



# Zuckerbasiert molekularer Rechner mit Implikationslogik\*\*

Martin Elstner, Jörg Axthelm und Alexander Schiller\*

**Abstract:** Ein Protokoll zur Integration einer (prinzipiell) unbeschränkten Zahl molekularer Logikgatter zum Aufbau komplexer Logikschaltungen wird präsentiert. Schaltungen, wie beispielsweise der Halb- oder Volladdierer, können unter Ausnutzung der logischen Vollständigkeit der Implikationsfunktion (IMP) und der trivialen Nullfunktion reinterpretiert werden. Das molekulare IMP-Gatter wird durch einen boronsäurehaltigen Zuckersensor beschrieben. Ein externer Verknüpfungsalgorithmus überträgt das Fluoreszenz-Ausgabesignal eines Gatters in chemische Eingaben für das nächste Gatter. Dies wird exemplarisch mit einem 4-Bit-Addierer auf der Basis von Mikrotiterplatten demonstriert.

Boole'sche Logikgatter auf Molekülebene können heutzutage Informationen höherer Komplexität verarbeiten.<sup>[1-4]</sup> Seit der Einführung des ersten molekularen UND-Gatters<sup>[5]</sup> entwickelte sich die molekulare Logik zu einem Forschungsgebiet, in welchem größere Schaltungen arithmetische Operationen durchführen können<sup>[6-11]</sup> oder sogar Mikrotiterplatten für „tic-tac-toe“-Spielzüge auf Basis von DNA-Logikgattern genutzt werden können.<sup>[12,13]</sup> Eine wesentliche Weiterentwicklung erfährt das Forschungsgebiet derzeit durch die Möglichkeit, chemische Sensoren als Logikgatter für die medizinische Diagnostik zu nutzen.<sup>[14]</sup> Mediziner verwenden klinische Parameter oft in binärer Form, d.h. sie sind nicht unbedingt an den exakten numerischen Werten interessiert. Vielmehr verknüpfen sie JA/NEIN-Informationen mit Logikoperatoren wie ODER und UND, um zu einer ersten Diagnose zu gelangen. Ein typisches Beispiel ist die Bestimmung des humanen Choriongonadotropin (hCG) in Schwangerschaftstests. Sind mehrere Analyte zu berücksichtigen, kann die binäre Antwort mehrerer Sensoren zu einer finalen Diagnose verknüpft werden. Für dieses Ziel sind das „Labor im Molekül“<sup>[15]</sup> oder andere komplexe Systeme zu realisieren.<sup>[14,16]</sup> Ähnlich zur Elektronik müssen die Logikgatter physisch verbunden werden. Diese Integration molekularer Logikelemente in komplexe Schaltungen birgt einige

Herausforderungen: 1) Logikoperationen in Lösung sind aufgrund geringer räumlicher Organisation limitiert. 2) Die Art der Ausgabe macht es schwierig, diese in ein nächstes Gatter zu überführen. 3) Die meisten praktisch relevanten Schaltungen nutzen eine Kombination verschiedener Logikgatter (z.B. UND, XOR und ODER für einen Volladdierer). Viele molekulare Logikgatter benötigen verschiedene chemische Spezies als Eingaben und produzieren eine breite Palette an Ausgaben, was eine Verbindung der Gatter erschwert. 4) Die Akkumulierung chemischer Ein- und Ausgaben verhindert ein Rücksetzen.<sup>[17]</sup> Daher wurden bisher nur wenige verknüpfte chemische Logikgatter publiziert, und diese sind meist auf eine kleine Zahl an verbundenen Gattern je Feld beschränkt.<sup>[2,8,14,18,19]</sup> Während das Problem der Ein-/Ausgabe-Inhomogenität mit rein photonischen Logikgattern geschickt umgangen werden kann,<sup>[14]</sup> können die genannten Herausforderungen der Integration molekularer Logikgatter nicht von Chemikern allein gelöst werden.<sup>[8,20]</sup> Daher sind kombinierte Ansätze aus Chemie und Informatik wünschenswert. Wir demonstrieren hier die Verbindung der Logikgatter „materiale Implikation“ (IMP) und NULL auf Mikrotiterplatten, um eine chemische Plattform für komplexe Logik zu konstruieren (Abbildung 1). Unser Ansatz kombiniert einen Algorithmus mit chemischen Eingaben und Fluoreszenzsignalen als Ausgaben. Das IMP-Gatter besteht aus einem Zweikomponenten-Zuckersensor unter physiologischen Bedingungen.<sup>[21]</sup> Unser Konzept bietet somit universelle Verknüpfungsmöglichkeiten für molekulare Logikgatter.

