

課題番号	GR072
------	-------

**先端研究助成基金助成金(最先端・次世代研究開発支援プログラム)
実施状況報告書(平成23年度)**

本様式の内容は一般に公表されます

研究課題名	自己組織化酸化物ナノワイヤを用いた極微デバイスによるグリーン・イノベーション
研究機関・ 部局・職名	大阪大学・産業科学研究所・准教授
氏名	柳田 剛

1. 当該年度の研究目的

当該年度の研究目的は以下の項目である。

- 自己組織化現象を用いて形成される酸化物ナノワイヤの本質的な形成メカニズムを探求し、従来技術では不可能であった機能性酸化物ナノワイヤ構造体を実現。
- 自己組織化酸化物ナノワイヤにおいて低消費電力不揮発性メモリ特性が発現することを実証し、その本質的なメカニズムを解明。

2. 研究の実施状況

当該年度においては、自己組織化現象を介したナノワイヤ構造体の本質的な形成メカニズムを解明することを試みた。自己組織化現象を用いて精微なナノ構造を形成制御するためには、ナノスケールにおける物質輸送現象の理解が必要不可欠である。加えて、材料設計を行うためにはそのナノ物質輸送現象と元素との相関性を明らかにする必要がある。本年度は、ナノサイズの液滴を用いて1次元のナノワイヤ構造を任意のサイズで任意の空間位置に形成することが可能なVLS自己組織化現象に着目し、気相-液相-固相の3相に跨る物質輸送現象を解明することを試みた。本VLS法を用いて1次元ナノワイヤ構造を形成するためには、固液界面における絶対選択的な結晶成長を行う必要がある。即ち、精密に制御された環境場で狙いの空間位置だけに結晶成長を行うことが要求される。理論計算と環境場を変化させた実験との比較から、固液界面における結晶成長が絶対選択的に発現するメカニズムを提案した。より具体的には、臨界核生成サイズが液相原子との相互作用によって固液界面において縮小することが本自己組織化現象の本質であることを突きとめた。この設計指針に従い、幾つかの新しい機能性酸化物材料のナノワイヤ化に初めて成功した。更に形成したナノワイヤ構造体をシリコン基板上でデバイス化し、低消費電力で駆動する不揮発性メモリを実証し、その本質的なメカニズムを解明する手がかりを得た。ナノワイヤ構造体を用いた物性探索は、極微ナノスケールにおけるグリーン機能の本質を検証するうえで有効な手法である。

