戦略的創造研究推進事業　CREST
研究領域「新機能創出を目指した分子技術の構築」
研究課題「分子技術による単分子量子磁石を用いた
量子分子スピントロニクスの創成」

研究終了報告書

研究期間　平成24年10月～平成30年3月

研究代表者氏名　山下　正廣
（東北大学材料科学高等研究所　教授）

§1 研究実施の概要

(1)実施概要

エレクトロニクスやスピントロにクスにおいては、磁性金属や遷移金属酸化物などの古典磁石(バルク磁石)を利用している。この古典磁石を用いた磁気記録メモリデバイスは“ムーアの限界(集積回路上のトランジスタ数は1．5年毎に倍になる)”に直面している。従って“ムーアの限界を超す高密度化実現”のためには、古典磁石をナノサイズまで小さくする必要が生じるが、古典磁石をナノサイズにすると超常磁性現象によってデータ誤記録の可能性が高くなる(磁化の向きがランダムに変化しビット値の0と1が入れ替わる)。この問題を解決するために、我はナノサイズの磁石で21世紀の新しい磁石(次世代型ナノ磁石)である単分子量子磁石(SMM: Single-Molecule Magnets)に焦点を当てた。SMM は遅い磁化緩和時間を有し1個の分子が1個の磁石として機能するため、1個のメモリー素子(1分子＝1ビット)として働くことが予想され、“ムーアの限界を超える”可能性を秘めている。我々は、ボトムアップ法とトップダウン法を併用することにより分子技術を最大限に活用し、SMM の機能性の向上と性質を利用し、量子磁気特性を利用するこれまでにない分子スピントロニクスの創成を目指した。

山下グループ(東北大学)は分子技術をもちいた機能性単分子量子磁石の合成と物質特性の評価を行った。SMM の分子配列を制御することでスピン間に働く内部磁場が基底状態に作用し、磁化量子トンネリング(QTM)の早いスピン反転が抑制されることを SMM 分子 $TbPc_2$ の二量体で観測した。この現象は一つのSMMユニットの QTM の起こる確率を P_{QTM} とすると、SMMユニット n 量体の QTM が同時に起こる確率は P_{QTM}^{n} となるため効果的な手法であり、SMMのスピン凍結温度の向上につながる。また、光照射するだけで SMM の挙動をオン・オフする光制御型 SMM を合成することにも成功しており、SMM で構成された分子メモリデバイスの実現に向けた大きな一歩と言える。米田グループ(東北大学多元物質研究所)は走査型トンネル顕微鏡(STM)計測手法を用いたSMMの単分子メモリー・分子スピントロニクス展開を行った。SMMを用いた巨大磁気抵抗効果(GMR)およびトンネル磁気抵抗効果(TMR)を観測することに成功している。北河グループ(大阪大学)はSMMの構造・電子状態・物性発現の量子化学的アプローチによる解明と分子技術への展開を行った。単一分子の解析で新たな知見($TbPc_2$ における準安定構造の発見)が得られた。理論的提案と物性予測も、SMMを用いた分子メモリ開発の効率化に寄与している。白石グループ(京都大学)はオール分子によるスピン注入＝スピン輸送＝スピン検出を一貫して行える基盤の展開を行った。グラフェンに純スピン流を注入することで生じる純スピン流＝電流変換現象を新たに見出し、イオン液体による高効率キャリア注入によるスピンキャリアの連続的制御、キャリア種の制御にも成功した。SMM 分子と融合することでオール分子スピントロニクスへ展開する可能性を示すことができた。

我々のチームは合成、物性測定、デバイス開発、理論の研究者から構成されており、お互いに密接な連携をとりながら異分野融合研究を進めたことでプロジェクトが概ね順調に進んだ。特筆すべき成果は、SMM を用いた巨大磁気抵抗効果(GMR)およびトンネル磁気抵抗効果(TMR)を観測することができ、目標の80%は達成されたことである。つまり、研究実施期間中にデバイス化に必須な基礎的成果は得られた。今後、我々の構築した SMM-GMR/TMR システムを用いて、磁気記録デバイスへ展開するところが最後の関門であり、最大の難関である。今後も産官学の協力により、デバイス化実現に向けて研究を進めていく。

(2)顕著な成果

1.
概要:Ln^{III} 間相互作用の強弱によりスピン反転の過程(磁化緩和過程)がどのように変化するのかという問題は、単分子量子磁石(SMM)の応用と基礎の両面において興味深く、遅い磁化緩和時間を示す SMM の分子設計を行うための指針になる。$TbPc_2$ ユニットを自由度の高いリンカーで結合した $TbPc_2$ 二量体間($TbPc_2$-O-CH_2-C_6H_6-CH_2-O-$TbPc_2$)には磁気双極子相互作用を介した交換バイアスが働くことでトンネル磁化緩和(QTM)が抑制される。Tb 間距離を系統的に変化させることで、効果的に QTM を抑制することに成功した。

2.
概要:中心 Ln^{III} に対する配位環境を制御することで磁化緩和過程の制御が可能である。フタロシアニン(Pc)とポルフィリン配位子(TPP)を組み合わせることで、それぞれ積層角度の異なる 3 種類の Tb^{III} 錯体([(TPP)Tb(Pc)Tb(TPP)], [(Pc)Tb(Pc)Tb(TPP)], [(Pc)Tb(Pc)Tb(Pc)])を合成した結果。障壁エネルギー(U_{eff})と積層角度(ϕ)は対称性が D_{4d} から D_{4h} に変化するにつれ減少する直線関係が得られた。これは配位環境の対称性に依存する現象であり、配位子場の影響を強く反映した結果である。Tb イオンに対する配位環境を制御することで磁気異方性を制御することが可能である。

3.
概要:分子電子デバイスを実現するためには、デバイス内の各分子の特性を制御する必要がある。我々は、光異性化ジアリールエテン配位子を使用することで、メモリデバイスに使用可能な単分子量子磁石(SMM)の磁気特性を制御した。2 つのマンガンサレン錯体ユニットをジアリールエテン配位子で架橋した分子(Mn(salen)-O-CO-diarylethene-CO-O-Mn(salen))は、光照射前後でジアリールエテン配位子の 6 員環の開閉に伴い SMM 挙動の有意な変化を引き起こした。我々の結果は、光照射するだけで SMM の挙動をオン・オフすることができるため、SMM で構成された分子メモリデバイスの実現に向けた大きな一歩と言える。

＜科学技術イノベーションに大きく寄与する成果＞
1.
概要:フタロシアニンとナフタロシアニンの 2 枚のヘテロな配位子がテルビウム原子を挟んだ、2,3-Naphthalocyaninato (NPc) Phthalocyaninato (Pc) Tb(III) (TbNPcPc)分子は真空中では自由に回転できるが、表面に吸着した場合に、反転する自由度が失われるため、NPc 配位子を上に吸着した分子(NPc-up 分子)、Pc 配位子を上に吸着した分子(Pc-up 分子)は表面キラル状態を形成する。$TbPc_2$ 分子と同じく不対π電子が作る近藤共鳴が観測された。被覆率が上昇すると、NPc-up 分子で構成される 1 次元鎖が出現する。その場所では近藤ピークが凹の dip として観察された。これはスピン間の相互作用である RKKY 相互作用によって形成されたと考える。さらに被覆率を上昇させ単層膜を形成した場合、スピンは消滅する。分子の設計によりスピンに多様性を持たせた膜の形成が可能であることを示した。

2.
概要:単一分子磁石をデバイス応用する場合、基板の変化とそのスピン挙動の理解は重要である。Ag(111)表面の $TbPc_2$ の吸着構造を図 1(a)に示す。Ag(111)表面に吸着 $TbPc_2$ の単層吸着層は Au(111)に吸着した場合に見られた近藤共鳴は示さない。これは分子と Ag(111)表面の強い相互作用によって分子のラジカル軌道に電子移動が生じラジカルが消滅したためである。一方、2 層目に吸着した分子については明瞭な近藤共鳴が観察された。これは Ag(111)表面との強い相互作用が一層目の分子層の存在によって弱められ、ラジカルスピンが生き残ったためと考えられる。さらに外部磁場2 T を印加した場合、近藤共鳴がピークからディップに変化する。2 層目に吸着した分子では非弾性トンネル過程によるスピン励起過程が選択的に

観察されることを初めて示した。

3.

概要：僅かな化学変化で価数の変化を生じる分子はスピン制御と情報伝達を結びつけるスピントロニクス材料として応用が期待される。我々は銅コロール分子を用いて常磁性⇔非磁性状態を行き来させる新しい手法を開発した。コロール分子は陰イオン価数が3価状態と2価状態の間のエネルギー差が小さいため分子のわずかな変化でその間を行き来する。本研究では、銅コロール分子とそれにベンゼン環を縮合したテトラベンゾコロール分子を用いそれぞれが非磁石、常磁性であることを実証した。

§3 研究実施体制

(1)研究チームの体制について

① 「山下」グループ

研究参加者

	氏名	所属	役職	参加時期
○	山下　正廣	東北大学材料科学高等研究所	教授	H24.10～
	高石　慎也	東北大学理学研究科	准教授	H24.10～
	加藤　恵一	同上	助教	H24.10～
	井口　弘章	同上	助教	H25.4～
*	影澤　幸一	同上	助教	H25.4～H29.2
*	中西　亮	同上	助教	H25.4～
	Goulven Cosquer	同上	助教	H25.3～
	山鹿　実	ソニー株式会社	課長	H26.11～
	香取　健二	同上	課長	H26.11～
*	水間　さわ子	東北大学理学研究科	技術補佐員	H24.11～
*	櫻井　綾子	同上	技術補佐員	H26.5～
*	吉田　健文	同上	技術補佐員	H24.10～H29.6
	高　孟琦	同上	D3	H24.10～
	穆　帅	同上	D3	H24.10～H29.9
	呉　彬	同上	D3	H24.10～H29.9
	Mian Mohammad Rasel	同上	D2	H25.10～
	山林　奨	同上	D2	H26.4～
	Habib Md.Ahsan	同上	D2	H25.10～
	Afrin Unjira	同上	D1	H26.10～
	Ara Ferdous	同上	D1	H26.10～
	瞿　李元	同上	D1	H26.4～
	沈　勇兵	同上	D1	H26.4～
	David Chukwuma izuogu	同上	M2	H27.10～H29.9
	Faiza Habib	同上	M2	H27.10～H29.9
	Saiful Islam	同上	M2	H27.10～
	石見　輝	同上	M2	H28.4～
	岡村　拓朗	同上	M2	H28.4～
	西村　勇樹	同上	M2	H28.4～
	章　海涛	同上	M2	H28.4～

	友口 真一	同上	M2	H29.4～
	伊藤 哲史	同上	M1	H29.4～
	鈴木 潤	同上	M1	H29.4～
	村杉 英昭	同上	M1	H29.4～
	朱 佳禹	同上	M1	H29.4～H29.11
	巫 朝俊	同上	M1	H29.4～
	佐藤 鉄	同上	M1	H29.4～
	蕭 信寧	同上	M1	H29.10～

研究項目
機能性単分子量子磁石(SMM)の合成、物性測定(磁気測定、磁気抵抗測定、伝導度測定など)を行う。得意な分子技術を用いて機能性 SMM を合成し、分子を結晶中または基板上に任意に配列させることで SMM 特性を最大限引き出すことを目的とする。具体的には
- Tb-フタロシアニンダブルデッカー型単分子量子磁石($TbPc_2$ 錯体分子)、ならびに類似化合物の磁気特性向上を目指したデザインの提案と合成(分子対称性や分子配列を利用)
- 上記の結果に基づく機能性単分子量子磁石のデザインの提案と合成
- カーボンナノチューブ(CNT)内包 SMM 物質を合成し、一次元内部ナノ空間を利用した SMM 物質群の合成法と多重機能性 SMM のデザインの提案
- 光スイッチング機能をもつ SMM 分子の合成

② 「米田」グループ
研究参加者

	氏名	所属	役職	参加時期
○	米田　忠弘	東北大学 多元物質科学研究所	教授	H24.10～
	高岡　毅	同上	講師	H24.10～
	道祖尾　恭之	同上	助教	H24.10～
	猪狩　佳幸	同上	技術職員	H24.10～
	Hou Jie	同上	D2	H27.10～
	斉　志坤	同上	D2	H26.4～
	Nguyen Tat Trung	同上	D2	H26.4～
	Wang Yu	同上	D2	H28.10～
	塚本　一平	同上	M2	H28.4～
	MD. Iftekharul Alam	同上	M1	H28.10～
	HOSSAIN Mohammad Ikram	同上	M1	H28.10～
	鷲田一樹	同上	M1	H29.4～

研究項目
走査型トンネル顕微鏡（STM）を主たる計測手法とした、単分子量子磁石（SMM）のデバイス応用に不可欠な表面に吸着した状態の構造・電子状態・スピン状態の化学分析と、単一分子磁石を材料としたセンサーや情報処理に資するデバイス作成と検証。具体的には、
- 微小電極が形成するシステムの局所電子・スピン検出
- 外部刺激に応答する単一分子磁石を中心とした・電子・スピン状態変化を示す新奇分子-表面システムの探求
- 近藤共鳴を用いた非局在化したスピンの検出を進め、局在化した金属スピンの検出手

法の開発
・ 量子情報処理に向けた核スピン検出手法の開発

③ 「北河」グループ
研究参加者

	氏名	所属	役職	参加時期
○	北河　康隆	大阪大学　基盤工学研究科	准教授	H24.10～
	名取　圭紀	同上	M2	H29.4～

研究項目
単分子量子磁石の構造・電子状態・物性発現の量子化学的アプローチによる解明と分子技術への展開。具体的には
・ 量子化学計算ならびにシミュレーションを用いた、Tb-フタロシアニンダブルデッカー型単分子量子磁石（$TbPc_2$ 錯体分子）、ならびに類似化合物の分子構造、電子状態解明と磁気的相互作用の機構解明
・ 同化合物の系における分子間の磁気的相互作用の解明
・ 表面・界面上での同化合物の系の電子状態ならびに磁気的相互作用の解明
・ 上記の結果に基づく新規単分子量子磁石のデザインならびの効率化の提案

④ 「白石」グループ
研究参加者

	氏名	所属	役職	参加時期
○	白石　誠司	京都大学大学院工学部電子工学専攻	教授	H24.10～
	重松　英	同上	M2	H29.4～

研究項目
オール分子スピンデバイスの創出への第一歩として、スピン源・スピン変換源として単分子量子磁石を用いることを念頭に、当該分子材料のスピン源としてのポテンシャルを定量的に評価する。具体的には

・ 分子磁性体のスピンデバイスへの適用検討
・ 分子材料のスピン流伝播及びスピン流＝電流変換特性の検討

(2)国内外の研究者や産業界等との連携によるネットワーク形成の状況について

山下グループ
海外ではドイツ・KITのWolfgang Wernsdorfer教授のグループとmicro-SQUIDを用いたSMM特性の評価について共同研究を行っている。また、ドイツ・ハイデルベルグ大学のMarkus Enders教授のグループと核磁気共鳴スペクトルを用いたSMMの磁気異方性について共同研究を行っている。国内では大阪大学理学化学の中澤研究室とSMM分子の磁気比熱測定を行い、磁化緩和機構と基底状態の関係について研究を行っている。スペイン国立研究機関・Jaume Veciana教授と単分子量子磁石の電気化学的応答性や磁気円二色性について研究を行っている。

米田グループ
大阪大学理学化学の小川研究室はポリフィリンを用いたダブルデッカー型の SMM 合成に成功し

ている。同グループから試料の提供を受けて、STM によるスピン観測と STM による原子操作とを組み合わせた実験を行い、山下グループからのフタロシアニンダブルデッカーとの対比を行うことが出来た。海外ではドイツ・KIT の Mario Ruben らと研究交流を行っている。同グループは SMM の合成が主であるが、ヨーロッパに広く物理的計測グループのネットワークを形成しており、SMM の量子情報処理応用に最も近いコミュニティーと考えられる。試料や界面形成の情報交流を行っている。同じく、北京大学の Kai Wu 研究室との交流を深めている。同グループは低温での STM 測定を得意とし測定に関する情報交換を行っている。またフランス・レンヌ大学 Stéphane Rigaut 教授からはフォトクロミックと分子磁性をコンバインさせた新奇機能分子の提供を受け、スピンを活かしたデバイス開発を進めている。またより実デバイスのプロトタイプの作成のため産業技術総合研究所エレクトロニクス・製造領域 ナノエレクトロニクス研究部門 安藤 淳グループとの連携を進め、特に二硫化モリブデン単層膜を用いた電界効果トランジスタと単分子量子磁石を組み合わせたデバイスを開発している。

北河グループ

本研究により、理論研究者として、錯体の電子状態ならびに物性発現機の構解に向けた研究ネットワークを国内外の実験研究者と形成し、研究を遂行しつつある。

白石グループ

グラフェンを用いたスピン変換の研究：九大先導研・吾郷准教授グループ、早稲田大先進理工・竹延教授グループ

§３ 研究実施内容及び成果

3.１ サブテーマ名・分子技術をもちいた機能性単分子量子磁石の合成と物質特性の評価（東北大学　山下グループ）

(1)研究実施内容及び成果

1)分子の対称性に注目した単分子量子磁石 Tb-Pc 系錯体の磁化緩和過程の解明

①研究のねらい

Ln^{III} 間相互作用の強弱によりスピン反転の過程(磁化緩和過程)がどのように変化するのかという問題は、単分子量子磁石（SMM）の応用と基礎の両面において興味深く、もっと性能のよい SMM の分子設計を行うための指針にもなりうる。一方で、中心Ln^{III}に対する配位環境も磁化緩和過程に大きな影響を及ぼすことが知られている。ここでは、フタロシアニン3層積層型 Tb^{III} 錯体の積層角度（ϕ）依存性と SMM 特性を明らかにした。