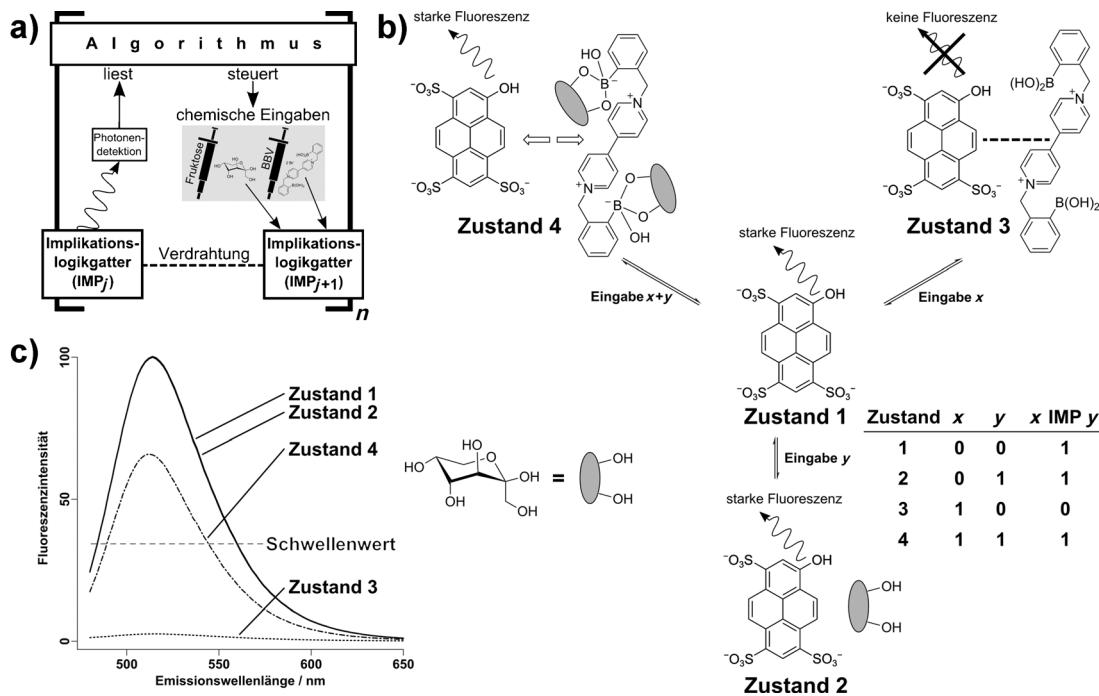
Die noch junge Disziplin des „chemischen Rechnens“ in der Informatik möchte Materie und Information parallel verarbeiten;<sup>[11,22]</sup> durch die Kombination aus chemischen Reaktionen und Computeralgorithmen soll eine komplexe Informationsverarbeitung erzielt werden. Dies eröffnet neue Anwendungsmöglichkeiten an der Grenze zwischen Materie und Information, und besonders das Konzept des parallelen Flusses bietet Chancen zur Bewältigung des Verknüpfungsproblems molekularer Logikgatter. Der hier gezeigte algorithmengestützte Ansatz löst viele der eingangs geschilderten praktischen Probleme (Abbildung 1a).<sup>[14]</sup> Dabei wird ein Fluoreszenzsignal als Ausgabe in chemische Eingaben transformiert, wobei die Natur der Ein- und Ausgaben über alle verwendeten Logikgatter konstant bleibt. Mikrotiterplatten bieten durch die Trennung jedes Gatters (Gefäßes) eine hohe räumliche Organisation.<sup>[3]</sup> Diese Studie nutzt lediglich einen einzigen Typ eines molekularen Gatters (IMP) als nichttriviales Logikelement; andere molekulare Logikschalter sind nicht nötig. Es verwendet zwei chemische Eingaben und produziert eine Fluoreszenzausgabe. Wir demonstrierten das Potenzial des Zuckersensors von Singaram und Wessling<sup>[23,24]</sup> als IMP-Logikgatter mit Fluoreszenzspektroskopie auf der Basis weniger Farbstoffmolekü-

