c)信号の一方向伝達が達成される。 また無機材料と比較し、有機半導体では静的・動的無秩序性を含む要因が多くあることか ら、OFETに(a)大きなノイズを持たせることも期待される。

1.5.3 本研究の目的

これまでに述べたように、OFET は比較的大きな内部ノイズを持つことが期待される ため、その内部ノイズの確率共鳴への作用について明らかできれば、デバイスシステムの 持つ内部ノイズの機能や利用可能性を見出すことにつながる。また信号の一方向伝達が 可能な OFET はネットワークシステムを構築することが比較的容易であるため、ネット ワークシステムにおける内部ノイズおよび確率共鳴現象の挙動の調査、それらを応用した システムの構築、さらにはニューラルネットワークのようなより複雑なシステムにおける ノイズの役割解明に役立つ可能性がある。

しかし OFET は一般的に、MOSFET のような無機トランジスタと比べて移動度すな わち電場応答性が低く、入力の値を大きく変化させなければ出力の変化も小さい。つまり 閾値未満にある Off 状態の特性と、閾値以上にある On 状態の特性との違いが小さく、閾 値前後における挙動の変化が小さくなり、非線形性の弱いスイッチング特性を持つ閾値系 になりがちである。そのため閾値を持つような非線形応答システムにおいて確率共鳴が 起こると言われており、無機トランジスタにおいても確率共鳴の発現が確認されている が OFET において確率共鳴が発現するかどうかについてはこれまで確認されておらず、 不明瞭であると言える。そこで本研究では、OFET に外部からノイズを印加することに よって確率共鳴現象が確認できるか調べることを目的とする。また OFET の内部ノイズ といった物理システムに存在するノイズが信号伝達に及ぼす影響についても調査する。

まず確率共鳴実験を行うための OFET を作製し、伝達特性および周波数特性の改良を 行った(第2章)。そして作製した OFET によるシステムに、外部ノイズを印加すること により確率共鳴現象の観測を試みた(第3章)。またそのときのシステム内部のノイズに ついて解析を行った(第4章)。次に、内部ノイズが確率共鳴に及ぼす影響について解析 を行った(第5章)。最後に、本研究の結論を述べる(第6章)。

参考文献

- Thompson, S., Chau, R., Ghani, T., Mistry, K., Tyagi, S., and Bohr, M. *IEEE Transactions on Semiconductor Manufacturing* 18(1), 26–36 (2005).
- [2] Danowitz, A., Kelley, K., Mao, J., Stevenson, J. P., and Horowitz, M. Queue 10(4), 10:10–10:27 (2012).
- [3] Bowhill, B., Stackhouse, B., Nassif, N., Yang, Z., Raghavan, A., Mendoza, O., Morganti, C., Houghton, C., Krueger, D., Franza, O., Desai, J., Crop, J., Brock, B., Bradley, D., Bostak, C., Bhimji, S., and Becker, M. *IEEE Journal of Solid-State Circuits* 51(1), 92–104 (2016).
- [4] Moore, G. Proceedings of the IEEE 86(1), 82–85 (1998).
- [5] Thompson, S. E. and Parthasarathy, S. Materials Today 9(6), 20–25 (2006).
- [6] Waldrop, M. M. Nature News 530(7589), 144 (2016).
- [7] Nam Sung Kim, Austin, T., Blaauw, D., Mudge, T., Flautner, K., Jie S. Hu, Irwin, M., Kandemir, M., and Narayanan, V. Computer 36(12), 68–75 (2003).
- [8] Atzori, L., Iera, A., and Morabito, G. Computer Networks 54(15), 2787–2805 (2010).
- [9] Gandomi, A. and Haider, M. International Journal of Information Management 35(2), 137–144 (2015).
- [10] Krizhevsky, A., Sutskever, I., and Hinton, G. E. In Advances in Neural Information Processing Systems 25, Pereira, F., Burges, C. J. C., Bottou, L., and Weinberger, K. Q., editors, 1097–1105. Curran Associates, Inc. (2012).
- [11] Hinton, G. E. and Salakhutdinov, R. R. Science **313**(5786), 504–507 (2006).
- [12] Nurvitadhi, E., Sim, J., Sheffield, D., Mishra, A., Krishnan, S., and Marr,
 D. In 2016 26th International Conference on Field Programmable Logic and Applications (FPL), 1–4, (2016).
- [13] Mead, C. Proceedings of the IEEE **78**(10), 1629–1636 (1990).
- [14] Balasubramanian, V. Proceedings of the IEEE 103(8), 1346–1358 (2015).
- [15] Moss, F., Ward, L. M., and Sannita, W. G. *Clinical Neurophysiology* **115**(2), 267–281 (2004).
- [16] Gammaitoni, L., Hänggi, P., Jung, P., and Marchesoni, F. Reviews of Modern Physics 70(1), 223–287 (1998).
- [17] Douglass, J. K., Wilkens, L., Pantazelou, E., and Moss, F. Nature 365(6444), 337–340 (1993).
- [18] Wiesenfeld, K. and Moss, F. Nature 373(6509), 33–36 (1995).
- [19] Russell, D. F., Wilkens, L. A., and Moss, F. Nature 402(6759), 291–294 (1999).
- [20] Levin, J. E. and Miller, J. P. Nature 380(6570), 165–168 (1996).
- [21] Collins, J. J., Imhoff, T. T., and Grigg, P. Journal of Neurophysiology 76(1), 642–645 (1996).
- [22] Gluckman, B. J., Netoff, T. I., Neel, E. J., Ditto, W. L., Spano, M. L., and Schiff, S. J. *Physical Review Letters* **77**(19), 4098–4101 (1996).

- [23] Simonotto, E., Riani, M., Seife, C., Roberts, M., Twitty, J., and Moss, F. *Physical Review Letters* 78(6), 1186–1189 (1997).
- [24] Dhruv, N. T., Niemi, J. B., Harry, J. D., Lipsitz, L. A., and Collins, J. J. *Neuroreport* 13(5), 597–600 (2002).
- [25] Priplata, A., Niemi, J., Salen, M., Harry, J., Lipsitz, L. A., and Collins, J. J. *Physical Review Letters* 89(23), 238101 (2002).
- [26] Collins, J. J., Chow, C. C., and Imhoff, T. T. Nature 376(6537), 236–238 (1995).
- [27] Stocks, N. G. Physical Review Letters 84(11), 2310–2313 (2000).
- [28] McDonnell, M. D., Abbott, D., and Pearce, C. E. M. Fluctuation and Noise Letters 02(03), L205–L220 (2002).
- [29] Rousseau, D., Duan, F., and Chapeau-Blondeau, F. Physical Review E 68(3) (2003).
- [30] Bulsara, A. R. and Zador, A. Physical Review E 54(3), R2185–R2188 (1996).
- [31] Jung, P. Physics Letters A **207**(1), 93–104 (1995).
- [32] Guo, D., Perc, M., Zhang, Y., Xu, P., and Yao, D. Physical Review E 96(2) (2017).
- [33] Chialvo, D. R., Calvo, O., Gonzalez, D. L., Piro, O., and Savino, G. V. *Physical Review E* 65(5) (2002).
- [34] Balenzuela, P. and García-Ojalvo, J. Chaos: An Interdisciplinary Journal of Nonlinear Science 15(2), 023903 (2005).
- [35] Schouten, J. F., Ritsma, R. J., and Cardozo, B. L. The Journal of the Acoustical Society of America 34(9B), 1418–1424 (1962).
- [36] Cariani, P. A. and Delgutte, B. Journal of Neurophysiology 76(3), 1698–1716 (1996).
- [37] Tuckwell, H. C., Jost, J., and Gutkin, B. S. *Physical Review E* 80(3) (2009).
- [38] Gutkin, B. S., Jost, J., and Tuckwell, H. C. Naturwissenschaften 96(9), 1091– 1097 (2009).
- [39] Tuckwell, H. C. and Jost, J. Physica A: Statistical Mechanics and its Applications 391(22), 5311–5325 (2012).
- [40] Paydarfar, D., Forger, D. B., and Clay, J. R. Journal of Neurophysiology 96(6), 3338–3348 (2006).
- [41] Teramae, J.-n., Tsubo, Y., and Fukai, T. Scientific Reports 2, 485 (2012).
- [42] Lee, S.-G., Neiman, A., and Kim, S. Physical Review E 57(3), 3292–3297 (1998).
- [43] Yilmaz, E., Ozer, M., Baysal, V., and Perc, M. Scientific Reports 6, 30914 (2016).
- [44] Pikovsky, A. S. and Kurths, J. Physical Review Letters 78(5), 775–778 (1997).
- [45] Tang, J., Jia, Y., Yi, M., Ma, J., and Li, J. Physical Review E 77(6), 061905 (2008).
- [46] Kreuz, T., Luccioli, S., and Torcini, A. Physical Review Letters 97(23), 238101 (2006).
- [47] Guo, D. and Li, C. *Physical Review E* **79**(5) (2009).
- [48] McDonnell, M. D. and Abbott, D. PLOS Computational Biology 5(5), e1000348

(2009).

- [49] Misra, J. and Saha, I. *Neurocomputing* **74**(1-3), 239–255 (2010).
- [50] Pershin, Y. V. and Ventra, M. D. Proceedings of the IEEE 100(6), 2071–2080 (2012).
- [51] Cruz-Albrecht, J. M., Derosier, T., and Srinivasa, N. Nanotechnology 24(38), 384011 (2013).
- [52] Guo, X., Merrikh-Bayat, F., Gao, L., Hoskins, B. D., Alibart, F., Linares-Barranco, B., Theogarajan, L., Teuscher, C., and Strukov, D. B. Frontiers in Neuroscience 9 (2015).
- [53] Ha, S. D. and Ramanathan, S. Journal of Applied Physics **110**(7), 071101 (2011).
- [54] Diorio, C., Hasler, P., Minch, A., and Mead, C. A. *IEEE Transactions on Electron Devices* 43(11), 1972–1980 (1996).
- [55] Xiao, Z. and Huang, J. Advanced Electronic Materials 2(7), 1600100 (2016).
- [56] Banerjee, W., Liu, Q., Lv, H., Long, S., and Liu, M. Nanoscale 9(38), 14442– 14450 (2017).
- [57] Ohno, T., Hasegawa, T., Tsuruoka, T., Terabe, K., Gimzewski, J. K., and Aono, M. Nature Materials 10(8), 591–595 (2011).
- [58] Chang, T., Jo, S.-H., and Lu, W. ACS Nano 5(9), 7669–7676 (2011).
- [59] Nishitani, Y., Kaneko, Y., Ueda, M., Morie, T., and Fujii, E. *Journal of Applied Physics* **111**(12), 124108 (2012).
- [60] Boyn, S., Grollier, J., Lecerf, G., Xu, B., Locatelli, N., Fusil, S., Girod, S., Carrétéro, C., Garcia, K., Xavier, S., Tomas, J., Bellaiche, L., Bibes, M., Barthélémy, A., Saïghi, S., and Garcia, V. *Nature Communications* 8, 14736 (2017).
- [61] Eryilmaz, S. B., Kuzum, D., Jeyasingh, R., Kim, S., BrightSky, M., Lam, C., and Wong, H.-S. P. Frontiers in Neuroscience 8 (2014).
- [62] Suri, M., Bichler, O., Querlioz, D., Traoré, B., Cueto, O., Perniola, L., Sousa, V., Vuillaume, D., Gamrat, C., and DeSalvo, B. *Journal of Applied Physics* 112(5), 054904 (2012).
- [63] Kuzum, D., Jeyasingh, R. G. D., Lee, B., and Wong, H.-S. P. Nano Letters 12(5), 2179–2186 (2012).
- [64] Kong, L.-a., Sun, J., Qian, C., Fu, Y., Wang, J., Yang, J., and Gao, Y. Organic Electronics 47, 126–132 (2017).
- [65] Lai, Q., Zhang, L., Li, Z., Stickle, W. F., Williams, R. S., and Chen, Y. Advanced Materials 22(22), 2448–2453 (2010).
- [66] Kim, K., Chen, C.-L., Truong, Q., Shen, A. M., and Chen, Y. Advanced Materials 25(12), 1693–1698 (2013).
- [67] Zhu, L. Q., Wan, C. J., Guo, L. Q., Shi, Y., and Wan, Q. Nature Communications 5(1) (2014).
- [68] Cruz-Albrecht, J. M., Derosier, T., and Srinivasa, N. Nanotechnology 24(38), 384011 (2013).

- [69] Manrique-Juárez, M. D., Rat, S., Salmon, L., Molnár, G., Quintero, C. M., Nicu, L., Shepherd, H. J., and Bousseksou, A. *Coordination Chemistry Reviews* 308, 395–408 (2016).
- [70] Kong, L.-a., Sun, J., Qian, C., Wang, C., Yang, J., and Gao, Y. Organic Electronics 44, 25–31 (2017).
- [71] Kong, L.-a., Sun, J., Qian, C., Gou, G., He, Y., Yang, J., and Gao, Y. Organic Electronics 39, 64–70 (2016).
- [72] Hu, L., Fu, S., Chen, Y., Cao, H., Liang, L., Zhang, H., Gao, J., Wang, J., and Zhuge, F. Advanced Materials 29(24), 1606927 (2017).
- [73] Tan, Z.-H., Yang, R., Terabe, K., Yin, X.-B., Zhang, X.-D., and Guo, X. Advanced Materials 28(2), 377–384 (2016).
- [74] Wang, Z., Joshi, S., Savel'ev, S. E., Jiang, H., Midya, R., Lin, P., Hu, M., Ge, N., Strachan, J. P., Li, Z., Wu, Q., Barnell, M., Li, G.-L., Xin, H. L., Williams, R. S., Xia, Q., and Yang, J. J. *Nature Materials* 16(1), 101–108 (2017).
- [75] Sheridan, P. M., Cai, F., Du, C., Ma, W., Zhang, Z., and Lu, W. D. Nature Nanotechnology 12(8), 784–789 (2017).
- [76] Prezioso, M., Merrikh-Bayat, F., Hoskins, B. D., Adam, G. C., Likharev, K. K., and Strukov, D. B. *Nature* **521**(7550), 61–64 (2015).
- [77] Taube Navaraj, W., García Núñez, C., Shakthivel, D., Vinciguerra, V., Labeau, F., Gregory, D. H., and Dahiya, R. Frontiers in Neuroscience 11 (2017).
- [78] Kaboli, M., T, A. D. L. R., Walker, R., and Cheng, G. In 2015 IEEE-RAS 15th International Conference on Humanoid Robots (Humanoids), 1155–1160, (2015).
- [79] van de Burgt, Y., Lubberman, E., Fuller, E. J., Keene, S. T., Faria, G. C., Agarwal, S., Marinella, M. J., Alec Talin, A., and Salleo, A. *Nature Materials* 16(4), 414–418 (2017).
- [80] Stieg, A. Z., Avizienis, A. V., Sillin, H. O., Martin-Olmos, C., Aono, M., and Gimzewski, J. K. Advanced Materials 24(2), 286–293 (2012).
- [81] Saïghi, S., Mayr, C. G., Serrano-Gotarredona, T., Schmidt, H., Lecerf, G., Tomas, J., Grollier, J., Boyn, S., Vincent, A. F., Querlioz, D., La Barbera, S., Alibart, F., Vuillaume, D., Bichler, O., Gamrat, C., and Linares-Barranco, B. *Frontiers in Neuroscience* 9 (2015).
- [82] Hebb, D. O. The Organization of Behavior: A Neuropsychological Theory. Wiley, (1949).
- [83] Bi, G.-q. and Poo, M.-m. Journal of Neuroscience 18(24), 10464–10472 (1998).
- [84] Sun, J., Fu, Y., and Wan, Q. Journal of Physics D: Applied Physics 51(31), 314004 (2018).
- [85] Tanaka, H., Akai-Kasaya, M., TermehYousefi, A., Hong, L., Fu, L., Tamukoh, H., Tanaka, D., Asai, T., and Ogawa, T. *Nature Communications* 9(1) (2018).
- [86] Yue, K. and Parker, A. C. In 2017 International Joint Conference on Neural Networks (IJCNN), 1225–1229, (2017).
- [87] Querlioz, D. and Trauchessec, V. In 2013 IEEE International Symposium on

Circuits and Systems (ISCAS2013), 1596–1599, (2013).

- [88] Hsin Chen, Saïghi, S., Buhry, L., and Renaud, S. *IEEE Transactions on Neural Networks* 21(9), 1511–1517 (2010).
- [89] Samardak, A., Nogaret, A., Janson, N. B., Balanov, A. G., Farrer, I., and Ritchie, D. A. *Physical Review Letters* 102(22) (2009).
- [90] Kasai, S. and Asai, T. Applied Physics Express 1, 083001 (2008).
- [91] Kasai, S., Miura, K., and Shiratori, Y. Applied Physics Letters 96(19), 194102 (2010).
- [92] Fujii, H., Setiadi, A., Kuwahara, Y., and Akai-Kasaya, M. Applied Physics Letters 111(13), 133501 (2017).
- [93] Mantegna, R. N. and Spagnolo, B. Physical Review E 49(3), R1792–R1795 (1994).
- [94] Lee, I. Y., Liu, X., Kosko, B., and Zhou, C. Nano Letters 3(12), 1683–1686 (2003).
- [95] Lee, I., Liu, X., Zhou, C., and Kosko, B. *IEEE Transactions on Nanotechnology* 5(6), 613–627 (2006).
- [96] Hakamata, Y., Ohno, Y., Maehashi, K., Kasai, S., Inoue, K., and Matsumoto, K. Journal of Applied Physics 108(10), 104313 (2010).
- [97] Hakamata, Y., Ohno, Y., Maehashi, K., Inoue, K., and Matsumoto, K. Applied Physics Express 4(4), 045102 (2011).
- [98] Nishiguchi, K. and Fujiwara, A. Applied Physics Letters 101(19), 193108 (2012).
- [99] Kanki, T., Hotta, Y., Asakawa, N., Kawai, T., and Tanaka, H. Applied Physics Letters 96(24), 242108 (2010).
- [100] Murali, K., Sinha, S., Ditto, W. L., and Bulsara, A. R. Physical Review Letters 102(10) (2009).
- [101] Bulsara, A. R., Dari, A., Ditto, W. L., Murali, K., and Sinha, S. Chemical Physics 375(2), 424–434 (2010).
- [102] Roberts, L. IRE Transactions on Information Theory 8(2), 145–154 (1962).
- [103] Jayant, N. S. and Rabiner, L. R. Bell System Technical Journal 51(6), 1293– 1304 (1972).
- [104] Wannamaker, R. A., Lipshitz, S. P., and Vanderkooy, J. *Physical Review E* 61(1), 233–236 (2000).
- [105] Gammaitoni, L. Physical Review E 52(5), 4691–4698 (1995).
- [106] Imai, Y., Sato, M., Tanaka, T., Kasai, S., Hagiwara, Y., Ishizaki, H., Kuwabara, S., and Arakawa, T. Japanese Journal of Applied Physics 53(6S), 06JE01 (2014).
- [107] Coakley, K. M. and McGehee, M. D. Chemistry of Materials 16(23), 4533–4542 (2004).
- [108] Peumans, P., Yakimov, A., and Forrest, S. R. Journal of Applied Physics 93(7), 3693–3723 (2003).
- [109] Yuan, Y., Giri, G., Ayzner, A. L., Zoombelt, A. P., Mannsfeld, S. C. B., Chen, J., Nordlund, D., Toney, M. F., Huang, J., and Bao, Z. Nature Communications

5, 3005 (2014).

- [110] Sirringhaus, H., Kawase, T., Friend, R. H., Shimoda, T., Inbasekaran, M., Wu,
 W., and Woo, E. P. Science 290(5499), 2123–2126 (2000).
- [111] You, J., Dou, L., Yoshimura, K., Kato, T., Ohya, K., Moriarty, T., Emery, K., Chen, C.-C., Gao, J., Li, G., and Yang, Y. *Nature Communications* 4, 1446 (2013).
- [112] Anthony, J. E. Chemical Reviews **106**(12), 5028–5048 (2006).
- [113] Zhu, H., Li, Q. L., She, X. J., and Wang, S. D. Applied Physics Letters 98(24), 243304 (2011).
- [114] Horowitz, G. Advanced Functional Materials 13(1), 53–60 (2003).
- [115] Katsuhara, M., Yagi, I., Yumoto, A., Noda, M., Hirai, N., Yasuda, R., Moriwaki, T., Ushikura, S., Imaoka, A., Urabe, T., and Nomoto, K. *Journal of the Society* for Information Display 18(6), 399–404 (2010).
- [116] Dou, L., You, J., Hong, Z., Xu, Z., Li, G., Street, R. A., and Yang, Y. Advanced Materials 25(46), 6642–6671 (2013).
- [117] Melville, O. A., Lessard, B. H., and Bender, T. P. ACS Applied Materials & Interfaces 7(24), 13105–13118 (2015).
- [118] Facchetti, A. Materials Today 10(3), 28–37 (2007).
- [119] Wang, C., Dong, H., Hu, W., Liu, Y., and Zhu, D. Chemical Reviews 112(4), 2208–2267 (2012).
- [120] Hwang, J., Wan, A., and Kahn, A. Materials Science and Engineering: R: Reports 64(1-2), 1–31 (2009).
- [121] Rolland, A., Richard, J., Kleider, J. P., and Mencaraglia, D. Journal of The Electrochemical Society 140(12), 3679–3683 (1993).
- [122] Marinov, O., Deen, M. J., and Iniguez, B. IEE Proceedings Circuits, Devices and Systems 152(3), 189–209 (2005).
- [123] Bao, Z., Dodabalapur, A., and Lovinger, A. J. Applied Physics Letters 69(26), 4108–4110 (1996).
- [124] Shichman, H. and Hodges, D. A. IEEE Journal of Solid-State Circuits 3(3), 285–289 (1968).
- [125] Kim, C.-H., Bonnassieux, Y., and Horowitz, G. IEEE Transactions on Electron Devices 61(2), 278–287 (2014).
- [126] Fan, J., Zhao, J., and Guo, X. IEEE Electron Device Letters 39(8), 1191–1194 (2018).
- [127] Estrada, M., Cerdeira, A., Puigdollers, J., Reséndiz, L., Pallares, J., Marsal, L., Voz, C., and Iñiguez, B. Solid-State Electronics 49(6), 1009–1016 (2005).
- [128] Marinov, O., Deen, M. J., Zschieschang, U., and Klauk, H. IEEE Transactions on Electron Devices 56(12), 2952–2961 (2009).
- [129] Deen, M. J., Marinov, O., Zschieschang, U., and Klauk, H. IEEE Transactions on Electron Devices 56(12), 2962–2968 (2009).
- [130] Tsumura, A., Koezuka, H., and Ando, T. Applied Physics Letters 49(18), 1210– 1212 (1986).

