

# 量子ドット集積体による反応拡散系

大矢 剛嗣 上野 友邦 浅井 哲也 雨宮 好仁

北海道大学工学部電子工学科 〒060-8628 札幌市北区北 13 条西 8 丁目

E-mail: ooya@sapiens-ei.eng.hokudai.ac.jp

**あらまし** 量子ドット結合振動子に反応拡散系の概念を取り入れた「量子ドット反応拡散デバイス」を提案する。構成要素として量子ドット振動子を用意する。これは、トンネル接合、量子ドット、電流源からなる単電子回路である。この振動子にクーロンブロッケード条件下で電流を流すと非線形振動が起こる。この振動子を多数配列し、隣接振動子どうしを結合容量でつなぐと、電位変化の影響がある時間遅れを伴って振動子の間を伝わる。同様の現象が系の各部で発生するため、系全体として秩序ある時空間パターンを生じる。その様子をシミュレーションによって示し、これが反応拡散系の現象と類似の動作であることを述べる。あわせてデバイス作成法についての一指針を述べる。

**キーワード** 単電子, 量子ドット, 結合振動子, 非線形振動, 反応拡散系

## Reaction-diffusion Systems Using a Nanodot Structure

OYA Takahide UENO Tomokuni ASAI Tetsuya and AMEMIYA Yoshihito

Department of Electrical Engineering, Hokkaido University

Kita 13, Nishi 8, Kita-ku, Sapporo, 060-8628 Japan

E-mail: ooya@sapiens-ei.eng.hokudai.ac.jp

**Abstract** We propose a reaction-diffusion (R-D) device that uses nanodot oscillators. The nanodot oscillator consists of a nanodot, a tunneling junction, and a current source. It shows non-linear oscillation at low temperatures because of the Coulomb blockade effect. Combining these oscillators with coupling capacitors constructs the nanodot R-D device. The device produces spatiotemporal electric-potential patterns. This behavior is similar to that of the chemical reaction-diffusion system. We show the behavior of the nanodot R-D device by computer simulation. We also propose a method of making an actual nanodot R-D device.

**Keyword** single-electron, quantum dot, nanodot, coupled oscillator, non-linear oscillation, reaction-diffusion system

### 1. はじめに

「単電子現象／量子ナノ構造」と「化学現象／反応拡散系のメカニズム」を組み合わせた新しいデバイス「量子ドット反応拡散デバイス」を提案する。

反応拡散系とは、化学反応と物質拡散が混在した非平衡な化学反応系のことを言う。反応拡散系は自然界のいたるところにあって、生き生きとしたダイナミクスを生み出す舞台となっている。生命現象に見られる形態形成や自己組織化なども反応拡散系が示す挙動の一例である。

このような反応拡散系の動作を量子ドット集積体で模倣することを考える。反応拡散系を模した集積体をここでは「量子ドット反応拡散デバイス」と呼ぶ。このデバイスは新しい情報処理デバイスやインテリジェントセンサの開発に応用できる可能性をもつ。

以下の章では、はじめに反応拡散系の概要を簡単に

説明する（第2章）。反応拡散系は化学振動子の集合体としてモデル化できる。化学振動子は物質拡散を介して相互に作用を及ぼし合っている（以上第3章）。次に、反応拡散系を量子ドットで模倣する方法---量子ドット反応拡散デバイスの構成方針---を提案する。すなわち、化学振動子に代えて量子ドットの単電子トンネル振動子を使用する。そして近接する量子ドット振動子の間には、トンネル待ち時間を利用して、拡散現象に類似した相互作用を発生させる（以上第4章）。この量子ドット振動子を二次元配列して反応拡散デバイスを構成する。そのダイナミクスをシミュレーションで解析し、化学的な反応拡散系に類似した形態形成や自己組織化の現象が生じることを示す（以上第5章）。最後に、量子ドット反応拡散デバイスの実現に向けて、製作方法の一指針を提案する（第6章）。

## 2. 反応拡散系とは

反応拡散系は化学反応と物質拡散が混在した非平衡-開放状態の化学系である。そこでは複数種類の化学物質が関与する多くの素反応が進行している。その結果として反応拡散系は高次の非線形挙動を示し、平衡系からは予想もつかない動的で多様性に富む現象を生じる[1]。