[\*] M. Elstner, J. Axthelm, Prof. Dr. A. Schiller

Institut für Anorganische und Analytische Chemie und  
Abbe Center of Photonics (ACP)  
Friedrich-Schiller-Universität Jena  
Humboldtstraße 8, 07743 Jena (Deutschland)  
E-Mail: alexander.schiller@uni-jena.de

[\*\*] A.S. dankt der Carl-Zeiss-Stiftung für eine Juniorprofessur und der Europäischen Kommission für Unterstützung durch das FP7-Projekt „Novosides“ (KBBE-4-265854). Wir danken der Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG) für die Unterstützung durch die Forschergruppe FOR 1738. Wir danken außerdem dem Center of Medical Optics and Photonics (CEMOP) und dem Jena Center of Soft Matter (JCSM) der Friedrich-Schiller-Universität Jena.

 Hintergrundinformationen zu diesem Beitrag sind im WWW unter <http://dx.doi.org/10.1002/ange.201403769> zu finden.



**Abbildung 1.** Implicationslogik mit einem molekularen Gatter. a) Prinzip der algorithmen gestützten Verknüpfung mehrerer IMP-Gatter in Mikrotiterplatten. b) Zweikomponenten-Zuckersensor mit logischen Fähigkeiten. Die Kombination aus boronsäuretragendem Bipyridiniumsalz (Eingabe  $x$ ) und Fluoreszenzfarbstoff (HPTS) führt Implicationslogik aus; die zweite Eingabe ist ein Zucker, z. B. Fruktose (Eingabe  $y$ ). c) Typische Emissionsspektren der Zustände aus (b) (Anregungswellenlänge  $\lambda = 460$  nm) mit einem robusten Schwellenwert um eindeutig zwischen „0“ und „1“ zu unterscheiden (Abbildung S2). Die Endkonzentration von HPTS beträgt in allen Fällen  $4 \mu\text{mol L}^{-1}$ ; die Eingaben stehen für Konzentrationen von  $360 \mu\text{mol L}^{-1}$  für BBV und  $2.6 \text{ mmol L}^{-1}$  für Fruktose. Alle Messungen wurden in  $0.01 \text{ mol L}^{-1}$  HEPES-Pufferlösung (pH 7.4) bei Raumtemperatur durchgeführt.

le.<sup>[21]</sup> Dieses Detektionssystem arbeitet als allosterischer Indikatorverdrängungsassay in wässriger Pufferlösung.<sup>[25]</sup> Die Fluoreszenz des anionischen Farbstoffes 8-Hydroxypyren-1,3,6-trinatriumsulfonat (HPTS) kann durch ein boronsäuretragendes Bipyridiniumsalz (BBV, Eingabe  $x$ , Abbildung 1) gelöscht werden. Nach Zugabe der diolhaltigen Verbindung Fruktose (Eingabe  $y$ ) reagiert die Boronsäure zu einem negativ geladenen Boronatester, welcher partiell die zweifach positive Pyridiniumladung aufhebt. Daraus folgt eine drastische Reduzierung der Löschungseffizienz. HPTS und Fruktose zeigen keine Wechselwirkung unter diesen Bedingungen. Dieses Ein-/Ausgabeverhalten führt zu einem IMP-Logikgatter – einer Boole'schen Funktion mit der Ausgabe „1“ in allen Fällen, außer  $x=1$  und  $y=0$  (Abbildung 1b, Zustand 3).<sup>[21]</sup>

Nur sehr wenige Beispiele chemischer IMP-Gatter wurden bisher publiziert.<sup>[4,14,21,26–28]</sup> Durch jüngste Forschungen auf dem Gebiet der Memristoren hat die IMP-Funktion allerdings neue Aufmerksamkeit erfahren.<sup>[29]</sup> Darüber hinaus bietet IMP eine besondere Eigenschaft in der Boole'schen Logik, welche bisher in der molekularen Logik nicht verwendet wurde: die „funktionale Vollständigkeit“.<sup>[30]</sup> Eine Menge Boole'scher Operatoren ist funktional vollständig, wenn alle möglichen Logikfunktionen mit ihren Wahrheitstabellen durch Kombinationen von Elementen aus dieser Menge gebildet werden können. Die Vollständigkeit des NAND-Gatters findet in der digitalen Elektronik fundamentale Anwendung.<sup>[31]</sup> Jedes Logikgatter kann durch ein