- [131] Sirringhaus, H. Advanced Materials 26(9), 1319–1335 (2014).
- [132] Sirringhaus, H., Brown, P. J., Friend, R. H., Nielsen, M. M., Bechgaard, K., Langeveld-Voss, B. M. W., Spiering, A. J. H., Janssen, R. a. J., Meijer, E. W., Herwig, P., and de Leeuw, D. M. *Nature* 401(6754), 685–688 (1999).
- [133] Savagatrup, S., Printz, A. D., O'Connor, T. F., Zaretski, A. V., Rodriquez, D., Sawyer, E. J., Rajan, K. M., Acosta, R. I., Root, S. E., and Lipomi, D. J. Energy & Environmental Science 8(1), 55–80 (2015).
- [134] Yang, C., Orfino, F. P., and Holdcroft, S. Macromolecules 29(20), 6510–6517 (1996).
- [135] Nawaz, A., Meruvia, M. S., Tarange, D. L., Gopinathan, S. P., Kumar, A., Kumar, A., Bhunia, H., Pal, A. J., and Hümmelgen, I. A. Organic Electronics 38, 89–96 (2016).
- [136] Tsumura, A., Fuchigami, H., and Koezuka, H. Synthetic Metals 41(3), 1181– 1184 (1991).
- [137] Matsumoto, T., Nishi, K., Tamba, S., Kotera, M., Hongo, C., Mori, A., and Nishino, T. *Polymer* **119**, 76–82 (2017).
- [138] Hooge, F. N., Kleinpenning, T. G. M., and Vandamme, L. K. J. Reports on Progress in Physics 44(5), 479 (1981).
- [139] Song, Y. and Lee, T. Journal of Materials Chemistry C 5(29), 7123–7141 (2017).
- [140] Marinov, O. and Deen, M. J. In 2015 International Conference on Noise and Fluctuations (ICNF), 1–6, (2015).
- [141] Hooge, F. N. *Physics Letters A* **29**(3), 139–140 (1969).
- [142] Hooge, F. N. Physica B+C 83(1), 14–23 (1976).
- [143] Vandamme, L. K. J., Feyaerts, R., Trefán, G., and Detcheverry, C. Journal of Applied Physics 91(2), 719–723 (2001).
- [144] Jia, Z., Meric, I., Shepard, K. L., and Kymissis, I. *IEEE Electron Device Letters* 31(9), 1050–1052 (2010).
- [145] Deen, M. J., Marinov, O., Holdcroft, S., and Woods, W. IEEE Transactions on Electron Devices 48(8), 1688–1695 (2001).
- [146] Martin, S., Dodabalapur, A., Bao, Z., Crone, B., Katz, H. E., Li, W., Passner, A., and Rogers, J. A. Journal of Applied Physics 87(7), 3381–3385 (2000).
- [147] Kang, H. and Subramanian, V. Applied Physics Letters **104**(2), 023301 (2014).
- [148] Kang, H., Jagannathan, L., and Subramanian, V. Applied Physics Letters 99(6), 062106 (2011).
- [149] Conrad, B. R., Cullen, W. G., Yan, W., and Williams, E. D. Applied Physics Letters 91(24), 242110 (2007).
- [150] Carbone, A., Kotowska, B. K., and Kotowski, D. *Physical Review Letters* 95(23), 236601 (2005).
- [151] Lee, J. Thin Solid Films **451-452**, 12–15 (2004).
- [152] Asakawa, N., Umemura, K., Fujise, S., Yazawa, K., Shimizu, T., Tansho, M., Kanki, T., and Tanaka, H. Journal of Nanophotonics 8(1), 083077 (2014).
- [153] Yazawa, K., Inoue, Y., Yamamoto, T., and Asakawa, N. Physical Review B

74(9) (2006).

- [154] Yazawa, K., Inoue, Y., Yamamoto, T., and Asakawa, N. The Journal of Physical Chemistry B 112(37), 11580–11585 (2008).
- [155] Yazawa, K., Inoue, Y., Shimizu, T., Tansho, M., and Asakawa, N. The Journal of Physical Chemistry B 114(3), 1241–1248 (2010).

第2章

有機電界効果トランジスタの作製お よび改良

2.1 目的

ー般的に確率共鳴現象が観測できるシステムというのは、閾値を有する非線形応答性を 持つものである。そのため OFET において確率共鳴が観測されるか否かを決定する要因 として、OFET 特性の非線形性が重要になると考えられる。具体的には、OFET の閾値 応答が明確になると良く、Off 状態から閾値を超えた途端に大きく応答し、On 状態に切 り替わるようなシステムが理想であると言える。すなわち OFET の伝達特性において、 ゲート-ソース電圧 $V_{\rm GS}$ が閾値電圧 $V_{\rm th}$ を超えたときに、いかにドレイン-ソース電流 $I_{\rm DS}$ の増加傾向が大きくなっているか、ということが重要になり、電界効果移動度が非線形性 の大きさに関わってくる。しかし OFET は無機トランジスタと比較して応答性が低く、 小さい移動度となる傾向にある [1]。



drain-source voltage, $-V_{DS}$

Figure 2.1: Marinov らによっ て提案されたモデル [2,3] を用 いてプロットした OFET の伝 達特性カーブ。低電場移動度 μ_0 が大きい時と小さい時の二つを プロットしている。高い μ_0 を 持つときには、比較的大きな非 線形性を有する特性になる。

また MOSFET と OFET は両者に類似の電気特性のカーブがみられるが、それぞれの 電荷キャリアの伝導機構が異なるため、理想的な MOSFET 特性を表現するコンパクト モデルでは OFET の出力特性・伝達特性を完全に再現することが難しい [2,3]。このよう に OFET において、MOSFET の特性と差異が生じる原因としては、ドレイン-ソース間 のリーク電流や 電場依存性の移動度のような、大きな寄生成分が考えられている [2]。ま た、電極-半導体界面で生じるキャリア注入障壁および、電極から半導体に注入されチャネ ルに入るまでのアクセス抵抗によって生じる接触抵抗も MOSFET の特性と違いを生じ させる原因となる。電荷キャリアが、指数型の状態密度 (DOS) を持つ局在状態間を通っ て伝導するものと考え、べき乗則にしたがった電圧依存性

$$\mu(x) = \mu_0 (V_{\rm G} - V_{\rm th} - V(x))^{\gamma}, \qquad (2.1)$$

を示す移動度を仮定した Marinov らのモデルは、閾値前後において実験結果に近い伝達 特性カーブを再現できる (μ_0 : 低電圧のときの移動度, γ : 指数) [4,5]。この OFET モデル を用いて伝達特性をプロットすると Fig.2.1 のようになり、低電圧移動度 μ_0 を変えた二 つのカーブを示している。OFET の特性をより再現できるモデルを用いた Fig.2.1 のカー ブから、移動度が大きい OFET ほど、非線形性の大きい伝達特性となると言える。

また、OFET がいかに大きな移動度を持ち、強い非線形性を示す直流 (DC) 特性^{†27}で あっても、OFET に入力する信号は DC のみではないため、交流 (AC) 特性^{†28}について も考慮する必要がある。特に確率共鳴現象はノイズを必要とし、ノイズには一定帯域の周 波数成分が含まれる。そのためノイズを OFET に印加し、確率共鳴現象を発現させるた めには、ノイズに含まれる周波数帯域に対する OFET の応答を確認する必要があると考 えられる。

そこで本章では、確率共鳴現象が観測できるような OFET、すなわち非線形性の大きい DC 特性を持ち、より高周波の AC に対しても応答するデバイスの作製を目指す。OFET の半導体には、成型加工性が高く比較高移動度が達成できるレジオレギュラーポリ (3-ヘ キシルチオフェン)[RR-P3HT] を用い、絶縁体には均一な薄膜が得られやすいポリ (メチ ルメタクリレート) [PMMA] を用いた。ポリ (3-ヘキシルチオフェン) [P3HT] は、ポリ マーユニットの head-to-tail 結合が多く立体規則性 (レジオレギュラリティ)の高いもの ほど、側鎖のヘキシル基の位置が規則的に配列し高移動度が達成されやすい [6]。

DC 特性を向上させるために行った処理は、有機半導体である RR-P3HT の成膜温度 を上げること、チャネル外の半導体膜の除去を行うことである。また AC 特性の向上のた めに、ゲート電極幅を狭くし寄生容量成分を減少させることを行った。さらに確率共鳴現 象の測定実験を行うときには、負荷抵抗と組み合わせたドレイン接地回路の状態で行うた め、負荷抵抗の値を検討し、周波数特性の向上を試みた。加えて確率共鳴の確認を行うと きには、長時間電圧を印加し続けることになるため、OFET 特性の安定性に関しても確認 を行った。

2.2 OFET の作製方法・電気特性測定

作製した OFET は、トップゲートボトムコンタクト型構造 (Fig. 2.3) のデバイスで ある。まず、アセトン(試薬特級、電子工業用をそれぞれ5分)とメタノール(電子工 業用を5分2回)を用いて、ソーダ石灰ガラス基板^{†29}の超音波洗浄を行った。洗浄済 み基板上に、抵抗加熱式真空蒸着法^{†30}を使い、ソース・ドレイン電極となる Au をシャ ドウマスクを用いて蒸着した。チャネル長とチャネル幅^{*} はそれぞれ 50 μ m、1mm であ る。o-ジクロロベンゼンを溶媒として RR-P3HT^{†31} 溶液 (10 mg/mL)を 50°C で 1 時 間 200rpm 攪拌することにより調製し、1500 rpm、180 秒の条件で Au 電極付きガラス基 板上にスピンコートした。RR-P3HT のスピンコート後、110°C で 1 時間 RR-P3HT の

^{†27} 一定電圧、または非常に 周波数の低い電圧に対する 特性

^{†28} 入力電圧の周波数に対す る特性



Figure 2.2: PMMA の化学構造式

^{†29} S1111, Matsumi Glass Ind, Ltd., Japan

^{†30} 5 × 10⁻³ Pa 以下の気圧 にして蒸着を行った。



^{†31} electric grade, Sigma-Aldrich, $M_n = 15-45$ kDa, regioregularity > 95%



Figure 2.3: 作製したトップゲートボトムコンタクト型 OFET の構造図。ソース・ドレイン電極に Au, ゲート電極に Al, 半導体層に RR-P3HT, 絶縁 体層に PMMA を用いてガラス基板上に作製した。

アリーリングを行った。続いて、絶縁膜としての PMMA^{†32} を酢酸ブチルに 70°C で 3 時間 400rpm 攪拌して溶かし (40 or 80 or 160 mg/mL)、2000 rpm, 60 秒でスピンコー トした。その後、80°C で 1 時間真空乾燥させた。最後に、ゲート電極となる Al 上部電極 (幅 300 or 70μm) をシャドウマスクを使い真空蒸着した。

作製した OFET の電気特性は、ソースメジャメントメータ (2612A, Keithley) を用い て確認した。測定中の OFET は暗状態、真空条件 $(5 \times 10^{-3} \text{ Pa} \text{ 以下})$ にした。またデジ タルマルチメータ (33410A, Keysight Tech.) を用いて、ゲート絶縁膜の静電容量を測定 した。PMMA のスピンコート溶液濃度が 40, 80, 160 mg/mL のとき、それぞれ 16, 9.0, 4.0 nF/cm² であった。

2.3 RR-P3HT の成膜温度

2.3.1 実験方法

OFET の作製過程における基板上への RR-P3HT を成膜する際、RR-P3HT 溶液と電 極付きガラス基板を、事前に 30 分加熱しスピンコートを行った。温度は 25, 50, 110°C のそれぞれで成膜を行った。成膜した RR-P3HT 膜のモルフォロジーは原子間力顕微鏡 (AFM)^{†33}を用いて確認した。AFM 測定では、Keyence VN8000 のタッピングモード を用いて行った。また各温度で作製した RR-P3HT 膜を用いて OFET を作製し、電気特 性の確認も行った。OFET の絶縁膜は 80 mg/mL の PMMA 溶液のスピンコートで成膜 し、A1 電極の幅は 300μ m である。 120 kDa

^{†32} Sigma-Aldrich, M_n <

^{†33} atomic force microscope

2.3.2 RR-P3HT 膜のモルフォロジーおよび OFET 特性

スピンコートに用いる溶液と基板を加熱することによって、ガラス基板上への RR-P3HT 溶液の濡れ性の向上をねらい、OFET 特性の非線形性の向上を試みた。温度を変えて RR-P3HT のスピンコートを行い作製した OFET の特性は Fig.2.4, 2.5 の通りとなった。 50° C で RR-P3HT のスピンコートを行った OFET の I_{DS} は、印加する V_{GS}



Figure 2.4: RR-P3HT のス ピンコート温度 (a)25, (b)50, (c)110°C で成膜して作製した、 それぞれの OFET の出力特性 (*I*_{DS} *vs. V*_{DS})。

の値に関わらず、室温で RR-P3HT を成膜した OFET と比較して低い値を示した。一 方で、50°C のものよりも 110°C の OFET の方が、 I_{DS} の値が大きい傾向がみられた。 また OFET の伝達特性 (Fig. 2.5) から、Eq.1.2 を用いてそれぞれの移動度を算出した。 RR-P3HT 成膜温度 25, 50, 110°C の OFET の移動度はそれぞれ Table 2.1 の通りと なった。この結果をみると、RR-P3HT のスピンコート温度と OFET の電界効果移動度 の間に相関があるようにみられる。

各スピンコート温度で成膜した RR-P3HT 膜の AFM 画像は Fig.2.6 の通りとなった。 25°C で堆積した膜は、ほかの膜 (50, 110°C) と大きく異なる結果となった。室温のも のは RR-P3HT 膜が最も粗く、スピンコート時に 50, 110°C に加熱したものは表面粗さ


Figure 2.5: RR-P3HT のスピ ンコート温度 25, 50, 110°C で 成膜して作製した、それぞれ の OFET の伝達特性 (*I*_{DS} *vs. V*_{GS})。

RR-P3HT spin-coating	$\operatorname{mobility}$	threshold	On-Off ratio
temperature $[^{\circ}C]$	$[\mathrm{cm}^2/\mathrm{Vs}]$	voltage [V]	(at $V_{\rm DS} = -26$ [V])
25	1.5×10^{-4}	40	6.1
50	4.1×10^{-4}	5.4	57
110	7.0×10^{-4}	7.7	28

Table 2.1: RR-P3HT のスピ ンコート温度を変えて作製し た OFET の移動度, 閾値電 圧, On-Off 比

が小さいことが確認される。また AFM の結果から、

$$R_q = \sqrt{\frac{1}{X_{\max}Y_{\max}}} \int_0^{X_{\max}} \int_0^{Y_{\max}} [F(X,Y) - Z_0]^2 dX dY$$
(2.2)

結果として、RR-P3HT 層形成時に加熱することによって、平坦な表面をつくることが でき、これが OFET の移動度の向上につながったと言える。しかし 110°C スピンコート 膜の AFM 画像をみると、50°C のものと比較して、RR-P3HT の結晶粒のサイズが大き いことが確認できる (Fig.2.6) これは、25°C から 50°C における温度上昇でみられる傾 向とは逆の傾向となっている。このような結果となった理由として、25°C から 50°C に 加熱することにより、拡散制限された結晶核生成が熱的に活性化されたためだと考えら れる。その結果、結晶核密度が増加し、結晶粒サイズが小さくなったと思われる。一方、 50°C から 110°C にかけては、高温にすることによってスピンコート時の RR-P3HT の結 晶化するまでの時間がわずかに伸び、これにより RR-P3HT の結晶粒サイズのわずかな 増加がみられた可能性が考えられる。これらのモルフォロジーの変化によって、OFET の ドレイン-ソース間の伝導性の違いを生じさせたと考えられ、大きな結晶粒の RR-P3HT



Figure 2.6: 25, 50, 110°C のスピンコートで成膜した、それぞれの RR-P3HT 薄膜の AFM 画像。

では高い伝導性がみられる。この傾向は特にサブスレッショルド領域における Off 状態の $I_{\rm DS}$ において、より顕著にみられる (Fig.2.5)。この挙動は、半導体膜の厚さを増加させ ると OFET の Off 電流が大きくなる結果と一致しており、その原因としてはゲート電圧 によって制御可能な有効チャネルの厚さは数 10nm ほどであり、それ以上の厚さが増え たためと言われている [7]。上記の結果より、RR-P3HT のスピンコートの条件としては 110°C のものが、より大きな移動度を持ち、低い Off 電流を示し、より閾値応答性の高い 非線形特性であると言える。

2.4 周波数特性の改善

2.4.1 測定方法

さまざまな周波数の入力電圧に対する応答性を確認するために、作製した OFET の AC 特性の確認を行った。ここでの OFET は、P3HT を 110°C スピンコートにより製膜し、 PMMA を 40mg/mL の溶液を用いたスピンコートにより成膜して作製した。OFET は 真空中 (< 5 × 10⁻³Pa) に設置し、炭素被膜抵抗器 1MΩ を用いてドレイン接地回路 を組 み立て、その出力をオシロスコープ (54621A, Keysight Tech.) により測定した。OFET のドレイン電極には直流電源装置 (PSF-500H, TEXIO) を使い電圧を印加し (-15V)、入 力電圧としてゲート電極に正弦波を印加した。正弦波は任意波形発生器 (3390, Keithley) から出力し、高速バイポーラ電源 (HS4011, NF) により増幅した。入力したのは-20 から 20V の電圧 (振幅 20V の正弦波) であり、On 状態と Off 状態を往復するのに十分な大き



Figure 2.7: 周波数特性の測定に用 いたドレイン接地回路

さである。測定に用いた正弦波の周波数は1-100kHz である。

また測定されたそれぞれの周波数における出力信号の強度および位相を算出した。手順 として、測定された出力信号 s(t) に、入力信号と同位相の正弦波 (余弦波) $\cos(2\pi ft)$ お よび 90° 位相がずれたもの $\cos(2\pi ft + \frac{\pi}{2}) = -\sin(2\pi ft)$ を掛け合わせ、それぞれ

$$I(t) = s(t)\cos(2\pi ft)$$
(2.3)

$$Q(t) = -s(t)\sin(2\pi ft)$$
(2.4)

とした^{†34}。そして I(t), Q(t) の DC 成分 $I(\tilde{t}), Q(\tilde{t})$ を計算した。今回 DC 成分の抽 出には、高速フーリエ変換 (FFT) を用いた。得られた $I(\tilde{t}), Q(\tilde{t})$ から出力信号の強度 $\sqrt{I(\tilde{t})^2 + Q(\tilde{t})^2}$ および位相 $\tan^{-1}\left(\frac{Q(\tilde{t})}{I(\tilde{t})}\right)$ をもとめた。

2.4.2 ゲート電極幅の縮小

外部ノイズを OFET に加えることにより確率共鳴現象を引き起こすためには、より 広い周波数帯域に対するノイズ応答性を持つ OFET が必要になる。そこでチャネル長 (50µm) に合わせて、ゲート電極幅^{†35}を 300µm から 70µm に狭めて OFET を作製し た。これにより、絶縁膜を隔てたゲート-ドレイン電極間とゲート-ソース電極間のそれぞ れの重なりを減らし、そこから生ずる寄生容量の抑制を試みた。この電極間の重なり面積 が大きいと、ゲートリーク電流が増加するため、OFET の周波数特性の悪化が起こる [8]。