反応拡散系の大きな特徴は「散逸構造」を発生することにある。すなわち、各化学物質の濃度パターンが空間的・時間的に均一ではなく、巨視的な秩序をもった構造をつくる。系パラメータの変化にともなって多種多様で複雑な散逸構造が現れる。この反応拡散系の挙動は、自然界に現れる現象の多様性を理解するための重要な手がかりを与える。さらに、生命現象の一端が反応拡散系の非線形科学によって説明されるのではないか、という期待が高まっている。

近年、生命科学---生命現象を物理化学的に説明しようとする試み---の進展には著しいものがあり、とくにDNA関連分野を中心とする分子生物学/分子遺伝学がその主流となっている。これはいわば生命体を組み立てる部品の研究を通して生命現象に迫ろうとするものである。しかし一方で、それだけでは「生命の全体像---成長や形態形成などの生き生きとしたダイナミクス」を説明することができない、という問題が指摘されている。「生きもの」が「もの」と違うところは、自ら時間的・空間的な秩序を創り出していることにある(図1)。この生命の本質を理解するためには別のアプローチが必要となる。そのような観点から反応拡散系の非線形科学が研究されるようになった。反応拡散系は散逸構造・時空間パターンを自ら創り出すことから、それによって生命ダイナミクスの一端を説明できる可能性がある。

反応拡散系の挙動(物質濃度の時空間パターン)は図2の連立偏微分方程式---反応拡散方程式で表される。変数の個数が多いほど複雑なダイナミクス、したがって複雑な散逸構造が発生する。しかし変数が少ない簡単な反応拡散系においても、生命活動に似たダイナミクスを生じることがある。2変数系における一例を図3に示した。図1との類似性に注目されたい。

(付記) 図1との類似性について。図1の生命現象---とくに細胞の分裂増殖---のメカニズムが図3のモデルで直ちに説明できる、と述べているわけではない。反応拡散系の非線形科学はまだ初歩的な段階にあり、生命現象の本質を解き明かすには到っていない。ただ生命現象をとらえるアプローチとして反応拡散系の非線形科学が有力な手法であることの一端を示したものである。

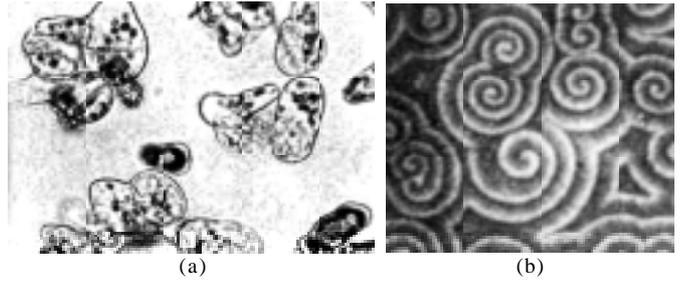


図1 生命現象が示す生き生きとしたダイナミクスの例：(a) アスペルガスの細胞が分裂増殖する様子[2]、(b) 細胞性粘菌の集団が集まって移動体になるときに描くらせん模様[3]。

$$\begin{aligned} \frac{\partial u}{\partial t} &= f(u, v, w, \dots) + D_u \nabla^2 u \\ \frac{\partial v}{\partial t} &= g(u, v, w, \dots) + D_v \nabla^2 v \\ \frac{\partial w}{\partial t} &= h(u, v, w, \dots) + D_w \nabla^2 w \end{aligned}$$

反応項
拡散項

図2 反応拡散方程式。変数  $u, v, w, \dots$  は各化学物質の濃度で位置の関数； $D_u, D_v, D_w, \dots$  は化学物質の拡散係数； $f(\dots), g(\dots), h(\dots) \dots$  は化学物質の生成速度を表す関数(その多くは非線形)。