Netzwerk von NAND-Gattern ausgedrückt werden. Nur zwei einzelne Logikfunktionen, NAND und NOR, sind für sich allein funktional vollständig. Neun vollständige (und nicht-redundante) Mengen können mit zwei Logikfunktionen gebildet werden. Sieben davon enthalten die IMP, die inverse IMP (NIMP, auch Inhibitionsfunktion, INH, genannt) oder beide Funktionen. IMP spielt also eine zentrale Rolle bei der funktionalen Vollständigkeit. Die verbleibenden zwei (UND und NICHT sowie ODER und NICHT) sind äquivalent zu NAND und NOR.<sup>[30]</sup>

In dieser Studie konstruieren wir einen 4-Bit-Addierer als komplexe chemische Logikschaltung aus IMP- und NULL-Gattern. Jedes elementare Logikgatter, z.B. UND, ODER und XOR für einen Halb- oder Volladdierer, kann durch Kombinationen von IMP- und NULL-Gattern ausgedrückt werden (Abbildung S1 und Tabelle S1). Das NULL-Gatter liefert die Ausgabe „0“ für alle Eingaben. Für diesen trivialen Fall wird kein chemisches Logikgatter benötigt, lediglich eine Logikgatterverknüpfung („Verdrahtung“) mit der Information „tue nichts“ ist erforderlich (was wiederum trivial ist, da dies keinerlei Verknüpfung erfordert).<sup>[32]</sup> Die gesamte logische Funktionalität wird daher durch IMP bereitgestellt, ähnlich dem NAND-Gatter in der Elektrotechnik.<sup>[31]</sup> Es sei angemerkt, dass de Silva et al. bereits komplexere Logikschaltungen aus trivialen Elementen wie dem NULL-Gatter generierten.<sup>[33]</sup>

Für eine technische Anwendung ist es wichtig, eine verlässliche Unterscheidung der beiden Schaltzustände „0“ und

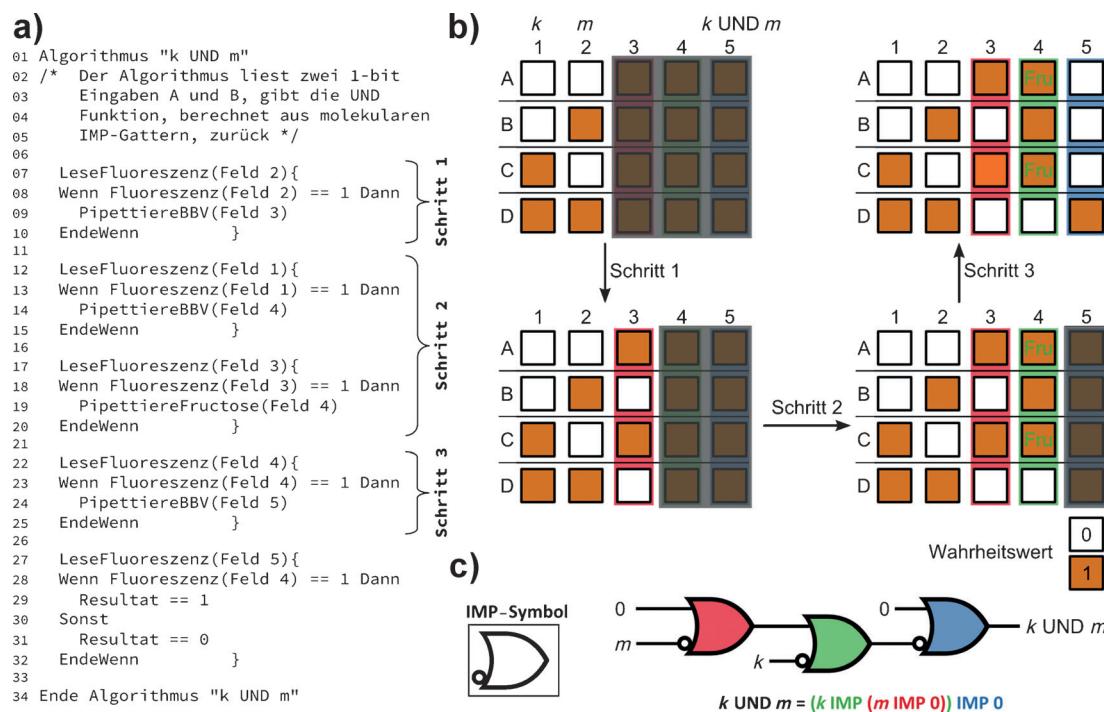
„1“ bei der Ein- und Ausgabe zu ermöglichen. Für die phottonische Ausgabe (hier die Fluoreszenzintensität), wird dazu ein Schwellenwert definiert. Fluoreszenzintensitäten unterhalb dieses Schwellenwertes werden als „0“, und Intensitäten darüber als „1“ interpretiert (Abbildung 1c, Abbildung S2 und S3). Dank der robusten Mikropipettentechnik ist eine reproduzierbare Zugabe der chemischen Eingaben in die Mikrotiterplatten gewährleistet. Allerdings können durch die manuelle Betätigung der Pipetten Fehler entstehen.