ゲート電極幅が 300 μ m の OFET を用いたドレイン接地回路に、周波数を変えて正弦波 を入力すると Fig.2.9 の通りの出力信号が得られた。70 μ m のゲート電極幅を持つ OFET におけるドレイン接地回路の出力も同様に測定した (付録 A)。これらの結果から、さまざ まな周波数の正弦波を入力したときの、OFET 回路の出力値の強度および入力信号に対 する出力信号の位相差をまとめると Fig.2.10 の通りとなった。電極幅 300 μ m, 70 μ m の どちらも、入力信号が高周波数になると低周波数のときよりも出力値が増加している。こ の傾向は、高周波数のときでは入力信号がリークしているためであり、絶縁層の静電容量 成分による結果であると考えられる。キャパシタのインピーダンス $Z_{\rm C}$ は以下のように示 される。

$$Z_{\rm C} = \frac{1}{j\omega C} = \frac{1}{j2\pi fC} \tag{2.5}$$

j: 虚数単位,ω: 角周波数, C: 静電容量, f: 周波数である。つまり周波数が高くなるほ ど、インピーダンスが小さくなり、電流が流れやすくなる。そのため、高周波の正弦波 を入力したときでは、キャパシタ構造での電流量が増加し、出力値が増加したと言える。 OFET 回路の出力波形 (Fig.2.9) をみてみると、1,10Hz の低周波数のときではプラス側 に出力が出ていない。このときの出力は OFET のスイッチング特性によるものであり、 入力信号によって OFET のチャネル (ドレイン-ソース間)抵抗が変化したことによって 出力信号が現れていると考えられる。それは、今回はドレイン接地回路中での OFET の ドレイン電圧 (V_{DD})にはマイナス電圧を印加しており、負荷抵抗と OFET のチャネル抵 抗によって分圧された V_{DD} が出力されるため、OFET の非線形応答特性による出力信号 ではプラス側に出力は現れない。一方で 100Hz 以上の周波数となると、出力信号の値が プラス側にも出現している (Fig.2.9)。このときは OFET のスイッチング特性 (非線形応 ^{†34} 三角関数の積和の公式よ り、出力信号 *s*(*t*) に含まれる 入力信号と同周期・同位相の 成分がゼロ周波数成分となっ て現れる。

 $^{+35}$



Figure 2.9: ゲート電極幅が 300μm の OFET と負荷抵抗 1MΩを用いた渡連接地回路に、 さまざまな周波数の正弦波を入 力したときに得られた出力信号。



Figure 2.8: RC ハイパスフィルタ の回路図



答特性) だけではなく、入力信号そのものが出力にリークしていると考えられる。そのため、10k, 100kHz のときでは入力信号と出力信号の波形が同一のものになっている。

さらにここで、今回の実験で用いたドレイン接地回路中に、OFET の絶縁膜の静電容 量と負荷抵抗によって RC ハイパスフィルタ回路 ができていることに着目する。RC ハ イパスフィルタは Fig.2.11 で示す通りの特性を持ち、カットオフ周波数以下の低周波の 信号は通さず、高周波の信号は出力する特性を示す。出力信号の位相については、カット オフ周波数以下では入力信号に対して位相が進んでおり、カットオフ周波数を超えるに 従って位相差が小さくなっていく。このような挙動は OFET を用いたドレイン接地回路 の結果 (Fig.2.10) でも、確認することができる。低周波数領域 (1,10Hz) では OFET の 非線形特性が維持されているため位相差が小さく、ハイパスフィルタの挙動と異なるが、 約 100Hz 以上からは周波数が高くなるにつれて出力信号強度が増加し、100Hz あたりで 最も大きい位相差が減少していくという、ハイパスフィルタの特性 (Fig.2.11) と類似の挙 動が見られる。すなわち OFET を組み込んだドレイン接地回路は、低周波領域では主に OFET の非線形特性、高周波領域では主に入力信号が通過する RC 回路の特性となって おり、両者が重なった特性を持っていると言える。

確率共鳴現象の発現のためには、閾値を持つような非線形性を示す特性のシステムが必要であり、OFET 特性の On と Off 状態が維持されることが望まれる。しかし上記の結果より、低周波数の入力に対しては、OFET は Off 状態で電流を流さず回路の出力値は小さくなるが、一方で入力信号が高周波になると絶縁膜間に電流が流れて信号が通過してしまい、Off 状態を作り出すことができなくなるということになる。つまり高周波数の入力を受けているときは、ノイズに対して非線形応答することができなくなり、確率共鳴現象の発現を阻害すると考えられる。

ゲート電極幅 300µm の OFET から得られた出力値は、入力周波数が 10Hz 以下ではほ ぼ一定の値を示している。一方で 70µm のものでは、その周波数帯域は約 100Hz 以下と なっており、300µm の OFET とよりも広いことがわかる。つまりゲート電極幅を狭める ことにより、非線形応答特性を維持することができる周波数の範囲を広げることができた ということになる。確率共鳴のためには閾値周辺の特性が重要であり、On 状態だけでな く Off 状態も用いるため、確率共鳴発現のために利用できる周波数領域は狭くなると予測 される。しかし上部電極と下部電極の重なりによる OFET の駆動周波数の低下 [8] を防 ぐことにより、OFET で利用できる周波数帯域をわずかながらも拡張することができた。



Figure 2.10: ゲート電極幅 が 300, 70μm のそれぞれの OFET と負荷抵抗 1MΩ を用い たドレイン接地回路の、さまざ まな周波数の正弦波を入力した ときの出力電圧強度 (top) と、 入力信号に対する出力信号の位 相差 (bottom)。

Figure 2.11: RC ハイパスフ ィルタのゲイン (top) と位相 (bottom) の周波数特性。カッ トオフ周波数 *f*_C 以下の周波数 の入力に対してはゲインが低く、 位相は進んでいる。

2.4.3 負荷抵抗と周波数特性

作製した OFET と炭素被膜抵抗によるドレイン接地回路に用いる負荷抵抗の値によっ て、OFET システムの周波数特性がどのように変化するのか確認をし、確率共鳴現象の測 定を行うときに用いる負荷抵抗の検討を行った。ドレイン接地回路に組み込む負荷抵抗を 100, 1k, 10k, 100k および 1MΩ に変え、OFET のゲートに印加する正弦波の周波数を変 化させながら、それぞれの出力の確認を行った。観測されたドレイン接地回路の出力信号 (付録 A) から出力電圧の強度と位相差をプロットすると、Fig. 2.12 の通りとなった。負 荷抵抗がいずれの場合においても、入力正弦波の周波数が大きいときでは、出力強度が増 加する傾向が確認される。これは Fig. 2.10 のときと同様に、入力した電圧が OFET の キャパシタ構造の部分を通って、出力にリークしたためであると考えられる。Fig. 2.12 において、低周波数領域では出力強度の変化がない平坦な挙動がみられ、負荷抵抗の値が 小さいほど、この平坦な範囲が高周波側に伸びていることが確認される。つまり小さい負 荷抵抗の OFET システムでは、非線形応答特性を維持できる周波数帯域が拡張され、周 波数特性が良くなったといえる。これはゲート電極幅を変えたときと同様に、OFET の 絶縁膜による静電容量 C と負荷抵抗 R による RC ハイパスフィルタの特性が変化した ためであると思われる。今回の負荷抵抗の値を変えたときの周波数特性 (Fig.2.12) にお いても、高周波数になるにしたがって出力強度が増加し、入力信号に対する出力信号の 位相差が減少していく傾向がみられ、RC ハイパスフィルタのゲインおよび位相の特性 (Fig.2.11) と類似の挙動が確認される。そして低周波数のときでは、OFET のスイッチン グ特性による応答のために位相差が小さくなっており、OFET の非線形特性と RC 回路 の特性が重なったものになっていると言える。ここでは負荷抵抗の値を小さくすることに より、RC 回路をリークする信号の周波数を高くまで制限することによって、低周波数帯 域でみられる OFET の非線形特性が維持される周波数の範囲を拡大することになったと 考えられる。しかし負荷抵抗が小さいと出力電圧も小さくなるため、あまりに小さい負荷 抵抗を選ぶと、システムに信号を入力しても出力信号が得られないということになる。



Figure 2.12: ゲート電極幅 70μm の OFET と負荷抵抗 (100, 1k, 10k, 100k, 1MΩ)を 用いたドレイン接地回路の、さ まざまな周波数の正弦波を入力 したときの出力電圧強度 (top) と、入力信号に対する出力信号 の位相差 (bottom)。

2.5 チャネル外の RR-P3HT の除去

OFET の伝達特性の非線形性をより向上させることを狙い、チャネル外の RR-P3HT 膜の除去を行った。OFET は、ゲート電極への電圧により電界効果を発生させ、ドレイ ン-ソース間に蓄積層 (チャネル)を形成させることによって、その抵抗値を変化させる。 つまりゲート電極が覆っているエリアにのみ電界効果が効き、ゲート電極がない部分は制 御することができないということになる。ゲートによって抵抗値を制御できず、しかも比 較的抵抗値が低い領域がドレイン-ソース間に存在していた場合、その抵抗値が低い領域 を常に伝導パスとしてドレイン-ソース間電流が生じるということになる。言い換えれば、 ゲート電圧に関わらず一定のドレイン-ソース間電流が流れ、Off 状態のときの電流量が増 加することになる。すると On 状態と Off 状態の差が小さくなるため、OFET 特性の非 線形性が減少する可能性がある。RR-P3HT は半導体であり、絶縁体ほど抵抗値は高くな いため、ゲート電極に覆われていない領域は、OFET 特性の悪化につながると考えられ る。そこでドレイン・ソース電極間のチャネルとなる領域以外の RR-P3HT 薄膜の除去 を行った。ここでの OFET は、P3HT を 110°C スピンコート、PMMA を 40mg/mL 溶 液スピンコート、ゲート電極幅を 70µm の条件で作製した。

P3HT の除去処理は絶縁層の形成前に、先端の細いピンセットを使ったスクラッチに より行った。OFET のソースとドレイン電極上とチャネル上の半導体は残し、その周り のみを取り除いた (Fig. 2.13)。RR-P3HT 薄膜を成膜後にチャネル外の除去処理を行い、



Figure 2.13: ソース-ドレイ ン電極 (Au) とチャネルの周 りの、除去をしていない RR-P3HT 薄膜 (left) と除去を行っ た RR-P3HT 薄膜の顕微鏡写真 (right)。

Figure 2.14: RR-P3HTの 除去処理を行っていない OFET(left)と行ったOFETの 模式図 (right)。

PMMA 薄膜と Al 電極を蒸着し OFET を作製した (Fig. 2.14)。RR-P3HT の除去処理 済みの OFET と、未処理の OFET のそれぞれの電気特性は Figs.2.16, 2.15 の通りとなっ た。そして Eq.1.2 から算出した電界効果移動度は、RR-P3HT 除去済み、未処理のもの それぞれ 8.8×10^{-3} 、 1.7×10^{-2} cm²/Vs となった (Table2.2)。チャネル外の RR-P3HT の除去処理を行うことによって、On 電流と移動度はわずかに減少したが、 $I_{\rm DS}$ の On 電 流と Off 電流の比率が大きく向上した。これはすでに述べた通り、ゲート電圧 $V_{\rm GS}$ によ る制御のきかない領域のソース-ドレイン間電流 $I_{\rm DS}$ を削減することができたためである と考えられる。結果として、Off 電流を低く抑えるということを、簡便な手法を用いるこ とにより実現できた。

On-Off ratio

(at $V_{\rm DS} = -25 \, [V]$)

 1.1×10^3

 1.1×10^2

threshold

voltage [V]

-1.4

-1.4

Table 2.2: チャネル外の RR-P3HT 除去の処理を行 った OFET と行っていない OFET の移動度, 閾値電圧, On-Off 比



RR-P3HT outside

Au and channel

removed

no-removed

mobility

 $[\mathrm{cm}^2/\mathrm{Vs}]$

 8.8×10^{-3}

 1.7×10^{-2}

Figure 2.15: Au 電極とチャネルの周りの RR-P3HT 薄膜の除去処理を行っていない OFET(left) と行った OFET(right) の出力特性 (*I*_{DS} vs. *V*_{DS})。

2.6 OFET の大気の影響

OFET に連続的に電圧を印加することによって、デバイス特性に変化が生じるか確認を 行った。大気中で OFET の電流-電圧測定を行うと、ゲート-ソース電圧 $V_{\rm GS}$ の掃引方向 によってドレイン-ソース電流値 $I_{\rm DS}$ が異なる挙動が確認された (Fig. 2.17(left))。さら に電圧の掃引を繰り返していくと、電圧の掃引方向による違いがより顕著になっていく様 子がみられた。一方で、真空状態で OFET の伝達特性を確認すると、 $V_{\rm GS}$ の掃引方向に よって、 $I_{\rm DS}$ の違いはほとんどみられなかった (Fig. 2.17(right))。この挙動は繰り返し 電圧を掃引してもほとんど変わらず、安定した伝達特性が維持されることが確認された。

大気中で OFET の伝達特性の変化が生じた理由として、大気中に含まれる酸素や水が デバイス中に入り込み、半導体である RR-P3HT がドーピングされた可能性があげられ る [9,10]。そのため OFET のデバイス駆動条件を真空にすることによって、大気の影響 を小さくすることによって、安定な特性を維持することができたと考えられる。作製した OFET の半導体 (RR-P3HT) は絶縁膜に覆われているにも関わらず、大気の影響が大き くみられた原因として、デバイス内部に酸素や水が存在していたか、絶縁膜が薄いまた は密着性が低いことにより半導体内に浸透した可能性が考えられる。特にチャネル外の RR-P3HT の除去処理を行った場合、薄膜の凹凸が大きくなるため、デバイスへの大気の



Figure 2.16: Au 電極とチ ャネルの周りの RR-P3HT 薄膜の除去処理を行ってい ない OFET(left) と行った OFET(right)の伝達特性 (*I*_{DS} *vs. V*_{GS})。

侵入が容易になると言える。大気に対するデバイスの安定性を改善するためには、高真空 中に長時間デバイスを保存し内部の不純物となる分子の除去を行うことや、パッシベー ションによりデバイスをさらに覆うことにより、電気特性の安定性が向上することが期待 される。今回の確率共鳴の測定実験においても、大気中で測定を行った場合、周波数の小 さい入力信号を印加し長時間デバイスに電圧を印加することになり、次第にシステムの特 性が変化することが予想される。その場合、外部ノイズの印加によって信号伝達パフォー マンスが変化したのか、大気の影響なのか判別が困難になるため、確率共鳴の測定を行う ときには OFET を真空状態にして電圧を印加することにした。





2.7 まとめ

外部ノイズを印加することによって確率共鳴現象がみられるような OFET を作製する ために、RR-P3HT を用いた OFET の伝達特性の非線形性の向上および周波数特性の改 善を行った。具体的には、スピンコート時に RR-P3HT 溶液と電極蒸着済みの基板を加 熱をすることにより、電界効果移動度の改善がみられた。また OFET と負荷抵抗を用い てドレイン接地回路を作製し、そのときの周波数特性を確認した。このとき、ゲート電極 である上部電極の幅を狭めることにより、下部と上部電極間の重なりを減らし、OFET の 非線形応答特性を維持できる周波数帯域を広げられた。また、OFET と組み合わせる負 荷抵抗の値を小さくすることによって、回路 (OFET システム) の出力強度は減少してし まうが、OFET の伝達特性由来の非線形応答特性を維持される帯域が、より高周波の領 域にまで拡張できることが確認できた。さらにチャネルとソース-ドレイン電極の周りの RR-P3HT 薄膜の除去を行うことにより、Off 電流を低く抑えることができ、OFET のス イッチング特性の改良ができた。上記の簡便な手法により、OFET の電気特性を向上さ せることができた。加えて、繰り返し電圧を掃引したときの OFET 特性を確認し、大気 の影響を受ける様子が確認された。そのため、長時間電圧を印加するときには、真空条件 下で測定を行う必要がある。

参考文献

- [1] Facchetti, A. Materials Today 10(3), 28–37 (2007).
- [2] Marinov, O., Deen, M. J., and Iniguez, B. IEE Proceedings Circuits, Devices and Systems 152(3), 189–209 (2005).
- [3] Jimenez Tejada, J. A., Lopez Varo, P., Cammidge, A. N., Chambrier, I., Cook, M. J., Chaure, N. B., and Ray, A. K. *IEEE Transactions on Electron Devices* 64(6), 2629–2634 (2017).
- [4] Marinov, O., Deen, M. J., Zschieschang, U., and Klauk, H. *IEEE Transactions on Electron Devices* 56(12), 2952–2961 (2009).
- [5] Deen, M. J., Marinov, O., Zschieschang, U., and Klauk, H. *IEEE Transactions on Electron Devices* 56(12), 2962–2968 (2009).
- [6] Sirringhaus, H., Brown, P. J., Friend, R. H., Nielsen, M. M., Bechgaard, K., Langeveld-Voss, B. M. W., Spiering, A. J. H., Janssen, R. a. J., Meijer, E. W., Herwig, P., and de Leeuw, D. M. *Nature* 401(6754), 685–688 (1999).
- [7] Klug, A., Meingast, A., Wurzinger, G., Blümel, A., Schmoltner, K., Scherf, U., and List, E. J. W. In Organic Semiconductors in Sensors and Bioelectronics IV, volume 8118, 811809. International Society for Optics and Photonics, (2011).
- [8] Peng, B., Ren, X., Wang, Z., Wang, X., Roberts, R. C., and Chan, P. K. L. Scientific Reports 4, 6430 (2014).
- [9] Abdou, M. S. A., Orfino, F. P., Son, Y., and Holdcroft, S. Journal of the American Chemical Society 119(19), 4518–4524 (1997).
- [10] Hoshino, S., Yoshida, M., Uemura, S., Kodzasa, T., Takada, N., Kamata, T., and Yase, K. Journal of Applied Physics 95(9), 5088–5093 (2004).

第3章

有機電界効果トランジスタにおける 確率共鳴の観測

3.1 目的

第2章において、閾値を持った伝達特性を持ち、数十 Hz 以下の周波数に対して特性を 維持できる OFET を作製した。ここでは作製した OFET に外部から電場ノイズを印加 することにより、確率共鳴を引き起こすことを試みる。そのために、自作の OFET シス テムが駆動できる周波数帯域は狭いため、さらにその帯域を広げることを狙い、ドレイン 接地回路中の負荷抵抗の検討を行った。また有機半導体を持つ OFET は、大きなノイズ を持つことも期待され [1]、そのノイズが確率共鳴現象に作用する可能性も考えられる。 そのため OFET で観測される確率共鳴の挙動を特徴づけるものがあるか、あるとしたら それは何か、について考察を行った。

さらに確率共鳴現象の発現には、システムが閾値のような非線形応答性を示す必要があ るといわれている [2] ため、OFET の伝達特性における非線形性が重要になると考えら れる。そこで異なる伝達特性を示す OFET において、確率共鳴現象がみられるか確認し、 OFET において確率共鳴が有効となる条件を模索した。

3.2 測定方法

作製した OFET に外部ノイズを印加することにより、確率共鳴現象が起こるかを確認 するために、周期入力信号とノイズ電圧を OFET と負荷抵抗によって構成されるドレイ ン接地回路 (Fig. 3.1) に入力した。 このときのノイズはガウスホワイトノイズ^{†36}であ る。そして OFET 回路の出力信号の測定を行った。確率共鳴現象の実験に用いた装置の 構成は Fig. 3.2 の通りである。

OFET システムに印加する入力周期信号とガウスホワイトノイズは、任意波形発生器 (入力信号は3390, Keithley、ノイズは33210A, Keysight Tech. を用いた)によって発生 させ、高速バイポーラアンプ(HS4011, NF)により加算および増幅を行った。入力周期信 号には0.5Hzの正弦波および矩形波を用い、矩形波のデューティ比は80%である。ノイ ズの帯域幅は0.05-48Hzに設定した。任意波形発生器から発生させたノイズは、RCロー パスフィルタによって周波数の上限を設定した。ノイズ周波数の下限はハイパスフィル タによって決定しているが、このフィルタがないと、任意波形発生器の設定ノイズ強度を



Figure 3.1: ドレイン接地 (ソース フォロワ) 回路の回路図

^{†36} 値はガウス分布(正規分 布)にしたがい、スペクトル がホワイトであるノイズ



Figure 3.3: RC ローパスフィルタ の回路図



Figure 3.2: 確率共鳴の測定実験に用いた装置のブロック図。DUT (device under test) が作製した OFET であり、負荷抵抗と合わせてドレイン接地 回路となっている。ノイズはフィルタによって周波数帯域を制限し、入力信号と足し合わせて OFET のゲート電極へ入力した。

変化させるとともに、発生させたノイズ出力の平均値が変動してしまう問題があったた め挿入した (付録 B)。また回路への電源 $V_{\rm DD}$ には直流電源装置 (PSF-400H, TEXIO) を 用いて-15V 加えた。OFET 回路の出力信号の測定は、デジタルマルチメータ (33410A, Keysight Tech.) にて行い、サンプリング周波数は 50Hz である。また OFET システム の信号伝達性能の指標として、以下の式によって示される、入力信号と出力信号の相関値 (相関係数) ρ を用いた。

$$\rho = \frac{\frac{1}{t_{\rm M}} \int_0^{t_{\rm M}} [V_{\rm out}(t) - \overline{V_{\rm out}(t)}] [R(t) - \overline{R(t)}] dt}{\sqrt{\frac{1}{t_{\rm M}} \int_0^{t_{\rm M}} [V_{\rm out}(t) - \overline{V_{\rm out}(t)}]^2 dt} \sqrt{\frac{1}{t_{\rm M}} \int_0^{t_{\rm M}} [R(t) - \overline{R(t)}]^2 dt}}$$
(3.1)

