

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 15 日現在

機関番号：32613

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25790009

研究課題名(和文)量子ドットセルオートマトン論理デバイスの理論的動作解析および設計

研究課題名(英文)Theoretical Analysis and Design of Molecular Quantum-dot Cellular Automata Device

研究代表者

徳永 健 (TOKUNAGA, KEN)

工学院大学・公立大学の部局等・准教授

研究者番号：30467873

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 1,500,000円

研究成果の概要(和文)：従来のコンピュータに使用されている中央演算処理装置(CPU)に代わる次世代デバイスとして、4核Ru混合原子価錯体を用いた分子型量子ドットセルオートマトン(MQCA)論理回路に注目し、その実用可能性を探った。4核錯体の周辺に3組の入力を配置したモデルで論理回路としての動作をシミュレートしたところ、全16パターンの論理回路のうち10パターンで理想的に動作することが分かった。本モデルの論理演算時間は1 fs以内(THzオーダーのクロック周波数に対応)であることから、MQCAデバイスが従来型のCPUを上回る演算性能を有する可能性があることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Usefulness of the Molecular Quantum-dot Cellular Automata (MQCA) device as a next-generation processing device was investigated by computer simulation. The model QCA device was constructed from a combination of one four-nuclear Ru mixed-valence complex and three sets of two input charges. It was found that 10 of all 16 logic gates work correctly. Processing speed of this model device is estimated as 10^{15} times/s, and this value corresponds to the THz order of CPU clock speed. These results mean that there is a possibility that the MQCA device is superior to the present device.

研究分野：理論化学に基づく新たな分子デバイス設計

キーワード：量子ドット セルオートマトン 分子デバイス 論理回路 錯体 混合原子価 電子移動 量子化学

1. 研究開始当初の背景

コンピューターは、我々の日常に欠かせない存在となった。近年、その核となる中央演算処理装置 (CPU) の性能向上は目覚ましい。これは、CPU を構築する電界効果トランジスタ (FET) の微細化や複雑化によるものである。しかしながら、微細化の限界や動作原理の破綻のため、CPU の演算性能は近く上限に到達すると言われている。このため、FET とは異なる仕組みを持つデバイスが数多く提案されてきた。その 1 つが量子ドットセルオートマトン (QCA) である。

QCA のアイデアは、1993 年、C. S. Lent により提唱された。QCA とは、基板上に量子ドットを様々に配置して作成した自動機械 (オートマトン) のことである。量子ドットを 4 つ並べ、四角形を作ることにより QCA セルを作成する。そこに電子を 2 つ注入すると、電子の反発により、等しいエネルギーを有する 2 つの状態 0 と 1 が生じる (図 1 (a))。このセルを様々に組み合わせ、入力と出力を追加することにより、種々の論理演算を行うためのデバイスを作成することができる。 (図 1 (b))

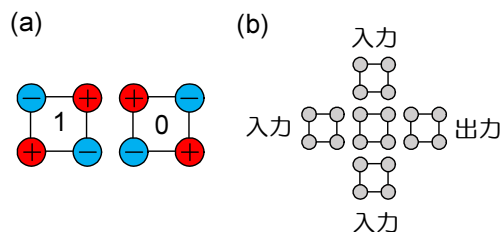


図 1. (a) QCA セルの状態 0 と 1、(b) QCA デバイスの一例 (多数決回路)

1997 年に QCA デバイスの論理回路としての動作が実証された。しかしながら、常温の熱エネルギーで 0, 1 のデータが容易に入れ替わるため、金属ドットを用いた QCA は極低温でしか動作しない。そこで、2000 年、Lent らにより、量子ドットを分子で置き換えた分子型量子ドットセルオートマトン (MQCA) が考案された。MQCA セルでは、従来の QCA セルよりも狭い領域に電子が局在することにより、ドット間のクーロン力が強くなる。このため状態間のエネルギー障壁が高くなり、常温でもデータの入れ替わりを防げる。しかしながら、この MQCA の動作はまだ実証されていないため、その演算性能は未知数である。