3. 研究発表等

<p>雑誌論文 計 7 件</p>	<p>(掲載済み一査読有り) 計 7 件</p> <ul style="list-style-type: none"> ➤ “Dopant Homogeneity and Transport Properties of Impurity-doped Oxide Nanowires” Annop Klamchuen, <u>Takeshi Yanagida</u>, Kazuki Nagashima, Masaki Kanai, Keisuke Oka, Shu Seki, Tomoji Kawai, Masaru Suzuki, Yoshiki Hidaka and Shoichi Kai <i>Applied Physics Letters</i>, 98, 053107 (2011) ➤ “Direct Transformation from Goethite to Magnetite Nanoparticles by Mechanochemical Reduction” Tomohiro Iwasakia, Nami Sato, Kazunori Kosaka, Satoru Watano, <u>Takeshi Yanagida</u>, Tomoji Kawai <i>Journal of Alloys and Compounds</i>, 509, L34-L37 (2011) ➤ “Intrinsic Mechanisms of Memristive Switching” Kazuki Nagashima, <u>Takeshi Yanagida</u>, Keisuke Oka, Masaki Kanai, Annop Klamchuen, Jin Soo Kim, Bae Ho Park and Tomoji Kawai <i>Nano Letters</i>, 11, 2114-2118 (2011)-Highlighted in Nature Asia Materials. ➤ “Essential Role of Catalyst in Vapor-Liquid-Solid Growth of Compounds” Masaru Suzuki, Yoshiki Hidaka, <u>Takeshi Yanagida</u>, Annop Klamchuen, Masaki Kanai, Tomoji Kawai and Shoichi Kai <i>Physical Review E</i>, 83, 061606 (2011). ➤ “Spatial Nonuniformity in Resistive Switching Memory Effects of NiO” Keisuke Oka, <u>Takeshi Yanagida</u>, Kazuki Nagashima, Masaki Kanai, Tomoji Kawai, Jin Soo Kim, and Bae Ho Park <i>Journal of American Chemical Society</i>, 133, 12482-12485 (2011). ➤ “Study on Transport Pathway in Oxide Nanowire Growth by using Spacing-Controlled Regular Array” Annop Klamchuen, <u>Takeshi Yanagida</u>, Masaki Kanai, Kazuki Nagashima, Keisuke Oka, Sakon Rahong, Mang Gang , Mati Horprathum Masaru Suzuki, Yoshiki Hidaka, Shoichi Kai and Tomoji Kawai <i>Applied Physics Letters</i>, 99, 193105 (2011). ➤ “Dual Defects of Cation and Anion on Memristive Nonvolatile Memory of Metal Oxides” Keisuke Oka, <u>Takeshi Yanagida</u>, Kazuki Nagashima, Masaki Kanai, Bo Xu, Bae Ho Park, Hiroshi Katayama-Yoshida and Tomoji Kawai <i>Journal of American Chemical Society</i>, 134, 2535-2538 (2012). Highlighted as JACS Spotlights. <p>(掲載済み一査読無し) 計 0 件</p> <p>(未掲載) 計 0 件</p>
<p>会議発表 計 25 件</p>	<p>専門家向け 計 24 件</p> <ul style="list-style-type: none"> ➤ “Resistive Switching in a Single Oxide Nanowire” <u>Takeshi Yanagida</u> <i>Villa Conference on Complex Oxide Heterostructures 2011</i>, Las Vegas, USA, 2011.4.21-25 (国際会議招待講演) ➤ “Intrinsic nature of nonvolatile resistive switching extracted by a single oxide nanowire” Kazuki Nagashima, <u>Takeshi Yanagida</u>, Keisuke Oka, Masaki Kanai, Annop Klamchuen, Jin Soo Kim, Bae Ho Park and Tomoji Kawai <i>The 11th International Symposium on Sputtering & Plasma Processes</i>, Kyoto, Japan, 2011.7.6-8 ➤ “Crucial Role of Impurity Doping Dynamics on Transport Properties of VLS Grown SnO₂ Nanowires” Annop Klamchuen, <u>Takeshi Yanagida</u>, Masaki Kanai, Kazuki Nagashima, Keisuke Oka, Masaru Suzuki, Yoshiki Hidaka, Shoichi Kai and Tomoji Kawai <i>The 11th International Symposium on Sputtering & Plasma Processes</i>, Kyoto, Japan, 2011.7.6-8 ➤ “Nonvolatile Memory Phenomena within a Single Oxide Nanowire” <u>Takeshi Yanagida</u>, Kazuki Nagashima, Keisuke Oka, Masaki Kanai and Tomoji Kawai <i>International Workshop on Quantum Nanostructures and Nanoelectronics</i>, Tokyo, Japan, 2011.10.3-4 ➤ “Memristive Switching in a Single Oxide Nanowire” <u>Takeshi Yanagida</u> <i>IEEE Nanotechnology Materials and Devices Conference 2011</i>, Jeju, Korea, 2011.10.18-21 (国際会議招待講演) ➤ “Memristor using a Single Oxide Nanowire –Performance in Ultra Small Memory and Intrinsic Mechanism–” Kazuki Nagashima, <u>Takeshi Yanagida</u>, Keisuke Oka, Masaki Kanai, Jin Soo Kim, Bae Ho Park and Tomoji Kawai <i>24th International Microprocesses and Nanotechnology Conference</i>, Kyoto, Japan, 2011.10.24-27 ➤ “Spatially Controlled Uniform Oxide Nanowire Arrays by Ultra-thin AAO Membrane Mask”