Die größte Herausforderung bei der Konstruktion des 4-Bit-Addierers ist die Verknüpfung der chemischen Logikgatter. Unser „Verknüpfungsalgorithmus“ handhabt dies wie folgt: Die Ausgabe des ersten IMP-Gatters  $j$  wird durch Messen der Fluoreszenzintensität bestimmt. Diese Ausgabe wird digital interpretiert und bildet die Eingabe für das folgende IMP-Gatter ( $j+1$ ; siehe Abbildung 1a). Der Informationstransfer von einem Gatter zum anderen wird durch das Pipettierprotokoll gewährleistet. Dieses Protokoll besteht aus WENN,DANN-Konstruktionen eines typischen Programm-Pseudokodes (Abbildung 2a).

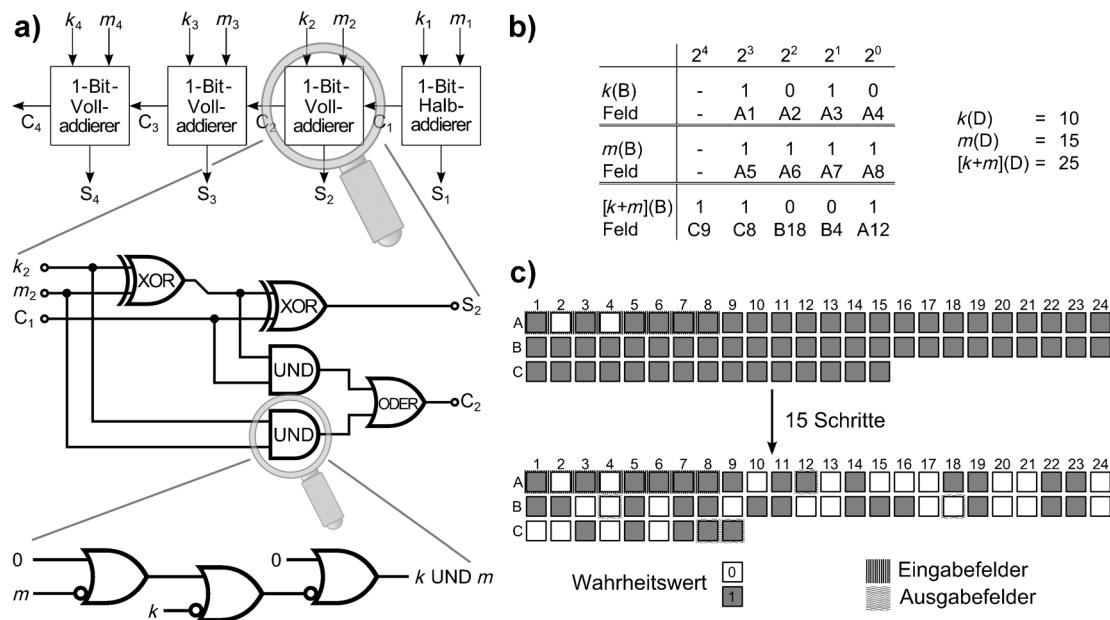
Wichtig ist, dass der Verknüpfungsalgorithmus die logische Verarbeitung nicht beeinflusst, sondern lediglich den Informationsfluss (d.h. die Reihenfolge der adressierten Gatter) steuert. Zur Verdeutlichung sei hier die Konstruktion des UND-Gatters aus verknüpften IMP- und NULL-Gattern auf einer Mikrotiterplatte detailliert gezeigt. Diese Funktion kann auch als  $k$  UND  $m = ((k \text{ IMP } (m \text{ IMP } 0)) \text{ IMP } 0)$  geschrieben werden (Tabelle S1).<sup>[30]</sup> Die Ausführungsreihenfolge der IMP-Gatter ist durch die Klammerung der Ausdrücke gegeben. Ein Schaltungsdiagramm zeigt Abbil-