ここで $t_{\rm M}$ は測定時間、R(t) は入力(リファレンス)信号、 $V_{\rm out}(t)$ は出力信号であり、 $\overline{R(t)}, \overline{V_{\rm out}(t)}$ はそれぞれ入力信号,出力信号の平均値である。

測定に用いた OFET の作製条件は、RR-P3HT 薄膜の形成に 110°C のスピンコート を行い、ソース-ドレイン電極とチャネル外の RR-P3HT の除去処理を行い、ゲート電 極幅は 70 μ m となっている。このデバイスの電気特性は Fig.3.4 の通りとなり、Eq.1.2 を用いて電界効果移動度と閾値電圧を算出すると、それぞれ $\mu = 3 \times 10^{-3} \text{cm}^2/\text{Vs}$ と $V_{\text{th}} = -0.45$ V であった。

3.3 負荷抵抗の検討

入力信号である振幅 6V の正弦波とノイズを足し合わせた電圧を、OFET と負荷抵抗 4.4kΩ によるドレイン接地回路に入力した。このときの、印加する外部ノイズ強度を変化



Figure 3.4: 確率共鳴の測定実験に用いた OFET の出力特性 I_{DS} vs. V_{DS}(left) と伝達特性 I_{DS} vs. V_{GS}(right)。

させたときの入-出力信号間の相関値の変化は Fig.3.5(top) の通りとなった。正弦波およ びノイズと同時に印加する DC バイアス $V_{
m bias}$ $^{\dagger 37}$ の値に関わらず、入-出力信号間の相 関値は、外部ノイズ強度の増加に伴い上昇している。この結果は、印加された外部ノイ ズにより OFET システムの信号伝達パフォーマンスが向上したことを意味し、作製した OFET において確率共鳴現象が発現したということになる。一方で、負荷抵抗が47kΩの 時では、外部ノイズの印加により相関値が低下している (Fig.3.5(bottom))。DC バイア スおよび入力信号強度を変えることにより、ノイズを印加していないときの相関値を0に 近づけても、この傾向は変わらず、外部ノイズの印加による相関値の上昇はみられなかっ た。OFET のチャネル抵抗は比較的大きいため、より大きい負荷抵抗と OFET によるド レイン接地回路は、小さい負荷抵抗のものよりも大きい出力になる。しかし同時に、負荷 抵抗と OFET のゲートの静電容量によって形成される RC 回路により、ドレイン接地回 路の周波数特性が悪化したため、負荷抵抗を大きくすると確率共鳴現象がみられなくなっ たと考えられる。RC 回路の持つカットオフ周波数以上の周波数を持つ入力は、回路中を 通過し出力に現れる。つまり OFET の非線形特性に関わらず、高周波の入力は線形的に 伝達されることになる。今回の測定では、用いた負荷抵抗の値が小さいときには OFET 回路の駆動周波数が広げられ、確率共鳴現象を観測することができた。しかし、負荷抵抗 を更に小さくするのは OFET システムの出力強度が小さくなりすぎるため、負荷抵抗の 調節によるシステムの応答性の更なる改良は望めない。つまり今回の確率共鳴現象の発現 には、第2章で行ったような OFET 特性の改良が重要であったと考えられる。また今回 の確率共鳴の結果は、先行実験 [3-10] のような結果と異なり、入-出力相関値のピーク釣 り鐘型カーブ)が確認されなかった。入力信号に矩形波を用いても確率共鳴が観測され、 正弦波のときと同様の挙動がみられた (付録 C)。矩形波は二つの値のみで構成され、比較 的解析が容易となるため、以降の確率共鳴の測定には矩形波を用いた。

^{†37} DC バイアスに よって入力信号と閾 値間の距離が変わる。 threshold



input signal voltage [V] correlation coefficient, ρ 0.3 0 to 12 2 to 14 0 4 to 16 0.2 0.1 0.0 20 30 0 10 external noise intensity, V_{noise} [V_{PP}] input signal voltage [V] correlation coefficient, ρ 0.8 $(R_{load} = 4.4 \text{ k}\Omega)$ 0 to 12 0.6 0.4 $(R_{\text{load}} = 47 \text{ k}\Omega)$ 0 to 12 0.2 4 to 16 8 to 12 0.0 0 10 20 30 external noise intensity, V_{noise} [V_{PP}]

3.4 OFET システムにおける確率共鳴現象

3.4.1 確率共鳴現象の挙動

OFET 回路中の負荷抵抗を $4.4k\Omega$ とし、入力信号として矩形波を入力し、さまざまな 入力信号強度 V_{signal} および DC バイアス電圧 V_{bias} 条件下で、外部ノイズを印加したと きの OFET システムの挙動を確認した。同条件で 3 回測定して得られた入-出力相関値の 平均値をプロットすると Fig.3.6 の通りの結果が得られた。 $V_{signal} = 2V$ のとき、または $V_{signal} = 8V$ かつ $V_{bias} = 4$, 8V のときに、外部ノイズ強度 V_{noise} 増加に伴い、相関値 ρ の 増加がみられ、確率共鳴現象の出現が確認できる。特に、 $V_{signal} = 2V$ かつ $V_{bias} \le 2V$ の ときでは、入-出力相関値の釣り鐘型カーブが観測されるが、これは確率共鳴現象の発現の 典型的な証拠である [2]。釣り鐘型カーブのピークのとき、すなわち最も信号伝達パフォー マンスが高いとき ($V_{noise} = 13.5V_{PP}$) は、ノイズを印加していないとき ($V_{noise} = 0V_{PP}$)

Figure 3.5: (top) 作製した OFET と 4.4kΩ の負荷抵抗に よるドレイン接地回路に正弦波 を入力し、同時に印加する外部 のノイズ強度を増加させたとき の入出力相関係数。正弦波の振 幅 $V_{\text{signal}} = 6V$ かつ、DC バイ アス $V_{\text{bias}} = 6, 8, 10 V$ のとき のそれぞれの結果を示す。(bottom) ドレイン接地回路に用い る負荷抵抗を 47kΩ にしたと きの、外部ノイズ強度に対する 入出力相関係数。正弦波の振幅 $V_{\text{signal}} = 6V$ かつ DC バイアス V_{bias} =6, 10V のとき、および 正弦波の振幅 $V_{\text{signal}} = 2V$ かつ DC バイアス $V_{\text{bias}} = 10V$ のと きの結果を示す。比較用に負荷 抵抗が $4.4k\Omega$ のときの結果も載 せた。点が測定結果であり、曲 線は guides for eyes である。







Figure 3.6: 作製した OFET と 4.4k Ω の負荷抵抗によるドレイ ン接地回路に矩形波を入力し、同 時に印加する外部のノイズ強度 を増加させたときの入出力相関 係数。矩形波の振幅 $V_{\text{signal}} = 1$, 2, 4, 8V のそれぞれの条件にお いて、DC バイアス $V_{\text{bias}} = 0$, 1, 2, 3, 4, 8V にしたときの結果を 示す。点は 3 回行った測定結果 の平均値であり、曲線は guides for eyes である。

3.4.2 OFET システムのモデル化

OFET システムにおける確率共鳴の挙動に関する更なる見地を得るために、外部ノイズ強度 V_{noise} を関数として入-出力相関値 ρ の数値シミュレーションを行う。その準備として、OFET システムの入出力特性のモデル化を行った。OFET の伝達特性は

$$I_{\rm DS} = \begin{cases} -\frac{W}{2L} \mu C_{\rm i} (V_{\rm GS} - V_{\rm th})^2 & (V_{\rm DS}(t) < V_{\rm th}) \\ 0 & (\text{otherwise}) \end{cases}$$
(3.2)

 $(I_{DS}: ドレイン-ソース電流, W: チャネル幅, L: チャネル長, C_i: 絶縁膜層の単位面積当$ $たりの静電容量, <math>V_{GS}: ゲート-ソース電圧, V_{th}: 閾値電圧)$ によってモデル化できること から、OFET システムの出力 $V_{out}(t)$ を以下の式によって表現した。

$$V_{\rm out}(t) = \begin{cases} -A(V_{\rm in}(t) - V_{\rm th})^2 + B & (V_{\rm in}(t) < V_{\rm th}) \\ B & (\text{otherwise}), \end{cases}$$
(3.3)

ここで $V_{\rm in}(t) = R(t) + \xi_{\rm ext}(t)$ は入力電圧であり、 $\xi_{\rm ext}$ は外部ノイズを示し、 $\langle \xi_{\rm ext}(t)\xi_{\rm ext}(t') \rangle = \sigma_{\rm ext}^2 \delta(t-t')$ を満たす。なお $\sigma_{\rm ext}$ は、外部ノイズの二乗平均平方根



Figure 3.7: Fig. 3.6 において 相関値の釣り鐘型カーブが見ら れたとき ($V_{signla} = 2V, V_{bias} =$ 1V)の、作製した OFET システ ムの出力信号波形。3回分の測 定結果の出力信号を重ねて表示 している。外部ノイズが最適ノ イズ強度 $V_{noise} = 13.5$ V_{PP}の ときに、より入力信号に似た出 力波形が確認される。

 $^{\dagger 38}$ root mean square

(RMS)^{†38} 強度であり、 $\sigma_{\text{ext}} = V_{\text{noise}}/6.6$ によりピーク to ピークノイズ強度 (V_{noise}) に 変換した。 $\delta(t)$ はディラックのデルタ関数である。また $A \ge B$ は定数となるフィッティ ングパラメータである。実験的に測定した OFET システムの入出力特性 (Fig.3.8(top))から、 $A = 3.0 \times 10^{-6} \text{V}^{-1}$ 、 $B = -7.6 \times 10^{-6} \text{V}$ 、 $V_{\text{th}} = 9.4 \times 10^{-1} \text{V}$ とした。

さらに、より実際の OFET システムの入出力特性をシミュレートするために、Eq.3.3 による決定論的モデルだけでなく、下式によって示される確率論的モデルも定義した。決 定論的モデルは、内部ノイズとして一定強度のランダム変数を Eq.3.3 に加えたもので ある。

$$V_{\rm out}(t) = \begin{cases} -A(V_{\rm in}(t) - V_{\rm th})^2 + B + \xi_{\rm int}(t) & (V_{\rm in}(t) < V_{\rm th}) \\ B + \xi_{\rm int}(t) & (\text{otherwise}), \end{cases}$$
(3.4)

 $\xi_{\text{int}}(t)$ はゼロ平均のガウスホワイトノイズであり、 $\langle \xi_{\text{int}}(t)\xi_{\text{int}}(t') \rangle = \sigma_{\text{int}}^2 \delta(t-t')$ を満たす。 σ_{int} は (RMS) 内部ノイズ強度であり、ここでは 5.0×10^{-5} V と設定した。外部ノイズおよび内部ノイズの分布関数は、それぞれ $1/\sqrt{2\pi\sigma_{\text{ext}}^2}\exp(-\xi_{\text{ext}}^2/(2\sigma_{\text{ext}}^2))$ と $1/\sqrt{2\pi\sigma_{\text{int}}^2}\exp(-\xi_{\text{int}}^2/(2\sigma_{\text{int}}^2))$ によって示される。Eqs.3.3, 3.4 によってモデル化した OFET システムの入出力特性をプロットすると、Fig.3.8(bottom) のようになる。

3.4.3 確率共鳴の数値シミュレーションと OFET システムの構造

Eqs.3.3, 3.4 によって定義した OFET システムの入出力特性を用いて確率共鳴のシ ミュレーションを行うと、Figs.3.9, 3.10 の通りとなった。



Figure 3.8: (top) 作製した OFET と負荷抵抗 4.4kΩ によ るドレイン接地回路の入出力特 性。(bottom) Eqs.3.3, 3.4 によ リモデル化した、内部ノイズを 持たない OFET システムと内 部ノイズを持つ OFET システ ムの入出力特性。

内部ノイズのない決定論的モデル (Eq.3.3) の場合では、入力信号が小さいと、外部ノ イズ強度の小さい範囲で、外部ノイズによる入-出力信号間の相関値の上昇がはっきりと 確認される。例えば、 $V_{\text{signal}} = 2V$ かつ $V_{\text{bias}} = 3, 4, 8V$ のときに確認できる。さらに、 内部ノイズのある確率論的モデル (Eq.3.4) の結果と比較すると、相関値 ρ のピークがよ り鋭く、釣り鐘型カーブがより鮮明になっている。一方で入力信号が大きい時、または DC バイアス値が小さい時の内部ノイズなしモデルでは、相関値 ρ がノイズの印加により 単調減少している。具体的には、 $V_{\text{signal}} = 8V$ または $V_{\text{signal}} = 2V$ かつ $V_{\text{bias}} \leq 3V$ のとき などである。このとき、入力信号は外部ノイズなしでも閾値 ($V_{\text{th}} = 9.4 \times 10^{-1}$ V) を超え ている条件となっている。しかし内部ノイズを内包した確率論的モデルのときでは、外 部ノイズによる相関値 ρ の緩やかな増加、すなわち、わずかな確率共鳴の効果が見られ る (Fig.3.9)。このケースでは、内部ノイズなしのモデルと比較して、相関値 ρ の値は全



Figure 3.9: モデル化した内部 ノイズを持たない OFET シス テム (Eq.3.3) に矩形波を入力 し、同時に印加する外部のノ イズ強度を増加させたときの 入出力相関係数。矩形波の振幅 $V_{\text{signal}} = 1, 2, 4, 8V$ のそれぞ れの条件において、DC バイア ス $V_{\text{bias}} = 0, 1, 2, 3, 4, 8V$ にし たときの結果を示す。点は3回 行った数値計算の結果の平均値 であり、曲線は guides for eyes である。

> 体的に小さい。さらに、 $V_{\text{signal}} = 2V$ かつ $V_{\text{bias}} \ge 2V$ と、 $V_{\text{signal}} = 8$ かつ $V_{\text{bias}} = 3,4V$ の ときにみられるように、内部ノイズなしのものと比べて内部ノイズありのモデルでは、外 部ノイズ強度の関数としたときの ρ の変動がとても小さい。つまり、このことは内部ノイ ズを持つシステムは、外部ノイズの強度に依存しない、一定の信号伝達パフォーマンスを 維持することを意味する。言い換えれば、内部ノイズを伴うシステムは、外部ノイズに対 して頑強性(ロバスト性)を持つということになる。このロバスト効果によって、入-出 力相関値 ρ の単調減少の傾きが小さく、ピークの大きさが小さくなっていたと考えられ る。内部ノイズがあるシステムでは、上記のロバスト性に加えて、入力電圧が閾値を超え ているときであっても、確率共鳴による相関値 ρ の上昇が確認される。このような挙動 は $V_{
> m signal}$ =2V かつ $V_{
> m bias}$ \leq 3V のときのように、内部ノイズがないシステムではみられな い。確率共鳴に関する数多くの研究では、閾値以下の信号を取り扱っているが [11]、閾値 応答系を並列化させたシステムにおいて、閾値を超えた信号でも確率共鳴が起こることが 確認されている [12,13]。これは並列化することにより、閾値応答のダイナミックレンジ を広げているためである。一方で今回の研究では、内部ノイズにより効果的に閾値を上昇 させることにより、大きい入力信号に対しても確率共鳴が観測されたと言える。このこと から、たとえ並列化されたシステムでなくても、ノイジーな環境下では閾値を超えた信号 に対して確率共鳴現象が有効になることが示唆される。



Figure 3.10: モデル化した内部 ノイズを持つ OFET システム (Eq.3.4) に矩形波を入力し、同 時に印加する外部のノイズ強度 を増加させたときの入出力相関 係数。矩形波の振幅 V_{signal} =1, 2, 4, 8V のそれぞれの条件にお いて、DC バイアス V_{bias} =0, 1, 2, 3, 4, 8V にしたときの結果を 示す。点は 3 回行った数値計算 の結果の平均値であり、曲線は guides for eyes である。

実験結果と数値シミュレーションの結果を比較すると、作製した OFET を使った回路 における入-出力相関値 ρ の変化は、内部ノイズのないモデルよりも、内部ノイズのある モデルでの結果に類似している。つまり実験による OFET 回路においては、内部ノイズ が存在しており、相関値のピークを小さくし、外部ノイズに対して頑強性を示していた と言える。内部ノイズのあるモデルが Eq.3.4 で示されているように、内部ノイズは非線 形応答の後に加算的に出力に現れている。このことから、今回実験的に確率共鳴現象の 観測を行った OFET システムは、Fig.3.11 のような構造になっていると考えられる。こ



Figure 3.11:本論文で取り扱う OFET システムにおいて、信号 と外部ノイズを印加したときの 構造図。入力は、OFET の非線 形応答特性によって処理された 後、内部ノイズが加算され出力 される。 のような結果となったのは、OFET システムの出力強度が小さかったために、回路中の 内部ノイズがより顕著になったためだと考えられる。装置から発生させた外部ノイズ電 圧を OFET に印加しなくても、出力信号に内部ノイズが重なっていることが確認された (Fig.3.8) ことから、内部ノイズと外部ノイズの間には相関がないと言える。

また、作製した OFET システムにおける確率共鳴 (Fig.3.6)の最適ノイズ強度は、数 値シミュレーションの結果 (Fig.3.10)のものよりも小さくなっている。この差異は、作製 した OFET の動作周波数特性が低かったためである可能性がある。つまり印加した外部 ノイズのすべての成分を、確率共鳴のために利用できたわけではないと思われる。加え て、OFET システムの特性 (Fig.3.4)の On 状態でのカーブが、Eq.3.4 によってうまく表 現しきれていなかったことが、確率共鳴の実験と数値シミュレーションの間の違いを生じ させていた可能性がある。実験的に観測した OFET システムの出力と、モデル化したシ ステムの出力の差をあらわすと Fig. 3.12 の通りとなった。顕著な差ではないが、入力値 が-10V 付近のときに、作製した OFET システムの出力とシミュレーションに用いたモデ ルの出力の間に違いがあることが確認される。この違いによって、実験と数値シミュレー



ション間で、外部ノイズを印加したときの確率共鳴の挙動に差異が生じた可能性も考えられる。また全体的な傾向として、相関 ρ の実験値はシミュレーションによる数値よりも高い値を示しており、いずれの条件であってもゼロにはなっていない。これは、入力信号として用いた矩形波に含まれる高周波成分^{†39}によるものであると予想され、例え入力信号が閾値以下にあったとしても、高周波成分が OFET の絶縁膜を通り、出力にまで通過していたと思われる。

Figure 3.12: (top) 作製した OFET と $4.4k\Omega$ を用いたドレ イン接地回路の入出力特性と、 Eq. 3.3 によってモデル化し た内部ノイズなしの OFET シ ステムの入出力特性。(bottom) ドレイン接地回路の出力から、 モデル化した OFET システム (内部ノイズなし)の出力を引い た残余。

^{†39} 矩形波は、ハイからロー またはローからハイに値が瞬 時に(高速に)切り替わるた め、高周波成分が含まれる

3.5 OFET システムの非線形性と確率共鳴現象

OFET の絶縁膜である PMMA の膜厚を変化させ、デバイスを作製した。40,80,160 mg/mL の濃度の PMMA 溶液を調整し、それぞれスピンコートを行うことによって、異なる膜厚の絶縁層を作製した。また RR-P3HT は 110°C スピンコートにより製膜し、電極回りの RR-P3HT 薄膜の除去なし、ゲート電極幅 70 μ m の条件で OFET を作製した。 作製した OFET の特性は、Fig. 3.13,3.14 の通りとなり、いずれの OFET も $V_{\rm GS}$ に対してオーミックではない、非線形な伝達特性が確認されるが、PMMA 膜厚が厚いほど線形に近い特性になっている。また電界効果移動度も変化しており (Table 3.1)、チャネルに及ぼすゲート電場が小さくなったことが影響したと考えられる。これは絶縁膜である PMMA の膜厚が増加したことによって静電容量が減少し、ゲート電圧印加による電界効果が弱くなり、半導体中のチャネルへの影響力が小さくなったためであると言える。

spin-coated PMMA solution	mobility	threshold	On-Off ratio
concentration $[mg/mL]$	$[\mathrm{cm}^2/\mathrm{Vs}]$	voltage [V]	(at $V_{\rm DS} = -25$ [V])
40	8.8×10^{-3}	5.3	35
80	1.4×10^{-3}	30	8.2
160	3.9×10^{-4}	97	2.7

Table 3.1: PMMA 膜厚の異 なる OFET それぞれの移動 度, 閾値電圧, On-Off 比

PMMA が異なるそれぞれの OFET に、外部ノイズを印加したときの信号伝達パフォーマンスの変化を示したのが Fig. 3.15 である。いずれのデバイスにおいても、外部ノイズ 強度の増加に伴う信号伝達性能の向上をはっきりと確認することはできないが、PMMA 溶液 40mg/mLをスピンコートした OFET では、DC バイアス電圧が大きいとき (例え ば $V_{\text{bias}} = 4, 6V$) では、わずかに入-出力相関の値が増加しているようにみられる。一方 PMMA のスピンコート溶液の濃度が高く、絶縁膜が厚い OFET ほど、入力 DC バイア スによる変化が小さいことが確認されると同時に、外部ノイズ強度を大きくしても相関値 の上昇はみられず、確率共鳴が引き起こされた挙動が確認されない。このことから、伝達 特性における非線形性が小さい OFET では、確率共鳴が起こりづらいということが実験 的に確認できたと言える。

