

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24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、前年度から引き続き、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。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。加えて、酸化チタン単結晶ナノワイヤの創製に成功し、その面方位がサイズに応じて変化することを初めて見出した。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。また、一本のナノワイヤにおける熱起電力測定を可能とする測定系の構築に成功した。

様式19 別紙1

3. 研究発表等

雑誌論文 計 11 件	<p>(掲載済み一査読有り) 計 9 件</p> <ol style="list-style-type: none"> 1. Scaling Effect on Unipolar and Bipolar Resistive Switching of Metal Oxides <u>Yanagida, T.</u>, K.Nagashima, K.Oka, M.Kanai, A.Klamchuen, B.H.Park and T.Kawai <i>Sci. Rep.</i> 3, 1657; DOI:10.1038/srep01657 (2013). (Nature Publishing Group) 2. Crystal Plane Dependence of Critical Concentration for Nucleation on Hydrothermal ZnO Nanowires He, Y., <u>T.Yanagida</u>, K.Nagashima, F.Zhuge, GMeng, B.Xu, A.Klamchuen, S.Rahong, M.Kanai, X.Li, M.Suzuki, S.Kai and T.Kawai <i>J. Phys. Chem. C</i> 117, 1197-1203 (2013) 3. Pressure-Induced Evaporation Dynamics of Gold Nanoparticles on Oxide Substrate Meng, G., <u>T.Yanagida</u>, M.Kanai, M.Suzuki, K.Nagashima, B.Xu, F.Zhuge, A.Klamchuen, Y.He, S.Rahong, S.Kai and T.Kawai <i>Phys. Rev. E</i>, 87, 012405 (2013) 4. Dual Defects of Cation and Anion on Memristive Nonvolatile Memory of Metal Oxides Oka, K., <u>T.Yanagida</u>, K.Nagashima, M.Kanai, B.Xu, B.H.Park, K-Y.Yoshida and T.Kawai <i>J. Am. Chem. Soc.</i>, 134, 2535-2538 (2012) Highlighted as JACS Spotlights. 5. Prominent Thermodynamical Interaction with Surroundings on Nanoscale Memristive Switching of Metal Oxides Nagashima, K., <u>T.Yanagida</u>, K.Oka, M.Kanai, A.Klamchuen, S.Rahong, GMeng, M.Horprathum, B.Xu, F.Zhuge, Y.He, B.H.Park and T.Kawai <i>Nano Lett.</i>, 12, 5684-5690 (2012) 6. Fundamental Strategy for Creating VLS Grown TiO₂ Single Crystalline Nanowires Zhuge, F., <u>T.Yanagida</u>, K.Nagashima, H.Yoshida, M.Kanai, B.Xu, A.Klamchuen, GMeng, Y.He, S.Rahong, X.Li, M.Suzuki, S.Kai, S.Takeda and T.Kawai <i>J. Phys. Chem. C</i> 116, 24367-24372 (2012) 7. Ablation Particles Parameters Influences on VLS Oxide Nanowire Growing Marcu, A., C.Grigoriu, C.P.Lungu, <u>T.Yanagida</u> and T.Kawai <i>Physica E</i>, 44, 1071-1073 (2012) 8. Memristive Switching Properties of Titanium Dioxide Nanowire Memristor Nagashima, K., <u>T.Yanagida</u>, M.Kanai, K.Oka, A.Klamchuen, S.Rahong, M.Gang, M.Horprathum, B.Xu, F.Zhuge, Y.He, and T.Kawai <i>Jpn. J. Appl. Phys.</i>, 51, 11PE09 (2012) 9. Facile and Scalable Methodology for Sublithographic Scale Uniform Nanowires by Ultra-Thin AAO Free-Standing Membrane Gang, M., <u>T.Yanagida</u>, K.Nagashima, T.Yanagishita, K.Oka, M.Kanai, A.Klamchuen, S.Rahong, M.Horprathum, B.Xu, F.Zhuge, Y.He, H.Masuda and T.Kawai <i>RSC Adv.</i>, 2, 10618-10623 (2012) <p>(掲載済み一査読無し) 計 0 件</p> <p>(未掲載) 計 2 件</p> <ol style="list-style-type: none"> 10. Impact of Preferential Indium Nucleation on Electrical Conductivity of VLS Grown Indium-Tin-Oxide Nanowires Meng, G., <u>T.Yanagida</u>, K.Nagashima, H.Yoshida, M.Kanai, A.Klamchuen, F.Zhuge, Y.He, S.Rahong, X.Fang, S.Takeda and T.Kawai <i>J. Am. Chem. Soc.</i>, (2013) <i>in press</i> 11. DNA Manipulation and Separation in Sublithographic-scale Nanowire Array Yasuia, T., S.Rahong, K.Motoyamaa, <u>T.Yanagida</u>, Q.Wu, N.Kaji, M.Kanai, K.Do, K.Nagashima, M.Tokeshi, M.Taniguchi, S.Kawano, T.Kawai, and Y.Baba <i>ACS Nano</i>, (2013) <i>in press</i>
----------------	---