②研究実施方法

フタロシアニンとポルフィリン配位子を組み合わせることで、それぞれ積層角度の異なる 3 種類の[(TTP)Tb(Pc)Tb(TTP)] (**1**) （ϕ = 4°）、[(Pc)Tb(Pc)Tb(TTP)] (**2**) （ϕ = 14°, 38 °）および[(Pc)Tb(Pc)Tb(Pc)] (**3**) （ϕ = 32°）が得られる。これら錯体の分子内 Tb イオン間距離は約 0.36 nm と一定になっている。特に **1** と **3** を比べると、低温での磁化率（χT値や磁化の立ち上がり）に顕著な差が観測される。また、磁化率の周波数依存性も **3** では磁化量子トンネリング（QTM）が抑制されているが、**1** では QTM が支配的となっており磁場誘起型 SMM 特性を示す。また、障壁エネルギー（U_{eff}）と積層角度（ϕ）は対称性が D_{4d} から D_{4h} に変化するにつれ減少する直線関係が得られた。これは配位環境の対称性に依存する現象であり、配位子場の影響を強く反映した結果である。以上の結果は、Tb イオンに対する配位環境を制御することで磁気異方性が制御可能であることを示している。

③当初の研究計画に対する現在の研究進捗状況と成果

我々は Au(111)に吸着した $TbPc_2$ の分子の積層角度を変えることで Pc 配位子に非局在化したラジ

カルの近藤共鳴のスイッチング（On-Off）を実現しているが、分子の対称性（積層角度）に注目した場合には磁気異方性のスイッチングも可能であると考えられる。つまり、当初の研究計画では Tb イオンの Up/Down に対する情報の書き込み/読み込みを想定していたが、磁気異方性そのものを電圧で ON-OFF できる可能性を示すことができた。Tb イオンの磁気情報を読み書きする手法の開発と共に実際に検討する予定である。

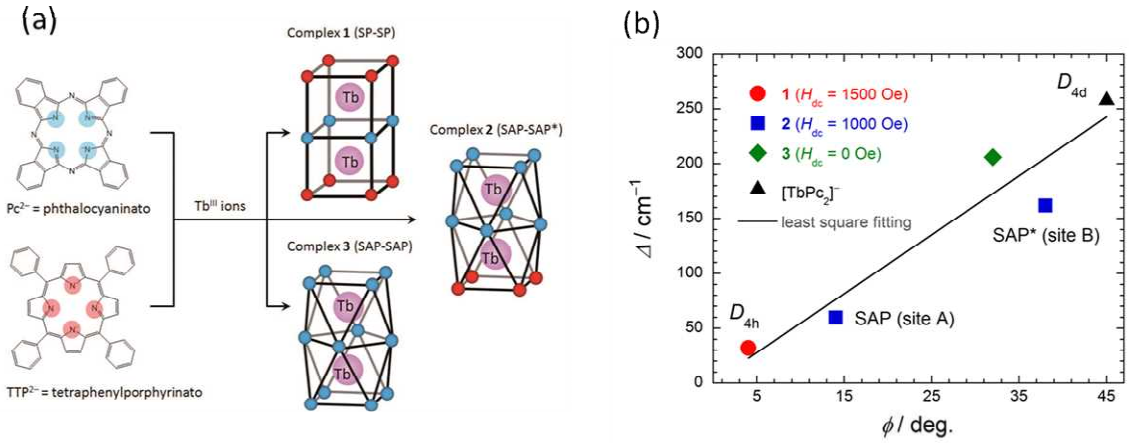


図1. (a) フタロシアニンおよびポルフィリンを配位子として得られる3層積層型テルビウム錯体。(b) 障壁エネルギー（U_{eff}）と積層角度（ϕ）の関係。錯体 **1** と **2** は QTM の影響を取り除くためそれぞれ適正磁場を印加している。

2) 単分子量子磁石 Ln 二核錯体の磁気双極子相互作用と磁化緩和過程の関係

①研究のねらい

Ln^{III}間相互作用の強弱によりスピン反転の過程(磁化緩和過程)がどのように変化するのかという問題は,SMM の応用と基礎の両面において興味深く,もっと性能のよい SMM の分子設計を行うための指針にもなりうる。ここでは単分子量子磁石 Ln 二核錯体の磁気双極子相互作用と磁化緩和過程の関係を明らかにした。

②研究実施方法

この錯体は,二つの2層積層型錯体($TbPc_2$)が非磁性の Cd^{II} イオンやフタロシアニン(Pc)により連結したランタノイド二核錯体であり、3層、4層、5層と積層枚数が増加するごとに分子内 Tb 間距離が増加する。磁気双極子相互作用は Tb^{III} 間距離の3乗に反比例することから、高積層型錯体において Tb^{III} 間距離を制御することは Tb^{III} 間相互作用を制御することに等しく、Tb^{III} 間に働く相互作用が強ければ強いほど QTM を阻害することができるが弱い相互作用は QTM を促進してしまうことを明らかにした。

一方、二つの2層積層型錯体($DyPc_2$)が非磁性の CdII イオンやフタロシアニン(Pc)により連結したランタノイド二核錯体フタロシアニン 4 層積型 Dy(III)Y(III)錯体 DyCdY の磁気特性を調べ、他の Dy(III)錯体（3 層：DyDy、4 層：DyCdDy、5 層:DyCdCdDy）と比較することにより f-f 間相互作用と単分子量子磁石特性の関係について考察した。直流磁化率測定より、DyCdY には分子内 f-f 間相互作用が働いていないことが示唆された。また交流磁化率測定から、DyCdY は比較的早い磁化緩和現象を示し、その挙動は強い f-f 間相互作用を示す DyDy と類似していた。一方で DyCdDy や DyCdCdDy のような弱い f-f 間相互作用を示す錯体は比較的遅い磁化緩和時間を示すことから、弱い f-f 間相互作用の導入が Dy 錯体の磁化緩和時間を延ばすために重要であることが示唆された。

③当初の研究計画に対する現在の研究進捗状況と成果

分子内 f-f 間相互作用の大きさは磁気双極子相互作用として見積もることが可能である。我々は、精密な分子設計によって Ln-Ln 間距離を系統的に変化させ単分子量子磁石 Ln 二核錯体の磁気

双極子相互作用と磁化緩和過程の関係を明らかにした。しかしながら、ここでは配位子場の影響については考慮していない。今後、配位子場を含め f-f 間に働く磁気双極子相互作用と磁化緩和時間の関係を詳細に調べる予定である。

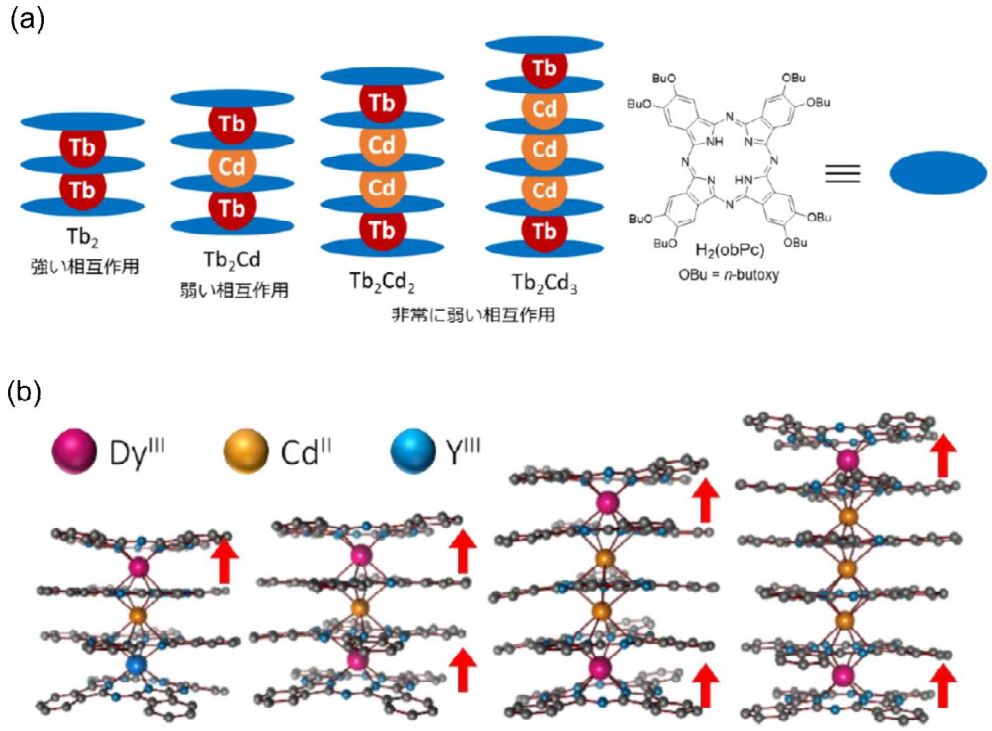


図 2 (a) フタロシアニン多層積層型 Tb^{III} 錯体の模式図。(b) フタロシアニン多層積層型 Dy^{III} 錯体の結晶構造。

3) 二量化した単分子量子磁石 Tb-Pc 系錯体の基底状態と磁化緩和過程の解明

①研究のねらい

Ln イオン間に働く磁気双極子相互作用に加え、Ln イオン周りの配位環境が基底状態で起こるトンネル磁化緩和過程(QTM)に影響することがわかっている。早い緩和時間を示す QTM を抑制することで磁化緩和時間を遅くすることができるため、磁石としての性能を向上させるためには精密な分子設計が要求される。我々は、二量化した $TbPc_2$ ユニットを共有結合で連結した Clamshell 型[Tb_2]および[Tb_2]に Cd^{II} イオンを挿入した[Tb_2Cd]を合成し、配位環境と磁気双極子相互作用が磁化緩和過程に与える影響について明らかにした。

②研究実施方法

Clamshell 型[Tb_2]および[Tb_2]に Cd^{II} イオンを挿入した[Tb_2Cd]の直流・交流磁気特性を比較した。何れの分子も Tb イオン間には強磁性的相互作用が働いており、磁気双極子相互作用が交換バイアスとして作用していることがわかった。この効果は 2 K において *MH* 測定の保磁力として観測される。[Tb_2]では保磁力を伴うバタフライ型ヒステリシスを示すのに対して、[Tb_2Cd]では保磁力は示さない。これは Cd^{II} イオンを挿入に伴い配位環境が D_{4d} から C_4 に変化することで配位子場に非対角化項の影響が顕著に現れることが原因と考えられる。

③当初の研究計画に対する現在の研究進捗状況と成果

Clamshell 型[Tb_2]および[Tb_2]に Cd^{II} イオンを挿入した[Tb_2Cd]の磁化緩和時間を 15 K で比較したところ、それぞれ 81 ms と 0.55 ms であった。これは Tb イオン間距離がほぼ同じであることを考慮すると、配位環境の効果としてその効果を見積もることができる。$TbPc_2$ ユニットを効果的に配置(分子内の対称性、ユニット間のスピン配列)することで効果的に交換バイアスを作用させることを見出

した。

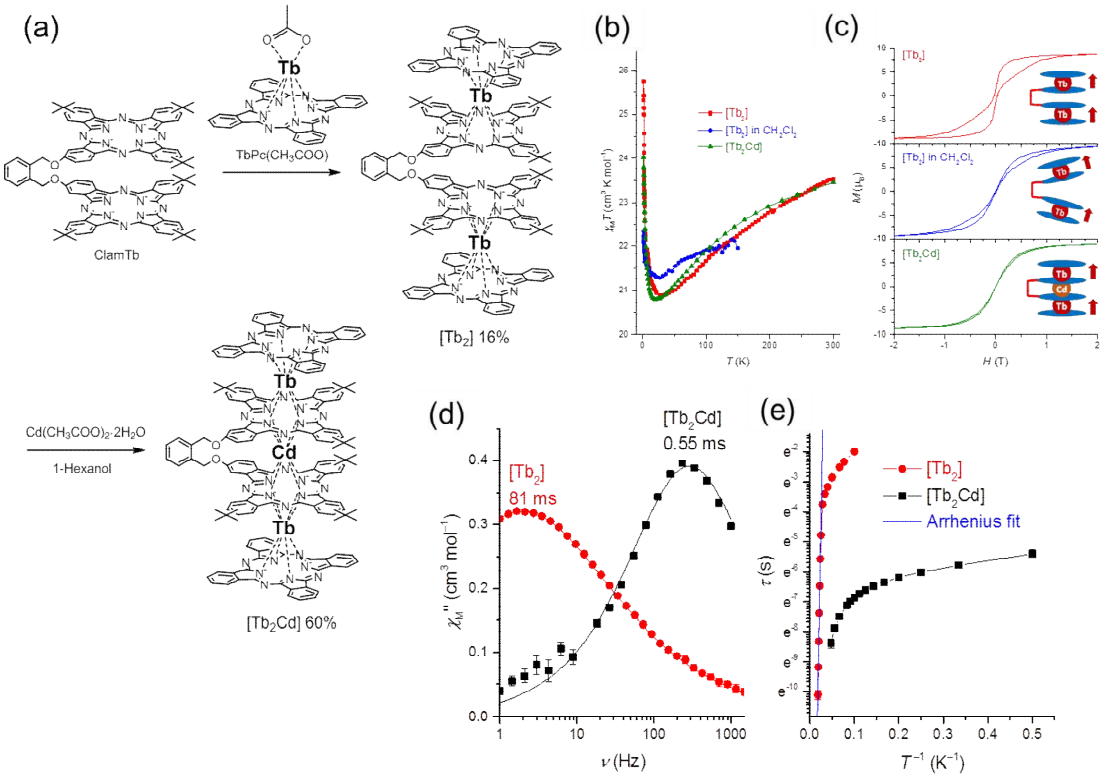


図3 (a) Clamshell 型[Tb_2]および[Tb_2]に Cd^{II} イオンを挿入した[Tb_2Cd]の合成スキーム。(b) 常磁性磁化率(χ_M)と温度(T)の積($\chi_M T$)の温度依存性。低温で強磁性的相互作用が働いている。(c) 2 K における磁化曲線(MH)。(d) 交流磁化率の虚数成分(χ'')の周波数(ν)依存性。(e) 交流磁気測定から得られた磁化緩和時間(τ)の温度依存性(Arrhenius pot)。

4) 単分子量子磁石 $TbPc_2$ の分子配列と磁化緩和過程の関係

①研究のねらい

単分子量子磁石 $TbPc_2$ は Tb イオン間に働く磁気双極子相互作用に加え、Tb イオン周りの配位環境が基底状態で起こるトンネル磁化緩和過程(QTM)に影響することがわかっている。早い緩和時間を示す QTM を抑制することで磁化緩和時間を遅くすることができるため、磁石としての性能を向上させるためには精密な分子設計が要求される。ここでは、単結晶中の $TbPc_2$ の分子配列に注目し、磁化緩和過程との関係を明らかにした。

②研究実施方法

単分子量子磁石 $TbPc_2$ をクロロホルムから再結晶すると、結晶溶媒を含まない単結晶 **1** が得られる(orthorhombic space groups $P2_12_12_1$)。一方、ジクロロメタンから再結晶すると結晶溶媒を含む単結晶 **2** が得られる(orthorhombic space groups *Pnma*)。これら **1** と **2** の分子配列と SMM 特性について調べた。

③当初の研究計画に対する現在の研究進捗状況と成果

単分子量子磁石 $TbPc_2$ の単結晶 **1** と **2** の分子構造を比較すると、Tb イオンに対する Pc の配位環境はほぼ同じであるが、$TbPc_2$ の積層方向での最近接距離(r_{ij})は **1** で 8.838 Å、**2** で 7.892 Å となっている。また、Tb イオンのそれぞれのサイト間を結ぶ直線に対して一軸磁気異方性の傾きを θ とすると **1** は 43°、**2** は 35° と狭くなっている。ここで θ は 54.7° 以下のとき Tb イオンに強磁性的相互作用が働く。$\chi_M T$ の温度依存性を比較すると、**1** に比べて **2** では Tb イオン間に強磁性的相互

作用が効果的に働いていることが示唆され、磁気双極子相互作用が交換バイアスとして働く。交流磁気特性からそれぞれの磁化緩和時間を算出し比べたところ、2 は 1 に比べ二桁緩和時間が遅くなっている。これは、Tb イオン間に働く磁気双極子相互作用が効果的に作用する 2 の分子配列において QTM が抑制されることを示している。磁化緩和時間を制御する因子として分子内の配位環境と分子配列を組み合わせることで磁気特性を向上することが可能であることを示した。

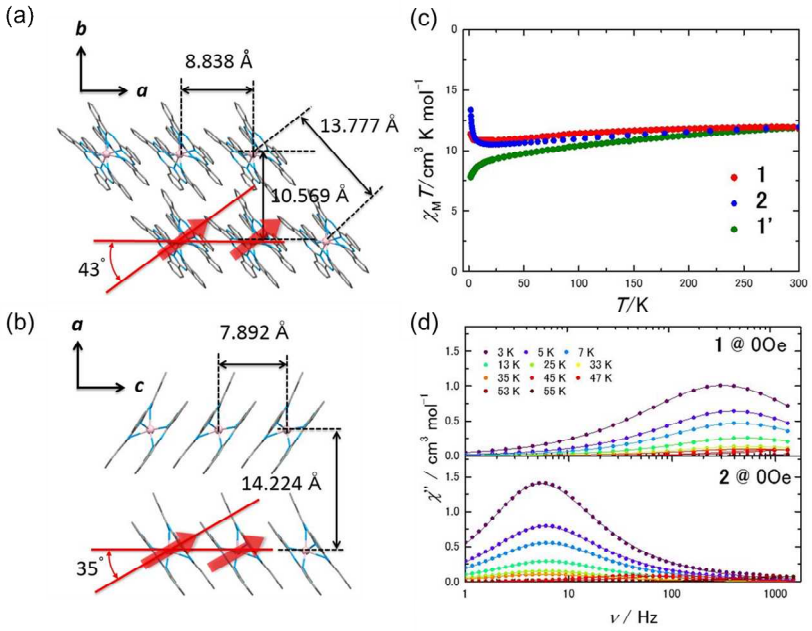


図4. 単分子量子磁石 $TbPc_2$ の単結晶 1 (a)と 2 (b)の分子配列。(c) 常磁性磁化率(χ_M)と温度(T)の積($\chi_M T$)の温度依存性。2 は低温で強磁性的相互作用が働いている。(d) 交流磁化率の虚数成分(χ'')の周波数(ν)依存性。