3.6 まとめ

RR-P3HT を半導体として用いた OFET において、確率共鳴現象を観測することに成 功した。このとき、印加する外部ノイズ強度の増加に伴い、入-出力信号の相関係数 ρ の 緩やかな増加が確認された。このように相関値の変動が小さくなったのは、システム内の 内部ノイズが寄与したためであると考えられる。加算性の内部ノイズ存在下でみられる確 率共鳴現象は、相関値をほぼ一定に維持する。つまり、外部ノイズに対して一定の能力の 頑強な信号伝達が行われる。これらの結果から、内部ノイズが有益な役割を果たす可能性 がある。生物の神経系には内部ノイズが存在し、確率共鳴の利用が示唆されているが、も し生体システムにおいても、今回のようなロバスト効果が寄与していた場合、生体型信 号/情報処理において、内部ノイズによる緩やかな確率共鳴が、突然の環境変化に対して ポジティブな役割を担っているということも考えられる。



Figure 3.13: 絶縁膜である PMMA 成膜時のスピンコート溶液濃度を 40,80,160 mg/mL にして作製した OFET の伝達特性 (I_{DS} vs. V_{GS})(線形表示)。いずれの OFET の特性も非線形性が確認されるが、PMMA のスピンコート溶液濃度が低いほど非線形性が増加している。



Figure 3.14: 絶縁膜である PMMA 成膜時のスピンコート 溶液濃度を 40, 80,160 mg/mL にして作製した OFET の伝達 特性 (*I*_{DS} *vs. V*_{GS})(対数表示)。 PMMA のスピンコート溶液濃 度が低いと非線形性が増加し、 Off 状態が確認される。

また、入出力特性の非線形性が小さい OFET では、確率共鳴現象は観測されず、OFET の伝達特性が確率共鳴の発現に大きく関与することが確認された。



Figure 3.15: PMMA 成膜時のスピンコート溶液濃度を 40, 80, 160 mg/mL にして作製した、それぞれの OFET と 4.4k Ω の負荷抵抗によるドレイン接地回路に矩形波を入力し、同時に印加する外部のノイズ強度を増加させたときの入出力相関係数。矩形波の振幅 $V_{\text{signal}} = 4$ V かつ、DC バイアス $V_{\text{bias}} = -2$ 10V のときの結果を示す。

参考文献

- Marinov, O. and Deen, M. J. In 2015 International Conference on Noise and Fluctuations (ICNF), 1–6, (2015).
- [2] Gammaitoni, L., Hänggi, P., Jung, P., and Marchesoni, F. Reviews of Modern Physics 70(1), 223–287 (1998).
- [3] Nishiguchi, K. and Fujiwara, A. Applied Physics Letters 101(19), 193108 (2012).
- [4] Kasai, S. and Asai, T. Applied Physics Express 1, 083001 (2008).
- [5] Kasai, S., Miura, K., and Shiratori, Y. Applied Physics Letters 96(19), 194102 (2010).
- [6] Kanki, T., Hotta, Y., Asakawa, N., Kawai, T., and Tanaka, H. Applied Physics Letters 96(24), 242108 (2010).
- [7] Lee, I. Y., Liu, X., Kosko, B., and Zhou, C. Nano Letters 3(12), 1683–1686 (2003).
- [8] Lee, I., Liu, X., Zhou, C., and Kosko, B. *IEEE Transactions on Nanotechnology* 5(6), 613–627 (2006).
- [9] Hakamata, Y., Ohno, Y., Maehashi, K., Kasai, S., Inoue, K., and Matsumoto, K. Journal of Applied Physics 108(10), 104313 (2010).
- [10] Hakamata, Y., Ohno, Y., Maehashi, K., Inoue, K., and Matsumoto, K. Applied Physics Express 4(4), 045102 (2011).
- [11] McDonnell, M. D. and Ward, L. M. Nature Reviews Neuroscience 12(7), 415–426 (2011).
- [12] Stocks, N. G. Physical Review Letters 84(11), 2310–2313 (2000).
- [13] McDonnell, M. D., Abbott, D., and Pearce, C. E. M. Fluctuation and Noise Letters 02(03), L205–L220 (2002).

第4章

有機電界効果トランジスタシステム における内部ノイズの解析

4.1 目的

第3章では、作製した OFET において確率共鳴を観測することに成功し、OFET の内 部ノイズが寄与していたことが示唆された。そこでは内部ノイズをガウスホワイトノイズ と仮定したが、その妥当性についてここで検証を行う。また確率共鳴の実験でみられた内 部ノイズの特性から、内部ノイズの由来について考察を行う。

4.2 確率共鳴実験における内部ノイズ

4.2.1 内部ノイズの特性

OFET を使ったドレイン接地回路の入-出力特性の測定ではデジタルマルチメータを使 い、サンプリングの開口時間を 0.1ms に設定し、周波数帯域は 5kHz の条件で記録した。 実験における OFET システムの閾値以下での領域 ($V_{in} \ge 0V$)の、内部ノイズの強度分布 は Fig.4.1 となり、FFT ^{†40}を用いて得られたスペクトルは Fig. 4.2 となった。

この強度分布の結果 (Fig.4.1) からは、標準偏差 5.3×10^{-5} V のガウス分布にしたがっ て分布していることがわかる。また、パワースペクトル密度 (PSD) ^{†41} は、周波数に対し て一定となっている。このことから、閾値以下の出力で確認される内部ノイズは、ガウス ホワイトノイズであると言える。

さらに、閾値以上における内部ノイズに関しても解析を行うため、OFET の伝達特性由 来のスイッチング出力、つまり低速な(低周波の)変動成分の除去を行った。Fig.3.8 の 出力データを、バターワース八イパスフィルタ(5次、カットオフ周波数 3Hz)に通すと Fig.4.3 の通りなった。そして閾値以上の領域($V_{\rm in} \leq -5V$)における、フィルタを通した 出力値の強度分布およびスペクトルは Figs.4.4, 4.5 の通りとなった。Fig.4.4 から、閾値 以上での出力もガウス分布になっていることが確認される。またフィルタによって処理さ れた OFET システムの閾値以上と、閾値以下の領域の出力値は、それぞれ 5.1 × 10⁻⁵V と 5.3 × 10⁻⁵V の標準偏差であった。すなわち閾値を超えた領域かそうでないかに関わ らず、内部ノイズ強度は一定であり、ガウス分布になっている。さらに、Fig.4.5 でも周 波数に依らず一定の PSD となっていることから、閾値以上での内部ノイズのスペクトル ^{†40} fast Fourier transform; 高速フーリエ変換

^{†41} power spectral density; PSD



Figure 4.1: 作製した OFET と 4.4k Ω によるドレイン接地回路 の、閾値以下での出力値の分布。 分散 $(53\mu V)^2$ の正規分布 (破線) に従って分布していることが確 認される。

Figure 4.2: 作製した OFET と 4.4kΩ によるドレイン接地回路 の、閾値以下での出力値のパワー スペクトル密度。周波数に依存 しないホワイトなスペクトルが 確認される。

> も、周波数に依存しないホワイトなスペクトルであるといえる。以上をまとめると、内部 ノイズは印加した電圧に依存せず、ガウス分布をとり、ホワイトなスペクトルを持ってい るということになる。第3章での数値シミュレーションに用いた OFET システムのモデ ル(Eq. 3.4)では、内部ノイズは入力とは独立なガウスホワイトノイズであると仮定した が、これは妥当であったと言える。

4.2.2 内部ノイズの由来

有機電子デバイスにおいて観測されるノイズとしては、熱ノイズ、ショットノイズ、ランダムテレグラフノイズ、1/f ノイズが知られている [1](Table. 4.1)。熱ノイズは抵抗成



Figure 4.3: 作製した OFET と 4.4kΩ によるドレイン接地 回路の入出力特性。ハイパスフ ィルタ処理を行うことにより、 OFET の非線形応答特性を除去 し、内部ノイズのみの抽出を行っ た。

Figure 4.4: 作製した OFET と 4.4k Ω によるドレイン接地回路 の、閾値以上での出力値の分布。 分散 $(51\mu V)^2$ の正規分布 (破線) に従って分布していることが確 認される。

分が原因として発生し、周波数に依存しないホワイトなスペクトルを持つ [2]。ショット ノイズは、電流値によってその強度が増加し、ホワイトなスペクトルを示す [3,4]。ラン ダムテレグラフノイズは、二つまたはそれ以上の離散的なレベルの電圧 (電流) 間をラン ダムに遷移するノイズであり、2 レベルのランダムテレグラフノイズではローレンツ型の スペクトルを示す [2,5-7] 。1/f ノイズはその名の通り 1/f^{γ} (1 $\leq \gamma \leq$ 2) の傾きを持つ スペクトルをとる [2,8-12]。



これらのノイズの特性と、作製した OFET システムにおいて観測された内部ノイズを 照らし合わせてみる。OFET システム、すなわち OFET と負荷抵抗によるドレイン接地 回路では、OFET に印加した電圧により、負荷抵抗に流れる電流値を制御している。つま り印加した電圧によってシステム内部の電流値が変化するため、作製した OFET システ ムにおいてショットノイズが支配的であれば、印加した電圧によってノイズ強度が変化す ると考えられる。しかし観測された内部ノイズは、ノイズの大きさもスペクトルも入力電 圧によって変化しなかった。そのため、スペクトルがホワイトであるという点では合致す るが、電圧依存性という点では異なる特性であるため、内部ノイズはショットノイズでは ないと言える。またランダムテレグラフノイズや 1/f ノイズでは、そのスペクトルは周 波数に依存した形をとなり、ホワイトなスペクトルではない。この点から、ホワイトなス ペクトルがみられた OFET システムの内部ノイズは、ランダムテレグラフノイズ・1/f ノイズではないと思われる。

一方で熱ノイズはホワイトなスペクトルを持ち、印加電圧に依存しないという特性を持ち、観測された内部ノイズと同様の特性となっている。このことから内部ノイズは熱ノイズ由来であると考えられる。しかし抵抗成分 R から発生される熱ノイズの大きさは

$$\Delta V = \sqrt{4k_B T R \Delta f} \tag{4.1}$$

Figure 4.5: 作製した OFET と 4.4kΩ によるドレイン接地回路 の、閾値以上での出力値のパワー スペクトル密度。周波数に依存 しないホワイトなスペクトルが 確認される。

Table 4.1: 有機電子デバイ スにおいて観測される電気的 ノイズの種類。 $(S_I: 電流)$ イズパワースペクトル密度, $k_{\rm B}: ボルツマン定数, T: 温$ 度, R: 抵抗値, q: 電荷, F: $フォノ因子, I: 電流値, <math>\tau_0$: 緩和時間, f: 周波数, γ :指 数)。 $(k_B: ボルツマン定数, T: 温度, \Delta f: 周波数帯域)$ によって示され [13]、OFET 回路中 の負荷抵抗 (4.4kΩ) の値から熱ノイズの大きさを算出すると、 $\Delta V = 6.0 \times 10^{-7}$ V とな り、観測された内部ノイズよりもとても小さいノイズ強度となる。そのため負荷抵抗から の熱ノイズがみられていたのではないと言える。そこで、OFET のゲート絶縁膜による キャパシタに着目した。RC 回路における熱ノイズの強度 ΔV は下の式によって表せるこ とが知られている [13]。

$$\Delta V = \sqrt{k_{\rm B}T/C},\tag{4.2}$$

 $k_{\rm B}$ はボルツマン定数、T は温度、C は静電容量である。Eq.4.2 を使い、OFET のゲート-ソース静電容量(約 1.6 pF)によるノイズ強度を計算すると、 5.1×10^{-5} V であった。 この値は、作製した OFET システムの出力において確認されるノイズ強度とほぼ一致していることから、確率共鳴の測定実験において寄与していた内部ノイズは、(絶縁)誘電体層によって特徴づけられた熱ノイズであると考えられる。

4.3 負荷抵抗と内部ノイズ

第3章において、自作した OFET システムにおいて確率共鳴現象を観測することがで きたが、内部ノイズとしてガウスホワイトノイズがみられた。このときドレイン接地回路 での負荷抵抗は $4.4 k\Omega$ であり、OFET のチャネル抵抗と比較して、とても小さい値であっ た。ここでは負荷抵抗の値を大きくしたときに、内部ノイズがどのようなものとなるのか 確認を行った。ドレイン接地回路中の負荷抵抗が $4.4\mathrm{k}$ および $1\mathrm{M}\Omega$ のとき、 V_G と V_DD に一定電圧を印加すると、観測された出力電圧のノイズスペクトルは Fig. 4.6, 4.7 の通り となった。負荷抵抗が 4.4kΩ のときでは、印加電圧によらずホワイトなスペクトルが確認 できる。一方で負荷抵抗を大きくし $1M\Omega$ にすると、 $V_{\rm G} = -15V$ のときに周波数の増加 によって強度が減少する 1/f スペクトルが観測された。半導体デバイスである OFET で は、 $I_{\rm DS}$ の1/fノイズがみられることが報告されている [11,14,15]。このOFETの1/f電流ノイズが、負荷抵抗によって変換されて出力に現れたと考えられる。負荷抵抗が小さ い時では、オームの法則^{†42} に従い電流は小さい電圧になって出力される。一方、負荷抵 抗が大きい時では電流ノイズも大きい電圧に変換され、結果として出力に 1/f ノイズが 観測されたと予想される。また観測された 1/f ノイズのスペクトル $(1/f^{\gamma})$ の傾き γ は、 $\gamma = 1.5$ であった。1 よりも大きな値であるのは、ゲートとドレイン電圧を印加したこと によって、経由する深いトラップの数が増えたためであると考えられる [16]。

ここで観測された 1/f ノイズに関して Hooge パラメータ $\alpha_{\rm H}$ を概算してみる。Hooge パラメータ $\alpha_{\rm H}$ は、システムに存在する 1/f ノイズの 1Hz における相対ノイズの大きさ を意味する。まず負荷抵抗の値から観測された電圧ノイズを電流に変換し、OFET のド レイン-ソース間電流のノイズとして考え、電流のパワースペクトル密度 S_I と Hooge パ ラメータ $\alpha_{\rm H}$ の関係式 [15,17]

$$\frac{S_I}{I^2} = \frac{\alpha_{\rm H}}{f^\gamma N_C},\tag{4.3}$$

を用いた。Iは電流値、 N_C は半導体中の自由電荷キャリアの総数である。 N_C は

$$N_C \sim \frac{C_i W L V_{\rm GS}^{eff}}{q} \tag{4.4}$$

^{†42} オームの法則: V = IR (V:電圧, I:電流, R:抵抗) によって算出した [15] (C_i : 単位面積当たりの絶縁膜の静電容量,W: チャネル幅,L: チャネル長,q: 電気素量)。ここで V_{GS}^{eff} は 有効ゲート電圧であり、 $V_{GS}^{eff} = V_{GS} - V_{th}$ である。Eqs.4.3, 4.4 から

$$\alpha_{\rm H} = N_c \frac{S_I}{I^2} \tag{4.5}$$

$$\sim C_i W L V_{\rm GS}^{eff} q \frac{S_I}{I^2}$$
 (4.6)

を用いて $\alpha_{\rm H}$ を計算した。今回 1/f ノイズが観測された OFET の閾値電圧 $V_{\rm th}$ は 0.90 V であり、Eq.4.6 から算出された Hooge パラメータは $\alpha_{\rm H} \sim 2.6$ となった。この値は、 ボトムゲート・トップコンタクト型の P3HT を用いた OFET において報告されている 4-50 の Hooge パラメータ値 [15] と近い値である。またペンタセンが使われているボト ムゲート OFET では、トップコンタクト型で 0.045-0.3 [18,19], ボトムコンタクト型で 5-20 [18], 絶縁膜に UV 処理を施したトップコンタクト型では 1-3 [19] の $\alpha_{\rm H}$ 値が報告さ れている。このことから本論文での OFET のドレイン-ソース間電流では、これまで観測 されてきたものと同程度の大きさの 1/f ノイズが発生するということが言える。



Figure 4.6: 作製した OFET と 4.4kΩ によるドレイン接地回路 に、一定電圧を印加したときに 得られた出力値のパワースペク トル密度。印加した電圧に関わ らず、周波数に依存しないホワ イトなスペクトルが確認される。

4.4 まとめ

第3章で扱った OFET システムの持つ内部ノイズについて解析を行ったところ、入力 電圧に依存しないガウスホワイトノイズであった。そのため、第3章における数値シミュ レーションにおける内部ノイズの扱いは妥当であったと言える。またこのような内部ノ イズの特性から、OFET システムにおける内部ノイズは OFET の絶縁体 (誘電体) 層に よって制御された熱ノイズであると考えられた。



Figure 4.7: 作製した OFET と 1M Ω によるドレイン接地回路 に、一定電圧を印加したときに 得られた出力値のパワースペク トル密度。電圧を印加すること によって、1/f スペクトルが観 測された。

しかし半導体素子である OFET では、1/f ノイズが観測されると言われている。1/f ノイズがここでの確率共鳴実験に作用しなかった理由は、自作の OFET システム (ドレ イン接地回路) では負荷抵抗が小さかったためであると結論付けられた。負荷抵抗を大き くすることによって 1/f ノイズを確認することができたが、負荷抵抗の増加に伴ってシ ステムの周波数特性が低下するため、1/f ノイズを確率共鳴現象に作用させるためには、 OFET の更なる特性改良が必要になると言える。

参考文献

- [1] Song, Y. and Lee, T. Journal of Materials Chemistry C 5(29), 7123–7141 (2017).
- [2] Kogan, S. Electronic Noise and Fluctuations in Solids. Cambridge University Press, New York, NY, USA, 1 edition, (2008).
- [3] Blanter, Y. and Büttiker, M. Physics Reports 336(1-2), 1–166 (2000).
- [4] Beenakker, C. W. J. and van Houten, H. Physical Review B 43(14), 12066–12069 (1991).
- [5] Hung, K. K., Ko, P. K., Hu, C., and Cheng, Y. C. *IEEE Electron Device Letters* 11(2), 90–92 (1990).
- [6] Uren, M. J., Day, D. J., and Kirton, M. J. Applied Physics Letters 47(11), 1195–1197 (1985).
- [7] Hung, K. K., Ko, P. K., Hu, C., and Cheng, Y. C. *IEEE Transactions on Electron Devices* 37(3), 654–665 (1990).
- [8] Surya, C. and Hsiang, T. Y. Physical Review B 33(7), 4898–4905 (1986).
- [9] Sah, C. T. and Hielscher, F. H. Physical Review Letters 17(18), 956–958 (1966).
- [10] Rhayem, J., Rigaud, D., Valenza, M., Szydlo, N., and Lebrun, H. Solid-State Electronics 43(4), 713–721 (1999).
- [11] Martin, S., Dodabalapur, A., Bao, Z., Crone, B., Katz, H. E., Li, W., Passner, A., and Rogers, J. A. Journal of Applied Physics 87(7), 3381–3385 (2000).
- [12] Huo, Z., Mao, L., Xu, M., and Tan, C. Solid-State Electronics 47(9), 1451–1456 (2003).
- [13] Sarpeshkar, R., Delbruck, T., and Mead, C. A. *IEEE Circuits and Devices Magazine* 9(6), 23–29 (1993).
- [14] Choo, K. Y., Muniandy, S. V., Chua, C. L., and Woon, K. L. Organic Electronics 13(8), 1370–1376 (2012).
- [15] Harsh, R. and Narayan, K. S. Journal of Applied Physics **118**(20), 205502 (2015).
- [16] Kang, H., Jagannathan, L., and Subramanian, V. Applied Physics Letters 99(6), 062106 (2011).
- [17] Hooge, F. N. IEEE Transactions on Electron Devices 41(11), 1926–1935 (1994).
- [18] Necliudov, P. V., Rumyantsev, S. L., Shur, M. S., Gundlach, D. J., and Jackson, T. N. Journal of Applied Physics 88(9), 5395–5399 (2000).
- [19] Jia, Z., Meric, I., Shepard, K. L., and Kymissis, I. *IEEE Electron Device Letters* 31(9), 1050–1052 (2010).