MQCA の次世代デバイスとしての可能性を探る上で、その演算性能を明らかにすることが急務である。

2. 研究の目的

MQCA の動作を検証するためのシンプルなモデルを考え、その動作を理論的に解析することにより、MQCA デバイスの実用性を確

認する。また、MQCA に適した分子を理論設計するための指針を明らかにする。

3. 研究の方法

(1) MQCA デバイスのモデル

4 つの量子ドットを有する MQCA を模倣するため、4 つの金属を有する 4 核ルテニウム混合原子価錯体を用いる。ピラジンを架橋配位子として有するピラジン錯体と、ビピリジンを架橋配位子として有するビピリジン錯体を考える。配位子はどちらもサイクレンである。また、これら 2 種類の錯体は、実験的にも報告されている。

次に、錯体の周辺、ルテニウム原子から 5 Å の距離に 3 組の点電荷を配置し、それらを 3 つの入力 (A, B, C) とみなす (図 2)。入力電荷のスイッチにより、中央の錯体内の電荷分布が変化し、それにより演算が行われる。中央錯体の電荷分布の変化により、理想的な演算が行われたかどうかを判断することができる。

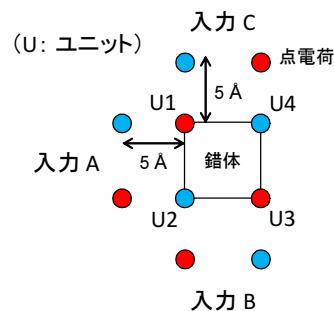


図 2. 錯体と 3 組の入力電荷

(2) 論理回路

入力 A, B, C の電荷の組み合わせにより、3 種類の回路 (多数決回路、AND 回路、OR 回路) を作成することができる。多数決回路とは、入力 A, B, C の多数決を出力する回路であり、全部で 8 パターンある (表 1)。AND 回路・OR 回路は、それぞれ入力 A と B の論理積・論理和を出力する回路であり、各 4 パターンある。3 種類の回路の全ての入力パターンを考えると、全 16 パターンある。

表 1. 多数決回路の入力と出力

パターン	入力			出力
	A	B	C	
1	1	1	1	1
2	1	1	0	1
3	1	0	1	1
4	0	1	1	1
5	1	0	0	0
6	0	1	0	0
7	0	0	1	0
8	0	0	0	0

(3) シミュレーション方法

分子の構造最適化には、Gaussian09 プログラムを使用した。計算方法は密度汎関数法 (B3LYP)、基底関数は STO-6G (Ru 原子)、6-31G* (C, N 原子)、6-31G (H 原子) を使用した。

デバイス動作のシミュレーションについては、時間に依存する Schrödinger 方程式に基づき、錯体内の電荷の時間変化を求めた。方法の詳細は、既に論文として発表している (文献①)。入力のスวิตチ後十分に時間が経った後の終状態を、スวิตチ前の初期状態で展開し、ユニットの電荷の時間変化をシミュレートした。

4. 研究成果

(1) 錯体の構造

錯体の最適化構造を図 3 に示す。ピラジン錯体はほぼ正方形に近い形をしているが、ビピリジン錯体は菱形に近い形をしている。

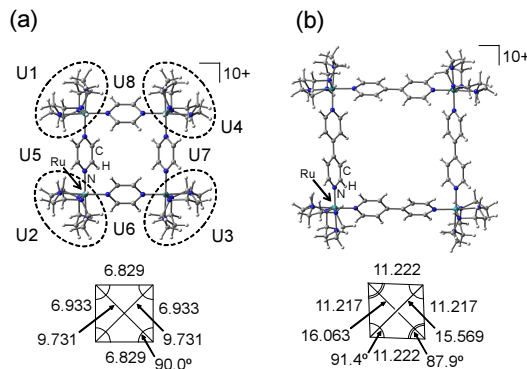


図 3. 錯体の最適化構造。(a) ピラジン錯体、(b) ビピリジン錯体

(2) 信号伝達挙動

表 1 パターン 1 の多数決回路の信号伝達挙動を図 4 に示す。ユニット 2 と 4 の近くには正電荷が現れることから、スวิตチ後にユニット 2 と 4 の電荷が減少する。逆に、ユニットの 1 と 3 の近くには負電荷が現れることから、スวิตチ後にユニット 1 と 3 の電荷が増加する。このことから、錯体は状態 1 となり、多数決の演算が正しく行われていることが分かる。ユニット 1 と 2 は 2 つの入力電荷の影響を受けることから、ユニット 2 と 4 よりも電荷の変化が大きい。