5) 単分子量子磁石 Dy-Dy および Dy-Y 二核錯体の磁気双極子相互作用と磁化緩和過程の解明

①研究のねらい

SMM 特性は中心ランタノイドイオンの配位環境に依存することが知られている。そこで、純粋にf-f間相互作用のみ考慮し、ランタノイドイオン間に働く磁気双極子相互作用が磁化緩和時間に与える影響を調べる目的で、同じ配位環境にある Dy 二核錯体(Dy-Dy)と Dy 単核錯体(Dy-Y)を合成した。

②研究実施方法

単結晶 X 線構造解析の結果、Dy-Dy と Dy-Y は等構造であり、それぞれの Dy イオンは同じ配位環境下にあることがわかる。磁気測定の結果、Dy-Dy では二つの Dy イオン間に強磁性的相互作用が働いているが、Dy-Y は単核錯体であり分子間距離が十分離れていることから、分子内・分子間の磁気相互作用は無視できる。磁化緩和挙動を調べたところ、どちらの錯体も単緩和挙動を示し、10 K 以下で温度に依存しないトンネル磁化緩和挙動を示した。この時の磁化緩和時間を比較すると、Dy-Dy は Dy-Y に対して一桁遅くなっていることがわかった。

③当初の研究計画に対する現在の研究進捗状況と成果

これは、単純に分子内磁気相互作用の有無が、磁化緩和時間に影響していると考えられる。つまり、ランタノイドイオン間の磁気相互作用を利用することは、磁化緩和時間を制御することにつながり、結果 SMM 特性の設計上重要であると考えられる。

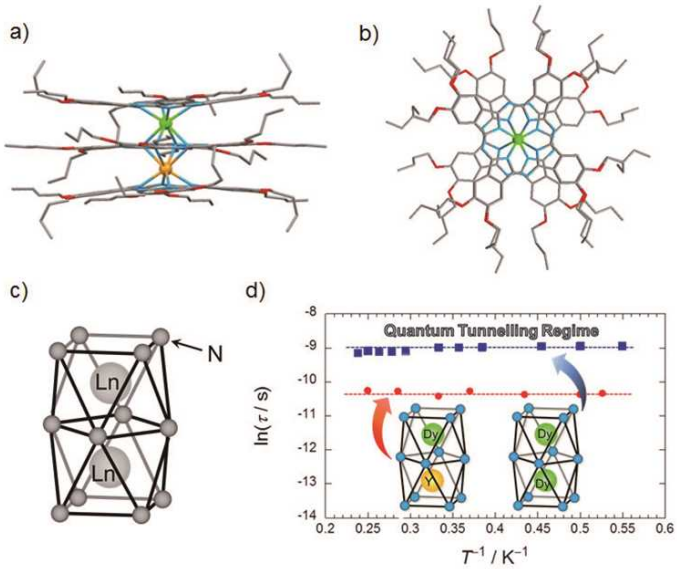


図5. Dy–Pc 三層積層型 SMM 錯体の構造と磁気特性。(a,b) Dy 単核錯体(Dy–Y)の結晶構造(緑:Dy、橙色:Y、灰色:C、薄青:N、赤:O)。(c) Square–antiprismatic coordination の模式図。(d) Dy 二核錯体(Dy–Dy)と Dy 単核錯体(Dy–Y)の低温での磁気緩和挙動。Dy–Dy は Dy–Y に比べ磁化緩和時間が一桁遅くなる。

6) 単分子量子磁石 Dy-Pc 二核錯体の分子の対称性と磁化緩和過程の関係

①研究のねらい

3層積層 Ln–Pc 錯体は中心金属を Tb、Dy、Y に変えても等構造である。また、Tb_2Pc_3 と Dy_2Pc_3 は共に SMM 特性を示す。ところが、$Tb_2(obPc)_3$ と $Dy_2(obPc)_3$ ではその磁化緩和挙動が全く異なる点に注目した。$Tb_2(obPc)_3$ の磁化緩和挙動は基底状態を反映し、ゼーマン分裂に対応した直接過程と QTM の2種類が観測される。一方、$Dy_2(obPc)_3$ では QTM のみ観測される。そこで、配位環境の異なる3種類の Dy_2Pc_3 の配位子場と磁化緩和過程の関係を明らかにした。

②研究実施方法

Pc に置換基(C_8H_{17}–(oo–), $C_6H_{13}O$–(oh–), C_4H_9O–(ob–))を導入し、積層角度(ϕ)の異なる[(Pc)Dy(ooPc)Dy(Pc)] (ϕ = 45°)、[(ohPc)Dy(ohPc)Dy(ohPc)] (ϕ = 27°)、[(obPc)Dy(obPc)Dy(obPc)](ϕ = 32°)を合成した。それぞれの配位環境と直流・交流磁気特性を比較した。

③当初の研究計画に対する現在の研究進捗状況と成果

先行研究から積層角度(ϕ)が45°よりも狭くなるにしたがって、配位環境が D_{4d} から C_4 に変化することで配位子場に非対角化項の影響が顕著に現れることが予想される。また、Dy–Pc 二層積層型錯体の場合では基底状態の最低準位(J_z)の値が積層角度に依存することが報告されており、[(Pc)Dy(ooPc)Dy(Pc)](ϕ = 45°)では $J_z = \pm 13/2$ であることが配位子場を考慮したシミュレーションからも明らかとなった。一方、定性的ではあるが $\phi < 45°$ では J_z の値が $J_z = \pm 13/2$ と $\pm 11/2$ で複雑に交わっている。この基底状態を反映し、[(Pc)Dy(ooPc)Dy(Pc)]では外部磁場 2500 Oe 付近でゼーマン分裂に起因する準位交差が起こり、QTM と直接過程の2種類の磁化緩和過程が観測される。一方、[(ohPc)Dy(ohPc)Dy(ohPc)]と[(obPc)Dy(obPc)Dy(obPc)]では配位環境および基底状態の複雑な準位交差に伴って QTM が優先的に起こることが考えられる。このように、配位環境を精密に分子設計することで磁化緩和挙動を制御することができた。

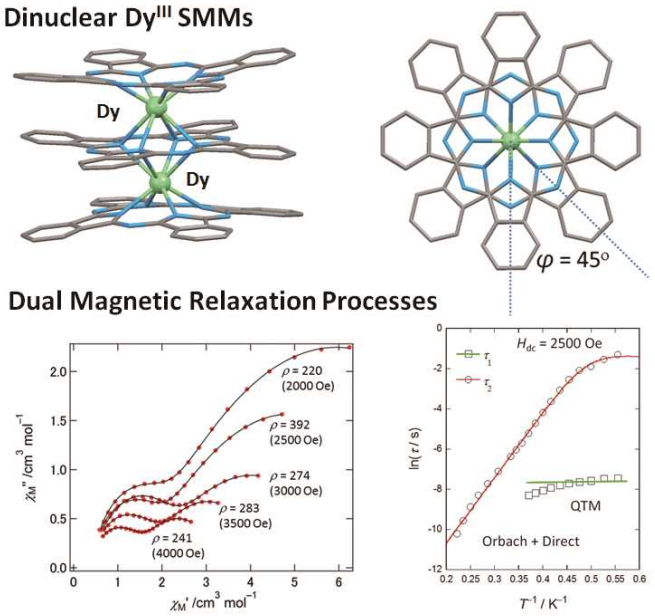


図6. Dy-Pc 三層積層型 SMM 錯体[(Pc)Dy(ooPc)Dy(Pc)]の結晶構造(上)(緑:Dy、灰色:C、薄青:N)と交流磁気特性(下)。外部磁場印加した 1.85 K の Cole-Cole plot。外部磁場に依存して二つの磁化緩和過程の分裂の割合(ρ)変化する。ρ = 1 のとき単緩和を示す。外部磁場 2500 Oe での周波数依存性の温度変化から求めた磁化緩和時間(τ)の Arrhenius plot。2.8 K 以下で QTM と Direct 過程の2種類が観測される。

7)光スイッチング機能を有する Mn 系単分子量子磁石の開発

①研究のねらい

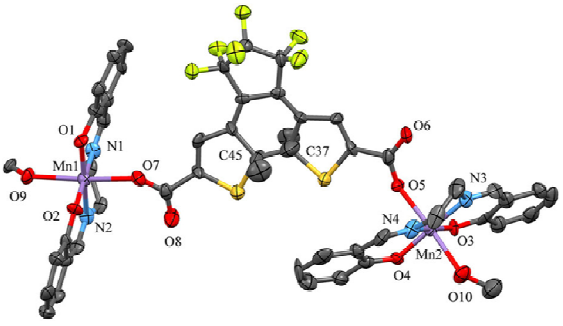
分子電子デバイスを実現するためには、デバイス内の各分子の特性を制御する必要がある。外場として光を利用することができれば、高速に磁気特性を制御できるスイッチング材料として光機能性材料の開発へ繋がると考えられる。我々は、光異性化ジアリールエテン配位子を使用することで、メモリデバイスに使用可能な単分子量子磁石(SMM)の磁気特性を光制御することを目指した。

②研究実施方法

光照射前後でジアリールエテン配位子の 6 員環の開閉を利用するため、2 つのマンガンサレン錯体ユニットをカルボン酸を介してジアリールエテン配位子と結合させた。

③当初の研究計画に対する現在の研究進捗状況と成果

2 つのマンガンサレン錯体ユニットをジアリールエテン配位子で架橋した分子は、光照射前後でジアリールエテン配位子の 6 員環の開閉に伴い SMM 挙動の有意な変化を引き起こした。我々の結果は、光照射するだけで SMM の挙動をオン・オフすることができるため、SMM で構成された分子メモリデバイスの実現に向けた大きな一歩と言える。



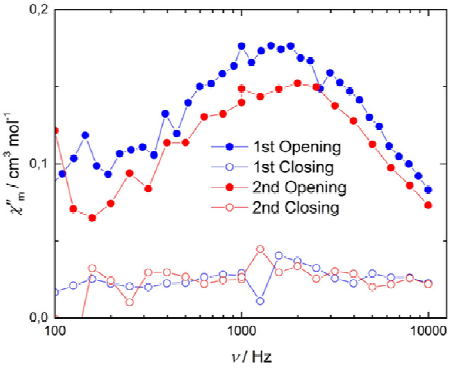


図7. ジアリールエテン配位子で架橋した2つのマンガンサレン錯体の結晶構造(右)。光照射のオン・オフに伴う交流磁気特性のオン・オフ挙動(SMM 特性)のオン・オフに成功した。

8)単分子量子磁石内包カーボンナノチューブの創製と解析

①研究のねらい

実際に個々の分子を孤立した磁石として扱うためには SMM 間の相互作用を十分制御する必要があり、またその実用化にはナノスケールの分子をマクロスコピックな我々の世界と繋げる架け橋が必要である。そのような架け橋の一つにカーボンナノチューブ(Carbon Nanotube : CNT)が挙げられる。CNT は炭素から成るチューブ状物質であり、高い電子物性や一次元の内部ナノ空間を有するという特徴を持つため、SMM と組み合わせることで時期物性の制御や、あるいはスピントロニクス等の応用的な展開も期待できる。そこで我々は、CNT の有する電子物性や一次元性を SMM と組み合わせるべく、CNT の内部に SMM を内包した「SMM 内包 CNT」の創製を試みた。SMM には分子直径が CNT の直径より小さい希土類金属からなる分子に着目し、(i)トリス(アセチルアセトナト)Dy(III)錯体($Dy(acac)_3$)、(ii)金属内包フラーレン $DySc_2N@C_{80}$、および(iii) $TbPc_2$ などを CNT へ内包した(図 a)。さらに磁化測定の結果、その SMM 特性の変調を確認できた。

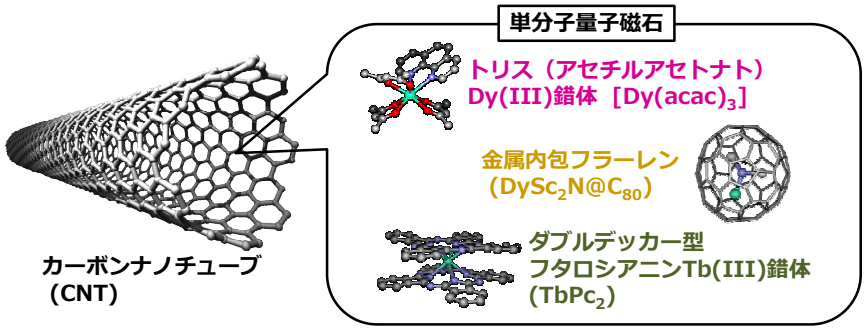


図 8-1. カーボンナノチューブおよび単分子量子磁石のモデル。

②研究実施方法

CNT は多層 CNT、および内包する分子に適した直径を有する単層 CNT を用意し、事前に酸処理および真空加熱処理による精製を施した。その後、大気下で加熱することにより開端し、これを SMM と共にパイレックス製ガラス管内に真空下で封じ加熱することで昇華・内包させる「昇華法」、および SMM を分散させた溶液中に浸し毛細管現象により内包させる「溶液法」により内包を行った。透過型電子顕微鏡(TEM)観察により内包を確認後、磁化測定を行い CNT への内包前後における SMM 挙動の違いを評価した。

(i) $Dy(acac)_3$ 錯体内包 CNT: 市販の SMM 特性を示す錯体 $Dy(acac)_3(H_2O)_2$ (S.-D. Jiang *et al.*, *Angew. Chem. Int. Ed.* **2010**, 49, 7448 -7451.)と、ここから1ステップで合成可能な錯体 $Dy(acac)_3$-フェナントロリン(phen) (G.-J. Chen *et al.*, *Dalton Trans.* **2011**, 40, 5579-5583.)について CNT への内包を試みた。$Dy(acac)_3(H_2O)_2$ 錯体(図 b(a))については平均内径 5nm の多層 CNT を用い、1,2-ジクロロエタン中における溶液法により内包した。図b(b)に示す TEM 像より多層 CNT 内に $Dy(acac)_3(H_2O)_2$ 錯体と思われるコントラストを確認でき、またエネルギー分散型 X 線(EDX)分析から Dy を確認することもできたため(図b(c))、内包に成功した。交流磁化率測定の結果周波数依存性を確認することが出来たため(図b(d))、CNT 内においても SMM 特性を保持していると思われる。明瞭なピークが確認できなかったため詳細な特性は不明であるが、Kramers-Kronig の式より頻度因子が 10^{-6} - 10^{-7} s、活性化障壁が 4 - 5 cm^{-1} であると見積もることが出来た(図b(e))。

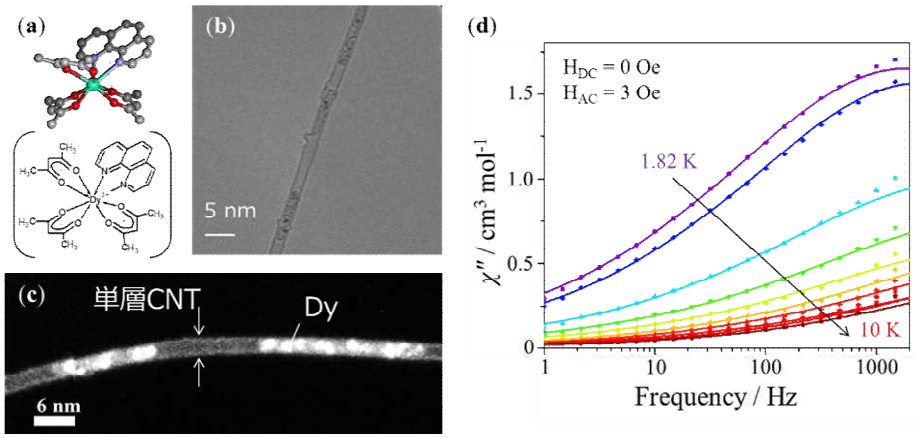


図 8-3. (a) Dy(acac)$_3$(phen)の分子構造。(b) Dy(acac)$_3$(phen)内包単層 CNT の TEM 像、(c) 走査 TEM による HAADF 像、および(d) 交流磁化率虚部の周波数依存性。実線はデバイの式によるフィッティング。

Dy(acac)$_3$(phen)錯体(図 c(a))については、まず反磁性の Y(acac)$_3$(phen)錯体を用い 10 倍に希釈したところ明瞭な磁気ヒステリシスを確認できるようになったため、分子間相互作用の制御により SMM 特性の向上が可能であることが示された。そこで CNT 内においても同様の効果の発現を期待し、直径 1.7±0.6 nm の単層 CNT に昇華法により内包させた。図 c(b)に示す TEM 像、および図 c(c)に示した走査 TEM を用いた高角度散乱暗視野(HAADF)像にて Dy 由来と思われるコントラストが CNT 内に観察でき、内包の成功を確認した。また交流磁化率測定の結果、こちらも周波数依存性を観察でき、単層 CNT 内でも SMM 特性を有することが確認できた(図 c(d))。交流磁化率においてピークの高周波数側へのシフト、および磁化の磁場依存性を測定したところ明瞭な磁気ヒステリシスは見られなかったことから、SMM 特性の向上は達成出来なかったが、CNT の内部空間を用いた SMM 特性の変調について、その可能性を得ることが出来た。

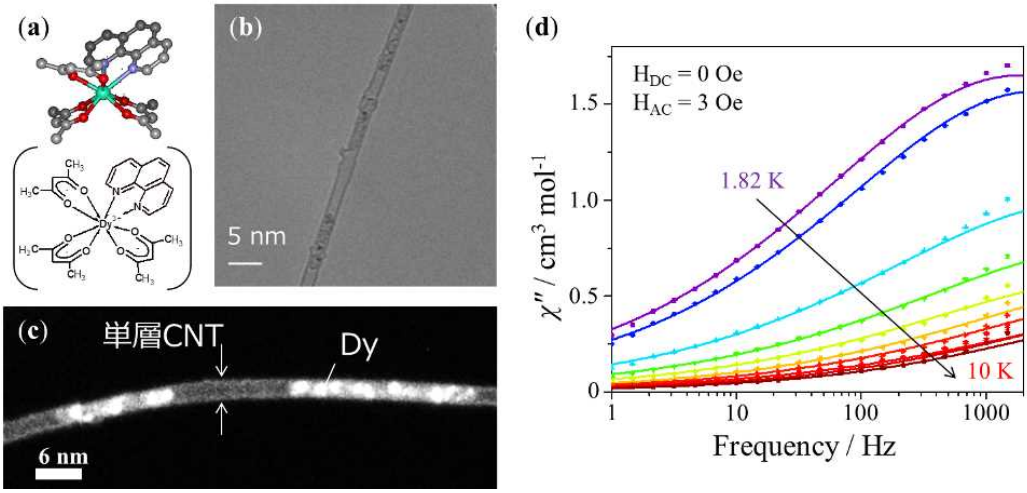


図 8-3. (a) Dy(acac)$_3$(phen)の分子構造。(b) Dy(acac)$_3$(phen)内包単層 CNT の TEM 像、(c) 走査 TEM による HAADF 像、および(d) 交流磁化率虚部の周波数依存性。実線はデバイの式によるフィッティング。