dung 2c. Die chemischen Eingaben des Informationstransfers sind die Zugabe von BBV (Eingabe = 1) und Fruktose (Eingabe = 1). Die Platte wird mit HPTS gefüllt, sodass jedes Feld zu Beginn auf „1“ gesetzt ist. Die Zugabe von BBV ermöglicht ein Schalten des Feldes auf „0“. Durch die Zugabe von Fruktose in dasselbe Feld kann der Wert wieder auf „1“ gesetzt werden. Das UND-Gatter besteht aus drei IMP-Gattern und benötigt daher auch drei Algorithmenschritte. Da IMP nicht kommutativ ist, müssen die beiden Eingaben voneinander unterschieden werden. Die erste Eingabe ist die Zugabe von BBV und wird durch einen Kreis markiert (Abbildung 2c). Die zweite Eingabe nutzt Fruktose zum Informationstransfer und die Eingabe „0“ bedeutet „tue nichts“. Der Ausdruck „ $x$  IMP 0“ invertiert also die Eingabe  $x$  (0 IMP 0 = 1, 1 IMP 0 = 0; äquivalent zu NICHT). Fruktose wird lediglich als Eingabe in das grüne Gatter benötigt (Abbildung 2c).

Alle vier Eingabekombinationen auf einer Mikrotiterplatte zeigt Abbildung 2b. Der erste Schritt überträgt die Eingabe  $m$  in das rote IMP-Gatter (Spalte 3, Abbildung 2b). BBV wird zum Zielfeld pipettiert im Fall einer WAHR-Eingabe („1“) in Spalte 2, sonst wird nichts getan. Nach Abschluss des ersten Schrittes wird keine Veränderung mehr am roten IMP-Gatter in Spalte 3 vorgenommen. Schritt 2 überträgt die Eingabe  $k$  in das grüne IMP-Gatter durch Zugabe von BBV zur Spalte 4 im Fall einer WAHR-Eingabe („1“) in Spalte 1. Die zweite Eingabe in das grüne Gatter wurde in Schritt 1 generiert; Schritt 2 transferiert die Ausgabe des roten Gatters (Spalte 3) in das grüne Gatter (Spalte 4). Im Fall einer WAHR-Ausgabe („0“) in Spalte 3 wird Fruktose



**Abbildung 2.** UND-Logikgatter aus einem Netzwerk von IMP- und NULL-Logikfunktionen. a) Kodierung (Pipettierprotokoll) eines Verknüpfungsalgorithmus für ein UND-Gatter aus drei IMP-Gattern. b) Schematische Darstellung aller vier Eingabemöglichkeiten des Verknüpfungsalgorithmus auf Mikrotiterplatten. Jede der Reihen (A–D) zeigt eine mögliche Eingabekombination und die schrittweise Ausgabegenerierung dem Algorithmus in (a) folgend. c) Darstellung eines UND-Gatters aus einem Netzwerk von IMP- und NULL-Gattern.