入力スวิตチ後、演算にかかる時間は 1 fs 以下である。このことから、1 秒あたりの演算回数は 10^{15} 回以上になり、THz オーダーのクロック周波数に対応することが分かる。このことから、演算速度の観点からは、既存の演算デバイスを上回る可能性を有することが明らかになった。

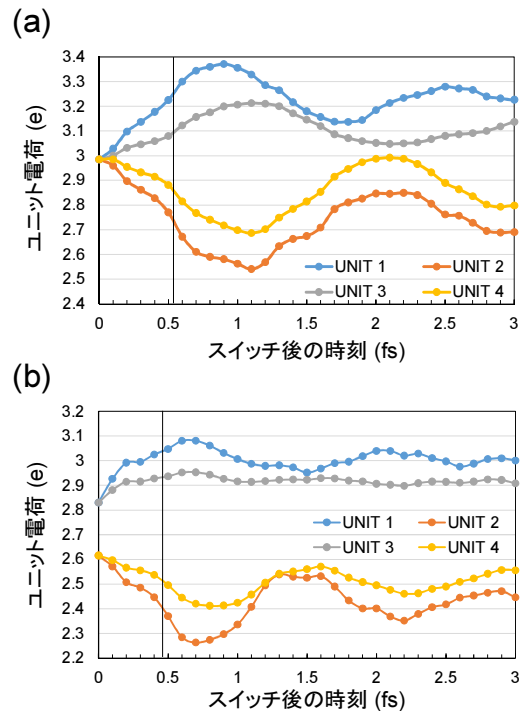


図 4. ユニット電荷の時間変化。(a) ピラジン錯体、(b) ビピリジン錯体

(3) MQCA デバイスの動作

図 4 と同様のシミュレーションを行い、他の多数決回路および AND 回路・OR 回路の動作をシミュレーションしたところ、全 16 パターン中 10 パターンで理想的に動作していることが分かった。

(4) MQCA 分子の設計指針

2 核混合原子価錯体に関する過去の我々の研究 (文献①) で、MQCA 分子の設計指針として以下の 2 点を明らかにした。

- ・信号伝達速度を大きくするには、伝達に大きく寄与する軌道間のエネルギー差を大きくすれば良い。
- ・信号強度を大きくするには、初期状態と終状態の分子軌道の分布の違いが大きくなるようにすれば良い。

今回の 4 核錯体を対象とした計算により、新たに分子の対称性に関する知見を得ることができた。ピラジン錯体はほぼ正方形なので、分子軌道が分子全体に分布する傾向にある (図 5 (a))。このため、入力電荷の変化により、分子軌道の分布が大きく変わる。一方、ビピリジン錯体は菱形に近いので、分子軌道が局在する傾向にある (図 5 (b))。このために、入力電荷による分子軌道の分布変化が小さく、信号強度も小さくなる傾向にある。以上の結果から、4 核錯体については、

- ・4 核錯体の信号強度を大きくするには、より対称性が高く分子軌道が非局在化した錯体を用いれば良い。

という新たな指針を得た。

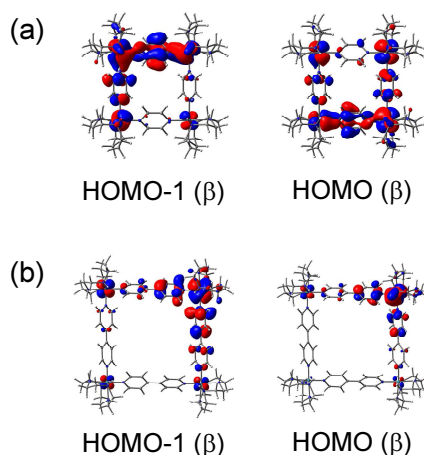


図 5. (a) ピラジン錯体と (b) ビピリジン錯体の HOMO と HOMO-1

(4) 今後への展開

4 核錯体を用いた QCA デバイスに関する新たな設計指針を得た。今後は、この指針に基づき、多数決回路・AND 回路・OR 回路の全 16 パターン全てにおいて理想的に動作する錯体を模索していく。