(ii) $DySc_2N@C_{80}$ 内包単層 CNT: 金属内包フラーレン $DySc_2N@C_{80}$ も SMM 特性を示す分子であり(R. Westerström *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.* **2012**, 134, 9840-9843.)、CNT との親和性が高く内包

が容易であると予想された。そこでまず、名古屋大学理学研究科の篠原久典教授との共同研究の下、$DySc_2N@C_{80}$ の合成を行った。合成は Dy・Sc 含有炭素ロッドを用いたアーク放電法により行い、高速液体クロマトグラフィーにより単離した。この時、NH_3 ガスを窒素源として用いることで収率の向上に成功した。

次に、直径 1.4±0.1 nm の単層 CNT を用い、昇華法により内包を行った。図 d(a)に示す TEM 像より単層 CNT 内にフラーレン由来の丸いコントラストが一次元的に並んだ様を観察でき、さらに図 d(b)に示した走査 TEM による HAADF 像において、Dy 由来の白いコントラストがフラーレンと対応する位置に明瞭に確認できた。EDX 分析から Dy と Sc も確認できたため、単層 CNT 内に $DySc_2N@C_{80}$ を内包し、一次元的に配列することに成功した。得られた磁化の磁場依存性を測定したところ、単層 CNT 内包後においても特異なステップ状のヒステリシスを示し、SMM 特性を失っていないことが確認できた(図 d(c))。さらに、内包前後で比較した際、内包前は 0.5 kOe 程度であった保磁力が内包後においては約 4 kOe と大幅に上昇していることが確認できた。これは、単層 CNT へ内包されることで $DySc_2N@C_{80}$ が一次元的に並び SMM 間のカップリングが制御された、あるいは単層 CNT と $DySc_2N@C_{80}$ の間に電子移動が生じ、結果として QTM が抑制されたためであると類推される。また、磁化の時間依存性を測定したところ、遅い磁化緩和も確認できた。

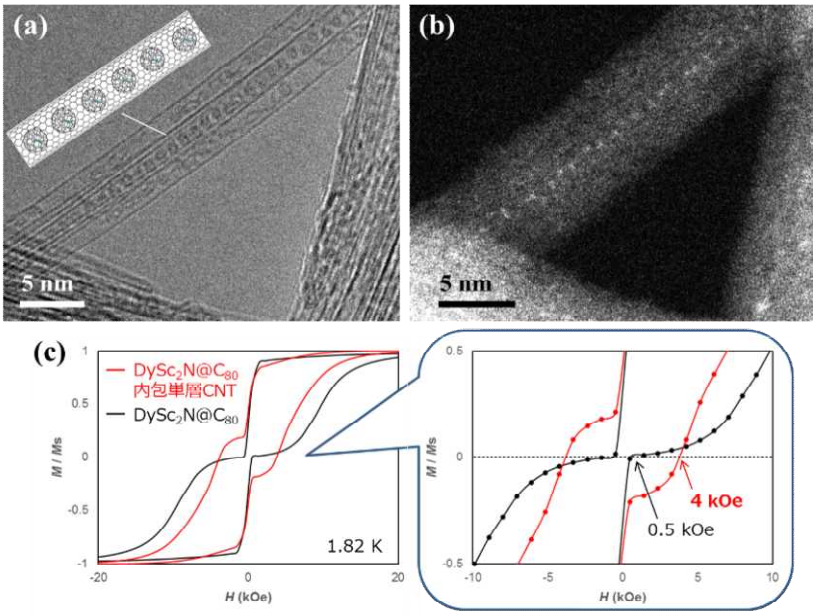


図 8-4. $DySc_2N@C_{80}$ 内包単層 CNT の(a)TEM 像、(b)走査 TEM による HAADF 像。(c)単層 CNT への内包前後における $DySc_2N@C_{80}$ の磁気ヒステリシス。

(iii)$TbPc_2$ 内包単層 CNT: $TbPc_2$ は直径約 1.5 nm と比較的大きいため、直径 2.4±0.6 nm の太めの単層 CNT を用い、メタノールを用いた溶液法により内包を試みた。TEM 像から部分的に $TbPc_2$ がスタックしたような像を得ることができ(図 e(a))、また EDX 分析(図 e(b)と走査 TEM による HAADF 像(図 e(c))から Tb の存在も確認でき、内包の成功を確認した。磁化の磁場依存性測定から内包前と同様にステップ状のヒステリシスを得ることができ、SMM 特性を維持していることが確認できた。また、交流磁化率測定からは、微弱ながらピークを確認することに成功した(図 e(d))。内包前と比較しピークが低温側にシフトしており、これは非磁性の YPc_2 で稀釈した場合に見られる現象であるため、磁場依存性の結果と合わせて考えると $TbPc_2$ のスタックは極部分的であり、単層 CNT 内に希釈された状態で存在すると予想される。また、得られた交流磁化率の結果から SMM 特性を評価したところ、その活性化障壁は約 470 cm^{-1} と求まった。内包前における活性化障壁は 410 cm^{-1} であり、単層 CNT 内包後も高い SMM 特性を保持したままであり、かつ少しではあるが向上に成功した。

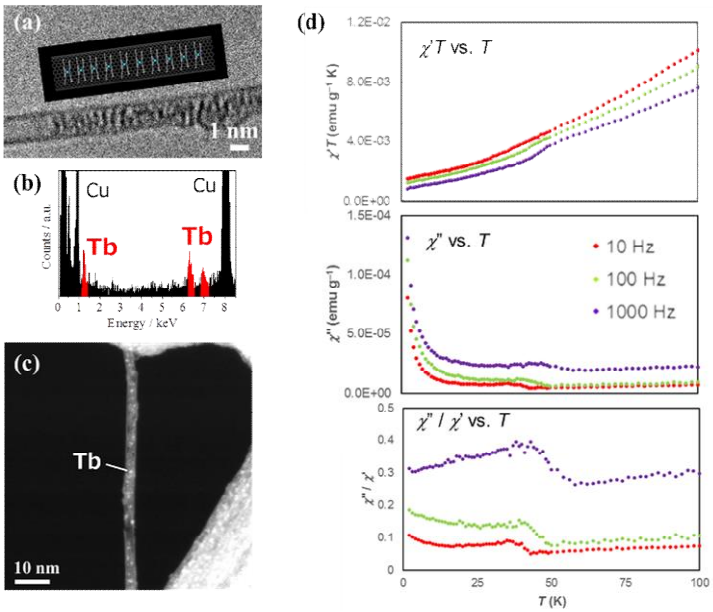


図 8-5. $TbPc_2$ 内包単層 CNT の(a)TEM 像、(b)EDX スペクトル、(c)走査 TEM による HAADF 像、および(d)交流磁化率の周波数依存性。

③当初の研究計画に対する現在の研究進捗状況と成果
本研究は SMM と CNT を組み合わせた新奇スピントロニクスの発現を目的としているが、その根幹をなす種々の SMM 内包 CNT の創製に成功した。とりわけ、単層 CNT の内部空間に内包させた例はこれが初であり、特に $DySc_2N@C_{80}$ と $TbPc_2$ については特性の向上とその詳細な評価に成功しており、本研究の重要な成果である。今後は SMM 内包 CNT を用いたデバイスを作製し、巨大磁気抵抗効果などのスピン機能の発現と評価を行う。

3．2 サブテーマ名・STM 計測手法を用いた単分子量子磁石の単分子メモリー・分子スピントロニクス応用（東北大学　米田グループ）

(1)研究実施内容及び成果

1) 量子 SMM へのスピン偏極 STM を用いたスピン情報の書き込み・読み取り

①研究のねらい
スピン偏極走査型トンネル顕微鏡/分光法(STM/STS)を用いた、トンネル磁気抵抗(TMR)効果の研究が盛んに行われているが、対象となる試料は主に強磁性体金属薄膜である。分子を用いたスピンによる電流制御は分子スピンエレクトロニクスとして研究が開始されているが、分子には無機物質にはない、長いスピン緩和時間、高い TMR 比率、あるいは構造と直結したスピン制御の容易なことなどの特徴がある。ここでは単一分子磁石を用いたこの効果を明らかにする。

②研究実施方法
本実験においては強磁性体である Co 薄膜上に単分子量子磁石テルビウム・2層フタロシアニン分子($TbPc_2$)を吸着させ(図1参照)、バルクの Cr 探針を用いた SP-STS を用いて外部磁場変化に対する TMR 効果による伝導率変化を観測した。

③当初の研究計画に対する現在の研究進捗状況と成果
Co 薄膜/Cr 探針を組み合わせた磁場-TMR 比プロットは先行研究が数例報告されており、常磁性的な Cr 探針の振る舞いと、Co 基板の残留磁場分極に由来する特徴的なバタフライ形状が観察される(図 2(a))。我々はこの振る舞いを確認することで探針と基板のスピン偏極を確認した後、

TbPc2 分子における磁場−TMR 比プロットを測定した。その結果は図2(b)に示すが、バタフライヒステリシスとは全く異なった挙動を示しており、例えば左から右へ磁場をスイープした場合、磁場が零になる以前にTMR比が減少する新奇な振る舞いが得られた。これは弱磁場において、TbPc2分子と Co 基板が反強磁性的に結合することで説明することができ、分子を用いた新しいスピンバルブ挙動を得たと考えられる

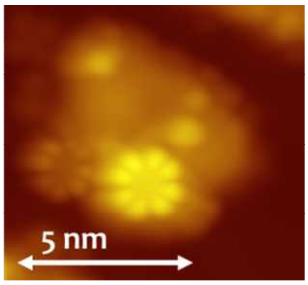


図 1 Au(111)上に成長した Co2ML 薄膜上に吸着した TbPc2 分子。

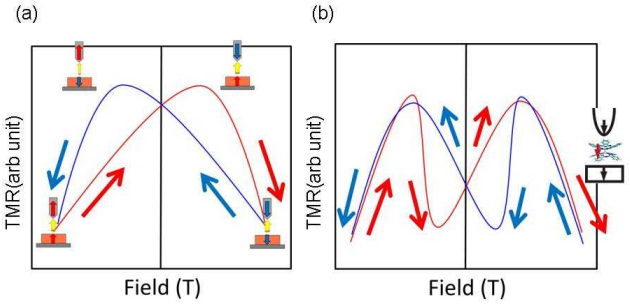


図 2 (a) Cr 探針/Co 基板で観察される磁場−TMR 比のプロット。バタフライ形状のヒステリシスが観察される。(b) Cr 探針/TbPc2/Co 基板で観察される磁場−TMR 比プロット。B=0 以前で減少が生じる複雑な構造を持つ。

2）分子マニュピレーションを用いたスピン・伝導電子相互作用の制御

①研究のねらい

トンネル電流による分子操作は、トンネル電流が原子レベルの極微空間に集中することから単分子単位の操作が可能である。さらに分子操作とスピン制御を組み合わせることで、単一スピンの制御を可能とする'分子技術'を検証するのに最適なツールである。具体的には、「いかなる分子コンフォーメション変化で分子のスピンが変化・制御可能か」という実験と、「空間的に制御可能なトンネル電流で実際の分子の操作が可能か」という2つの大きな問題を実空間で解決することができる。

②研究実施方法

最初に、水素化されたテルビウム・2層ポルフィリン錯体(2, 3, 7, 8, 12, 13, 17, 18−octaethylporphyrin (OEP)−Tb^{III} double−decker complex, (Tb^{III}(OEPH)(OEP))を用いてそれを実証した。先行研究で $Tb^{III}(OEP)_2$ は単一分子磁石であるが、その窒素原子に水素原子を付加した Tb^{III}(OEPH)(OEP)分子は単一分子磁石の性質を失うことが示されており、また同時にリガンドの不対パイ電子も消滅する。実験では Tb^{III}(OEPH)(OEP)分子の単分子膜を作成し、STM で観察後、ターゲット分子にトンネル電流を注入する。ここでは 1.5 V のエネルギーを持つトンネル電子を注入した。その結果、ターゲット分子のみが脱水素によって $Tb^{III}(OEP)_2$ 分子に変化した。分子のスピン検出は、それによって形成される近藤共鳴を検知する手法を用いた。

③当初の研究計画に対する現在の研究進捗状況と成果

図3のトンネル分光スペクトルに示すように水素化された Tb^{III}(OEPH)(OEP)分子ではフェルミエネルギー付近には構造が現れない。しかしながら、脱水素化後の分子においては明瞭な凹型のディップが観察できる。これは分子スピンによって形成される近藤共鳴を観察したものであり、脱水素化で単一分子磁石の挙動が復活したことを示している。分子操作は原子分解能を持って正確に制御することができ、図の右に示したように、単一分子の脱水素化から、パターン化された単一分子磁石の構造作成が可能なことを示している。この方法を用いれば、任意の構造を持つスピン分布における、スピンの挙動を検知することが可能である。この実験はトンネル電流注入で分子の脱水素化を単一分子単位で実現することが可能で、その化学変化で、単一分子磁石の挙動を誘起できることを世界に先駆けて示したと考えられる。

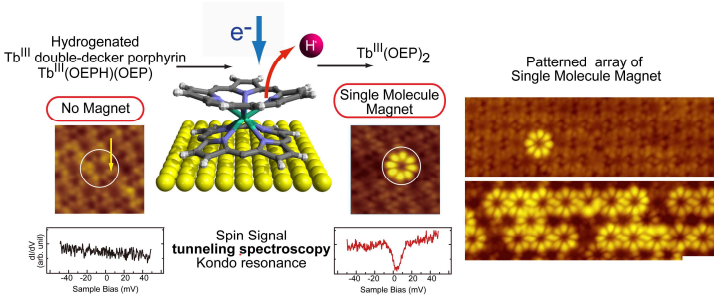


図 3 トンネル電流の注入による単一分子磁石のパターニング。水素化されたテルビウム・2層ポルフィリン錯体 (2, 3, 7, 8, 12, 13, 17, 18-octaethylporphyrin (OEP)-Tb^{III} double-decker complex, (Tb^{III}(OEPH)(OEP))にトンネル電流を注入することで脱水素化。

次に、コロールは ポルフィリン・フタロシアニン分子に類似の環状分子であるが、ポルフィリン・フタロシアニン分子 に比較して陰イオン価数 2-および 3-の状態に対するエネルギー差が小さく、僅かな構造変化たとえばベンゼン環の縮重に伴って、価数 2-および 3-を変化させる。その変化にともなって、中心に内包する金属の酸化数も変化し、スピンを保つ場合には磁性も変化することが予想される。これらはスピン磁性を制御する分子材料として優れた要素である 。ここでは 銅コロール copper 5,10,15-triphenylcorrole(Cu-TPC) とそれにベンゼン環を縮重させたテトラベンゾ銅コロール tetrabenzocorrole(Cu-Benzo)を金表面上に転写し、スピンの ON/Off の振る舞いを、走査トンネル顕微鏡を用いて明らかにした。(F. Wu et al., Nat. Comm. 6, 8547 (2015))

3) SMM 分子と表面相互作用制御によるスピン操作

①研究のねらい

近年、スピンの自由度を生かした情報処理に関心が持たれており、とりわけその材料に分子を用いた分子スピントロニクスについて多くの研究がなされている。分子磁石(SMM)は一つで磁石の性質を示す分子である。近年、多くの研究がなされているが、その磁石としての性質は、スピンが一旦ある方向を向いた場合に、逆の方向にスピンが向くまでの時間(緩和時間)が他の分子に比べて長いことから発現し、緩和時間内ではその磁石としての特性を保持できる。

本グループの研究目的は、走査型トンネル顕微鏡(STM)を主たる計測手法として、単分子量子磁石(SMM)、さらに STM 手法の特徴である原子分解能をもったスピン状態の読み取り・書き込みの制御技術を高度化する。同時に原子・分子操作技術を活用することで、単分子メモリー・分子スピントロニクス実現の基盤技術を確立するものである。2 層構造をもつテルビウムフタロシアニン分子($TbPc_2$)については、すでに金表面 Au(111)で吸着構造、電子構造およびスピンの振る舞いについて検討しているが、単一分子磁石をデバイス応用する場合、基板の変化とそのスピン挙動の理解は書くことが出来ない。ここでは銀表面に $TbPc_2$ を吸着させてその薄膜についての実験と理論計算を行った。一般的に貴金属のうち、分子との相互作用において、金が最も活性が低く、銀、銅と続くと考えられている。

②研究実施方法

まず、SMM 分子である $TbPc_2$ 分子の銀(111)表面上の吸着構造について測定した。

Ag(111)表面に吸着した $TbPc_2$ の吸着構造を図4(a)に示す。単層の正方格子が形成され、かつ2層目にも分子が観察されている。単層部分を拡大した図4(b)においては約 20 個の分子がほぼ正方形の格子を作り、かつそれらがチェッカー版の明暗を形成していることが分かる。これらは分子の上下の Pc 配位子の相対的な回転角度が 45°と 30°のものが交互に配置されていることで説明された。さらにコンダクタンスの空間分布を図5に示す。探針電圧によって 45°と 30°分子のコントラストが逆転している。これは分子軌道が 45°と 30°についてエネルギーにシフトが生じていることを示している。