第5章

確率共鳴に及ぼす内部ノイズの効果 の解析

5.1 目的

第3章で示したように、OFETの誘電体層によって制御された内部ノイズによって、 加えられた外部ノイズの強度の変化に伴う、信号伝達パフォーマンスの変動が抑制されて いるような挙動が確認された。この外部ノイズに対するロバスト効果によって、確率共鳴 現象による信号の増強の効果は弱められてしまうが、確率共鳴における最適な外部ノイズ 強度のレンジが広がる。この効果は、Collinsらによって提案された素子を並列化したシ ステム [1] でみられる効果に類似している。このような並列化した非線形応答システムで は、外部ノイズ強度の変化に対して、安定したパフォーマンスを維持できる。

また、閾値を持たないシステム^{†43} において確率共鳴現象の発生について議論されてい る [2,3]。そこでは非線形システムに閾値が存在していなくても、内部ノイズにより確率 共鳴が促進されることが示されている [2]。しかしこれまでに、信号-閾値間距離^{†44} に着 目した、内部ノイズを有する単一素子における確率共鳴の研究は行われていない。信号-閾値間距離は、確率共鳴現象の発現を支配する重要なパラメータである。多数の並列化 ネットワークをベースとした非線形システム [4] や、同期のずれを有する単一双安定ダイ ナミックシステム [5] 以外では、外部ノイズによって閾値を超えた信号を増強することは できない。そこでここでは、OFET 特性を考慮したモデルをもとに、非線形応答システム の閾値に注目しながら、内部ノイズと確率共鳴現象に関して議論を行う。さらに、外部ノ イズに対するノイズロバスト効果に関する評価も試みる。

5.2 パラメータの規格化および相関係数の理論値

第3章では、確率共鳴を観測することができた OFET システムを基に、非線形システムのモデル化を行った (Eq.3.4)。このモデルでは、入力信号電圧 R(t) と外部ノイズ電圧 $\xi_{\text{ext}}(t)$ と DC バイアス V_{bias} を足し合わせた入力電圧 $V_{\text{in}}(t)$ を受け、システムは閾値電圧 V_{th} と内部ノイズ $\xi_{\text{int}}(t)$ を持つ。入力信号 R(t) は矩形波であり、その強度は $2V_{\text{signal}}$ である。ここで、上記した Eq.3.4 のモデルの各パラメータを、以下のように V_{signal} によって規格化し、無次元化した。

^{†43} threshold-free system



 $A' = AV_{\text{signal}} \tag{5.1}$

$$x(t) = R(t)/V_{\text{signal}} \tag{5.2}$$

$$\sigma_{\xi}(t) = \sigma_{\text{ext}}(t) / V_{\text{signal}} \tag{5.3}$$

$$\theta = (V_{\text{bias}} - V_{\text{signal}} - V_{\text{th}}) / V_{\text{signal}}$$
(5.4)

$$\sigma_{\eta}(t) = \sigma_{\rm int}(t) / V_{\rm signal} \tag{5.5}$$

ここで σ_{ξ} 、 σ_{η} は、それぞれ規格後の外部ノイズ $\xi(t)$ と内部ノイズ $\eta(t)$ の強度であり、

$$\langle \xi(t)\xi(t')\rangle = \sigma_{\xi}^2 \delta(t-t') \tag{5.6}$$

$$\langle \eta(t)\eta(t')\rangle = \sigma_n^2 \delta(t - t') \tag{5.7}$$

を満たす。 $\delta(t)$ はディラックのデルタ関数である。また B = 0 とした。規格化後の非線 形応答モデルは、下式の通りとなる。

$$y(t) = \begin{cases} -A'(x(t) + \xi(t) - \theta)^2 + \eta(t) & (x(t) + \xi(t) < \theta), \\ \eta(t) & (\text{otherwise}), \end{cases}$$
(5.8)

A' は閾値を超えたときの出力値の増加具合を決定するパラメータであり、非線形性の大きさを決定する。θ は閾値であり、y(t) はシステムの出力である。本論文で取り扱っている OFET は p 型デバイスであり、ドレイン接地回路の出力は入力に対して反転しないため、このモデルでは、規格化前 (Eq. 3.4) と同様に、負の入力を入力すると On 状態になる。入力信号強度 V_{signal} によって、入力矩形波電圧も規格化しているため、入力信号は1か-1の値のみを取る矩形波であり、それぞれの値となる確率は $D(^{\dagger 45})$ と 1 – D である。外部ノイズ、内部ノイズである確率変数 ξ 、 η は、独立したゼロ平均のガウシアンランダム変数であり、定常エルゴード性 ^{†46}を満たすと仮定する。そして信号伝達パフォーマンスの指標として用いている、入力信号 x と出力信号 y 間の相互相関係数 ρ は、下式によって記述できる。

$$\rho = \frac{\operatorname{cov}[x, y]}{\sqrt{\operatorname{var}[x] \operatorname{var}[y]}},\tag{5.9}$$

 $\operatorname{cov}[\cdot]$ は共分散、 $\operatorname{var}[\cdot]$ は分散を意味する。付録 D で導かれるように、OFET システムを 基にした非線形応答システムにおける相関係数 ρ の理論値は、外部ノイズ強度 $\sigma_{\xi} \neq 0$ の とき

$$\rho = \frac{-D(1-D)(E_{+}-E_{-})}{\sqrt{D(1-D)\left(E_{2+}D+E_{2-}(1-D)+\frac{\sigma_{\eta}^{2}}{A'^{2}\sigma_{\xi}^{4}}-[E_{+}D+E_{-}(1-D)]^{2}\right)}},$$
(5.10a)

^{†45} D : duty ratio (デュー ティ比)

^{†46} 時間によらない確率分布 を持ち、集合平均と時間平均 が等しい
であり、

$$E_{\pm} = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma_{\theta\pm}^2}} \exp\left(-\frac{1}{2\sigma_{\theta\pm}^2}\right) + \frac{1+\sigma_{\theta\pm}^2}{2\sigma_{\theta\pm}^2} \left[1 + \operatorname{erf}\left(\frac{1}{\sqrt{2\sigma_{\theta\pm}^2}}\right)\right], \quad (5.10b)$$

$$E_{2\pm} = \frac{1+5\sigma_{\theta\pm}^2}{\sqrt{2\pi\sigma_{\theta\pm}^6}} \exp\left(-\frac{1}{2\sigma_{\theta\pm}^2}\right) + \frac{1+6\sigma_{\theta\pm}^2+3\sigma_{\theta\pm}^4}{2\sigma_{\theta\pm}^4} \left[1 + \operatorname{erf}\left(\frac{1}{\sqrt{2\sigma_{\theta\pm}^2}}\right)\right], \quad (5.10c)$$

$$\sigma_{\theta\pm}^2 = \left(\frac{\sigma_{\xi}}{\mp 1+\theta}\right)^2, \quad (5.10d)$$

である。ここで erf は誤差関数 $[erf(z) = 2 \int_0^z \exp(t^2) dt / \sqrt{\pi}]$ である。 $\sigma_{\theta\pm}^2$ は、入力信号-閾値間距離によって規格化された外部ノイズの分散値である。また外部ノイズ強度 $\sigma_{\xi} = 0$ のときの相関係数は、

$$\rho_{0} = \begin{cases}
0 & (\theta \leq -1), \\
\frac{(-1-\theta)^{2}D(1-D)}{\sqrt{D(1-D)\left[(-1-\theta)^{4}(1-D)D + \frac{\sigma_{\eta}^{2}}{A'^{2}}\right]}} & (-1 < \theta \leq 1), \\
\frac{4\theta D(1-D)}{\sqrt{D(1-D)\left[16\theta^{2}(1-D)D + \frac{\sigma_{\eta}^{2}}{A'^{2}}\right]}} & (1 < \theta).
\end{cases}$$
(5.11)

の形となった。Eqs.5.10a. 5.11 から、相関係数に対する内部ノイズ強度の影響は、 $\sigma_{\eta}^2/A'^2 = V_{int}^2/A'^2$ によって決定し、A'が小さいほど内部ノイズの影響が大きいという ことがわかる。このフィッティングパラメータA'は、FET の電界効果移動度と関係し、 移動度が大きいほどA'が大きくなるが、ほとんどの場合、無機トランジスタと比較して OFET は小さな値となる(自作した OFET システムでは $A' = 3.0 \times 10^{-6} V^{-1}$)。ここで は内部ノイズはホワイトノイズであると仮定しているが、内部ノイズの大きさとして 1/fノイズの比較すると、有機トランジスタは無機デバイスと比較して大きな Hooge 定数 α_H を持つ傾向にある(高分子 FET では $\alpha_H \sim 4 - 50$ [6]、アモルファスシリコン薄膜トラ ンジスタは $\alpha_H \sim 10^{-3}$ [7])。Hooge 定数 α_H は、1/fノイズにおける 1Hz の相対ノイズ 強度である [6]。したがって、OFET においては内部ノイズの効果がより期待できるとい える。

Eqs.5.10, 5.11 を用いて、外部ノイズ強度 σ_{ξ} の関数として相関係数 ρ をプロットすると Fig.5.1 の通りとなった。作製した OFET システムから得られた実験値も同時に描画し た。実験における閾値 θ は、OFET 回路に印加する DC バイアス値を変えることによっ て、調節している。規格化した閾値 $\theta = -0.265, -0.765$ のときには、外部ノイズ強度の 増加によって相関係数が上昇しており、確率共鳴現象の発現が確認できる。 $\theta = 0.235$ の ときでは、入力信号が閾値以上であるために、相関係数 ρ は単調的に減少している。解析 解 (理論値) は、実験結果と定性的に一致していると言える。しかし実験での相関係数は、 解析的な値と比較すると、あらゆる外部ノイズ強度 σ_{ξ} において、より高い値となってい る。これは第 3 章において実験値 (Fig.3.6) と数値シミュレーションの値 (Fig.3.10) との 間でみられた差異と同様に、作製した OFET では高周波数に対する特性が弱く、入力信

Figure 5.1: 異なる閾値におけ る、外部ノイズ強度に対する相 関係数の変化。点は、作製した OFET と負荷抵抗 4.4kΩ によ るドレイン接地回路から実験 的に得られた4回分の結果を 平均したものであり、曲線は Eqs. 5.10, 5.11 から計算され る理論値を示す。OFET システ ムを用いた測定実験では、入力 する DC バイアスの値を変える ことによって閾値 θ を変化させ ている。このときの、入力信号 強度 ($V_{\text{signal}} = 4V$) によって 規格化された内部ノイズ強度は $\sigma_{\eta} = 1.25 \times 10^{-5}$ 、フィッティン グパラメータは $A' = 1.2 \times 10^{-5}$ である。



号である矩形波に含まれる高周波数成分が出力へリークし、入力信号とより相関のある出

力信号波形になったため、理論値よりも高い値となったと考えられる。

次に、外部ノイズに対するロバスト性を評価するために、外部ノイズ強度 σ_{ξ} に関する 相関係数 (Eq.5.10) の微分値を用いて、下式を得た。

$$\left|\frac{d\rho}{d\sigma_{\xi}}\right|^{2} = \frac{D^{2}(1-D)^{2}}{\sigma_{\xi}^{2}} \quad \left\{\frac{2A'\sigma_{\xi}^{2}\left[\operatorname{erf}\left(\frac{1}{\sqrt{2\sigma_{\theta_{+}}^{2}}}\right) - \operatorname{erf}\left(\frac{1}{\sqrt{2\sigma_{\theta_{-}}^{2}}}\right)\right]}{(\operatorname{var}[x]\operatorname{var}[y])^{1/2}} + \left[5 - D\operatorname{erf}\left(\frac{1}{\sqrt{2\sigma_{\theta_{+}}^{2}}}\right) - (1-D)\operatorname{erf}\left(\frac{1}{\sqrt{2\sigma_{\theta_{-}}^{2}}}\right)\right] \\ \times \left(\frac{4A'^{2}\sigma_{\xi}^{4}[E_{+}D + E_{-}(1-D)]\operatorname{cov}[x,y]}{(\operatorname{var}[x]\operatorname{var}[y])^{3/2}}\right)\right\}^{2}, \tag{5.12}$$

システムの信号伝達パフォーマンスに対して、外部ノイズの影響が小さいほど、Eq.5.12 の値は小さくなる。

5.3 内部ノイズと閾値

外部ノイズ強度 σ_{ξ} と閾値 θ の関数として、Eqs.5.10, 5.12 を用いて計算した相関係数 と、その微分値の二乗を Fig.5.2(a) にプロットした。外部ノイズ強度を変数としたとき に、入力信号が閾値以下となる領域 ($\theta < -1$) において相関係数の釣り鐘型カーブ(例え ば、Fig.5.2(a) 中の太線)が確認され、確率共鳴の効果が確認できる。一方で、入力信号 が閾値以上である領域 ($\theta > -1$ では、相関係数 ρ は外部ノイズによって単調減少し、確 率共鳴現象はみられない。外部ノイズ強度が小さい時 (例えば、 $\sigma_{\xi} \leq 10^{-1}$)、 $\theta > -1$ に おける高いシステムパフォーマンス ($\rho \sim 1$) は、閾値が $\theta = -1$ 以下の条件となると、突 然ゼロに落ち込む。



Figure 5.2: 3 次元曲面は相関係数を示し、等高線は外部ノイズ強度に対する相関値の微分値の二乗を示す。OFET モデルにおける (a) 内部ノイズ強度 $\sigma_{\eta} = 0$ のときの外部ノイズ強度と閾値依存性、および (b) 閾値 $\theta = 0$ のときの外部ノイズ強度と内部ノイズ強度依存性をプロットした。ここでは入力 矩形波のデューティ比 D = 80%、フィッティングパラメータ A' = 1 である。

また閾値 θ を内部ノイズ強度 σ_{η} に置き換えてプロットすると、Fig.5.2(b) のように、 閾値 θ のとき (Fig.5.2(a)) と定性的に類似した挙動が確認される。閾値依存性を示す Fig.5.2(a) と同様に、内部ノイズ強度が大きい時(例えば、 $\sigma_{\eta} \ge 10$)、外部ノイズ強度に 対して相関係数は釣り鐘型の依存性が確認できる。さらに、 $\sigma_{\xi} \le 10^{-1}$ かつ $\sigma_{\eta} \le 10^{-1}$ のときにみられるような高い相関係数 ρ は、内部ノイズ強度を増加させるにしたがって、 徐々にゼロに落ちていく。そのため内部ノイズ強度 σ_{η} は、非線形システムにおける閾値 θ と類似した効果を持つと言える。

しかし、閾値 θ の値が $\theta = -1$ 周辺で変化したとき、相関係数の外部ノイズに対する挙動は顕著に変化している (Fig.5.4(a))。一方で内部ノイズ強度 σ_{η} は、その値を変化させたとしても、外部ノイズ強度 $\sigma_{\xi} \leq 0.1$ の範囲で、相関値は外部ノイズ強度にほとんど依存しない挙動^{†47}を維持する (Fig.5.4(b))。このため、相関値 ρ の外部ノイズ σ_{ξ} 依存性



external noise intensity

外部ノイズ強度が変化しても 一定のパフォーマンスを持つ 挙動。本論文ではこの挙動の ことを、外部ノイズに対する ロバスト性・頑強性と呼んで いる。

^{†48} multiplicative stochastic resonance

Figure 5.3: 双安定系において 周期駆動力とともに、加算ノイ ズと乗算ノイズを同時に印加し たときの、 Q_A に対する出力強 度 \bar{x}_1/x_0 依存性。 Q_A は加算ノ イズ強度, Q_M は乗算ノイズ強 度であり、 $k = a/(2Q_M)$ を満た す。またポテンシャル障壁 ΔV はパラメータa, b によって決ま る ($\Delta V = a^2/(4b)$)。:[8] は、閾値 θ の変動には大きく影響されるが、内部ノイズ強度 σ_{η} の変動には比較的影響を 受けづらいということになる。外部ノイズ強度に対するシステムパフォーマンスを示す Fig.5.4(b) において、内部ノイズ強度を変化させることによって平面の形成およびピーク シフトがみられる。このような内部ノイズ強度を変化させたときの挙動は、双安定系にお ける乗算ノイズを扱った確率共鳴(乗算確率共鳴[8]^{†48})において乗算ノイズ強度を変え たときの、外部ノイズに対するパフォーマンス依存性を示すカーブの変化の仕方(Fig.5.3) と類似している。本研究においては内部ノイズが閾値を高くする一方、Fig.5.3 における 乗算ノイズは閾値を逆の方向に動かしている、という違いはあるものの、ノイズによるグ ラフ曲線の形を変える挙動は、閾値(ポテンシャル障壁の高さ)を変えるというノイズの 特性によるものであると説明できる。



相関係数 ρ の外部ノイズ強度 σ_{ξ} 微分の二乗をみると、Fig.5.2(a)(color bar) ではシ ステムパフォーマンスの強い外部ノイズ依存性 (例えば、 $|d\rho/d\sigma_{\xi}|^2 > 1$) がみられるが、 Fig.5.2(b) ではみられない。さらに、Fig.5.2(b)(color bar) では $|d\rho/d\sigma_{\xi}|^2 = 0$ の領域が 消滅している。これは、外部ノイズに対して ρ の釣り鐘型の依存性に由来し、そのときの ρ vs. σ_{ξ} カーブのピークが非常にブロードになっているためである。以上の結果が意味す るのは、内部ノイズは非線形応答システムにおける閾値のような役割を果たすが、通常の 閾値を持つシステムと比べると内部ノイズを持つものは、外部ノイズ依存性が小さいシス テムとなる、ということである。

ここまでの結果を踏まえると、入力信号が閾値以上のときのような、確率共鳴現象がみられなかった条件であっても、OFET からの「出力信号」にノイズを加えることによって、確率共鳴が観測できるようになるはずである。出力信号へのノイズの加算は、システムに内部ノイズが加わることと同等の効果になる。なぜなら内部加算ノイズは入力信号とは独立しているためである。 $\theta = 0.235$ の閾値を持つ OFET は、Fig.5.1 に示される通り、相関係数の増加は実験的に確認することができなかった。このときの OFET を用



Figure 5.4: OFET モデルにお ける外部ノイズ強度に対する相 関係数の変化。(a) 異なる閾値 ($\sigma_\eta = 0$ のとき) および (b) 異 なる内部ノイズ強度 ($\theta = 0$ の とき) での相関係数の変化を示 す。ここではデューティ比 D =80%, フィッティングパラメー タ A' = 1 である。

いた実験から得られた出力信号を取り扱い、ノイズとしてのガウス分布に従う乱数を足 し合わした。この乱数を加えた出力信号と入力信号間での相関係数を計算した。すると、 Fig.5.5 の通りの結果となった。出力信号に加えた乱数の標準偏差を増加させると、外部 ノイズ強度に対する相関係数は負の傾きから正の傾きに変化していることが確認される。 言い換えれば、システムの出力信号にノイズを加えることにより、確率共鳴現象の発生さ せることができた。この理由は、内部ノイズとしての乱数を加算することにより、閾値以 上の入力信号を、閾値以下の信号に変化させたためである。このため、OFET の内部ノイ ズか、OFET から測定装置までのノイズのどちらか、またはその両方を使うことにより、 確率共鳴の発現が可能になると言え、OFET の特性がノーマリーオン(ゲート-ソース電 圧がゼロのときに On 状態) である場合や、閾値を持たないような場合でも確率共鳴現象 がみられるということになる。つまり DC バイアスによる調整がなくても確率共鳴現象 を制御できる。一般的に、OFET は大気の影響を受けやすく、閾値が正にシフトし (p 型 FET の場合)、Off 電流が増加しやすい [9–11]。そのような閾値を持たないようなシステ ム、または閾値以上の入力を受けているような非線形システムにおいても、加算性の内部 ノイズによって確率共鳴を発生させることができる。このことは先行研究 [2] との結果と も一致する。ここでは、非線形応答システムの出力に加えたノイズを内部ノイズとして 扱っえたため、内部ノイズは出力信号の測定後であっても制御可能であるとも言えるかも しれない。しかし、グローバルまたはローカルで結合したアレイ [12,13] のような、内部 ノイズが素子の入力前に加わるような、他の非線形システムでは、最終的な出力信号の測 定後に内部ノイズを制御することは困難であり、さらに内部ノイズは今回とは異なった効 果を示すと予想される。

Figure 5.5: 作製した OFET と 負荷抵抗 4.4kΩ によるドレイン 接地回路の出力信号に、ガウス 分布に従う乱数を加えた後の、 入力信号との相関係数。点は4 回分の測定結果を平均化したも のである。出力信号に足し合わ せる乱数の標準偏差 (S.D.) を変 えたときの、相関係数の外部ノ イズ強度依存性を示す。このと きの規格化後の各パラメータは、 閾値 $\theta = 0.235$,内部ノイズ強度 $\sigma_{\eta} = 1.25 \times 10^{-5}$, フィッティン グパラメータ $A' = 1.2 \times 10^{-5}$ である。OFET モデルにおける 外部ノイズ強度に対する相関係 数の変化。(a) 異なる内部ノイ ズ強度 ($\sigma_{\eta} = 0$ のとき) および (b) 異なる閾値 ($\theta = 0$ のとき) での相関係数の変化を示す。こ こではデューティ比 D = 80%, フィッティングパラメータA' =1 **である。**



5.4 内部ノイズによるロバスト性

閾値と内部ノイズのシステムに及ぼす違いについて評価するため、外部ノイズが印加されていないときの信号伝達パフォーマンスが一定となるような、閾値 θ と内部ノイズ強度 σ_{η} の関係式をもとめた。そこで、外部ノイズ強度 $\sigma_{\xi} = 0$ のときの相関係数 ρ_{0} が一定で

あると仮定し、Eq.5.11を用いることで、下のような関係式が得られた。

$$c = \text{const.} = \begin{cases} \frac{4\theta^2}{\sigma_{\eta}^2} & (\theta \ge 1), \\ \frac{(-1-\theta)^4}{\sigma_{\eta}^2} & (-1 < \theta < 1), \end{cases}$$
(5.13)