**Abbildung 3.** Prinzip eines molekularen 4-Bit-Addierers auf einer Mikrotiterplatte. a) Der 4-Bit-Addierer besteht aus drei Voll- und einem Halbaddierer. Jede der benötigten elementaren Logikfunktionen (UND, ODER und XOR) kann durch IMP- und NULL-Gatter ausgedrückt werden. b) Übertragung der dezimalen (D) Eingabe in binäre (B) Zahlen und wieder zurück für die Ergebnisausgabe. c) Der obere Teil zeigt das Bitmuster der Eingabesequenz (vertikale Linien) und den Anfangszustand der Mikrotiterplatte. Der untere Teil zeigt dieselben Felder nach Beenden aller Pipettierschritte und die berechnete Ausgabesumme (horizontale Wellen).

dem grünen Gatter (Spalte 4) zugegeben. Der dritte und letzte Schritt überträgt die Ausgabe des grünen Gatters in das blaue Gatter (Spalte 5). Im Fall einer WAHR-Ausgabe („1“) des grünen Gatters wird BBV zum blauen Gatter (Spalte 5) pipettiert. Die Eingaben „0“ in das rote und blaue IMP-Gatter symbolisieren die NULL-Gatter (Abbildung 2c), keinerlei Schritte sind zu deren Realisierung auf der Platte notwendig.

Der 4-Bit-Addierer besteht aus einem Halb- und drei Volladdierern (Abbildung 3a). Die elementaren Logikfunktionen UND, ODER und XOR wurden durch IMP- und NULL-Gatter ersetzt (Tabelle S1).<sup>[30]</sup> Eine 384-Feld-Mikrotiterplatte wurde für die Addition von zwei 4-Bit-Zahlen verwendet. Als Beispiel sei hier die Addition der Dezimalzahlen 10 (binäre Form: 1010) und 15 (binäre Form: 1111; siehe Abbildung 3b) gezeigt. Es kann allerdings jede 4-Bit-Zahl gewählt werden (siehe die Hintergrundinformationen). Abhängig von der Größe der 4-Bit-Zahlen besteht die Addition aus bis zu 15 Detektions- und Zugabeschritten und benötigt im Durchschnitt 40 Minuten. Auf einer 384-Feld-Mikrotiterplatte können zwei Zahlen bis zur maximalen Länge von 12 Bit addiert werden.

Diese Arbeit ist eine der ersten Demonstrationen einer kombinierten Verarbeitung von Materie und Informationen. Die Addition von natürlichen Zahlen demonstriert die Möglichkeiten, die die Kontrolle chemischer Eingaben mit einem externen Verknüpfungsalgorithmus bietet. Dies ermöglicht eine Logikgatterverknüpfung, ohne dass eine Ein-/Ausgabehomogenität der einzelnen Logikgatter notwendig ist. Algebraische Operationen natürlicher Zahlen mit Logikgatterschaltungen eröffnen neue Anwendungen: Die gezeigte Strategie kann auf eine Vielzahl anderer molekularen

Logikgatter ausgedehnt werden und ermöglicht es, Schaltungen größter Komplexität zu entwerfen. Besonders auf dem Gebiet der Multianalytdiagnostik könnte das eine große Bedeutung erlangen.<sup>[4]</sup>

Eingegangen am 31. März 2014  
Online veröffentlicht am 12. Juni 2014

**Stichwörter:** Fluoreszenz · Logikgatter · Molekulare Rechner · Zuckersensoren

- [1] A. P. de Silva, *Nature* **2008**, *454*, 417–418.
- [2] A. P. de Silva, S. Uchiyama, *Nat. Nanotechnol.* **2007**, *2*, 399–410.
- [3] E. Katz, *Molecular and Supramolecular Information Processing: From Molecular Switches to Logic Systems*, Wiley, Hoboken, 2012.
- [4] A. P. de Silva, *Molecular Logic-based Computation*, RSC, Cambridge, 2013.
- [5] A. P. de Silva, N. H. Q. Gunaratne, C. P. McCoy, *Nature* **1993**, *364*, 42–44.
- [6] G. de Ruiter, M. E. van der Boom, *Angew. Chem.* **2012**, *124*, 8726–8729; *Angew. Chem. Int. Ed.* **2012**, *51*, 8598–8601.
- [7] D. Liu, W. Chen, K. Sun, K. Deng, W. Zhang, Z. Wang, X. Jiang, *Angew. Chem.* **2011**, *123*, 4189–4193; *Angew. Chem. Int. Ed.* **2011**, *50*, 4103–4107.
- [8] R. Gulyi, S. Ozturk, Z. Kostereli, E. U. Akkaya, *Angew. Chem.* **2011**, *123*, 10000–10005; *Angew. Chem. Int. Ed.* **2011**, *50*, 9826–9831.
- [9] H. Tian, *Angew. Chem.* **2010**, *122*, 4818–4820; *Angew. Chem. Int. Ed.* **2010**, *49*, 4710–4712.
- [10] T. Ran, S. Kaplan, E. Shapiro, *Nat. Nanotechnol.* **2009**, *4*, 642–648.
- [11] K. Szaciłowski, *Chem. Rev.* **2008**, *108*, 3481–3548.