つぎに、Ag(111)表面に吸着した $TbPc_2$ のスピン挙動について調べた。単層吸着層について、

Au(111)に吸着した場合に見られた、近藤共鳴は観察されなかった。これは分子と Ag(111)表面の強い相互作用によって分子のラジカル軌道に電子移動が生じ、そのためにラジカルが消滅したため観察されなかったと考えられる。しかしながら 2 層目に吸着した分子について、明瞭な近藤共鳴が観察された。これは Ag(111)表面との強い相互作用が一層目の分子層の存在によって弱められ、ラジカルスピンが生き残ったためと考えられる。さらに興味深いことは、この系に外部磁場 2 T を印加した場合、ピークとして観察されていた近藤共鳴が、ディップに変化することである。この 2 T でディップに観察された現象は、非弾性トンネル過程と考えられる。すなわちトンネル過程で、磁場中のスピンの反転に由来する、ゼーマンエネルギーに相当するエネルギーの励起が生じた場合、トンネル電流にはコンダクタンスの増加が生じる。これは図6に示したような変化をトンネル分光に生じる。2 層目に吸着した分子ではこのような非弾性過程によるスピン励起過程が選択的に観察されることを初めて示した。

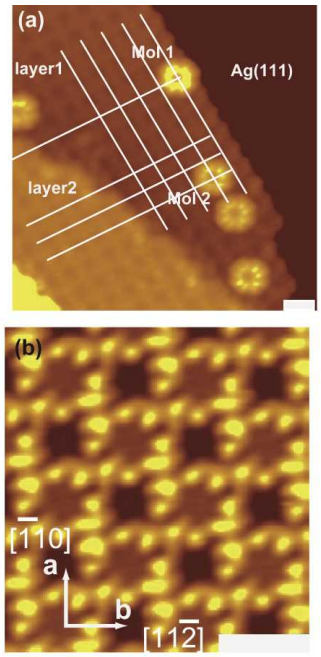


図4. (a) Ag(111)表面 $TbPc_2$ 分子の STM の topo 像 (b) 単層分子膜 STM 像拡大像。 V= − 1.3 V and I=0.2 nA, 分子 4×5 の格子. 長さスケールは 2.0 nm

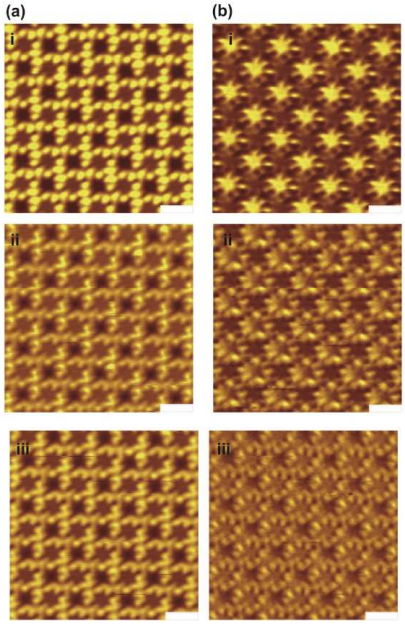


図5. Ag(111)表面 $TbPc_2$ 分子の STM の topo 像(左)、コンダクタンスマッピング(右)。(i) −1.0 V, (ii) −1.6 V and (iii) −1.8 V

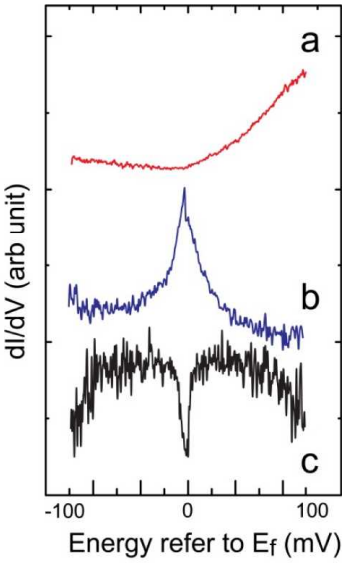


図6. Ag(111)表面 $TbPc_2$ 分子の配位子で測定された dI/dV スペクトル。1 層目の分子(a), 2 層目の分子(b).(c)外部磁場(2 T)印加時に観察されたディップ。

3) デバイス素子への展開

① 研究のねらい

単分子量子磁石の外部磁場に反応するデバイスとして、電極間に直接分子を配置し電極にサンドイッチさせる手法と、分子を表面に吸着させ間接的に伝導特性を制御する2つの手法に分ける事が可能である。後者の間接的手法は電極による分子ダメージが小さく単一分子磁石デバイス作製の有力な候補である。ここでは間接的手法を用いて単一分子磁石を用いたデバイス動作の検証を行う。

② 研究実施方法

デバイス構造としてゲート部分に単分子量子磁石を配置しそのスピンの向きでソース・ドレイン間の電流を制御する。単分子量子磁石が及ぼす相対的影響が大きいことがデバイス動作にとって有利である。単層で動作するグラフェンや 2 硫化モリブデン(MoS_2)といった層状物質を単層単位で使用

するデバイスでは単分子量子磁石のスピンの影響が伝導特性に十分反映されると予想される。これらの物質を用いた電界効果トランジスター(FET)は大きな期待が寄せられる。しかしながらグラフェンは本来金属的な伝導特性をもつためグラフェン FET 作成のためにはナノリボンへの加工が必要とされ、加工過程を複雑にする煩雑さが問題であった。それに比較して、MoS_2 は本来半導体的な振る舞いを示すため、FET の作成の簡便化が可能である。そこで我々は産総研・総括研究主幹安藤淳氏らと共同し、MoS_2 単層 FET デバイスを作成、その MoS_2 部分に単一分子磁石を蒸着を用いて配置し、その FET 特性が単一分子磁石のスピンの向きによって制御されることを実験で示す。

③ 初の研究計画に対する現在の研究進捗状況と成果

実際に作成したデバイスの概念図は図7(a)に示す。単層 MoS_2 は両端に金属電極を配置しソース・ドレインとして用い、MoS_2 表面上に単一分子を配置する。実際に作成したデバイスを 図7(c)に示す。このデバイスは単分子量子磁石蒸着前に FET として動作することが確認された。さらに単分子量子磁石を蒸着させて作成したデバイスについて測定した FET 特性を測定し、蒸着量に比例して FET 特性が変化することを実証した。磁場印加によるスピンを用いた伝導特性変化に関する研究が進行中である。

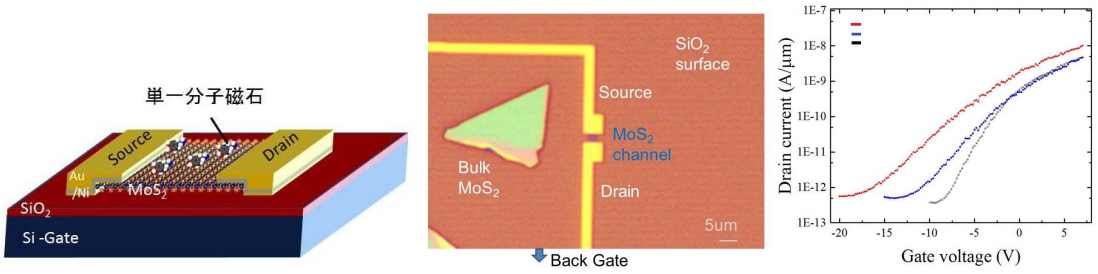


図7.(a、左)MoS_2 単層膜を用いた電界効果トランジスタに単一分子磁石を組み合わせたデバイス構造の概念図。(b, 中)試作した MoS_2 電界効果トランジスタの光学顕微鏡像(c, 右)トランジスタの特性。単分子量子磁石テルビウム・2層フタロシアニン分子($TbPc_2$)の吸着量、黒=0 Å、青=0.5 Å、赤=1.0 Å

3.3 サブテーマ名・単分子量子磁石の構造・電子状態・物性発現の量子化学的アプローチによる解明と分子技術への展開 (大阪大学 北河グループ)

(1)研究実施内容及び成果

本研究では「単分子量子磁石の構造・電子状態と磁性および関連物性に関して、量子化学研究に基づく原理解明と分子設計および予測を行うこと」を目的とし、以下の3点に関し研究を行い成果を上げた。(1)Tb-フタロシアニンダブルデッカー型単分子量子磁石($TbPc_2$)および関連物質の基本的な電子状態を量子化学計算に基づき明らかにした。その際、本系の量子化学計算に最適な手法および基底関数などを探り、構造や電子状態など、実験で得られた結果と比較し有効なアプローチを確立した。(2)上記化合物系における、分子内および分子間磁気的相互作用に関して、量子化学計算により明らかにすることに成功した。(3)実験的に得られている、TbPc 錯体の安定状態のみならず、準安定状態の分子構造を量子化学計算により求め、電子状態や分子内磁気的相互作用を明らかにした。(4)同化合物系を、基板上に担持した際の電子状態と磁気挙動の変化を明らかにすることに成功した。特にフェルミエネルギーの異なる担体、具体的には Au、Ag、Cu を用いた際の、π ラジカルの挙動を詳細に調べ、有効な基板・担体あるいは電極の設計に向けた理論構築を行った。

また、以上の結果から、フタロシアニンの置換基を変えた場合の磁気挙動を量子化学計算により明らかにし、より有効な分子を設計するという視点から研究を進めた。これらの研究は、計算結果を実験グループへとフィードバックする事により、常に実験グループと密接に連携して進めた。

３.４ サブテーマ名・導電性単分子量子磁石の電流磁気特性およびスピントロニクスデバイスの作成（京都大学　白石グループ）

(1)研究実施内容及び成果

(1)研究実施内容及び成果

分子磁性体のスピンデバイスへの適用検討については、無機半導体ないし金属を用いたスピントロニクスにおいてバルクの強磁性秩序が要求されている点に留意して研究を進めた。当グループでは電気的・動力学的（磁化ダイナミクスを用いた電流を用いないスピン注入法）スピン注入手法を既に確立しているが、そのいづれもにおいて、スピン注入源には強磁性秩序が要求される。現時点では量子分子磁石はいわゆる超常磁性状態であるため、同様の手法はとれない。そのため、当グループが Co ナノ粒子を用いて実現したグラニュラ型スピン素子を参考に、スピン源を強磁性金属から量子分子磁石に変更した素子を作製して動作を確認したが、超常磁性が発現する温度領域では抵抗が大きくなりすぎるため、期待された磁気抵抗効果は観測されなかった。今後の指針としては、T_c の上昇と、可能であれば強磁性秩序の発現、また伝導度の大きな量子分子磁石の開発が重要であることがわかった。また、分子性材料のスピン輸送・スピン変換機能の開拓も別に行い、将来的な量子分子磁石と分子性導体の融合による新機能スピン輸送・スピン変換素子につながる基盤の構築も行った。分子性材料としては最も好適なグラフェンを用いて、そのスピン変換物性と、背景の学理の探索と理解に成功した（APL2013, PRL2016）。

§４ 成果発表等

①山下グループ（国内（和文）誌 0 件、国際（欧文）誌 77 件）

●1
R. Ishikawa, B. K. Breedlove, and M. Yamashita, “Crystal Structure and Magnetic Properties of A Dinuclear Iron (III) Complex with A Face-to-Face Encounter Bis (Salen)-Type Ligand”, Eur. J. Inrog. Chem., 716-719, 2013.

●2
L. Pilia, E. Sessini, F. Artizzu, M. Yamashita, A. Serpe, K. Kubo, H. Ito, H.Tanaka, S. Kuroda, J. Yamada, P. Deplano, C. J. Gómez-García, and M. L. Mercuri, “New BDH-TTP/[M^{III}(C5O5)3]3- (M=Fe, Ga) Isostructural Molecular Metal”, Inorg. Chem., 52, 423-430, 2013.

●3
M. Ren, D. Pinlowicz, M. Yoon, K. Kim, L. –M. Zheng, B. K. Breedlove, and M. Yamashita, “Dy(III) Single-Ion Magnet Showing Extreme Sensitivity to (de)hydration”, Inorg. Chem., 52, 8342-8348, 2013.

●4
M. Shin, S. Takaishi, S. Kumagai, Y. Ueda, B. K. Breedlove, H. Matsuzaki, H. Okamoto, Y. Wakabayashi, and M. Yamashita, “Smallest Optical Gap for Quasi-One-Dimensional Iodo-Bridged Platinum Compounds via Chemical Pressure”, Dalton Trans., 42, 6277-6280,2013.

●5
R. Ishikawa, R. Miyamoto, H. Noyori, B. K. Breedlove, and M. Yamashita, “Slow Relaxation of the Magnetization of an MnIII Single-Ion, Inorg. Chem., 52, 8300-8302, 2013.

●6
R. Ishikawa, M. Nakano, B. K. Breedlobe, and M.Yamashita, “Syntheses, Structures, and Magnetic Properties of Discrete Cyano-Bridged Heterodinuclear Complexes Composed of Mn^{III} (Salen)-Type Complex and M^{III}(CN)6 Anion (M^{III}=Fe, Mn, and Cr)”, Polyhedron (Invited) , 64, 346-351,2013.

●7

M. Damjanovic, K. Katoh, M. Yamashita, and M. Enders, “Combined NMR Analysis of Huge residual Dipolar Couplings and Pseudocontact Shifts in Terbium(III)-Phtahlocyaninato Single-Molecule Magnets, J. Am. Chem. Soc., 135, 14349,2013.

●8

K. Maruyama, J. Li, W. Takahashi, S. Hotta, S. Takaishi, and M. Yamashita, “Fabrication of one-dimensional grating structure on organic single-crystal surface, Jpn. J. Appl. Phys., 53, 02BC19-1- 4,2013.

●9

H. Iguchi, S. Takaishi, D. Jiang, J. Xie, M. Yamashita, A. Uchida, and H. Kawaji, “Negative Differential Resistance in MX- and MMX-Type Iodide-Bridged Platinum Complexes, Inorg. Chem., 52, 13812-13814, 2013.

●10

S. Takaishi, M. Hada, N. Ishihara, B. K. Breedlove, K. Katoh, M. Yamashita, “Coordination mode-tuned stacking motif in alkali metal salts of $Ni(pdt)_2$ complexes (pdt = 2,3-pyrazinedithiol) and its physical properties”, Polyhedron, vol. 52, pp. 333-338, 2013.

●11

W. –X. Zhang, R. Ishikawa, B. K. Breedlove, and M. Yamashita, “Single-Chain Magnets: Beyond the Glauber Model”, RSC Advances, 3, 3772-3798, 2013.

●12

T. Morita, K. Katoh, B. K. Breedlove, M. Yamashita, “Controlling the Dipole−Dipole Interactions between Terbium(III) Phthalocyaninato Triple-Decker Moieties through Spatial Control Using a Fused Phthalocyaninato Ligand”, Inorganic Chemistry, 52, pp13555–13561, 2013.

●13

M. Damjanovic, K. Katoh, M. Yamashita, M. Enders, “Combined NMR Analysis of Huge Residual Dipolar Couplings and Pseudocontact Shifts in Terbium(III)-Phthalocyaninato Single Molecule Magnets”, J. Am. Chem. Soc, 135, pp14349–14358, 2013.

●14

T. Komeda, H. Isshiki, J.Liu, K. Katoh, M. Shirakata, B. Breedlove, and M. Yamashita, “Switching of the Kondo Resonance of a 2,3-Naphthalocyaninato Phthalocyaninato Tb(III) Double-Decker Complex via Surface Chirality”, ACS Nano, 7, 1092-1099, 2013.

●15

T. Komeda, H. Isshiki, J. Liu, T. Morita, K. Katoh, and M. Yamashita, “First Observation of a Kondo Resonance for a Stable Neutral Pure Organic Radical”, 1,3,5-Triphenyl-6-Oxoverdazyl, Adsorbed on Au(111), J. Am. Chem. Soc., 135, 651-658, 2013.

●16

R. Ishikawa, R. Miyamoto, H. Noyori, B. K. Breedlove, and M. Yamashita, “Slow Relaxation of the Magnetization of an Mn^{III} Single-Ion”, Inorg. Chem., 52, 8300-8302 2013.

●17

T. Komeda, K. Katoh, and M. Yamashita, “Double-Decker Phthalocyanine Complexes; Scanning Tunneling Microscopy Study of Film Formation and Spin”, Progress in Surface Science, 89, 127-160, 2013.

●18

M. Yamashita, K. Kubo, M. Niwa, H. Ito, H. Tanaka, S. Kuroda, J. Yamada, “New BDH-TTP/

$[M^{III}(C_5O_5)_3]^{3-}$ (M=Fe, Ga) Isostructural Molecular Metal," Inorg. Chem., 52, 423-430, 2013.

●19

K. Katoh, R. Asano, A. Miura, Y. Horii, T. Morita, B. K. Breedlove M. Yamashita, "Effect of f–f interactions on quantum tunneling of the magnetization: mono- and dinuclear Dy(III) phthalocyaninato triple-decker single-molecule magnets with the same octacoordination environment", Dalton Transactions, 43,7716-7725, 2014.

●20

H. Iguchi, S. Takaishi, and M. Yamashita, "Recent Progress in MMX-Chain Complexes: Unique Electronic States and Characteristics Developed by Introducing Binary Counterions", Chem. Lett., Highlight Review (Invited), 43, 69-79, 2014.

●21

T. Komeda, K.Katoh, M. Yamashita, "Double-decker phthalocyanine complex: Scanning tunneling microscopy study of film formation and spin properties", Progress in Surface Science, Elsevier, 89,127-160, 2014.

●22

H. Iguchi, A.Nafady, S. Takaishi, M. Yamashita, A. M. Bond, "Solid-State Electrochemistry of a Semiconducting MMX-Type Diplatinum Iodide Chain Complex", Inorg. Chem., 53, 4022-4028, 2014.

●23

H.Iguchi, S. Kitao, M. Seto, S. Takaishi, M.Yamashita, " Predominance of covalency in water-vapor responsive MMX-type chain complexes revealed by 129I Mössbauer spectroscopy", Dalton Trans., 43, 8767-8773, 2014.

●24

S. Kumagai, S. Takaishi, B. K. Breedlove, H. Okamoto, H. Tanaka, S. Kuroda, M. Yamashita, "Bromide-Bridged Palladium (III) Chain Complex Showing Charge Bistability Near Room Temperature", Chem. Commun., 50, 8382-8384, 2014.