	<p>Gang Meng, <u>Takeshi Yanagida</u>, Masaki Kanai, Kazuki Nagashima, Annop Klamchuen, Keisuke Oka, Sakon Rahong, Mati Horprathum, Takashi Yanagishita, Hideki Masuda and Tomoji Kawai <i>7th Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium</i>, Osaka, Japan, 2011.11.10-11</p> <p>➤ “Integration of Oxide Nanowires in Microfluidic Chip for Long DNA Molecules Manipulation” Sakon Rahong, <u>Takeshi Yanagida</u>, Masaki Kanai, Keisuke Oka, Annop Klamchuen, Gang Meng, Kazuki Nagashima, Mati Horprathum, Takako Yasui, Koki Motoyama, Noritada Kaji, Yoshinobu Baba and Tomoji Kawai <i>7th Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium</i>, Osaka, Japan, 2011.11.10-11</p> <p>➤ “Dynamic Dopant Incorporation Rule on Semiconductor Oxide Nanowire Growth” Annop Klamchuen, <u>Takeshi Yanagida</u>, Masaki Kanai, Kazuki Nagashima, Keisuke Oka, Gang Meng, Sakon Rahong, Mati Horprathum, Bo Xu, Fuwei Zhuge, Yong He, Masaru Suzuki, Yoshiki Hidaka, Shoichi Kai and Tomoji Kawai <i>7th Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium</i>, Osaka, Japan, 2011.11.10-11</p> <p>➤ “Nano-scale Origin of Non-volatile Resistive Switching Phenomena in Nickel Oxide” Keisuke Oka, <u>Takeshi Yanagida</u>, Kazuki Nagashima, Bae Ho Park, Tomoji Kawai and Hiroshi Katayama-Yoshida <i>7th Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium</i>, Osaka, Japan, 2011.11.10-11</p> <p>➤ “Nature of Memristive Switching Revealed by Self-assembled Oxide Nanowire” Kazuki Nagashima, <u>Takeshi Yanagida</u>, Keisuke Oka, Masaki Kanai, Annop Klamchuen, Sakon Rahong, Gang Meng, Mati Horprathum, Bae Ho Park and Tomoji Kawai <i>7th Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium</i>, Osaka, Japan, 2011.11.10-11</p> <p>➤ “Ionic Transport Induced Nonvolatile Memory in a Single Oxide Nanowire” <u>Takeshi Yanagida</u>, Kazuki Nagashima, Keisuke Oka, Masaki Kanai and Tomoji Kawai <i>International Conference on Electroceramics</i>, Sydney, Australia, 2011.12.15-18</p> <p>➤ “A Oxide Nanowire Exposed Nanoscale Mechanisms of Memristor” Kazuki Nagashima, <u>Takeshi Yanagida</u>, Keisuke Oka, Masaki Kanai, Annop Klamchuen, Sakon Rahong, Gang Meng, Mati Horprathum, Bo Xu, Fuwei Zhuge, Yong He, Bae Ho Park and Tomoji Kawai <i>The 15th SANKEN International Symposium 2012, The 10th SANKEN Nanotechnology Symposium, Progress and Perspectives of Imaging Science and Technology -From Nano Structure To Human