- [12] R. Pei, E. Matamoros, M. Liu, D. Stefanovic, M. N. Stojanovic, *Nat. Nanotechnol.* **2010**, *5*, 773–777.
- [13] M. N. Stojanovic, D. Stefanovic, *Nat. Biotechnol.* **2003**, *21*, 1069–1074.
- [14] U. Pischel, J. Andreasson, D. Gust, V. F. Pais, *ChemPhysChem* **2013**, *14*, 28–46.
- [15] D. C. Magri, G. J. Brown, G. D. McClean, A. P. de Silva, *J. Am. Chem. Soc.* **2006**, *128*, 4950–4951.
- [16] A. J. M. Huxley, M. Schroeder, H. Q. N. Gunaratne, A. P. de Silva, *Angew. Chem.* **2014**, *126*, 3696–3699; *Angew. Chem. Int. Ed.* **2014**, *53*, 3622–3625.
- [17] D. Margulies, G. Melman, A. Shanzer, *Nat. Mater.* **2005**, *4*, 768–771.
- [18] S. Erbas-Cakmak, E. U. Akkaya, *Angew. Chem.* **2013**, *125*, 11574–11578; *Angew. Chem. Int. Ed.* **2013**, *52*, 11364–11368.
- [19] E. T. Ecik, A. Atilgan, R. Guliyev, T. B. Uyar, A. Gumus, E. U. Akkaya, *Dalton Trans.* **2014**, *43*, 67–70.
- [20] A. P. de Silva, I. M. Dixon, H. Q. N. Gunaratne, T. Gunnlaugsson, P. R. S. Maxwell, T. E. Rice, *J. Am. Chem. Soc.* **1999**, *121*, 1393–1394.
- [21] M. Elstner, K. Weisshart, K. Müllen, A. Schiller, *J. Am. Chem. Soc.* **2012**, *134*, 8098–8100.
- [22] K.-P. Zauner, *Crit. Rev. Solid State Mater. Sci.* **2005**, *30*, 33–69.
- [23] A. Schiller, R. A. Wessling, B. Singaram, *Angew. Chem.* **2007**, *119*, 6577–6579; *Angew. Chem. Int. Ed.* **2007**, *46*, 6457–6459.
- [24] S. Gamsey, A. Miller, M. M. Olmstead, C. M. Beavers, L. C. Hirayama, S. Pradhan, R. A. Wessling, B. Singaram, *J. Am. Chem. Soc.* **2007**, *129*, 1278–1286.
- [25] A. Schiller in *Molecules at Work, Selfassembly, Nanomaterials, Molecular Machinery* (Hrsg.: B. Pignataro), Wiley-VCH, Weinheim, **2012**, S. 315–338.
- [26] T. Gupta, M. E. van der Boom, *Angew. Chem.* **2008**, *120*, 5402–5406; *Angew. Chem. Int. Ed.* **2008**, *47*, 5322–5326.
- [27] A. P. de Silva, N. D. McClenaghan, *Chem. Eur. J.* **2002**, *8*, 4935–4945.
- [28] K. Rurack, C. Trieflinger, A. Koval'chuk, J. Daub, *Chem. Eur. J.* **2007**, *13*, 8998–9003.
- [29] J. Borghetti, G. S. Snider, P. J. Kuekes, J. J. Yang, D. R. Stewart, R. S. Williams, *Nature* **2010**, *464*, 873–876.
- [30] W. Wernick, *Trans. Amer. Math. Soc.* **1942**, *51*, 117–132.
- [31] J. P. Uyemura, *CMOS Logic Circuit Design*, Springer, Amsterdam, **1999**.
- [32] H. Enderton, *A Mathematical Introduction to Logic*, 2. Aufl., Academic Press, Boston, **2001**.
- [33] A. P. de Silva, M. R. James, B. O. F. McKinney, D. A. Pears, S. M. Weir, *Nat. Mater.* **2006**, *5*, 787–789.