ここで、

$$c = \rho_0 / [A' \sqrt{D(1-D)(1-\rho_0^2)}].$$

である。Eq.5.13 の関係性を満たしながら、Eqs.5.10-5.12 をプロットすると、Fig.5.6 の 通りとなった。



Figure 5.6: OFET モデルにお ける外部ノイズ強度に対する、 (a) 相関係数および (b) 外部ノ イズ強度に対する相関係数の微 分値の二乗の変化。Eq. 5.13 を 満たす条件でプロットし、外部 ノイズ強度 $\sigma_{\xi} = 0$ における相 関係数が一定となるように、閾 値 θ と内部ノイズ強度 σ_{η} を変 化させている。インセットは、外 部ノイズ強度が大きい時の相関 係数を示している。このときは、 入力信号のデューティビ D =80%, フィッティングパラメー 9 A' = 1, 定数 c = 1 である。

その結果をみると、閾値と内部ノイズ強度が増加するとともに、相関係数のピークが 小さくブロードになっていると同時に、鋭いディップ以外の $|d\rho/d\sigma_{\xi}|^2$ の値が減少してい る。内部ノイズ強度 σ_{η} が増える、または負の閾値 θ の絶対値が大きくなるにしたがって、 入力信号波形は閾値以下の領域に埋もれていく。そのため、 $\theta \ge \sigma_{\eta}$ の値が共に正に大き いような非線形応答システムでは、入力信号は内部ノイズよりも、主に閾値の効果を受け ていると言える。端的に言えば、閾値の代わりに内部ノイズを使うことにより、外部ノイ ズ強度の変化によるシステムパフォーマンスの変動を抑えることができることを意味する (Fig.5.6)。つまり内部ノイズの効果により、 ρ のピークすなわち確率共鳴が消えていく傾 向にあるが、システムは外部変動に対して頑強なパフォーマンスを得ることができる。た とえ cの値、すなわち $\sigma_{\xi} = 0$ での相関係数の値が変わったとしても、Fig.5.7 で確認でき る通り、閾値の代わりに内部ノイズを使うことによって、 ρ の変動を抑えられる。

 $\sigma_{\xi} \leq 3$ のような外部ノイズ強度が大きい時では、意外なことに、閾値の代わりに内部ノ イズを使うことにより、相関係数はわずかに増加している (Fig.5.6, 5.7)。このような結 果となっているのは、閾値の代わりに比較的大きい内部ノイズを持つシステムでは、以下 の通り、閾値によって出力が一つの値に集約せず、非局在化しているためであると考えら れる。まず、内部ノイズが小さく閾値の寄与が大きいシステムでは、外部ノイズを加えて いくに従い、入力値は頻繁に閾値を往復するようになり、結果として正の入力値は、ゼロ に集約され出力されていく (Figs.5.8(d)(e))。このゼロへの集約により、異なる入力値を システムに入れていたとしても、出力値はほぼ同じ値となり、入力と出力が1対1の関係 ではなくなってくる。つまり、出力値の平均値はは入力値に関わらず、ほぼ同じ値となっ てくる。これとは対照的に、閾値の代わりにより大きい内部ノイズを持ったシステムにお いては、正の、つまり閾値以下の入力値を受けても出力値は比較的ゼロに集まりづらく、 より広い分布になる(Fig.5.8(b)(c))。この理由から、内部ノイズを伴うシステムでは、入 力信号である矩形波のハイとローが入力されていたときに、それぞれに対応する異なる出 力を比較的容易に作り出せると考えられる。そのため外部ノイズの分布が広いときでは、 内部ノイズがわずかな閾値系よりも、内部ノイズの割合が大きいシステムのほうがわずか に高いパフォーマンスであったと言える。このような内部ノイズの効果は、 c の値にかか わらず観測される。c = 10のようにcが大きいとき、閾値の変わりに内部ノイズを利用 するシステムは、広い範囲の外部ノイズ強度にわたり、小さい内部ノイズのシステムより もパフォーマンスがわずかに高い (Fig.5.7)。

本論文で行った確率共鳴実験に用いたシステム、すなわち自作した OFET と負荷抵抗 によって作製したドレイン接地回路では、OFET 中の誘電体による静電容量が起因した 熱ノイズが大きかったことから、内部ノイズのスペクトルがホワイトであると仮定した。 OFET 中の半導体由来のノイズよりも、熱ノイズの方が優勢であったのは、OFET 回路 中の負荷抵抗が小さかったためであると考えられる。しかし多くの場合、半導体デバイス は 1/f ノイズを持つため [7,14–16]、OFET 中の半導体の特性を利用していくためには、 そのようなスペクトル特性を持つノイズの効果を調べていく必要がある。

5.5 まとめ

ここでは OFET モデルを使い、閾値の代わりに内部ノイズの効果を確率共鳴に使うと いうことを行った。加算性の内部ノイズを利用することにより、閾値や印加する DC バイ アスを調節することなく、確率共鳴現象が頻繁に観測される、入力信号が閾値以下の条件 にすることができた。これに従って、入力信号が閾値以上であったため実験的に確率共鳴 の効果が見られなかった時であっても、出力信号にノイズを加算することによって、確率



Figure 5.7: OFET モデルにおける外部ノイズ強度に対する、(a) 相関係数および (b) 外部ノイズ強度に対する相関係数の微分値の二乗の変化。Eq. 5.13 を満たす条件でプロットし、外部ノイズ強度 $\sigma_{\xi} = 0$ における相関係数が一定となるように、閾値 θ と内部ノイズ強度 σ_{η} を変化させている。この ときは、入力信号のデューティ比 D = 80%, フィッティングパラメータ A' = 1, 定数 c = 0.1, 1, 3, 10 である。

共鳴現象が確認できた。この結果から、デバイスの外からであっても内部ノイズが存在し ていたことと同等の効果が得られると言える。また外部ノイズが存在しないときのシステ ムパフォーマンスが一定となる条件下で、内部ノイズシステムと閾値システム間の比較を 行うと、前者は外部ノイズに対してよりロバストであり、更に外部ノイズ強度がとても大 きいときには、比較的高い信号伝達パフォーマンスが確認された。



Figure 5.8: 入力信号である矩形波 (a) を、モデル化した OFET システム (Eq. 5.8) に入れたときの出力信号 (b, d) の経時変化、および出力分布 (c, e)。入力の 1 周期あたり 5000 ドット (100 ドット×50 回分) の出力をプロットしている (b, e)。出力分布は規格化しており、入力が x = 1, -1 のそれ ぞれのときの出力分布を示している (c, e)。また点線は、各入力を受けているときの出力値の平均を示す (c, e)。(b, c) と (d, e) は、Eq. 5.13 における 定数 c が同一となるような閾値 θ , 内部ノイズ強度 σ_{η} になっている。ここでは、外部ノイズ強度 $\sigma_{\xi} = 4$, デューティ比 D = 80%, フィッティングパラ メータ A' = 1 である。

参考文献

- [1] Collins, J. J., Chow, C. C., and Imhoff, T. T. Nature 376(6537), 236–238 (1995).
- [2] Gailey, P. C., Neiman, A., Collins, J. J., and Moss, F. Physical Review Letters 79(23), 4701–4704 (1997).
- [3] Bezrukov, S. M. and Vodyanov, I. Nature **385**(6614), 319–321 (1997).
- [4] Stocks, N. G. Physical Review Letters 84(11), 2310–2313 (2000).
- [5] Apostolico, F., Gammaitoni, L., Marchesoni, F., and Santucci, S. *Physical Review E* 55(1), 36–39 (1997).
- [6] Harsh, R. and Narayan, K. S. Journal of Applied Physics 118(20), 205502 (2015).
- [7] Rhayem, J., Valenza, M., Rigaud, D., Szydlo, N., and Lebrun, H. Journal of Applied Physics 83(7), 3660–3667 (1998).
- [8] Gammaitoni, L., Marchesoni, F., Menichella-Saetta, E., and Santucci, S. Physical Review E 49(6), 4878–4881 (1994).
- [9] Abdou, M. S. A., Orfino, F. P., Son, Y., and Holdcroft, S. Journal of the American Chemical Society 119(19), 4518–4524 (1997).
- [10] Qiu, Y., Hu, Y., Dong, G., Wang, L., Xie, J., and Ma, Y. Applied Physics Letters 83(8), 1644–1646 (2003).
- [11] Hoshino, S., Yoshida, M., Uemura, S., Kodzasa, T., Takada, N., Kamata, T., and Yase, K. Journal of Applied Physics 95(9), 5088–5093 (2004).
- [12] Wiesenfeld, K. Physical Review A 44(6), 3543–3551 (1991).
- [13] Lindner, J. F., Meadows, B. K., Ditto, W. L., Inchiosa, M. E., and Bulsara, A. R. Physical Review Letters 75(1), 3–6 (1995).
- [14] Martin, S., Dodabalapur, A., Bao, Z., Crone, B., Katz, H. E., Li, W., Passner, A., and Rogers, J. A. Journal of Applied Physics 87(7), 3381–3385 (2000).
- [15] Carbone, A., Kotowska, B. K., and Kotowski, D. *Physical Review Letters* 95(23), 236601 (2005).
- [16] Song, Y. and Lee, T. Journal of Materials Chemistry C 5(29), 7123–7141 (2017).

第6章

総括

本論文では、有機電界効果トランジスタ (OFET) において確率共鳴現象を引き起こす ための条件を模索し、観測すること、およびシステムの持つ内部の効果について議論する ことを行った。

第2章では、確率共鳴実験を行うための OFET を作製し、伝達特性の非線形応答性の 向上および周波数特性の向上を行った。有機半導体である RR-P3HT 薄膜の形成時に、加 熱してスピンコートすることにより、より均一な膜をつくることができ、移動度が向上し た。またゲート電極を細くすることにより、ゲート-ソース (ドレイン)間の電極対となる 面積を減らし、OFET の周波数特性が改善された。さらにチャネルの周りの RR-P3HT を除去することによって、ドレイン-ソース間の伝導パスを制限し、Off 電流を抑制するこ とができた。

第3章では、作製した OFET のデバイスシステムにおいて外部ノイズを印加すること により、確率共鳴現象を確認することができた。このとき数値シミュレーションを用いる ことによって、システム内部のノイズが寄与し、システムの信号伝達パフォーマンスの変 化が抑制されていることが示唆された。また OFET を組み込んだドレイン接地回路中の 負荷抵抗を変えることによって周波数特性が変化し、OFET の PMMA の膜厚を変化さ せることによって非線形応答性が変化した。このようなシステムにおいて確率共鳴実験を 行うことにより、確率共鳴現象の発現のためには、デバイスシステムの周波数特性および 非線形応答性が関係することが確認された。

第4章では、内部ノイズが入力電圧に依存しないガウスホワイトノイズであり、OFET の絶縁体(誘電体)層によって特徴づけられた熱ノイズ由来であると結論付けられた。 OFETを使ったドレイン接地回路の負荷抵抗を大きくすることによって1/fノイズが観 測されたが、確率共鳴実験で用いたシステム条件では優位ではなくなった。そのため第3 章で取り扱った数理モデルが妥当であったと言える。

第5章では、OFET システムの数理モデルを用いて得られた信号伝達パフォーマンス (入出力信号間の相互相関係数)の理論値を導出した。そして OFET の確率共鳴における 内部ノイズの効果を解析し、内部ノイズが閾値のような役割を担うとともに、外部ノイズ に対してロバストな挙動になることがわかった。

以上のように、内部ノイズ・非線形応答特性・信号の一方向伝達性を有する OFET シ ステムを作製し、外部ノイズを印加することによって、信号伝達パフォーマンスが向上す る確率共鳴現象が発現し得ることが実験的・数値的に確認することができた。本論文で は、一般的な有機半導体である RR-P3HT を用いた OFET において実験を行ったが、確 率共鳴現象が観測され、OFET はノイズを有効に利用することができるシステムになるということが明らかとなった。

また内部ノイズの作用としては、単体の OFET システムのパフォーマンスの向上に寄 与することはなかったが、外部ノイズに対してロバストな挙動となる閾値として機能する ことを見出した。そして OFET システムのように内部ノイズを持つシステム、または外 場応答性が低いがためにそのようなノイズが顕著となるシステムは、外部からのノイズや 予測不能な変動に対し、内部ノイズを閾値として確率共鳴現象が起き、頑強な信号伝達パ フォーマンスを維持するシステムとなる可能性があることが示された。

第7章

今後の展望

本論文では有機トランジスタである OFET を取り扱い、確率共鳴現象を観測した。 OFET は信号の一方向伝達が可能であるため、ネットワーク化への拡張性を有した、非線 形応答特性を持つデバイスであり、ドレイン接地回路にしたシステムでは内部ノイズも確 認された。本論文でのシステムでは、内部ノイズは閾値として機能したが、内部ノイズが 作用する場所によっては直接、確率共鳴現象の発現に利用することができると思われる。 閾値として機能するのは、今回のように非線形応答した後に内部ノイズが加算された場合 であり、非線形応答の前に信号に加算された場合は、今回の外部ノイズに相当する場所に 内部ノイズが入るため、確率共鳴を引き起こすため利用される。確率共鳴現象とは、印加 したノイズによって入力信号を閾値越えさせる現象であり、言い換えればノイズによって 閾値が下げられることに相当する。つまり内部ノイズが入るのが、閾値応答の前であれば 閾値が下げら、後であれば閾値が上げられることになる。しかし閾値応答の後に内部ノイ ズが印加された場合であっても、その後段に閾値応答が存在するようなシステム、例え ば出力が再入力されるフィードバックや、出力が別の非線形応答システムに入力される フィードフォワード型のシステム等であれば、閾値応答の前にノイズが加わることになる ため、確率共鳴発現のために寄与する可能性がある。そのため今回の OFET システムで あっても、ネットワーク化することによって内部ノイズの役割がまた異なったものになる 可能性もある。

一方で本論文での OFET システムではネットワーク化する上で課題がある。それは信 号の出力値が小さいことである。作製した OFET のチャネル抵抗は、電界効果を大きく しても数 MΩ ほどまでしか低くすることができない。そして今回のドレイン接地回路に したときの負荷抵抗は、その値よりも非常に小さいため、出力信号が非常に小さくなって おり、入力信号の減衰が激しい。負荷抵抗を大きくすると、OFET システムの周波数特 性が悪化するために、確率共鳴現象が有効なシステムでなくなる可能性が高い。すなわち ネットワーク化するためには、OFET システムの出力信号を大きくするとともに周波数 特性の向上をしなければならない。これを実現する手段としては、OFET のチャネル長 を小さくすることが考えられる。

また今回の OFET システムにおける内部ノイズは、印加電圧に依存しないホワイトノ イズであったが、半導体由来の 1/f ノイズを持つシステムも作製できる可能性がある。 第4章での結果のように、ドレイン接地回路の負荷抵抗を大きくすることによって、1/f ノイズがみられるようなシステムになると言える。しかし確率共鳴現象が起こるように するには、すでに述べたように、OFET の周波数特性を向上させる必要があると思われ る。また OFET に用いる半導体材料を変えるという案もある。本論文での実験に用いた RR-P3HT とアルキル側鎖の長さが異なる有機半導体、RR-P3DT は比較的大きな電気伝 導ゆらぎが観測されており、OFET に用いることによって大きな 1/f ノイズがみられる ようになる可能性もある。一方で P3DT を用いた OFET は移動度が小さくなることが報 告されていることから、OFET 特性の改良をしていく必要性も生じると考えられる。入 力電圧に依存する 1/f ノイズを内部に持つシステムでは、ノイズが乗算的に信号伝達に 反映され、また時間スケールによってその変動が変わるため、より複雑な確率共鳴の挙動 がみられると予想される。

ここで電子デバイスにおける確率共鳴現象の利用について考えてみる。今回の実験・数 値計算を用いて確認された、確率共鳴現象によって達成される信号伝達パフォーマンス は、決して高いとは言えない。Collins モデルのように並列化ネットワークを作製したと しても、静的システム^{†49}では確率共鳴効果の増強があまり見込めない。そのため確率共 鳴現象を利用した、ノイズによる高いパフォーマンスの達成または信号の増幅を目的とす るならば、二つの閾値を持つヒステリシス特性を示すシュミットトリガのような動的シス テム ^{†50} を取り扱う必要があると考えられる。確率共鳴現象は、静的システムよりも動的 システムの方が効果が大きい。また確率共鳴現象による信号伝達性能の上昇量に関して は、OFETよりも無機トランジスタの方が大きいと言える。それは第5章で、非線形応 答特性に含まれる閾値応答が優位なシステムと、内部ノイズを閾値として利用したシステ ムでは、前者の方がより鋭い確率共鳴の釣り鐘型カーブが観測されたことから示される。 しかし無機トランジスタと比較して非線形性が小さく、内部ノイズが比較的大きくなる傾 向の OFET は、パフォーマンスはそこまで高くないが、外部ノイズに対してロバストに なる。そしてその値によってシステムの挙動を大きく変化させる非線形応答特性の閾値と は対照的に、内部ノイズはその強度が変わっても、システムの挙動はあまり変化しない。 確率共鳴現象は、入力信号が閾値未満であるとき、すなわち入力信号とシステムの検出範 囲との間にミスマッチが生じているときに、ノイズによってある程度解消させる現象であ る。そして内部ノイズによるロバストな閾値を持つシステムでは、このようなミスマッチ も生まれにくいということになる。つまり OFET システムは、内部ノイズや確率共鳴現 象を利用することによって、閾値や DC バイアス等のパラメータの微調整なしである程度 の信号伝達を可能とする、予期しない外部の変動に対してもある程度許容するシステムに なると期待され、このような側面で OFET が有用になると考えられる。

^{†49} static (non-dynamic) system

^{†50} dynamic system

付録 A

OFET を用いたドレイン接地回路の 入力周波数を変えたときの出力波形

ゲート電極幅が 70μm の OFET と 1MΩ の負荷抵抗を組み合わせたドレイン接地回路 に、1, 10, 100, 1k, 10k, 100kHz の正弦波を入力したときの出力波形を Fig.A.1 に示す。 300μm のゲート電極幅を持つ OFET のときと同様に、入力正弦波が高周波のときには入 力波形と同一の出力波形が確認される。



Figure A.1: ゲート電極幅が 70μm の OFET と負荷抵抗 1MΩを用いた渡連接地回路に、 さまざまな周波数の正弦波を入 力したときに得られた出力信号。

またゲート電極幅が 70μm の OFET と 100, 1k, 10k, 100k, 1MΩ の負荷抵抗によるド レイン接地回路に、さまざまな周波数の正弦波を入力したときの出力波形を Fig.A.2 に示 す。負荷抵抗の値が大きいほど出力値が大きくなるが、高周波の正弦波の入力波形と類似 の出力波形になる傾向がみられる。



Figure A.2: ゲート電極幅が 70 μ m の OFET と負荷抵抗 100-1M Ω を用いた渡連接地回路に、さまざまな周波数の正弦波を入力したときに得られた出力信号。

付録 B

外部ノイズの確率分布

任意波形発生器から出力したノイズを、Fig.3.2 に示すようにローパスおよびハイパス フィルタに通しアンプによって増幅させたあとの出力の分布を Fig.B.1 に示す。ローパ スフィルタを通さない場合、任意波形発生器のノイズは増幅した後、Fig.B.1(top) のよ うな出力分布となった。このグラフからわかるように、任意波形発生器の設定ノイズ強 度を変更すると、最終的なノイズの平均値が変化している。ノイズの平均値が変動する というということは、同時に印加する DC バイアスの値を変化させることと同義であり、 意図せずパラメータが変わってしまうことになる。しかしノイズを増幅させる途中でハ イパスフィルタを通すことにより、ノイズの平均値はほぼ0にすることができた (Fig. B.1(bottom))。このハイパスフィルタを使って得られたノイズを外部ノイズとして用い、 確率共鳴の実験に使用した。



Figure B.1: 任意波形発生器から発生させ、フィルタと増幅器を通した後のノイズの頻度分布。破線は平均値を示す。ハイパスフィルタを入れていない ときは、任意波形発生器のノイズ強度の設定値を変えると、最終的な出力値の平均値も変化してしまう (top) が、ハイパスフィルタを入れると、任意波形 発生器のノイズ強度の設定値を変えても平均値が変化しない (bottom)。

付録 C

確率共鳴実験における正弦波と矩形 波の違い

作製した OFET と 4.4kΩ 負荷抵抗によるドレイン接地回路を用いて、入力信号とし て正弦波を入力して行った確率共鳴の測定 (Fig.3.5(top)) と、入力信号強度, DC バイ アス電圧値,外部ノイズ強度の条件を同じにし、入力信号の波形のみを矩形波に置き換 えて測定を行った結果は Fig.C.1 の通りとなった。このときの矩形波のデューティ比は 80% である。正弦波のときと同様に、矩形波を入力信号に用いた測定においても、外部ノ イズ強度の増加に伴って入出力相関値の上昇がみられ、確率共鳴現象の発現が確認される (Fig.C.1)