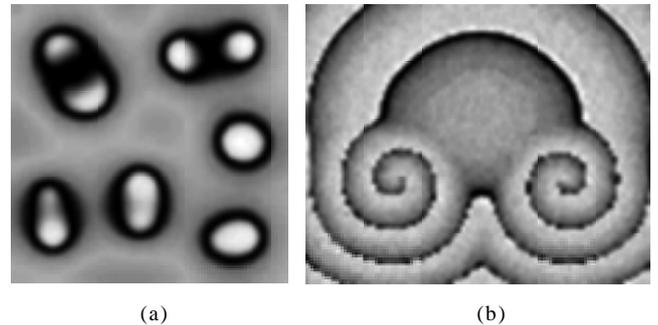


図3 反応拡散系が示すダイナミクスの例。二次元の系で物質濃度を濃淡表現したもの：(a) 分裂増殖パターン(グレイスコット反応系)、(b) らせんパターン(ブリュセレータ反応系)。

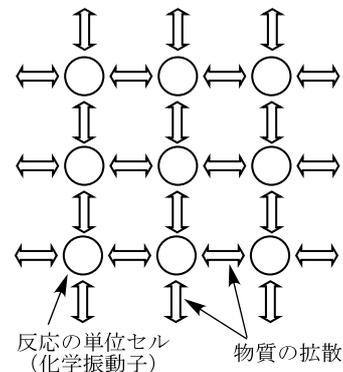


図4 反応拡散系のモデル。化学振動子の集合体であり、各振動子は物質拡散を介して相互に影響を及ぼし合う。

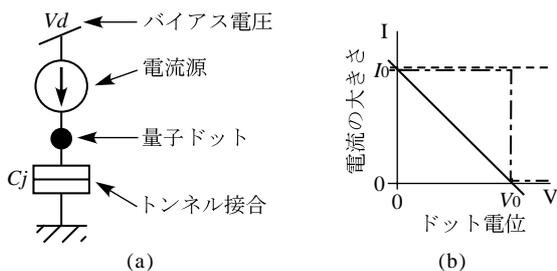


図5 量子ドット振動子：(a)振動子の構成，(b)電流源の特性3種（電流一定，ステップ変化，線形変化）

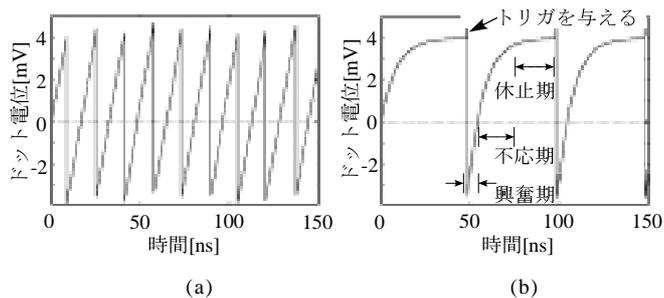


図7 振動子の特性：(a)定電流源の場合 ( $V_0=\infty$ )，(b)ドット電位に依存する電流源の場合 ( $V_0$ はトンネルしきい値以下に設定)。回路のパラメータ値は本文参照。