Behavior-</i>, Osaka, Japan, 2012.1.12-13</p> <p>➤ “Facile Patterning of Sub 20 nm Uniform Oxide Nanowires by Ultra-thin Anodic Aluminum Oxide Membrane Mask” Gang Meng, <u>Takeshi Yanagida</u>, Masaki Kanai, Kazuki Nagashima, Keisuke Oka, Annop Klamchuen, Sakon Rahong, Mati Horprathum, Bo Xu, Fuwei Zhuge, Yong He, Bae Ho Park and Tomoji Kawai <i>The 15th SANKEN International Symposium 2012, The 10th SANKEN Nanotechnology Symposium, Progress and Perspectives of Imaging Science and Technology -From Nano Structure To Human Behavior-</i>, Osaka, Japan, 2012.1.12-13</p> <p>➤ “Manipulation of Long DNA molecule by Oxide Nanowires Embedded in Microfluidic Chip” Sakon Rahong, <u>Takeshi Yanagida</u>, Masaki Kanai, Keisuke Oka, Annop Klamchuen, Gang Meng, Kazuki Nagashima, Mati Horprathum, Takako Yasui, Koki Motoyama, Noritada Kaji, Yoshinobu Baba and Tomoji Kawai <i>The 15th SANKEN International Symposium 2012, The 10th SANKEN Nanotechnology Symposium, Progress and Perspectives of Imaging Science and Technology -From Nano Structure To Human Behavior-</i>, Osaka, Japan, 2012.1.12-13</p> <p>➤ “Crucial Role of Dopant Incorporation Dynamics on Transport Properties of Semiconductor Oxide Nanowires” Annop Klamchuen, <u>Takeshi Yanagida</u>, Masaki Kanai, Kazuki Nagashima, Keisuke Oka, Gang Meng, Sakon Rahong, Mati Horprathum, Bo Xu, Fuwei Zhuge, Yong He, Masaru Suzuki, Yoshiki Hidaka, Shoichi Kai and Tomoji Kawai <i>The 15th SANKEN International Symposium 2012, The 10th SANKEN Nanotechnology Symposium, Progress and Perspectives of Imaging Science and Technology -From Nano Structure To Human Behavior-</i>, Osaka, Japan, 2012.1.12-13</p> <p>➤ “Memristive Switching in a Single Oxide Nanowire” <u>Takeshi Yanagida</u>, <i>2012 RCIQE International Workshop for Green Electronics</i>, Sapporo, Japan, 2012.3.5-6 (国際会議招待講演)</p> <p>➤ “金属酸化物ナノワイヤを用いたメモリスタ —極微素子特性・動作起源解明—” 長島 一樹, 柳田 剛, 岡 敬祐, 金井 真樹, Jin-Soo Kim, Bae Ho Park, 川合 知二 ナノ学会第九回大会, 北海道大学, 北海道, 2011年6月2日~4日</p> <p>➤ “ナノ制限空間を利用した不揮発性抵抗変化メモリ現象の動作メカニズム解析” 岡 敬祐, 柳田 剛, 長島 一樹, 金井 真樹, 川合 知二, Jin-Soo Kim, Bae Ho Park 第72回応用物理学会学術講演会, 山形大学, 山形, 2011年8月29日~9月2日</p> <p>➤ “Pt/TiO₂/Pt 極微メモリスタ素子特性の基底状態依存性” 長島 一樹, 柳田 剛, 岡 敬祐, 金井 真樹, Annop Klamchuen, Jin-Soo Kim, Bae Ho Park, 川合 知二 第72回応用物理学会学術講演会, 山形大学, 山形, 2011年8月29日~9月2日</p> <p>➤ “メモリスタの物理起源” 長島 一樹, 柳田 剛, 岡 敬祐, 金井 真樹, Annop Klamchuen, Jin-Soo Kim, Bae Ho Park, 川合 知二 第72回応用物理学会学術講演会, 山形大学, 山形, 2011年8月29日~9月2日</p>
--	--