一方で、入力信号が正弦波のとき (Fig.3.5) と矩形波のとき (Fig.C.1) を比較すると、 入力信号電圧が 0-12V の条件では矩形波のときの方が相関値が高い値となっている。正 弦波を用いた確率共鳴の実験および矩形波を用いた確率共鳴の実験における、OFET シ ステムの出力波形をみてみると、両者とも外部ノイズを印加することによってマイナス側 への出力値が大きくなっていることが確認される (Fig.C.2)。しかしその出力波形は、矩 形波入力のときは比較的矩形波の形に近いが、正弦波入力のときは正弦波から離れた形に なっている。これは OFET の非線形特性によって、正弦波のプラス側がほぼ一定の値に 丸め込まれているためであると言える。他方、矩形波は二つの値のみを持つため、値が丸 め込まれにくく波形が崩れにくいと考えられる。このような差異によって、相関値に違い が生じたと結論付けられる。

0

٠

input signal voltage [V]

0 to 12

2 to 14

4 to 16

30





Figure C.2: 作製した OFET と 4.4k Ω の負荷抵抗によるドレイン接地回路に入力信号として正弦波 (left) または矩形波 (right) を入力し、同時に外部 ノイズを印加していないときと印加したときに得られた、回路の出力波形。

付録 D

相関係数の理論値の導出

入力信号 *x* と出力信号 *y* 間の相関係数は、以下のように示される。^{†51}

$$\begin{split} \rho &= \frac{\operatorname{cov}[x,y]}{\sqrt{\operatorname{var}[x]\operatorname{var}[y]}} \\ &= \frac{\operatorname{E}[xy] - \operatorname{E}[x]\operatorname{E}[y]}{\sqrt{(\operatorname{E}[x^2] - \operatorname{E}[x]^2)(\operatorname{E}[y^2] - \operatorname{E}[y]^2)}}. \end{split}$$

 $^{+51}$

E[·]:期待值, []. 廿〇勘

$$var[\cdot]: 分散$$

(D.3)

入力信号は1と-1の矩形波であると仮定しているため、 $x = 1 \ge x = -1$ になる確率は、それぞれ $D \ge 1 - D$ であり、

$$E[x] = D - (1 - D) = -1 + 2D$$
 (D.2)

$$E[x^2] = D + (1 - D) = 1$$

となる。

外部ノイズが存在しているときの相関係数 D.1

外部ノイズが存在するとき、OFET システムの出力は下のように表される。

$$y = \begin{cases} y_{\text{on}} = -A(x+\xi-\theta)^2 + \eta & (x+\xi<\theta) \\ y_{\text{off}} = \eta & (x+\xi\ge\theta), \end{cases}$$
(D.4)

 y_{on} と y_{off} は、それぞれシステムが On と Off 状態のときの出力である。また、外部ノイ ズと内部ノイズは独立しており、平均がゼロ、分散値がそれぞれ σ_{ξ}^2 と σ_{η}^2 のガウス分布 に従うと仮定する。Eq.(D.4)から、xが与えられた時のyの条件付期待値は

$$\begin{split} \mathbf{E}[y|x] &= \mathbf{E}[y_{\mathrm{on}}|x] \operatorname{Prob}(x+\xi < \theta|x) \\ &+ \mathbf{E}[y_{\mathrm{off}}|x] \operatorname{Prob}(x+\xi \geq \theta|x) \\ &= \mathbf{E}[-A(x+\xi-\theta)^2|x] \operatorname{Prob}(x+\xi < \theta|x) + \mathbf{E}[\eta] \\ &= -A \int_{-\infty}^{-x+\theta} (x+\xi-\theta)^2 P(\xi) d\xi + \mathbf{E}[\eta] \\ &= -A\sigma_{\xi} \frac{-x+\theta}{\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{(-x+\theta)^2}{2\sigma_{\xi}^2}\right) \\ &+ \frac{A}{2}(\sigma_{\xi}^2 + (-x+\theta)^2) \left(1 + \operatorname{erf}\left(\frac{-x+\theta}{\sqrt{2}\sigma_{\xi}}\right)\right), \end{split}$$
(D.5)

となる。ここで $P(\xi)$ は外部ノイズの確率密度関数であり、 $P(\xi) = \exp(-\xi^2/(2\sigma_\xi^2))/\sqrt{2\pi\sigma_\xi^2}$ である。また、x が与えられたときの y^2 の条件付期待値は、下式の通りとなる。

$$\begin{split} \mathbf{E}[y^{2}|x] &= \mathbf{E}[y_{\mathrm{on}}^{2}|x] \operatorname{Prob}(x+\xi < \theta|x) \\ &+ \mathbf{E}[y_{\mathrm{off}}^{2}|x] \operatorname{Prob}(x+\xi \geq \theta|x) \\ &= \mathbf{E}[A^{2}(x+\xi-\theta)^{4} \\ &- A(x+\xi-\theta)^{2}\eta|x] \operatorname{Prob}(x+\xi < \theta|x) + \mathbf{E}[\eta^{2}] \\ &= A^{2} \int_{-\infty}^{-x+\theta} (x+\xi-\theta)^{4} P(\xi) d\xi \\ &- A \int_{-\infty}^{-x+\theta} (x+\xi-\theta)^{2} P(\xi) d\xi \mathbf{E}[\eta] + \sigma_{\eta}^{2} \\ &= A^{2} \int_{-\infty}^{-x+\theta} (x+\xi-\theta)^{4} P(\xi) d\xi + \sigma_{\eta}^{2} \\ &= A^{2} \sigma_{\xi} \left((-x+\theta)^{2} + 5\sigma_{\xi}^{2} \right) \frac{-x+\theta}{\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{(-x+\theta)^{2}}{2\sigma_{\xi}^{2}} \right) \\ &+ \frac{A^{2}}{2} ((-x+\theta)^{4} + 6(-x+\theta)^{2} \sigma_{\xi}^{2} + 3\sigma_{\xi}^{4}) \\ &\times \left(1 + \operatorname{erf}\left(\frac{-x+\theta}{\sqrt{2}\sigma_{\xi}} \right) \right) + \sigma_{\eta}^{2}, \end{split}$$
(D.6)

そして、 $y \ge y^2$ および xy の期待値はそれぞれ

$$E[y] = E[E[y|x]] = E[y|1]D + E[y|-1](1-D)$$
(D.7)

$$E[y^{2}] = E[E[y^{2}|x]] = E[y^{2}|y^{2}] = E[E[y^{2}|x]]$$

$$= E[x^{2}|y^{2}] = E[E[y^{2}|x]]$$
(D.8)

$$= \mathbf{E}[y^2|1]D + \mathbf{E}[y^2| - 1](1 - D)$$
(1.10)

$$E[xy] = E[xE[y|x]] = E[y|1]D - E[y|-1](1-D),$$
(D.9)

となる。Eqs. D.2, D.5, D.7, D.9 から、x と y の共分散は、

$$cov[x, y] = E[xy] - E[x]E[y] = -2A\sigma_{\xi}^2 D(1 - D)(E_+ - E_-),$$
(D.10)

となるが、

$$E_{\pm} = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma_{\theta\pm}^2}} \exp\left(-\frac{1}{2\sigma_{\theta\pm}^2}\right) + \frac{1+\sigma_{\theta\pm}^2}{2\sigma_{\theta\pm}^2} \left[1 + \operatorname{erf}\left(\frac{1}{\sqrt{2\sigma_{\theta\pm}^2}}\right)\right],$$
(D.11)

であり、

$$\sigma_{\theta\pm}^2 = \left(\frac{\sigma_{\xi}}{\mp 1 + \theta}\right)^2. \tag{D.12}$$

Eqs.(D.2),(D.3) から、xの分散値は

$$var[x] = E[x^2] - E[x]^2 = 4D(1+D),$$
 (D.13)

となっている。Eqs.D.5, D.6, D.7, D.8 から、y の分散は、

$$var[y] = E[y^{2}] - E[y]^{2}$$

= $A^{2}\sigma_{\xi}^{4}(E_{2+}D + E_{2-}(1-D))$
+ $\frac{\sigma_{\eta}^{2}}{A^{2}\sigma_{\xi}^{4}} - (E_{+}D + E_{-}(1-D))^{2}),$ (D.14)

ここで

$$E_{2\pm} = \frac{1+5\sigma_{\theta\pm}^2}{\sqrt{2\pi\sigma_{\theta\pm}^6}} \exp\left(-\frac{1}{2\sigma_{\theta\pm}^2}\right) + \frac{1+6\sigma_{\theta\pm}^2+3\sigma_{\theta\pm}^4}{2\sigma_{\theta\pm}^4} \left[1+\exp\left(\frac{1}{\sqrt{2\sigma_{\theta\pm}^2}}\right)\right].$$
 (D.15)

である。そして、Eqs. D.1, D.10, D.13, D.14 から、下の式が得られる。

$$\rho = -D(1-D)(E_{+} - E_{-}) \times \left[\left(D(1-D)(E_{2+}D + E_{2-}(1-D) + \frac{\sigma_{\eta}^{2}}{A^{2}\sigma_{\xi}^{4}} - (E_{+}D + E_{-}(1-D))^{2}) \right) \right]^{-1/2}.$$
(D.16)

D.2 外部ノイズのないときの相関係数

入力信号が入力されているときに、外部ノイズが存在しない場合、*x* が与えられたときの *y* の条件付期待値は

$$\mathbf{E}[y|x] = \mathbf{E}[-A(x-\theta)^2|x] \operatorname{Prob}(x < \theta|x).$$
(D.17)

さらに、Eq.**D.7**から、

$$\mathbf{E}[y] = \begin{cases} 0 & (\theta \le -1) \\ A(-1-\theta)^2(1-D) & (-1 < \theta \le 1) \\ A(-1-\theta)^2(1-D) + A(1-\theta)^2D & (1 < \theta). \end{cases}$$
(D.18)

が得られる。またxが与えられたときの y^2 の条件付期待値は

$$E[y^2|x] = E[A^2(x-\theta)^4|x] \operatorname{Prob}(x<\theta|x) + \sigma_\eta^2,$$
(D.19)

である。そして Eq.D.8 から

$$\mathbf{E}[y^2] = \begin{cases} \sigma_\eta^2 & (\theta \le -1) \\ A^2(-1-\theta)^4(1-D) + \sigma_\eta^2 & (-1 < \theta \le 1) \\ A^2(-1-\theta)^4(1-D) & \\ +A^2(1-\theta)^4D + \sigma_\eta^2 & (1 < \theta), \end{cases}$$
(D.20)

そして Eq.D.9 から、

$$\mathbf{E}[xy] = \begin{cases} 0 & (\theta \le -1) \\ -A(-1-\theta)^2(1-D) & (-1 < \theta \le 1) \\ -A(-1-\theta)^2(1-D) & \\ +A(1-\theta)^2D & (1 < \theta). \end{cases}$$
(D.21)

となる。Eqs.D.1, D.2, D.3, D.18, D.20, D.21 から、 $\sigma_{\xi} = 0$ のときの $x \ge y$ 間の相関係 数は下の通りとなる。

$$\rho_{0} = \begin{cases}
0 & (\theta \leq -1) \\
\frac{(-1-\theta)^{2}D(1-D)}{\sqrt{D(1-D)((-1-\theta)^{4}(1-D)D + \frac{\sigma_{\eta}^{2}}{A^{2}})}} & (-1 < \theta \leq 1) \\
\frac{4\theta D(1-D)}{\sqrt{D(1-D)(16\theta^{2}(1-D)D + \frac{\sigma_{\eta}^{2}}{A^{2}})}} & (1 < \theta)
\end{cases}$$
(D.22)

D.3 相関係数の外部ノイズ強度に対する微分値

相関係数 ρ を外部ノイズ強度 σ_{ξ} で微分すると、

$$\frac{d\rho}{d\sigma_{\xi}} = \frac{\partial\rho}{\partial\sigma_{\theta+}} \frac{d\sigma_{\theta+}}{d\sigma_{\xi}} + \frac{\partial\rho}{\partial\sigma_{\theta-}} \frac{d\sigma_{\theta-}}{d\sigma_{\xi}} + \frac{\partial\rho}{\partial\sigma_{\xi}}.$$
 (D.23)

である。Eq.<mark>D.11</mark>から、

$$\frac{dE_{\pm}}{d\sigma_{\theta\pm}} = \frac{-2}{\sqrt{2\pi\sigma_{\theta\pm}^4}} \exp\left(-\frac{1}{2\sigma_{\theta\pm}^2}\right) - \frac{1}{\sigma_{\theta\pm}^3} \left(1 + \operatorname{erf}\left(\frac{1}{\sqrt{2\sigma_{\theta\pm}^2}}\right)\right), \quad (D.24)$$

また、Eq.(**D.15**) から

$$\frac{dE_{2\pm}}{d\sigma_{\theta\pm}} = \frac{-4(1+2\sigma_{\theta\pm}^2)}{\sqrt{2\pi\sigma_{\theta\pm}^8}} \exp\left(-\frac{1}{2\sigma_{\theta\pm}^2}\right) - 2\frac{(1+3\sigma_{\theta\pm}^2)}{\sigma_{\theta\pm}^5} \left(1 + \operatorname{erf}\left(\frac{1}{\sqrt{2\sigma_{\theta\pm}^2}}\right)\right). \tag{D.25}$$

となる。そして Eqs.D.12,D.16 から ρ の σ_{ξ} 微分の値が下の通りとなる。

$$\begin{aligned} \frac{d\rho}{d\sigma_{\xi}} &= \frac{-D(1-D)}{\sigma_{\xi}} \bigg\{ \frac{2A\sigma_{\xi}^{2} \left[\operatorname{erf} \left(\frac{1}{\sqrt{2\sigma_{\theta_{+}}^{2}}} \right) - \operatorname{erf} \left(\frac{1}{\sqrt{2\sigma_{\theta_{-}}^{2}}} \right) \right]}{(\operatorname{var}[x]\operatorname{var}[y])^{1/2}} \cdot \\ &+ \left[5 - D \operatorname{erf} \left(\frac{1}{\sqrt{2\sigma_{\theta_{+}}^{2}}} \right) - (1-D) \operatorname{erf} \left(\frac{1}{\sqrt{2\sigma_{\theta_{-}}^{2}}} \right) \right] \\ &\times \left(\frac{4A^{2}\sigma_{\xi}^{4}D(1-D)(E_{+}D + E_{-}(1-D))\operatorname{cov}[x,y]}{(\operatorname{var}[x]\operatorname{var}[y])^{3/2}} \right) \bigg\}. \end{aligned}$$
(D.26)

研究業績

関連論文

- Yoshiharu Suzuki, Kiyohiko Matsubara, and Naoki Asakawa, "Internal Additive Noise Effects in Stochastic Resonance using Organic Field Effect Transistor", Appl.Phys.Lett., 109, 093702-1/4 (2016).(第 3、4章)
- Yoshiharu Suzuki and Naoki Asakawa, "Robust thresholdlike effect of internal noise on stochastic resonance in an organic field effect transistor", *Phys.Rev.E*, 97, 012217-1/8 (2018).(第5章)
- Yoshiharu Suzuki, Teruo Kanki, Hidekazu Tanaka, Tomotaka Inoue, Naoki Wada, Kiyohiko Matsubara, and Naoki Asakawa, "Stochastic Resonance in Bioinspired Electronics Device using Polymer Field Effect Transistors", Key Eng.Mater., 790, 20-27 (2018).(第 2、3 章)

国際学会発表

- <u>Yoshiharu Suzuki</u>, Teruo Kanki, Hidekazu Tanaka, and Naoki Asakawa, "Stochastic Resonance Behavior on Polymer Transistor" Global Conference on Applied Physics and Mathematics, #01110, Rome, Lazio, Italy, 25-27 July 2016
- <u>Yoshiharu Suzuki</u>, and Naoki Asakawa, "Internal Noise of Organic Field Effect Transistor and Stochastic Resonance", IUMRS-ICAM 2017, #2798, Kyoto, Kyoto, Japan, 27 August - 1 September 2017
- <u>Yoshiharu Suzuki</u>, and Naoki Asakawa, "Stochastic Resonance Controlled by Internal Noise in Polymer Transistor", Gunma International Symposium 2018, #1-13, Kiryu, Gunma, Japan, 17-18, January, 2018
- Yoshiharu Suzuki, and Naoki Asakawa, "Stochastic Resonance using Internal Noise in Organic Field Effect Transistor", MACRO 2018 Conference, #195,

Cairns, Queensland, Australia, 1-5, July, 2018

国内学会発表

- <u>鈴木喜晴</u>、神吉輝夫、田中秀和、浅川直紀、「シナプス模倣を目指した高分子トランジスタの開発」、第 29 回群馬・栃木地区講演会、発表番号:P-21、群馬県桐生市、2014 年 3 月
- 2. <u>鈴木喜晴</u>、神吉輝夫、田中秀和、浅川直紀、「高分子トランジスタを用いたシナプ ス模倣一方向信号伝達素子」第63回高分子討論会、発表番号:1Pe071、長崎県文教 町、2014年9月
- 3. <u>鈴木喜晴</u>、神吉輝夫、田中秀和、浅川直紀、「高分子トランジスタにおける確率共鳴 現象の研究」第 30 回群馬・栃木地区講演会、発表番号:P-17、群馬県桐生市、2015 年 3 月
- 4. <u>鈴木喜晴</u>、神吉輝夫、田中秀和、浅川直紀、「高分子トランジスタにおける確率共鳴 現象の研究」第64回高分子学会年次大会、発表番号:2Pf046、北海道札幌市、2015 年5月
- <u>鈴木喜晴</u>、神吉輝夫、田中秀和、浅川直紀、「高分子トランジスタを用いたノイズ駆動素子の開発」第64回高分子討論会、発表番号:3Pc035、宮城県仙台市、2015年9月
- 6. <u>鈴木喜晴</u>、神吉輝夫、田中秀和、浅川直紀、「高分子トランジスタを用いたシナプ ス模倣素子における確率共鳴現象」第65回高分子学会年次大会、発表番号:2H03、 兵庫県神戸市、2016年5月
- 7. <u>鈴木喜晴</u>、神吉輝夫、田中秀和、浅川直紀、「高分子トランジスタの確率共鳴現象」

 第 65 回高分子討論会、発表番号:1L04、神奈川県横浜市、2016 年 9 月
- 8. <u>鈴木喜晴</u>、神吉輝夫、田中秀和、浅川直紀、「高分子トランジスタにおける確率共鳴 とロバスト効果」第32回群馬・栃木地区講演会、発表番号:P-18、群馬県桐生市、 2017 年3月
- 9. <u>鈴木喜晴</u>、神吉輝夫、田中秀和、浅川直紀、「高分子トランジスタにおける確率共鳴 と内部ノイズ」第66回高分子学会年次大会、発表番号:3F03、千葉県美浜区、2017 年5月
- 10. 鈴木喜晴、神吉輝夫、田中秀和、浅川直紀、「有機トランジスタの確率共鳴に対する

内部ノイズの影響」第66回高分子討論会、発表番号:2T18、愛媛県松山市、2017 年9月

- 11. <u>鈴木喜晴</u>、神吉輝夫、田中秀和、浅川直紀、「内部ノイズを有する有機トランジス タの確率共鳴」第67回高分子学会年次大会、発表番号:3Pd068、愛知県名古屋市、 2018年5月
- 12. <u>鈴木喜晴</u>、浅川直紀、「高分子トランジスタの持つノイズと確率共鳴への効果」、第 79回応用物理学会秋季学術講演会、発表番号:20p-PA2-31、愛知県名古屋市、2018 年9月

謝辞

本論文を書き上げるまでに、群馬大学 大学院理工学府 分子科学部門 浅川直紀准教授に は大変お世話になりました。これまでに、研究を行う上で重要となる知識やノウハウをご 教授いただきました。また得られた実験結果から、私では思いつかなかった切り口からの 意味づけや考察をいただいた時には、目から鱗でした。そのようなものがなければ、本論 文のような形で研究内容をまとめ上げることは困難であったと思います。その他にも発表 に対する姿勢やプレゼン資料の作成方法に関するアドバイスもいただき、雑学も含めて非 常に多くのことを学ばせていただきました。ここに深謝の意を表します。

主査として白石 壮志 教授、副査として海野 雅史 教授、山本 隆夫 教授、 藤沢 潤一 准 教授には、本論文の審査をしていただきました。鋭い意見やご指摘等をいただけたおかげ で、学位論文としてより内容を深めることができました。深く感謝いたします。

群馬大学 理工学府 理工学専攻 上原宏樹教授には、副指導教員としてご指導いただきま した。度々、私の研究内容に関して議論をさせていだき、貴重なご意見をいただけたこと に感謝いたします。

大阪大学 産業科学研究所の田中 秀和教授、神吉 輝夫准教授には、AFM やソースメ ジャメントメータの実験装置を快くお貸しくださいましたことを、この場を借りて御礼申 し上げます。

年に2回催される複合材料研究会では、発表する立場としてだけでなく、聞く側として も非常に鍛えられました。研究に対する質問や応援のコメント、アドバイス等をしていた だいた先生方や学生の皆様に感謝いたします。

本研究を行う上で、共に時間を過ごした高分子創発機能科学研究室の皆様には、多くの 面において支えていただいたと感じております。特に本研究室の先輩として福田 國統博 士と丸山 亮太博士には、研究に関することはもちろんのこと、日常的にも非常にお世話に なりました。ここに感謝の意を表します。

最後に、日頃仲良くしていただいている友人の方々や、ここに至るまで温かく応援し続けてくれた家族の皆様に、心より感謝申し上げます。