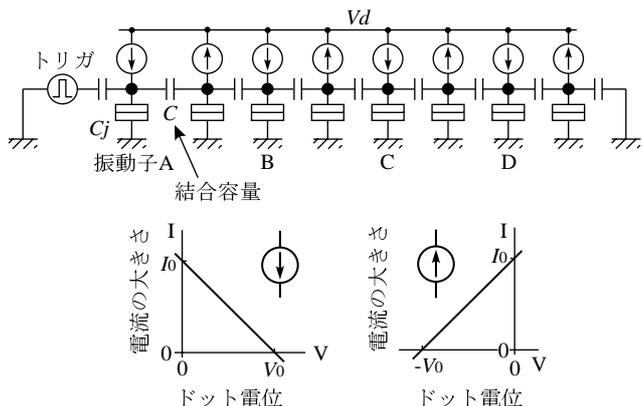


図6 結合振動子：電流源の極性を交互に反転させて連結(上図)；電流源は図9(b)実線のタイプを使用(下図)。

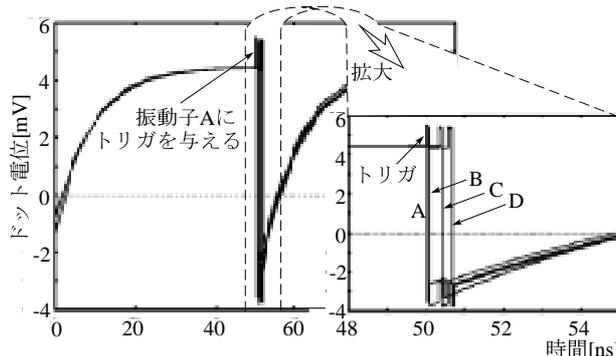


図8 結合振動子系の動作：振動子Aにトリガを与えるとき時間遅れを伴ってB→C→Dとトンネル現象が伝搬する。

### 3. 電子デバイスによる反応拡散系の構成

反応拡散系は多くの単位セル---化学振動子が集合した反応場として近似モデル化できることが分かっている(図4)。各セルは微小な空間領域内の化学反応に対応し、変数と同じ個数の非線形振動子からなる。近接する振動子どうしは、物質拡散を介して相互に影響し共鳴や引き込みを生じる。反応拡散系は相互結合した非線形振動子の集合体であり、系全体として複雑なダイナミクス---形態形成や自己組織化などの時空間パターン---を生み出す。

反応拡散系を電子デバイスで実現するためには以下のアプローチをとればよい。すなわち、まず多数の非線形振動子を用意して配列する。次に、近接する振動子間に「拡散現象」と類似の相互作用が生じるような工夫を設ける。一つのアプローチとして CMOS 回路や pnpn デバイスを使うことで電子的な反応拡散系を構成できる[4, 5]。しかし、既存のデバイスでは化学的な反応拡散系に匹敵する多数個の振動子を集積することが難しい。

この点を解決するために、ここでは量子ドットデバイスの使用を考える。量子ドットとトンネル接合で構成される単電子デバイスは、それだけで非線形振動子となる。そのため複雑な回路構成を必要とせず、容易に高い集積度が得られる。次章以下で、量子ドット振動子による反応拡散系の構成方法を述べる。

### 4. 量子ドット結合振動子

#### 4.1. 振動子の構成

反応拡散デバイスの単位要素となる量子ドット振動子の構成を図5(a)に示す。これは、電流源、量子ドット、トンネル接合を直列に接続した簡単な単電子回路である。この振動子はクーロンブロッケード効果をはたらく低温下で SET 振動(非線形な振動)を生じる[6]。反応拡散デバイスの要素として使う場合、電流源の特性は図5(b)のように幾つかのタイプが可能である。以下では、同図実線のように電流値が量子ドットの電位に線形依存するものを考える。この電流源は電圧源と高抵抗によって実現できる。

#### 4.2. 振動子の連結---拡散結合

前節4.1の量子ドット振動子を一次元に配置し、隣接する量子ドット間を結合容量  $C$  で連結する。例として振動子を8個連結した結合振動子系を図6-上図に示す。各振動子の電流源の極性は交互に反転させる。すなわち「流し込み」と「抜き出し」の電流を一つおきにする。電流値はドット電位により線形変化する(図6-下図)。

いま、電流源の電流がゼロとなる電圧  $V_0$  をトンネルしきい電圧より低く設定する。そうすると、この系

は以下のような興奮モードの動作を生じる。まず、この結合振動子系は外部から擾乱が加わらないときは安定状態にある（この状態では各振動子のドット電位は隣接振動子の電子トンネルを抑制する極性になっている）。しかし、振動子の一つに電子トンネルが起こると、その振動子のドット電位は正負が反転する。このドット電位変化は隣接振動子の電子トンネルを誘発する極性である。この電位変化が伝わると、隣接振動子はある待ち時間の後に電子トンネルを起こす。その電子トンネルによる電位変化の影響がさらに次の振動子に伝わる。このように、ある振動子の電子トンネルによる電位変化の影響が次の振動子の電子トンネルを引き起こす、という動作が系の中で発生する。電子トンネルが時間遅れを伴って周囲に伝わっていく、という