様式19 別紙1

会議発表 計 25 件	<p>専門家向け 計 24 件</p> <ol style="list-style-type: none"> 1. G. Meng, <u>T. Yanagida</u>, M. Kanai, K. Nagashima, A. Klamchuen, K. Oka, S. Rahong, M. Horprathum, T. Yanagishita, H. Masuda and T. Kawai, Spatially Controlled Uniform Oxide Nanowire Arrays by Ultra-thin AAO Membrane Mask, Material Research Society Spring Meeting 2012, San Francisco, USA, 2012.4.9–4.13. 2. Klamchuen, <u>T. Yanagida</u>, M. Kanai, K. Nagashima, K. Oka, G. Meng, S. Rahong, M. Horprathum, B. Xu, F. Zhuge, Y. He, M. Suzuki, Y. Hidaka, S. Kai and T. Kawai, General Strategy for Impurity Doping in VLS Growth of Semiconductor Metal Oxide Nanowires, Material Research Society Spring Meeting 2012, San Francisco, USA, 2012.4.9–4.13. 3. M. Kanai, A. Klamchuen, <u>T. Yanagida</u>, K. Nagashima, K. Oka, G. Meng, S. Rahong, M. Horprathum, B. Xu, F. Zhuge, Y. He, M. Suzuki, Y. Hidaka, S. Kai and T. Kawai, Impact of Controlling Transport Pathway in VLS Grown Oxide Nanowires, Material Research Society Spring Meeting 2012, San Francisco, USA, 2012.4.9–4.13. 4. K. Nagashima, <u>T. Yanagida</u>, K. Oka, M. Kanai, A. Klamchuen, B. H. Park and T. Kawai, Identification of Nanoscale Memristive Switching Using a Single Oxide Nanowire, Material Research Society Spring Meeting 2012, San Francisco, USA, 2012.4.9–4.13. 5. S. Rahong, <u>T. Yanagida</u>, M. Kanai, T. Yasui, K. Oka, A. Klamchuen, G. Meng, K. Nagashima, M. Horprathum, K. Motoyama, N. Kaji, Y. Baba and T. Kawai, Microfluidic Devices Integrated with VLS Grown Oxide Nanowires for Controlling Dynamics of Long DNA Molecules, Material Research Society Spring Meeting 2012, San Francisco, USA, 2012.4.9–4.13. 6. Q. Wu, K. Motoyama, T. Yasui, S. Rahong, <u>T. Yanagida</u>, M. Kanai, Y. Okamoto, N. Kaji, M. Tokeshi, K. Nagashima, T. Kawai and Y. Baba, Sub-Millisecond Separation of DNA and Micro-RNA by Nanopillar Array Chips, –TAS, Okinawa, Japan October 31–November 1 (2012). 7. T. Yasui, S. Rahong, K. Motoyama, <u>T. Yanagida</u>, N. Kaji, M. Kanai, K. Doi, K. Nagashima, M. Tokeshi, S. Kawano, T. Kawai and Y. Baba, Sublithography; Nanowire Array For Single DNA Analysis, –TAS, Okinawa, Japan October 28–November 1 (2012). 8. K. Nagashima, <u>T. Yanagida</u>, K. Oka, M. Kanai, A. Klamchuen, S. Rahong, M. Gang, M. Horprathum, B. Xu, F. Zhuge, Y. He, B. H. Park and T. Kawai, Surrounding Effects on Nanoscale Memristive Switching Behaviors, 19th International Workshop on Oxide Electronics, Apeldoorn, Netherland, September 30–October 3 (2012). 