●25

K. Maruyama, J. Li, W. Takahashi, S. Hotta, S. Takaishi, and M. Yamashita, "Fabrication of one-dimensional grating structure on organic single-crystal surface", Jpn. J. Appl. Phys., 53,2BC19-1-4, 2014.

●26

B. K. Breedlove, R. Kandel, and M. Yamashita, "4-Pyridyl Azacycloalkanes Prepared via a Solvent-free Method for Use as Linkers in Electrocatalysis", Dalton Trans., 43, 7683-7686, 2014.

●27

H. Matsuzaki, M. Iwata, K. Iwano, S. Takaishi, M. Takamura, S. Kumagai, M. Yamashita, and H. Okamoto, "Excitation-Photon-Energy Selectivity of Photo-Conversion in Halogen-Bridged Pd-Chain Compounds –Mott Insulator to Metal or Charg-Density-Wave State", Phys. Rev. Lett., 113, 096403(1-6), 2014.

●28

T. Komeda, H. Isshiki, J. Liu, K. Katoh. and M. Yamashita, "Variation of Kondo Temperature Induced by Molecule-Substrate Decoupling in Film Formation of Bis(phthalocyaninato)terbium(III) Molecules on Au(111)", ACS Nano, 8, 4866-4875, 2014.

●29

D. Pinkowicz, M. Ren, L.-M Zheng, S. Sato, M. Hasegawa, M. Moritomo, M. Irie, B. Breedlove, C. Goulven, K. Katoh, and M. Yamashita, "Control of the Single-Molecule Magnet Behavior of Lanthanide-Diarylethene Phtochromic Assemblies by Irradiation with Light", Chem. Eur. J, 20, 12502-12513, 2014.

●30

S. Kumagai, H. Iguchi, S. Takaishi, M. Yamashita, H. Matsuzaki, H. Okamoto, K. kato, and M. Takata, "Continuous Control of Optical gap by Utilizing Chemical Pressure in

Quasi-One-Dimensional, Bromo-Bridged Platinum Complex", Inorg. Chem., 53, 11764-11769, 2014.

●31

T. Komeda, K. Katoh, and M. Yamashita, "Double-Decker Phthalocyanine Complexes; Scanning Tunneling Microscopy Study of Film Formation and Spin", Progress in Surface Science, 89, 127-160, 2014.

●32

H. Iguchi, S. Takaishi, and M. Yamashita, "Recent Progress in MMX-Chain Complexes: Unique Electronic States and Characteristics Developed by Introducing Binary Counterions", Chem. Lett., Highlight Review (Invited), 43, 69-79, 2014.

●33

Y. Horii, K. Katoh, N. Yasuda, B. K. Breedlove, and M. Yamashita, "Effects of f-f Interactions on the Single-Molecule Magnet Properties of bium(III)-Phthalocyaninato, Quintuple-decker Complexes", Inorg. Chem., 54, 3297-3305, 2015.

●34

G. Cosquer, B. K. Breedlove, M. Yamashita, "Remote Control of SMM Behavior via DTE Ligands", Dalton Trans., 44, 2936-2942, 2015.

●35

G. Cosquer, M. Morimoto, M. Irie, A. Fetoh, B. K. Breedlove, M. Yamashita, "Photo-control of the magnetic properties of Dy(III) amd Ho(III) homometal coordination polymers bridged by a diarylethene ligand", Dalton Trans., 44, 5996-6002, 2015.

●36

S. Kumagai, S. Takaishi, H. Iguchi, and M. Yamashita, "Charge-bistable Pd (III)/Pd (ll,lV) coordination polymers: phase transition and their applications to optical properties", Dalton Trans., 44, 8590-8599, 2015.

●37

Y. Aono, H. Yoshida, K. Katoh, B. K. Breedlove, K. Kagesawa, and M. Yamashita, "Tuning Interchain Interactions in Two-Dimensional Networks of Mn(lll) Schiff-Base Complexes and Dicarboxylic Acids by Varying the Linker", Inorg. chem., 54(14) 7096-7102, 2015.

●38

M. Damjanovic, T. Morita, K. Katoh, M. Yamashita, and M. Enders, "Solution NMR Analysis of Unpaired Electron Distribution in Ligand Radical Bis(phthalocyaninato)lanthanide Single Molecule Magnets", Chem. Eur. J., 21(41) 14421-14432, 2015.

●39

G. Kieslich, S. Kumagai, K. T. Butler, T. Okamura, C. H. Hendron, M. Yamashita, A. Walsh, and A. K. Cheetham, Role of entropic effects in controlling the polymorphism in ferroelectric formate frameworks, chem. Commun., 51(85)15538-15541, 2015.

●40

M. Damjanovic, Y. Horie, T. Morita, Y. Horii, K. Katoh, M. Yamashita, and M. Enders, Alpha-Substituted Bis(octabutoxyphthalocyaninato)Terbium(III): Preparation and Study of Protonation by NMR and DFT, Inorg. Chem., 54(24) 11986-11992, 2015.

●41

R. Modak, Y. Sikdar, G. Cosquer, S. Chatterjee, M. Yamashita, and S. Gosawami, Heterometallic Cu (ll)-Dy (III) clusters of differnt nuclearities with slow magnetic relaxation, Inorg. Chem., 55(2) 691-699, 2015.

●42

K. Katoh, T. Komeda, M. Yamashita , Frontier of Molecular Spintronics Based on Multiple-Decker Phthalocyaninato Tb(lll) Single-Molecule Magnets, Chemical Record.,

16(2)987-1016, 2015.
●43
K. Katoh, B. K. Breedlove, M. Yamashita ,Symmetry of octa-coordination environment has a substantial influence on dinuclear TbIII triple-decker single-molecule magnets, Chemical Science., 7,4329-4340, 2016.
●44
Y. Shen, G. Cosquer, Brian. K. Breedlove and M. Yamashita, Hybrid Molecular Compound Exhibiting Slow Magntic Relaxation and Electrical Conductivity, Magnetochemistry, 2, 44, 2016.

●45
R. Modak, Y. Sikdar, G. Cosquer, S. Chatterjee, M. Yamashita and S. Goswami, Heterometallic Cu(II)-Dy(III) Clusters of Different Nuclearities with Slow Magnetic Relaxation, Inorg. Chem., 55(2), 691-699, 2016.
●46
Y. Horii, K. Katoh, G. Cosquer, B. K. Breedlove and M. Yamashita, Weak Dy(III)-Dy(III) Interaction in Dy(III)-Phthalocyaninato Multiple-Decker Single-Molecule Magnets Effectively Suppress Magnetic Relaxation, Inorg. Chem., 55(22), 11782-11790, 2016.
●47
R. Nakanishi, M. A. Yatoo, K. Katoh, Brian. K. Breedlove and M. Yamashita, Dysprosium Acetylacetonato Single-Molecule Magnet Encapsulated in Carbon Nanotubes, Materials, 7, 10(1), 2016.
●48
F. Ara, Z. K. Qi, T. Komeda, K. Katoh and M. Yamashita, A Scanning Tunneling Microscopy Study of Electronic and spin states of Bis(phthalocyaninato)terbium(III) (TbPc2) Molecules on Ag(111), Dalton Trans., 45, 16644-16652, 2016.
●49
M. Damjanovic, T. Morita, Y. Horii, K. Katoh, M. Yamashita and M. Enders, How Ions Arrange in Solution: Detailed Insight from NMR Spectroscopy of Paramagnetic Ion Pairs, chemphyschem, Vol 17, Issue21, 3423-3429, 2016.
●50
Barbara Sieklucka, Dawid Pinkowicz, Masahiro Yamashita andKeiichi Katoh, Single Molecule Magnets, Wiley,4, 79-101, 2016.
●51
R. Ishikawa, S. Ueno, S. Kawata, Y. Horii, R. Nakanishi, B. K. Breedlove and M. Yamashita, Field-Induced Single-Ion Magnetism Based on Spin-Phonon Relaxation in a Distorted Octahedral High-Spin Cobalt(II) Complex, Eur. J. Inorg. Chem, issue20, 3220, 2016.
●52
Y. Hosomi, S. Yoshida, A. Taninaka, T. Yoshida, S. Takaishi, O. Takeuchi, M. Yamashita and H. Shigekawa, Temperature dependence of Peierls–Hubbard phase transition in [Pd(cptn)2Br]Br2 studied by scanning tunneling microscopy, Jpn. J. Appl. Phys,Vol55, 55, 08NB16, 2016.
●53
G. Kieslich, S. Kumagai, A. C. Forse, S. Sun, S. Henke, M. Yamashita, C. P. Grey and A. K. Cheetham, Tuneable mechanical and dynamical properties in the ferroelectric perovskite solid solution [NH3NH2](1-x)[NH3OH]x Zn(HCOO)3, Chemical Science,7,5108-5112, 2016.
●54
S. Mu, K. Oniwa, T. Jin, N. Asao, M. Yamashita and S. Takaishi, A highly emissive distyrylthieno[3,2-b]thiophene based red luminescent organic single crystal: Aggregation induced emission, optical waveguide edge emission, and balanced

ambipolar carrier transport, Organic Electronics., 34, 23-27, 2016.

●55

M. A. Yatoo, G. Cosquer, M. Morimoto, M. Irie, B. K. Breedlove and M. Yamashita, 1D Chains of Lanthanoid Ions and a Dithienylethene Ligand Showing Slow Relaxation of the Magnetization, Magnetochemistry , 2(2), 21, 2016.

●56

K. Katoh, T. Komeda and M. Yamashita, The Frontier of Molecular Spintronics Based on Multiple-Decker Phthalocyaninato TbIII Single-Molecule Magnets, The Chemical Record vol16 Issue2, 987-1016, 2016.

●57

A. Fetoh, G. Cosquer, M. Morimoto, M. Irie, O. El-Gammal, G. A. El-Reash, B. K. Breedlove and M. Yamashita, Photo-activation of Single Molecule Magnet Behavior in Manganese-based Complex, Scientific Reports 6, 23785, 2016.

●58

S. Wang, W. T. Xu, W. R. He, S. Takaishi, Y. H. Li, M. Yamashita and W. Huang, Structural insights into the counterion effects on the manganese (III) spin crossover system with hexadentate Schiff-base ligands, Dalton Trans., 45, 5676-5688, 2016.

●59

Z. Y. Li, H. Ohtsu, T. Kojima, J. W. Dai, T. Yoshida, B. K. Breedlove, W. X. Zhang, H. Iguchi, O. Sato, M. Kawano and M. Yamashita, Direct Observation of Ordered High-Spin–Low-Spin Intermediate States of an Iron (III) Three-Step Spin-Crossover Complex, Angew. Chem. Int. Ed., 55, 5184-5189, 2016.

●60

T. Yoshida, S. Takaishi, H. Iguchi, H. Okamoto, H. Tanaka, S. Kuroda, Y. Hosomi, S. Yoshida, H. Shigekawa, T. Kojima, H. Ohtsu, M. Kawano, B. K. Breedlove, L. Guerin, and M. Yamashita, Optically Visible Phase Separation between Mott-Hubbard and Charge-Density-Wave Domains in a Pd-Br Chain Complex, Chemistry Select, Vol1, Issue2, 259-263, 2016.

●61

E. Moreno Pineda, T. Komeda, K. Katoh, M. Yamashita, M. Ruben: Surface confinement of TbPc2-SMMs: structural, electronic and magnetic properties, Dalton Trans. 45, 18417-18433, 2016.

●62

Y. Shen, G. Cosquer, B.K. Breedlove, M. Yamashita, Hybrid Molecular Compound Exhibiting Slow Magnetic Relaxation and Electrical Conductivity, Magnetochemistry , 2(4), 44, 2016.

●63

R. Nakanishi, M. Ahmad Yatoo, K. Katoh, B.K. Breedlove, M. Yamashita, Dysprosium Acetylacetonato Single-Molecule Magnet Encapsulated in Carbon Nanotubes, Materials, 10(1), 7, 2017.

●64

H. Iwami, R Nakanishi, Y. Horii, K. Katoh, B. K. Breedlove, M. Yamashita, Metal-Organic Framework of Lanthanoid Dinuclear Clusters Undergoes Slow Magnetic Relaxation, Materials , 10(1), 812017.

●65

T. Yamabayashi, K Katoh, B. K. Breedlove, M. Yamashita,
Molecular Orientation of a Terbium (III)-Phthalocyaninato Double-Decker Complex for Effective Suppression of Quantum Tunneling of the Magnetization, Molecules, 22(6), 999, 2017.

●66

Y. Horii, K. Katoh, B. K. Breedlove and M. Yamashita,
Elongation of Magnetic Relaxation Times in a Single-Molecule Magnet throuth

Intermetallic Interactions: Clamshell-Type Dinuclear Terbium (III)-Phthalocynaninato Quadruple-Decker Complex, Chem. Commun., 53, 8561, 2017.
●67
K. Katoh, Y. Aizawa, T. Morita, B. K. Breedlove and M. Yamashita,
Elucidation of Dual Magnetic Relaxation Processes in Dinuclear Dysprosium(III) Phthalocyaninato Triple-Decker Single-Molecule Magnets Depending on the Octacoordination Geometry, Chem. Eur. J., , 23, 1-11, 2017.
●68
S. Wang, Y. Juan, F. Ju, W. Xu, K. Kagesawa, Y. Li, M. Yamashita and W. Huang,
The Molecular and supramolecular aspects in mononuclear manganese (III) Schiff-base spin crossover complexes, Dalton Trans., 46, 11063-11077, 2017.
J69
Y. Horii, Y. Horie, K. Katoh, B. K. Breedlove and M. Yamashita,
Changing Single-Molelcule Magnet Properties of a Windmill-Like Distorted Terbium (III) α-Butoxy Substituted Phthalocyaninate Double-Decker Complex by Protonation/Deprotonation, Inorg. Chem., 57, 565-574, 2017.
●70
R. Murdey, K. Katoh, M. Yamashita, N. Sato,
Thermally Activated Electrical Conductivity of Thin Films of Bis (phthalocyaninato) Terbium (III), Thin Solid Films, 646, 17-20, 2018.
●71
H. Zhang, R. Nakanishi, K. Katoh, B. K. Breedlove, Y. Kitagawa and M. Yamashita,
Low coordinated mononuclear erbium (III) single-molecule magnets with C3v symmetry: a method for altering single-molecule magnet properties by incorporating hard and soft donors, Dalton Trans., 47, 302-305, 2018.
●72
S. Kumagai, S. Takaishi, H. Iguchi, B. K. Breedlove, T. Kaneko, H. Ito, S. Kuroda and M. Yamashita, Correlation Between Chemical and Physical Pressures on The Charge-Bistability in [Pd(en)2Br](Suc-Cn)2·H2O, Inorg. Chem., 57, 12-15, 2018.
●73
Y. Horii, S. Kishiue, M. Damjanović, K. Katoh, B. K. Breedlove, M. Enders and M. Yamashita, Supramolecular approach for enhancing single-molecule magnet properties of terbium (III)-phthalocyaninate double-decker complexes with crown moieties, Chem. Eur. J., 2, 1, 2018,
●74
G. Cosquer, M. Kamila, B. K. Breedlove, M. Yamashita, Photo-modulation of Single-Molecule Magnetic Dynamics of a Dysprosium Dinuclear Complex via a Diarylethene Bridge, Inorganics., 6, 9, 2018.
●75
R. Ishikawa, S. Michiwaki, T. Noda, K. Katoh, M. Yamashita, K. Matsubara, S. Kawata, Field-Induced Slow Magnetic Relaxation of Mono- and Dinuclear Dysprosium (III) Complexes Coordinated by a Chloranilate with Different Resonance Forms, Inorganics, 6, 7, 2018.
●76
S. Kumagai, S. Takaishi, M. Gao, H. Iguchi, B. K. Breedlove, M. Yamashita, MX-chain Compounds with ReO4 Counterions : Exploration of the Robin-Day Class I - II Boundary, Inorg. Chem., March 15, 2018.
●77
T. Morita, M. Damjanović, K. Katoh, Y. Kitagawa, N. Yasuda, Y. Lan, W.Wernsdorfer, B. K. Breedlove, M. Enders, and M. Yamashita, Comparison of the Magnetic Anisotropy and Spin Relaxation Phenomenon of Dinuclear Terbium(III) Phthalocyaninato Single-Molecule Magnets Using the Geometric Spin Arrangement, J. Am. Chem. Soc.,

28;140(8).

②米田グループ（国内（和文）誌 0 件、国際（欧文）誌 17 件）

●1

T. Komeda, H. Isshiki, J. Liu, K. Katoh, M. Shirakata, B. K. Breedlove, M. Yamashita, “Variation of Kondo Peak Observed in the Assembly of Heteroleptic 2,3-Naphthalocyaninato Phthalocyaninato Tb(III) Double-Decker Complex on Au(111)”, ACS Nano, 7, 1092-1099, 2013.

●2.

J. Liu, H. Isshiki, K. Katoh, T. Morita, B. K. Breedlove, M. Yamashita, T. Komeda, “First Observation of a Kondo Resonance for a Stable Neutral Pure Organic Radical, 1,3,5-Triphenyl-6-oxoverdazyl, Adsorbed on the Au(111) Surface”, J. Am. Chem. Soc., 135, 651-658, 2013.

●3.

N. Okabayashi, M. Paulsson, T. Komeda, “Inelastic electron tunneling process for alkanethiol self-assembled monolayers”, Prog. Surf. Sci., 88, 1-38, 2013.

●4.

A. Rahim, J. Liu, S. M. F. Shahed, T. Komeda, “Metal Electrode Formation on Organic Film Using Xe-Buffer-Layer-Assisted Deposition for Efficient Measurement of Inelastic Tunneling Spectroscopy”, Applied Physics Express, 6, 105201, 2013.

●5.

I. I. Rzenicka, H. Horino, N. Kikkawa, S. Sakaguchi, A. Morita, S. Takahashi, T. Komeda, H. Fukumura, T. Yamada, M. Kawai, “Tip-enhanced Raman spectroscopy of 4,4'-bipyridine and 4,4'-bipyridine N,N'-dioxide adsorbed on gold thin films”, Surf. Sci., 617, 1-9, 2013.

●6.