動きは反応拡散系の拡散現象に類似している。

### 4.3. 動作シミュレーション

結合振動子系の動作をモンテカルロシミュレーションで解析した。その結果を以下に示す。

はじめに単位となる振動子において、電流源の電流がゼロとなる電圧  $V_0$  を変えてドット電位の時間変化を見た。結果の一例を図7に示す（トンネル接合の容量  $C_j = 10$  aF, トンネル抵抗 = 1 M $\Omega$  に設定）。図7(a)は  $V_0 = \infty$  (定電流源), 図7(b)は  $V_0 = 3.8$  mV < トンネルしきい値電圧 に設定した場合である（なおトンネルしきい電圧 = 4 mV）。ドット電位の時間変化は  $V_0$  の値によって様子が変わる。 $V_0$  の値をトンネルしきい値に対して大きく設定すれば、振動子は自励振動を行う「振動モード」の状態になる（図7(a)）。

一方、 $V_0$  の値をトンネルしきい値に対して小さい値に設定すれば「興奮モード」の状態になる。このときは外部擾乱がなければ安定状態（休止期）にある。外から擾乱（トリガ）が加わると1回だけ反応を起こし（興奮期）、それから再び安定状態（休止期）に戻る（図7(b)）。なお、興奮期と休止期の間には外部擾乱に感応しない期間（不応期）がある。この不応期が生じる理由は次のことにある。電子トンネルが起きた後しばらくは、ドット電位がトンネルしきい電圧に比べてかなり小さい値になっているので、多少の擾乱が加わったとしても再度の電子トンネルは発生しない。

次に、一次元の結合振動子系の動作特性を見た。結果の一例を図8に示す。ここでは振動子を8個連

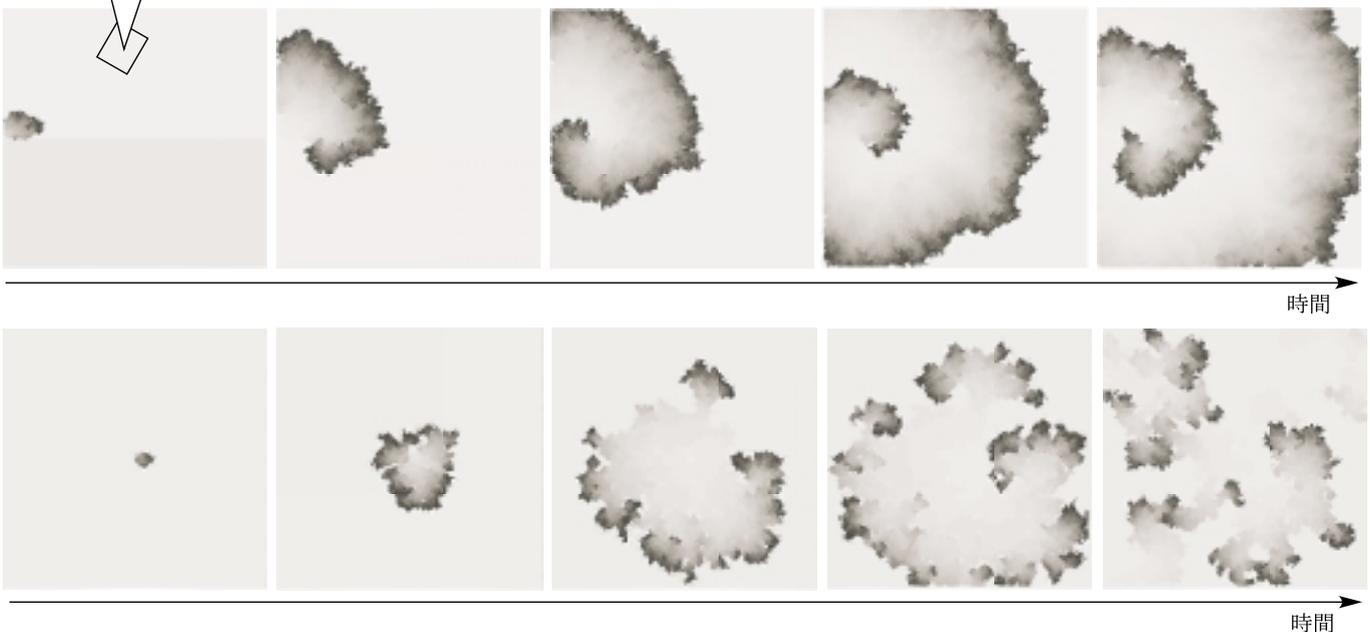
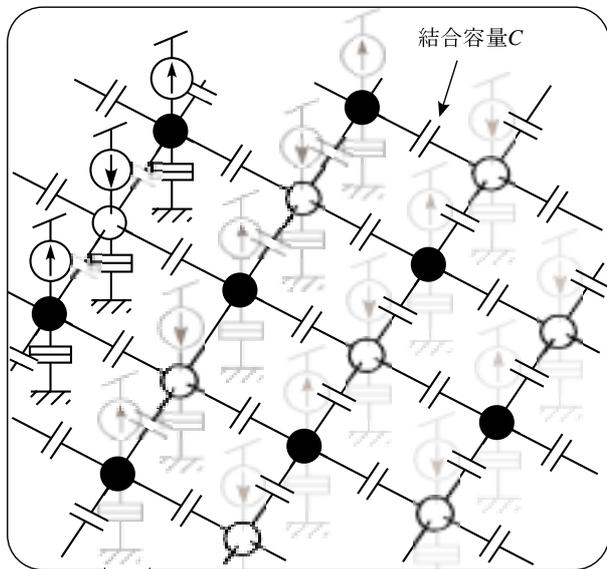