9. <u>T. Yanagida</u>, K. Nagashima, K. Oka, M. Kanai, A. Klamchuen, B. H. Park and T. Kawai, Scaling Effect on Unipolar and Bipolar Resistive Switching, 19th International Workshop on Oxide Electronics, Apeldoorn, Netherland, September 30– October 3 (2012). 10. K. Nagashima, <u>T. Yanagida</u>, M. Kanai and T. Kawai, Intrinsic Redox Balancing of Nanoscale Memristive Oxides, 5th International Symposium on Atomically Controlled Fabrication Technology, Osaka, Japan, October 22–24 (2012). 11. K. Nagashima, <u>T. Yanagida</u>, M. Kanai, K. Oka, B. H. Park and T. Kawai, Surrounding Effects on Nanoscale Memristive Switching Behaviors, 25th International Microprocesses and Nanotechnology Conference, Hyogo, Japan, 2012.10.30–11.2. 12. G. Meng, <u>T. Yanagida</u>, K. Nagashima, M. Kanai, M. Suzuki, A. Klamchuen, B. Xu, F. Zhuge, S. Rahong, Y. He and T. Kawai, Crucial Role of Ambient Pressure on Thermal Shrinking of Au Nanodot Array, 25th International Microprocesses and Nanotechnology Conference, Hyogo, Japan, 2012.10.30–11.2. 13. S. Rahong, <u>T. Yanagida</u>, M. Kanai, A. Klamchuen, M. Gang, K. Nagashima, T. Yasui, N. Kaji, Y. Baba and T. Kawai, Oxide Nanowires DNA Chip for Long DNA Molecules Manipulation, 25th International Microprocesses and Nanotechnology Conference, Hyogo, Japan, 2012.10.30–11.2. 14. T. Kawai, A. Klamchuen, M. Suzuki, K. Nagashima, M. Kanai and <u>T. Yanagida</u>, Creation of Novel Metal Oxide Nanowires, Material Research Society Fall Meeting 2012, Boston, USA, 2012.11.26–30. 15. <u>T. Yanagida</u>, K. Nagashima, M. Kanai, B.H.Park and T.Kawai, Nanowire Memristor: Fabrication and Memristive Properties, Material Research Society Fall Meeting 2012, Boston, USA, 2012.11.26–30. 16. Y. He, <u>T. Yanagida</u>, K. Nagashima, F. W. Zhuge, G. Meng, B. Xu, A. Klamchuen, S. Rahong, M. Kanai and T. Kawai, Impact of Crystal Plane Dependence of Saturated Concentration on Hydrothermal Growth of ZnO Nanowires, 8th Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium, Osaka, Japan, 2012.12.10–11. 17. A. Klamchuen, H. Tanaka, T. Tanaka, G. Meng, S. Rahong, K. Nagashima, M. Kanai, <u>T. Yanagida</u>, T. Kawai and T. Ogawa, Photoassisted Atomic Switch Using ITO Nanowire Electrodes, 8th Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium, Osaka, Japan, 2012.12.10–11. 18. K. Nagashima, <u>T. Yanagida</u>, M. Kanai, A. Klamchuen, S. Rahong, G. Meng, F. Zhuge, Y. He, B. H. Park and T.
----------------	---