様式19 別紙1

	<ul style="list-style-type: none"> ➢ “酸化ナノワイヤによる抵抗変化メモリ局在伝導機構の解明” 長島 一樹, 柳田 剛, 岡 敬祐, 金井 真樹, Jin-Soo Kim, Bae Ho Park, 川合 知二 化学工学会第43回秋季大会, 名古屋工業大学, 愛知, 2011年9月14日~16日 ➢ “自己組織化酸化ナノワイヤにおける成長ダイナミクスと電気輸送物性への影響” 柳田 剛, Annop Klamchuen, 長島 一樹, 岡 敬祐, 金井 真樹, 川合 知二 化学工学会第43回秋季大会, 名古屋工業大学, 愛知, 2011年9月14日~16日 ➢ “酸化ナノ細線を用いた ReRAM 機構の解明” 長島 一樹, 柳田 剛, 岡 敬祐, 金井 真樹, Jin-Soo Kim, Bae Ho Park, 川合 知二 励起ナノプロセス研究会第7回研究会, ビッグ・アイ 国際障害者交流センター, 大阪, 2011年11月1日~2日 <p>一般向け 計1件</p> <ul style="list-style-type: none"> ➢ “創発原理に基づく新奇無機ナノワイヤ構造の創成” 柳田 剛 新学術領域「分子ナノシステムの創発化学」第3回公開シンポジウム、大阪科学技術セン ター、大阪、2012年2月3-4日
<p>図書</p> <p>計0件</p>	
<p>産業財産権 出願・取得状 況</p> <p>計0件</p>	<p>(取得済み) 計0件</p> <p>(出願中) 計0件</p>
<p>Webページ (URL)</p>	<p>大阪大学・最先端・次世代研究開発支援プログラム</p> <p>http://www.osaka-u.ac.jp/ja/research/program_next</p> <p>大阪大学大型教育研究プロジェクト支援室・最先端・次世代研究開発支援プログラム</p> <p>http://www.lserp.osaka-u.ac.jp/index_jisedai.html</p>
<p>国民との科 学・技術対話 の実施状況</p>	<p>“雪の結晶×ナノテク” 柳田 剛 サイエンスカフェ、アートエリアB1, 淀屋橋、大阪 2011年11月4日、参加人数33名</p> <p>国民との科学・技術対話を行うために、大阪大学大型教育研究プロジェクト支援室と共同で、市民向けのサイエンスカフェを大阪市内で開催し、一般の方々に自己組織化現象を用いた研究の面白さや将来への期待等について語り合うことが出来た。</p>
<p>新聞・一般雑 誌等掲載</p> <p>計0件</p>	
<p>その他</p>	<p>特になし。</p>

4. その他特記事項

特になし。

実施状況報告書(平成23年度) 助成金の執行状況

本様式の内容は一般に公表されず

1. 助成金の受領状況(累計)

(単位:円)

	①交付決定額	②既受領額 (前年度迄の 累計)	③当該年度受 領額	④(=①-②- ③)未受領額	既返還額(前 年度迄の累 計)
直接経費	122,000,000	43,000,000	0	79,000,000	0
間接経費	36,600,000	12,900,000	0	23,700,000	0
合計	158,600,000	55,900,000	0	102,700,000	0

2. 当該年度の収支状況

(単位:円)

	①前年度未執 行額	②当該年度受 領額	③当該年度受 取利息等額 (未収利息を除 く)	④(=①+②+ ③)当該年度 合計収入	⑤当該年度執 行額	⑥(=④-⑤) 当該年度未執 行額	当該年度返還 額
直接経費	42,991,900	0	0	42,991,900	40,946,595	2,045,305	0
間接経費	12,900,000	0	0	12,900,000	3,808,809	9,091,191	0
合計	55,891,900	0	0	55,891,900	44,755,404	11,136,496	0

3. 当該年度の執行額内訳

(単位:円)

	金額	備考
物品費	26,634,930	小型電気炉装置、実験試薬、ガス 等
旅費	243,480	研究成果発表旅費 (山形大学) 等
謝金・人件費等	12,686,787	博士研究員人件費
その他	1,381,398	装置修理作業費 等
直接経費計	40,946,595	
間接経費計	3,808,809	
合計	44,755,404	

4. 当該年度の主な購入物品(1品又は1組若しくは1式の価格が50万円以上のもの)

物品名	仕様・型・性能 等	数量	単価 (単位:円)	金額 (単位:円)	納入 年月日	設置研究機関 名
小型電気炉装置	誠南工業 A9170	1	4,862,550	4,862,550	2011/7/29	大阪大学
半導体特性評価シ ステム	米国ケースレーンズツルメンツ社 製 4200-SCS/F	1	9,891,000	9,891,000	2011/10/28	大阪大学
テーブルトップ式フロー ブレーション(47"ローブ)	米国レイクショア社製 TTPX-4	1	9,996,000	9,996,000	2012/2/10	大阪大学