図9 反応拡散デバイス：(上)デバイス構成，(下)デバイスが示す電位パターン（らせんパターン，分裂パターン）の時間変化（電位の低い部分を黒，電位の高い部分を白として表現）

結し、すべての振動子が興奮モードとなるように電圧  $V_0$  を設定した ( $V_0 = 4.5 \text{ mV}$ )。そして配列左端の振動子(振動子 A)のドットに容量を介してトリガ電圧を与えた。図 8 に示すように、電子トンネルが時間遅れを伴って次々に伝搬している様子を確認できた。なお、振動子  $A \rightarrow B \rightarrow C \rightarrow D$  の順に電子トンネルが伝搬していくとき、 $C \rightarrow B \rightarrow A$  というような逆向きの伝搬は発生しない。その理由は振動子の動作に不応期があることによる。

## 5. 量子ドット反応拡散デバイス

### 5.1. 反応拡散デバイスの構成

量子ドット振動子を多数用意してマトリクス状に配置連結すると、二次元の反応拡散デバイスをつくることができる。その構造を図 9 (上図) に示す。各々の量子ドット振動子を隣接の量子ドット 4 個(上下左右)と結合容量  $C$  で連結してある。各振動子の電流源の極性は交互に反転させておく。

いま系を興奮モードに設定しておくこと、外部から擾乱が加わらないときは安定状態にある。次に、外部擾乱を与えて一つまたは複数の振動子に電子トンネルを生じさせると、その振動子のドット電位の変化が周囲に伝搬して隣接振動子の電子トンネルを誘発する。これは前節 4.2 で述べた一次元系と同じである。しかし二次元系の場合は、ドット電位の分布形状が一次元系の場合よりもはるかに複雑になり得る。そして次節で示すように、回路パラメータ (結合容量, 電流源の特性) を変えることによって、多様な時空間パターン (時間・空間的に変化するドット電位の二次元パターン) が現れる。

### 5.2. 動作シミュレーション

二次元の反応拡散デバイスの動作をシミュレーションするときには工夫を必要とする。デバイスに含まれるトンネル接合の個数が多いので、系全体の回路方程式をモンテカルロシミュレーションで直接に解く方法は計算時間が膨大になり実用的でない (第 4 章で用いた方法はこの直接解法)。そこで二次元系では、セルオートマトン法による近似をモンテカルロシミュレーションに加えて解析を行った。