様式19 別紙1

	<p>Kawai, Novel Design Rule of Nanoscale Memristive Switching, 8th Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium, Osaka, Japan, 2012.12.10-11.</p> <p>19. F. Zhuge, <u>T. Yanagida</u>, K. Nagashima, H. Yoshida, M. Kanai, M. Suzuki, G. Meng, A. Klamchuen, Y. He, S. Rahong and T. Kawai, Fundamental Strategy Toward VLS Grown TiO₂ Nanowires, 8th Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium, Osaka, Japan, 2012.12.10-11.</p> <p>20. G. Meng, <u>T. Yanagida</u>, K. Nagashima, M. Kanai, M. Suzuki, A. Klamchuen, F. Zhuge, S. Rahong, Y. He and T. Kawai, Crucial Role of Surrounding Pressure on Thermal Shrinking of Au Nanoparticle Arrays, 8th Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium, Osaka, Japan, 2012.12.10-11.</p> <p>21. S. Rahong, <u>T. Yanagida</u>, M. Kanai, A. Klamchuen, G. Meng, K. Nagashima, T. Yasui, N. Kaji, Y. Baba and T. Kawai, Oxide Nanowires DNA chip for Long DNA Molecules Manipulation, 8th Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium, Osaka, Japan, 2012.12.10-11.</p> <p>22. <u>Takeshi Yanagida</u>, Metal Oxide Nanowires: Growth Mechanisms and Memristive Properties in a Single Oxide Nanowire Collaborative Conference on Crystal Growth, Orlando Florida, USA, December 11-14 (2012)</p> <p>23. <u>Takeshi Yanagida</u>, Tomoji Kawai. Mechanism of Bipolar and Unipolar Resistive Switching on Metal Oxide Nanowires 2nd International Workshop on Resistive RAM, Stanford, USA, October 8 – 9 (2012)</p> <p>24. <u>Takeshi Yanagida</u>. Metal Oxide Nanowires: Synthesis and Memristive Properties. 2012 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM 2012), Kyoto International Conference Center, Kyoto, Japan, September 25-27 (2012)</p> <p>一般向け 計 1 件</p> <p>25. “創発原理に基づく無機ナノワイヤ構造体の材料設計” 柳田 剛 新学術領域「分子ナノシステムの創発化学」 領域終了シンポジウム、東京国際フォーラム、東京、2013年2月1-2日</p>
図 書 計 1 件	ナノワイヤを活用した超低消費電力不揮発性メモリ —ナノワイヤメモリスター— 柳田 剛 ナノワイヤ最新技術の基礎と応用展開(分担執筆)CMC出版、総12ページ 2013年
産業財産権 出願・取得状況 計 0 件	(取得済み) 計 0 件 (出願中) 計 0 件
Webページ (URL)	大阪大学・最先端・次世代研究開発支援プログラム http://www.osaka-u.ac.jp/ja/research/program_next 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 http://www.lserp.osaka-u.ac.jp/index_jisedai.html
國 民 と の 科 学・技術対話 の実施状況 計 0 件	“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 2013年1月17日、参加人数33名 国民との化学・技術対話をを行うために、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楽しく語り合うことが出来た。自分の研究の進め方を見つめなおす良い機会となっている。
新聞・一般雑誌等掲載 計 0 件	
その他	特になし。

4. その他特記事項

特になし。

実施状況報告書(平成24年度) 助成金の執行状況

本様式の内容は一般に公表されます

1. 助成金の受領状況(累計)

(単位:円)

	①交付決定額 (前年度迄の累計)	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	37,500,000	41,500,000	0
間接経費	36,600,000	12,900,000	11,250,000	12,450,000	0
合計	158,600,000	55,900,000	48,750,000	53,950,000	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	2,045,305	37,500,000	0	39,545,305	11,139,417	28,405,888	0
間接経費	9,091,191	11,250,000	0	20,341,191	11,275,581	9,065,610	0
合計	11,136,496	48,750,000	0	59,886,496	22,414,998	37,471,498	0

3. 当該年度の執行額内訳

(単位:円)

	金額	備考
物品費	441,777	実験試薬 等
旅費	364,060	研究成果発表旅費 (アムステルダム) 等
謝金・人件費等	9,046,686	博士研究員人件費
その他	1,286,894	サイエンスカフェ 等
直接経費計	11,139,417	
間接経費計	11,275,581	
合計	22,414,998	

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
該当なし					