T. Hasegawa, S. M. F. Shahed, Y. Sainoo, A. Beniya, N. Isomura, Y. Watanabe, T. Komeda, “Epitaxial growth of CeO2(111) film on Ru(0001): Scanning tunneling microscopy (STM) and x-ray photoemission spectroscopy (XPS) study”, J. Chem. Phys., 140, 2014.

●7.

Y. Kakefuda, S. Munakata, K. Edamoto, Y. Igari, T. Komeda, “Interaction of gold nanoparticles with a TiO2 film formed on Si(100)”, Jpn. J. Appl. Phys., 53, 2014.

●8.

T. Komeda, “Spins of adsorbed molecules investigated by the detection of Kondo resonance”, Surf. Sci., 630, 343-355, 2014.

●9.

T. Komeda, H. Isshiki, J. Liu, K. Katoh, M. Yamashita, “Variation of Kondo temperature induced by molecule-substrate decoupling in film formation of bis(phthalocyaninato)terbium(III) molecules on Au(111)”, Acs Nano, 8, 4866-4875, 2014.

●10.

T. Komeda, K. Katoh, M. Yamashita, “Double-decker phthalocyanine complex: Scanning tunneling microscopy study of film formation and spin properties”, Prog. Surf. Sci., 89, 127-160, 2014.

●11.

S. M. F. Shahed, T. Hasegawa, Y. Sainoo, Y. Watanabe, N. Isomura, A. Beniya, H. Hirata, T. Komeda, “STM and XPS study of CeO2(111) reduction by atomic hydrogen”, Surf. Sci., 628, 30-35, 2014.

●12.

F. Wu, J. Liu, P. Mishra, T. Komeda, J. Mack, Y. Chang, N. Kobayashi, Z. Shen, “Modulation of the Molecular Spintronic Properties of Adsorbed Copper Corroles”, Nature Comm., 6, 8547, 2015.

●13

K. Katoh, T. Komeda, M. Yamashita: The Frontier of Molecular Spintronics Based on Multiple-Decker Phthalocyaninato TbIII Single-Molecule Magnets, The Chemical Record 16, 987-1016, 2016

●14

M. Kajihara, T. Suzuki, S. M. F. Shahed, T. Komeda, E. Minamitani, S. Watanabe: DFT calculations on atom-specific electronic properties of G/SiC (0001), Surf. Sci. 647, 39-44,

2016
●15
M. Z. H. Khan, S. M. F. Shahed, N. Yuta, T. Komeda, Deposition of an Ultraflat Graphene Oxide Nanosheet on Atomically Flat Substrates, J. Electron. Mater. 1-6, 2016
●16
E. Moreno Pineda, T. Komeda, K. Katoh, M. Yamashita, M. Ruben, Surface confinement of TbPc2-SMMs: structural, electronic and magnetic properties, Dalton Trans. 45, 18417-18433, 2016.
●17
F. Ara, Z. K. Qi, J. Hou, T. Komeda, K. Katoh, M. Yamashita, A scanning tunneling microscopy study of the electronic and spin states of bis(phthalocyaninato)terbium(III) (TbPc2) molecules on Ag(111), Dalton Trans. 45, 16644-16652, 2016.

③北河グループ
（国内(和文)誌　0 件、国際（欧文）誌　1 件）
●1
Y. Kitagawa, T. Kawakami, S. Yamanaka, M. Okumura, “DFT and DFT-D studies on molecular structure of doubledecker phthalocyaninato-terbium(III) complex”, Mol. Phys., 112, 995-1001, 2014.

④白石グループ
（国内(和文)誌　0 件、国際（欧文）誌　2 件）
● 1
R. Ohshima, A. Sakai, Y. Ando, T. Shinjo, K. Kawahara, H. Ago and M. Shiraishi, “Observation of spin-charge conversion in CVD grown single-layer graphene”, Appl. Phys. Lett. 105, 162410, 2014.
●2
S. Dushenko, H. Ago, K. Kawahara, T. Tsuda, S. Kuwabata, T. Takenobu, T. Shinjo, Y. Ando and M. Shiraishi, Gate-tunable spin-charge conversion and a role of spin-orbit interaction in graphene, Phys. Rev. Lett. 116, 166102, 2016

(2)その他の著作物(総説、書籍など)

①山下グループ
●1
山下正廣, 加藤恵一, 「単分子量子磁石」を用いた「量子分子スピントロニクス」の実現を目指して（上）
近藤共鳴との遭遇と単分子メモリー動作実現, 現代化学, 500, 38-42, (2012)
●2
山下正廣, 加藤恵一, 「単分子量子磁石」を用いた「量子分子スピントロニクス」の実現を目指して（下）
πラジカルで近藤共鳴を制御する 現代化学, 503,48-5, 2(2013)
●3
山下正廣, 加藤恵一, ダブルデッカー型フタロシアニン Ln(III)単分子量子磁石を用いた量子分子スピントロニクスの最前線,まぐね, (2013)
●4
山下正廣, 単分子量子磁石を用いた量子分子スピントロニクスの現状と展望第二次先端ウオッチング調査:融合領域の創成 分子エレクトロニクスから分子スピントロニクスへの展望（日本化学会）、39-43, (2013)

●5
山下正廣, 加藤恵一, CSJ Current Review 16 スピン化学が拓く分子磁性の新展開 日本化学会編, 172-178, (2014)
●6
加藤恵一, 山下正廣, 鉄の辞典, 第8章 鉄の物性 分子性結晶・錯体 分子磁石 222-228, (2014)
●7
堀井洋司, 加藤恵一, 山下正廣, “進化を続ける次世代型ナノ分子磁石-高温動作する単分子磁石を目指して!!”, 月刊化学 2014 年 1 月号, 45-50, (2014)
●8
山下正廣, “単分子量子磁石を用いた量子スピントロニクスの最前線ー野茂とイチローはどちらがえらいか？ー“, 日本磁気学会, (2014)
●9
M. Yamashita and H. Okamoto eds., “Material Design and New Physical Properties in MX- and MMX-Chain Compounds”, Springer, 2013 （国外）

②米田グループ
該当なし

③北河グループ
該当なし

④白石グループ
●1
白石誠司「分子スピントロニクスの現状」,（応用物理学会誌「応用物理」, 解説記事, 2015 年 10 月）

(3)国際学会発表及び主要な国内学会発表

1 山下グループ
① 招待講演 （国内会議 6 件、国際会議 35 件）
（主要な国際会議への招待講演の前に*を付記してください）
(国内)
●1
山下 正廣, 単分子量子磁石を用いた単分子量子磁石の最前線,
日本化学会春季年会, 2013 年 3 月 25 日
●2
加藤恵一、分子配列を利用した単分子磁石挙動の制御、第一回東北大学リーディング大学院研究会プログラム「金属錯体の個体物性最前線-金属錯体と固体物性物理と生物物性の連携新領域をめざして」、東北大学、2014 年 2 月 21 日
●3
加藤恵一、単分子磁石の機能向上を目指した分子設計、山口大学、2015 年 6 月 19 日
●4
加藤恵一、希土類ーフタロシアニン積層錯体の構造と単分子磁石特性の相関、第 11 回有機 π 電子系シンポジウム、埼玉県秩父郡宮本の湯、2017 年 12 月 16 日
●5
山下 正廣, 擬一次元鎖Pd(Ⅲ)モット絶縁体とPd(Ⅱ)-Pd(Ⅳ)電荷密度波間の相転移と価数揺動, 日本化学会春季年会, 2018 年 3 月 21 日

●6
山下　正廣，分子技術による単分子量子磁石を用いた量子分子スピントロニクスの創成，
日本物理学会第 73 回年次大会，2018 年 3 月 24 日

(国際)
＊●1
M. Yamashita, Quantum Molecular Spintronics Based on Single-Molecule Magnets, ICMM, Florida, USA, 8-11, October, 2012.
●2
M. Yamashita, Quantum Molecular Spintronics Based on Single-Molecule Magnets, NMS-V, Shian, China, 15-16, October, 2012.
●3
M. Yamashita, Quantum Molecular Spintronics Based on Single-Molecule Magnets, Japan-Germany Joint Symposium, Germany, 24-28, October, 2012.
●4
M. Yamashita, Quantum Molecular Spintronics Based on Single-Molecule Magnets, Frontier Science, Rennes, France, 2-6, December, 2012.
●5
M. Yamashita, “Quantum Molecular Spintronics Based on Single-Molecule Magnets”, ICMBM, Cyprus, May, 2013.
●6
M. Yamashita, “Frontier of Quantum Molecular Spintronics Based on Single-Molecule Magnets”, CC3DMR, Korea, June, 2013.
●7
M. Yamashita, “Frontier of Quantum Molecular Spintronics Based on Single-Molecule Magnets”, MRS Meeting, Singapore, July, 2013.
●8
M. Yamashita, “Frontier of Quantum Molecular Spintronics Based on Single-Molecule Magnets”, IUPAC, Turkey, August, 2013.
●9
M. Yamashita, “Frontier of Quantum Molecular Spintronics Based on Single-Molecule Magnets”, ACC, Singapore, August, 2013.
●10
M. Yamashita, “Quantum Molecular Spintronics Based on Multiple-Decker Phthalocyaninato Ln(Ⅲ) Single-Molecule Magnets”, China-Japan Joint Symposium on Organic Semiconductors, China, September, 2013.
●11
M. Yamashita, “Frontier of Quantum Molecular Spintronics Based on Single-Molecule Magnets”, Japan-Germany President Meeting, Germany, September, 2013.
●12
M. Yamashita, “Frontier of Quantum Molecular Spintronics Based on Single-Molecule Magnets”, Japan-Canada Joint Symposium, Okinawa, November, 2013.
＊●13
M. Yamashita, “Frontier of Quantum Molecular Spintronics Based on Single-Molecule Magnets”, ACCC, Korea, November, 2013.
●14
M. Yamashita, “Frontier of Quantum Molecular Spintronics Based on Single-Molecule Magnets”, Japan-Russia Joint Symposium, Himeji, November,2013.
●15
M. Yamashita, “Frontier of Quantum Molecular Spintronics Based on Single-Molecule Magnets”, Japan-France Joint Symposium, Nara, November, 2013.

＊●16
M. Yamashita, “Frontier of Quantum Molecular Spintronics Based on Single-Molecule Magnets”, PACCON, Thailand, January, 2014.
●17
M. Yamashita, “Frontier of Quantum Molecular Spintronics Based on Single-Molecule Magnets”, ICAC. Fiji, March, 2014.
●18
Masahiro Yamashita, “Frontier of Quantum Molecular Spintronics based on Multiple-Decker Phthalocyaninato Ln(III) Single-Molecule Magnets”, E-MRS, Lille(France), May27, 2014.
●19
Masahiro Yamashita, “Frontier of Quantum Molecular Spintronics based on Single-Molecule Magnets”, CSC2014, Vancouver (Canada), June5, 2014.
＊●20
Masahiro Yamashita, “Frontier of Quantum Molecular Spintronics based on Single-Molecule Magnets”, ICCC41, Singapore (Republic of Singapore), July23, 2014.
＊●21
Masahiro Yamashita, “Frontier of Quantum Molecular Spintronics based on Single-Molecule Magnets”, ICMM2014, Saint peterrsburg (Russia), July6, 2014.
●22
Masahiro Yamashita, “Frontier of Quantum Molecular Spintronics based on Single-Molecule Magnets”, SPINOS2014, Himeji（Japan）, October16, 2014.
'●23
Shinya Takaishi, Control of Packing Motif and Physical Properties in Coordination Polymers based on 2,3-pyrazinedithiolate Complexes, France-Japan joint workshop FRONTIER2014, Nantes University, France, December 8, 2014.
●24
Masahiro Yamashita, “Frontier of Quantum Molecular Spintronics Based on Single-Molecule Magnets”, 98th Canadian Chemistry Conference and Exhibition, Otawa (Canada),June14, 2015.
＊●25
Masahiro Yamashita, “Frontier of Quantum Molecular Spintronics based on Single-Molecule Magnets: Toward Green IT Innovation”, ACCC5, Hong Kong (China), July15, 2015.
●26
Masahiro Yamashita, “Frontier of Quantum Molecular Spintronics based on Single-Molecule Magnets: Toward Green IT Innovation”, Indaba8, Skukuza (South Afica),August16-21, 2015.
●27
Masahiro Yamashita, “Frontier of Quantum Molecular Spintronics Based on Single-Molecule Magnets”, The 9th Japanese-Russian Workshop, November10, 2015.
●28
Masahiro Yamashita, “Frontier of Quantum Molecular Spintronics Based on Single-Molecule Magnets”, World congress and Expo on OIL, Gas and Petrochemistry, Dubai (UAE), November26-28, 2015.
＊●29
Masahiro Yamashita, “Frontier of Quantum Molecular Spintronics Based on Single-Molecule Magnets”, 1st International Caparica Christmas Congress on Translational Chemistry, Risbon (Portugal), December8, 2015.
＊●30
Masahiro Yamashita, “Frontier of Quantum Molecular Spintronics Based on

Single-Molecule Magnets", 環太平洋化学会議(Pacifichem2015), Honolulu(Hawaii), December14-20, 2015.
●31
Masahiro Yamashita, "Frontier of Quantum Molecular Spintronics Based on Single-Molecule Magnets", 5th International Conference on Superconductivity and Magnetism (ICSM2016), Liberty Hotels LYKIA, Fethiye/Turkey, April 26, 2016.
●32
Masahiro Yamashita, "Frontier of Quantum Molecular Spintronics Based on Spintronics Based on Single-Molecule Magnets", Energy Materials Nanotechnology (EMN2016), Hotel Neptun/Importanne Hotels&Resort, Dubrovnik/Croatia, May 4, 2016.
＊●33
Masahiro Yamashita, "Frontier of Quantum Molecular Spintronics Based on Spintronics Based on Single-Molecule Magnets", ICSM2016
合成金属の科学と技術に関する国際会議(ICSM2016), 広州白雲国際コンベンションセンター,中国,June29, 2016.
＊●34
Masahiro Yamashita, "Frontier of Quantum Molecular Spintronics Based on Spintronics Based on Single-Molecule Magnets", 42nd International Conference on Coordination Chemistry, Le Quartz Brest Congres ブレスト国際会議場、Brest/France,July4, 2016.
●35
Masahiro Yamashita, "Giant-and Tunneling-Magnetoresistance Based on single-Molecule Magnets",12th International Symposium on Crystalline Organic Metals,Superconductors and Magnets, September 26, 2017.

② 口頭発表 (国内会議38件, 国際会議 7 件)

(国内)
●1
堀井洋司, 加藤恵一, 高石慎也, Brian K. Breedlove, "フタロシアニン高積層型単分子磁石: 高温域における磁化緩和挙動の磁場依存性", 錯体化学会第 63 回討論会, 琉球大学, 沖縄, 2013 年 11 月 2 日
●2
Breedlove, Brian K., "Azacycloalkane derivatives as linkers between electron source and active center in CO_2 reduction electrocatalysts", 錯体化学会第 63 回討論会, 琉球大学, 沖縄, 2013 年 11 月 3 日
●3
高石慎也, 謝奇霖, 山下正廣, "テトラフェニルメタン骨格からなる共有結合型ナノクラスターの合成とその二次展開による多孔性配位高分子の開発", 錯体化学会第 63 回討論会, 琉球大学, 沖縄, 2013 年 11 月 3 日
●4
吉田健文, 高石慎也, 井口弘章, 山下正廣, "五員環ジアミノ配位子を有する擬一次元臭素架橋 Pd 錯体の電子状態", 錯体化学会第 63 回討論会, 琉球大学, 沖縄, 2013 年 11 月 3 日
●5
堀井洋司, 加藤恵一, 山下正廣, "フタロシアニン積層型テルビウム錯体の構造と磁気特性の関係", 東北大学理学研究科6専攻合同シンポジウム, 東北大学, 宮城, 2014 年 2 月 20 日
●6
Mengqi Gao, 高石慎也, 山下正廣, "テトラフェニルメタン骨格からなる有機かご状分子のカルボキシ基による集積化", 日本化学会第 94 回春季年会, 名古屋大学, 愛知, 2014 年 3 月 27 日
●7

Shuai Mu, 高石慎也, 山下正廣, “DPh-BTBT/P2V2TT 共結晶の合成・構造および光物性”, 日本化学会第 94 回春季年会, 名古屋大学, 愛知, 2014 年 3 月 27 日

●8

吉田健文, 高石慎也, 井口弘章, 山下正廣, “擬一次元臭素架橋 Pd 錯体の配位子場による電子状態制御”, 日本化学会第 94 回春季年会, 名古屋大学, 愛知, 2014 年 3 月 27 日

●9

大毛淑恵, 影澤幸一, 山下正廣, “核酸塩基部位を有する分子磁性体の特異構造と DNA との相関”, 日本化学会第 94 回春季年会, 名古屋大学, 愛知, 2014 年 3 月 27 日

●10

友口真一, 高石慎也, 井口弘章, 加藤恵一, Brian K. Breedlove, 山下正廣, “フェロセニウムイオンを導入した多孔性配位高分子の合成と磁気特性”, 日本化学会第 94 回春季年会, 名古屋大学, 愛知, 2014 年 3 月 30 日

●11

熊谷翔平, 高石慎也, 山下正廣, 岡本博, 田中久暁, 黒田新一, “室温で平均原子価状態を基底状態とする一次元臭素架橋パラジウム(III)錯体”, 日本化学会第 94 回春季年会, 名古屋大学, 愛知, 2014 年 3 月 29 日

●12

守田峻海, Marko Damjanovic, 加藤恵一, Markus Enders, 山下正廣, “テルビウム(III)-フタロシアニン積層型錯体の NMR を用いた構造解析”, 第 64 回錯体化学討論会, 中央大学(東京), 2014 年 9 月 19 日

●13

吉田健文, 高石慎也, 井口弘章, 山下正廣, ”走査型トンネル顕微鏡による臭素架橋 Pd 錯体の電子状態観察”, 錯体化学会第 64回討論会, 中央大学(東京), 2014 年 9 月 19 日

●14

Shohei Kumagai, Gregor Kieslich, Anthony K. Cheetham, Shinya Takaishi, Masahiro Yamashita, “Dense Formate Frameworks with and ABX3 Perovskite-like Architecture: Tuning Properties by A-site Substitution”, 日本化学会第 95 春季年会, 日本大学船橋キャンパス (千葉), 2015 年 3 月 26 日