<引用文献>

① Ken Tokunaga, Signal Transmission through Molecular Quantum-Dot Cellular Automata: A Theoretical Study on Creutz-Taube Complexes for Molecular Computing, Physical Chemistry Chemical Physics, Vol. 11, 2009 年, pp. 1474-1483

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 2 件)

① Keishiro Tahara, Nazuna Terashita, Tetsuhiro Akita, Shohei Katao, Jun-ichi Kikuchi, Ken Tokunaga, Electrochemistry, Charge Transfer Properties, and Theoretical Investigation of a Macrocyclic Boronate Dimer of 1',1'''-Biferrocenediboronic Acid and Related Ferrocenyl Boronate Complexes, Organometallics, 査読有, Vol. 34, 2015 年, pp. 299-308, 10.1021/om501129a

② Keishiro Tahara, Tetsuhiro Akita, Shohei Katao, Ken Tokunaga, Jun-ichi Kikuchi, Construction of covalent- and hydrogen-bonded assemblies from 1',1'''-biferrocenediboronic acid as a new organobimetallic building block, Dalton Transactions, 査読有, Vol. 43, pp. 9579-9585, 10.1039/c4dt00988f

[学会発表] (計 8 件)

① 徳永 健、山口涼太、松田貴裕、ビフェロセニウム 1 次元鎖における電気信号の伝達速度と強度に関する理論的研究、日本化学会第 95 春季年会、2015 年 3 月 27 日、日本大学船橋キャンパス (千葉県・船橋市)

② Ken Tokunaga, Masako Sakakibara, Yuji Tsuchiya, Dynamic Simulations of Quantum-Dot Cellular Automata Constructed from Creutz-Taube Squares, 10th International Conference on Nano-Molecular Electronics (ICNME 2014)、2014 年 12 月 17 日、神戸国際会議場 (兵庫県・神戸市)

③ Ken Tokunaga, Hole-Transport Properties of Defect Fullerenes C₆₉: A Theoretical Study on Singlet and Triplet States, 6th World Conference on Photovoltaic Energy Conversion (WCPEC 6)、2014 年 11 月 26 日、京都国際会館 (京都府・京都市)

④ 徳永 健、松田貴裕、山口涼太、Fe, Ru, Os 原子を有する非対称型量子ドットセルオートマトンの理論的動作解析、錯体化学会第 64 回討論会、2014 年 9 月 19 日、中央大学後楽園キャンパス (東京都・文京区)

⑤ Ken Tokunaga, Yasuhiro Takemoto, Dynamic simulations of carrier transport on the surface of fullerene C₆₀ and hydrogenated fullerenes C₆₀H₂, International Conference on Diamond and Carbon Materials 2014 (DIAM 2014)、2014 年 9 月 10 日、Melia Castilla (Spain, Madrid)

⑥ 榊原雅子、徳永 健、四核ルテニウム錯体を用いた量子ドットセルオートマトンデバイスの理論的動作解析、日本化学会第 94 春季年会、2014 年 3 月 28 日、名古屋大学東山キャンパス (愛知県・名古屋市)

⑦ 大森滋和、徳永 健、川畑 弘、Long-range Modulation of the Inter-molecular Interaction in the Naphthalene Cluster by Introducing of the Charged Naphthalene, The 4th International Symposium on Organic and Inorganic Electronic Materials and Related Nanotechnologies (EM - NANO 2013)、2013 年 6 月 18 日、石川県立音楽堂 (石川県・金沢市)

⑧ 徳永 健、大森滋和、川畑 弘、Theoretical Study of Solvation Effect on the Electron Transfer in Cyclophane, The 4th International Symposium on Organic

and Inorganic Electronic Materials and
Related Nanotechnologies (EM – NANO
2013)、2013年6月18日、石川県立音楽堂
(石川県・金沢市)

[その他]
ホームページ等
<http://tokunaga-ken.sakura.ne.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

徳永 健 (TOKUNAGA, Ken)
工学院大学・基礎・教養教育部門・准教授
研究者番号：30467873