### 5.3. 動作シミュレーションの結果

前節のシミュレーション方法を用いて、二次元の量子ドット反応拡散デバイスに現れる時空間パターンを確認した。回路パラメータと初期条件に依存して、様々なパターンが現れる。例として、冒頭に挙げた図 1 と図 3 に類似したパターン (らせん, 分裂増殖) を図 9

に示す。この反応拡散デバイスは  $401 \times 401$  個の振動子からなる。そのうち「流し込み」の電流源をもつ振動子が  $201 \times 201$  個, 「抜き出し」の電流源をもつ振動子が  $200 \times 200$  個である。図示の時空間パターンは「流し込み」の電流源につながる量子ドット (図 9 上の白○で表示) の電位パターンである。

図 9 上のらせんパターンを発生させる操作は以下のとおりである。はじめに、左端中央の振動子にトリガを与えて電子トンネルを発生させる。周囲に電子トンネルの伝搬が始まった後、反応拡散デバイスの下半分のドット電位を 1 回だけゼロにリセットする。その後は、デバイス自身が反応・拡散の動作に従って自発的にらせんを巻いていく。

分裂増殖パターンは各振動子のトリガ感度が低いようなパラメータ条件で発生する。そのときデバイスの一部にトリガを与えると、電子トンネルは周囲に均一には拡散できない。電子トンネルは確率事象なので、ある方向には拡散し別の方向には拡散しない、ということが生じる。結果として、一点から発生した興奮パターンが次第に分裂しながら広がるようになる。

以上のダイナミクスは、化学的な反応拡散系のダイナミクス(図 3)、さらには生命現象の中に現れるダイナミクス(図 1)に類似したところがある。らせんや分裂増殖といったパターンの成長は、動作途中に外から操作を受けることなくデバイス自身が作り出すものである。これは生命現象における自己組織化などの挙動に類似している。したがって、量子ドット反応拡散デバイスは生体機能をモデルにした新しい情報処理デバイスへの応用が期待できる。

## 6. 反応拡散デバイスの作成方法

量子ドット反応拡散デバイスの実現に向けて、二次元デバイスの製作方法の一方針を述べる。本デバイスは量子ドット集積体、および量子ドットを連結するための結合容量からなる。この構成を実現するための構造例を図 10 に示す。以下に順を追って説明する。

(図 10 (a)) 製作したい量子ドット振動子の回路。容量  $C$  を介して伸びる 4 本の腕は、隣接振動子に電位変化を伝えるための結合端子である。

(図 10 (b)) 量子ドット振動子の電流源を除く部分 ---図 10 (a) の点線内---を実際の構造に直したもの。中央が量子ドットで、そこから 4 本の結合端子が伸びている。

(図 10 (c)) 量子ドット振動子の集積配列。導電性の基板の上に絶縁膜を介して振動子を集積する。量子ドットと基板の間にはトンネル接合を形成する。

(図 10 (d)) 電流源と結合容量を含む最終構造の断面図

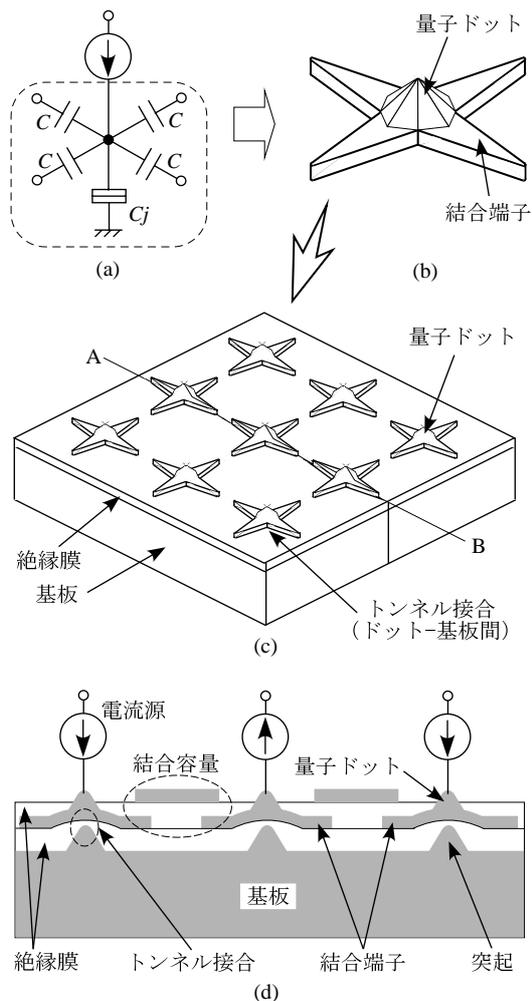


図10 反応拡散デバイスの構造：(a) 量子ドット振動子の回路，(b) 四つの結合端子を持つ量子ドット，(c) 基板表面の絶縁膜上に量子ドットが配列された構造，(d) 配列構造の断面図（図(c)のABに沿った断面）

以上のデバイス構造は次のような工程で作成できる。

- (1) 導電性基板を用意し、量子ドットの下となる部分に導体(または半導体)の突起を堆積する。
- (2) 基板表面に絶縁膜を堆積させる。突起の上部は絶縁膜を薄くしておく。ここにトンネル接合をつくるためである。
- (3) 絶縁膜の上に結合端子4本を持つ量子ドットを配列する。
- (4) その上から第二の絶縁膜を堆積する。
- (5) 電流源をつなぐために、量子ドット部分の酸化膜を除去して量子ドットを露出させる。

以上のようにして、量子ドット振動子の集積体を基板上に構成できる。図10(d)は図10(c)のABに沿った断面である。隣接振動子に電位変化を伝える結合容量をつくるため、各振動子から伸びている結合端子の上に(絶縁膜を挟んで)電極をつける。それによって結合端子どうしを容量的に結ぶことで結合を実現する。電流源は絶縁膜から露出している量子ドットに直接接

続する。

このような集積構造を実現するための有力な方法に有機金属気相選択成長法[7, 8]がある。この方法によれば、振動子の配列ピッチを100 nm程度に小さくすることが可能である。したがって、CMOSデバイスを使うよりもはるかに高い集積度の反応拡散デバイスをつくることができる。

## 7. まとめ

量子ドット集積体を用いた反応拡散デバイスを提案した。このデバイスは量子ドット振動子と結合容量だけで構成可能であり、そのため高い集積度が期待できる。デバイスの動作をシミュレーションで解析し、化学的な反応拡散系に現れる時空間パターンと類似のパターンが現れることを示した。この量子ドット反応拡散デバイスは、生体の機能をモデルにした新しい情報処理システムへの応用が期待できる。

## 文 献

- [1] たとえば、三池，森，山口，”非平衡系の科学Ⅲ：反応・拡散系のダイナミクス，” 講談社，1997.
- [2] [http://www.agr.nagoya-u.ac.jp/nougaku/nougaku\\_ouyou.html](http://www.agr.nagoya-u.ac.jp/nougaku/nougaku_ouyou.html)
- [3] A. T. Winfree, S. H. Strogatz, Nature, 311, p. 312, 1984.
- [4] Asai T., Nishimiya Y., and Amemiya Y., A novel reaction-diffusion system based on minority-carrier transport in solid-state CMOS devices, Proceedings of the International Semiconductor Device Research Symposium, pp. 141-144, Washington DC, USA, Dec.2001.
- [5] Daikoku T., Asai T., and Amemiya Y., An analog CMOS circuit implementing Turing's reaction-diffusion model, 2002 International Symposium on Nonlinear Theory and its Applications (NOLTA), Xi'an, People's Republic of China, Oct.2002.
- [6] H. Gravert and M. H. Devoret, Single Charge Tunneling --- Coulomb Blockade Phenomena in Nanostructures, New York: Plenum, 1992.
- [7] Kumakura K., Motohisa J., and Fukui T., Formation and characterization of coupled quantum dots (CQDs) by selective area metalorganic vapor phase epitaxy, J. Crystal Growth, vol. 170, pp. 700-704, 1997.
- [8] Oya T., Asai T., Fukui T., and Amemiya Y., A majority-logic nanodevice using a balanced pair of single-electron boxes, Journal of Nanoscience and Nanotechnology, Vol. 2, No. 3/4, pp. 333-342, 2002.