●15

Mu Shuai, Shinya Takaishi, Masahiro Yamashita, “Design of the red luminescent organic semiconductor for OLET by modulating the crystal structure”, 日本化学会第 95 春季年会, 日本大学船橋キャンパス (千葉), 2015 年 3 月 26 日

●16

Mian, Mohammad Rasel, Hiroaki Iguchi, Shinya Takaishi, Masahiro Yamashita “Synthesis and Crystal Structure of Quasi-One-Dimensional Halogen-Bridged Platinum Complexes with Hydroxyl Functional Groups”, 日本化学会第 95 春季年会, 日本大学船橋キャンパス (千葉), 2015 年 3 月 26 日

●17

Mritunjoy Kamila, Goulven Cosquer, Masahiro Yamashita, “Distant substitution effect on magnetic properties of Dy based single-ion magnets” , 日本化学会第 95 回春季年会, 日本大学船橋キャンパス (千葉), 2015 年 3 月 27 日

●18

Wu Bin, Shinya Takaishi, Masahiro Yamashita, “Synthesis, structures and properties of metal-organic frameworks for selective gas adsorption”, 日本化学会第 95 春季年会, 日本大学船橋キャンパス (千葉), 2015 年 3 月 28 日

●19

Shinya Takaishi, Takefumi Yoshida, Shohei Kumagai, Masahiro Yamashita, Hiroshi Okamoto, Yuka, Hosomi, Shoji Yoshida, Hidemi Shigekawa, Hisaaki Tanaka, Shin-ichi Kuroda,“Mixed-valence to averaged-valence phase transition in quasi-one-dimensional

bromo-bridged palladium complexes”，日本化学会第 95 春季年会，日本大学船橋キャンパス(千葉), 2015 年 3 月 28 日
●20
木村 燎平，熊谷 翔平，井口 弘章，高石 慎也，山下 正廣，“ラダー型擬1次元ハロゲン架橋 Pd 錯体の合成と構造”，日本化学会第 95 春季年会，日本大学船橋キャンパス（千葉), 2015 年 3 月 28 日
●21
金成真広，影澤幸一，井口弘章，高石慎也，Brian K. Breedlove，山下正廣，“[Ni(pdt)2]4 錯体の構造とその電気・磁気物性に関する研究”，日本化学会第 95 回春季年会，日本大学船橋キャンパス（千葉), 2015 年 3 月 29 日
●22
吉田 健文，井口 弘章，高石 慎也，Brian K. Breedlove，山下 正廣，“モノチオ酢酸配位子を用いた Bi–Pt ヘテロ金属錯体の合成と電子状態”，日本化学会第 95 春季年会，日本大学船橋キャンパス（千葉), 2015 年 3 月 29 日
●23
Ahmed Hamdy Ahmed Radwan Fetoh, “Photo-control of the Magnetic Properties in ManganeseBased Complex”，錯体化学会第 65 回討論会，国立大学法人奈良女子大学（奈良), 2015 年 9 月 21 日
●24
熊谷翔平, “Electronic States of Quasi-One-Dimensional Halogen-Bridged Metal Complexes in Polar Space Groups”，錯体化学会第 65 回討論会，国立大学法人奈良女子大学（奈良), 2015 年 9 月 22 日
●25
吉田健文,“Pd-Br 一次元錯体における電荷移動相転移を伴い相分離減少の解明”，錯体化学会第 65 回討論会，国立大学法人奈良女子大学（奈良), 2015 年 9 月 22 日
●26
Md.Ahsan Habib, “Bifunctional Macrocyclic metal complexes as CO2 reduction electrocatalysts”，錯体化学会第 65 回討論会，国立大学法人奈良女子大学（奈良), 2015 年 9 月 22 日
●27
中西亮, “Dysprosium(Ⅲ) acetylacetonate single-ion magnet encapsulated in single-walled carbon nanotube”，錯体化学会第 66 回討論会，福岡大学（福岡), 2016 年 9 月 12 日
●28
Zhaoyang Li, “Spin and Redox Transitions of Iron Complexes Bridged by Diarylethene Ligand”，錯体化学会第 66 回討論会，福岡大学（福岡), 2016 年 9 月 10 日
●29
吉田健文, “Short-Range Charge-Density-Wave Ordering of MX Chain Analyzed by Using 3D-delta Pair Distribution Function”，錯体化学会第 66 回討論会，福岡大学（福岡), 2016 年 9 月 10 日
●30
David Chukwuma Izuogu, “Palladium-induced Ligand Field Leading to Single-Molecule Magnet Behaviour in Heterometallic Lanthanide Complexes”，錯体化学会第 66 回討論会，福岡大学(福岡), 2016 年 9 月 11 日
●31
中西亮, “単分子磁石内包カーボンナノチューブの創製と解析”，日本化学会第97春季年会，慶應義塾大学(横浜), 2017 年 3 月 16 日
●32
影澤幸一, “単一次元鎖磁石を構成要素とした二次元磁性体における磁気秩序化と磁化緩和現

象”, 日本化学会第97春季年会, 慶應義塾大学(横浜), 2017 年 3 月 16 日
●33
David Chukwuma Izuogu, “Realization of Slow Magnetic Relaxation in Heterometallic Gadolinium Complex”, 日本化学会第97春季年会, 慶應義塾大学(横浜), 2017 年 3 月 16 日
●34
吉田健文, “Emission and Magnetic Property of Tb Complex with Tb-Pt Heterometallic Bond”, 日本化学会第97春季年会, 慶應義塾大学(横浜), 2017 年 3 月 16 日
●35
Shinichi Tomoguchi,Sinya Takaishi,Masahiro Yamashita, “Synthesis of Metal Organic Frameworks Induced Ferrocenium Derivatives”, 錯体化学会第67回討論会, 北海道大学, 2017 年 3 月 16 日
●36
Md Ahsan Habib,Brian K. Breedlove,Masahiro Yamashita
“Electron reservoir - attached electrocatalyst for the reduction of CO2 to CO”, 錯体化学会第67回討論会, 北海道大学, 2017 年 3 月 17 日
●37
Koichi Kagesawa,Yuki Ichikawa,Hiroaki Iguchi,Brian K. Breedlove,Masahiro Yamashita,Atshushi Okazawa,Wataru Kosaka,Hitoshi Miyasaka, “Reversible spin-state change by water vapor above roomtemperature in a discrete Fe(III) complex”, 錯体化学会第67回討論会, 北海道大学, 2017 年 3 月 17 日
●38
井口弘章, π-π相互作用と配位結合を利用した多孔性分子導体の創製, 日本化学会第 98 春季年会, 日本大学理工学部, 2018 年 3 月 20 日
(国際)
●1
Shinya Takaishi, Functionalization of Coordination Polymers by Charge Bistability, Collaborative Conference on Materials Research, Ramada Plaza Jeju Hotel, Jeju, South Korea, June 26, 2013.
●2
Shohei Kumagai; Shinya Takaishi; Masahiro Yamashita, “Charge-Density-Wave to Mott-Hubbard Phase Transition and Charge Dynamics in Bromide-Bridged Pd Chain Compounds”, Tohoku University’s Chemistry Summer School 2013, Aobayama campus of Tohoku University, August 30, 2013.
●3
Shinya Takaishi, Syntheses of Covalent Molecular Clusters and their Secondary Expansion, International Symposium for the 70th Anniversary of the Tohoku Branch of the Chemical Society of Japan, Kawauchi-Kita Campus, Tohoku University, September 29, 2013.
●4
Shinya Takaishi, CDW-MH Phase Transition in Quasi-One-Dimensional Halogen-Bridged Metal Complexes, Sixth French Research Organizations – Tohoku University Joint Workshop on Frontier Materials (FRONTIER 2013), Katahira campus, Tohoku University, December 3, 2013.
●5
Hiroaki Iguchi, “Various Electronic Properties in One-Dimensional Electron Systems: Halogen-Bridged Metal Complexes”, Naphthalenediimide-Based Conductor, and Ionic CT Liquid Crystal, School of Chemistry Seminar Program, University of Sydney, Australia, February 13, 2015.
●6
Zhaoyang Li, “伴随对称性破缺的多步自旋交叉 FeIII 化合物”, 中国化学会第30回年次大会,

大連理工大学(中国), 2016年7月8日
●7
Goulven Cosquer, “Control of the Single Molecule Magnet Behavior and Multi-Functionality”, The11th Japanese-Russian Work shop, November 13, 2017.

ポスター発表　　（国内会議72件, 国際会議66件）
（国内）
●1
吉田健文, 高石慎也, 井口弘章, 山下正廣, “アルキレン五員環の熱運動によるハロゲン架橋金属錯体の電子状態制御”, 日本結晶学会年会, 熊本大学, 熊本, 2013 年 10 月 12 日
●2
堀江航介, 加藤恵一, Brian K. Breedlove, 山下正廣, “二量化した Tb(III)SMM 錯体の合成と磁気特性”, 第 63 回錯体化学討論会, 琉球大学, 沖縄, 2013 年 11 月 2 日
●3
守田峻海, 加藤恵一, 高石慎也, 山下正廣, “ヘテロ 4 核ランタノイド-フタロシアニン Quintuple-Decker 型錯体の磁化緩和挙動の解析”, 第 63 回錯体化学討論会, 琉球大学, 沖縄, 2013 年 11 月 2 日～4 日
●4
加藤恵一, 鈴木基寛, 中村哲也, 北河康隆, 一色弘成, Liu Jie, 安田紘平, 小林知広, 猪狩佳幸, 米田忠弘, 山下正廣, “Tb(III)単分子磁石の軟 X 線磁気円二色性をもちいた磁気特性解析”, 第 63 回錯体化学討論会, 琉球大学, 沖縄, 2013 年 11 月 2 日
●5
友口真一, 高石慎也, 加藤恵一, Brian Breedlove, 山下正廣,
“多孔性配位高分子への磁性分子の導入とその磁気特性”, 第 63 回錯体化学討論会, 琉球大学, 沖縄, 2013 年 11 月 2 日
●6
熊谷翔平, 高石慎也, 加藤恵一, Brian K. Breedlove, 山下正廣, “長鎖アルキル基を有する対イオンを用いた擬一次元ハロゲン架橋錯体における構造と電子状態の比較”, 第 63 回錯体化学討論会, 琉球大学, 沖縄, 2013 年 11 月 3 日
●7
Ramjee Kandel, Brian K. Breedlove, and Masahiro Yamashita, “Cyclen-based ligands as linkers for CO_2 reduction electrocatalysts”, 第 63 回錯体化学討論会, 琉球大学, 沖縄, 2013 年 11 月 2 日
●8
大毛淑恵, 張偉雄, 志賀拓也, 影澤幸一, 加藤恵一, 山下正廣, “核酸塩基誘導体部位を有する分子磁性体の特異構造”, 第 63 回錯体化学討論会, 琉球大学, 沖縄, 2013 年 11 月 2 日
●9
影澤幸一, 青野良賢, ブリードラブブライアン, 加藤恵一, 山下正廣, “スピンクロスオーバー挙動を示す Mn(III)salen 型金属錯体における磁気特性”, 第 63 回錯体化学討論会, 琉球大学, 沖縄, 2013 年 11 月 2 日
●10
青野良賢, 影澤幸一, 加藤恵一, ブリードラブブライアン, 山下正廣, “スピンキャンティング型カルボン酸誘導体架橋マンガン(III)サレン錯体の構造と磁性”, 第 63 回錯体化学討論会, 琉球大学, 沖縄, 2013 年 11 月 2 日
●11
Cosquer Goulven, "Modification of the Single-Molecule Magnet Behaviors of Lanthanide Complexes", 第 63 回錯体化学討論会, 琉球大学, 沖縄, 2013 年 11 月 2 日
●12
堀江航介, 加藤恵一, 山下正廣, “二量化した Tb(III)SMM 錯体の合成と磁気特性”, 日本化

学会第 94 回春季年会, 名古屋大学, 2014 年 3 月 28 日
●13
守田峻海, 加藤恵一, 高石慎也, 山下正廣, “テルビウム(III)−拡張フタロシアニン積層型錯体の磁気特性”, 日本化学会第 94 回春季年会, 名古屋大学, 2014 年 3 月 28 日
●14
Bin Wu, Shinya Takaishi, Masahiro Yamashita, “pi 共役分子からなる多孔性配位高分子の合成と構造”, 日本化学会第 94 回春季年会, 名古屋大学, 2014 年 3 月 28 日
●15
Cosquer Goulven, "Modification of the Single-Molecule Magnet Behaviors of Lanthanide Complexes",日本化学会第 94 回春季年会, 名古屋大学, 2014 年 3 月 28 日
●16
堀江航介, 加藤恵一, 山下　正廣, “長鎖置換基を導入したテルビウム-フタロシアニン積層型錯体の合成と磁気特性”, 錯体化学若手の会夏の学校 2014, 白子温泉リゾーン　サンシャイン白子(千葉), 2014 年 8 月 1 日
●17
Mritunjoy Kamila, Goulven Cosquer, Kimoon Kim, Masahiro Yamashita, “Hydrothermal Self−assembly of Cucurbit[6]uril Family Ligands with Lanthanides”, 東北大学サマースクール 2014（Campus Asia）, 東北大学(仙台), 2014 年 8 月 25 日
●18
豊福宣行, 眞木晴季, 高石慎也, 山下正廣, “テトラフェニルメタンデンドリマー構造を用いた水素結合フレームワークの合成”, 第 25 回基礎有機化学討論会, 東北大学川内キャンパス・萩ホール(仙台), 2014 年 9 月 7 日
●19
志田大和, 高石慎也, 山下正廣,
“テトラフェニルメタン骨格を有するケージ分子を元とした大きな表面積を持つ COF の合成”,
第 25 回基礎有機化学討論会, 東北大学川内キャンパス・萩ホール(仙台), 2014 年 9 月 7 日
●20
Mengqi Gao, 高石慎也, 山下正廣, “テトラフェニルメタン骨格を用いた多孔性有機高分子の開発とその気体吸蔵特性の評価”, 第 25 回基礎有機化学討論会, 東北大学川内キャンパス・萩ホール(仙台), 2014 年 9 月 8 日
●21
青野良賢, 影澤幸一, 加藤恵一, Brian K. Breedlove, 山下正廣, “二次元シート構造を有するジカルボン酸架橋マンガン(III)錯体の磁気的挙動に関する研究”, 第 64 回錯体化学会討論会, 中央大学(東京), 2014 年 9 月 18 日
●22
熊谷翔平, 高石慎也, 山下正廣, “一次元ハロゲン架橋金属錯体の FET 特性”, 第 64 回錯体化学会討論会, 中央大学(東京), 2014 年 9 月 18 日
●23
堀江航介, 加藤　恵一, 山下正廣, “長鎖アルコキシ置換基を導入したテルビウム-フタロシアニン積層型錯体の物性評価”, 第 64 回錯体化学会討論会, 中央大学(東京), 2014 年 9 月 18 日
●24
相澤憂, 加藤恵一, 山下正廣, “ヘキシルオキシ置換フタロシアニン積層型テルビウム二核錯体の構造と磁気特性”, 第 64 回錯体化学会討論会, 中央大学(東京), 2014 年 9 月 19 日
●25
井口弘章, 北尾真司, 瀬戸誠, 高石慎也, 山下正廣, “129I メスバウアースペクトルによる MMX 型 Chain 錯体の電子状態の考察”, 第 64 回錯体化学会討論会, 中央大学(東京), 2014 年 9 月 19 日
●26
Habib Md. Ahsan, Brian K. Breedlove, Masahiro Yamashita, “ Modification of cyclen

‐based ligands towards the preparation of CO2reduction electrocatalysts”，第64回錯体化学会討論会，中央大学(東京), 2014年9月19日
●27
Wu Bin,Takaishi Shinya, Yamashita Masahiro, “Structures, Synthesis of Hydrogen-Bonded Organic Frameworks”，第 64 回錯体化学会討論会，中央大学(東京), 2014 年 9 月 19 日
●28
堀井洋司，加藤恵一, Brian K. Breedlove，山下正廣，“Clamshell 型フタロシアニンを用いたクアドラプルデッカー型テルビウム錯体の合成と磁気特性”，第 64 回錯体化学会討論会，中央大学(東京), 2014 年 9 月 19 日
●29
Goulven Cosquer, Masakazu Morimoto, Masahiro Yamashita, “Control of Lanthanide Based Single-molecule Magnet Behaviour by Photochromic Ligand”，第 64 回錯体化学会討論会，中央大学(東京), 2014 年 9 月 19 日
●30
佐藤純耶，船田尚，高石慎也，影澤幸一，中西亮, Brian K. Breedlove，山下正廣，“A2MnF5 の遅い磁化緩和現象に関する研究”，第 64 回錯体化学会討論会，中央大学(東京), 2014 年 9 月 19 日
●31
前島夏奈，影澤幸一，加藤恵一, Brian K. Breedlove，高石慎也，山下正廣，“2次元ネットワーク構造を有するジカルボン酸架橋Mn(salen)錯体における磁気特性の対アニオン効果”，第64回錯体化学会討論会，中央大学(東京), 2014年9月19日
●32
山林奨，影澤幸一，加藤恵一, Brian K. Breedlove，山下正廣，“[M(II)(edta)]を骨格とした新規 2 次元磁性体の構造とその磁気特性“，第 64 回錯体化学会討論会，中央大学(東京), 2014 年 9 月 19 日
●33
中西亮，佐藤純耶，加藤恵一，大町遥，北浦良，篠原久典，山下正廣，“単分子磁石特性を有する金属内包フラーレンの探索と評価”，第 64 回錯体化学会討論会，中央大学(東京), 2014 年 9 月 19 日
●34
Mritunjoy Kamila, Goulven Cosquer, Masahiro Yamashita, “Magnetic Properties of Lanthanide Ion Complexes Based on Thiophene Ligand”，第 64 回錯体化学会討論会，中央大学(東京), 2014 年 9 月 19 日
●35
Shinya Takaishi，“MV-AV Phase Transition in Quasi-One-Dimensional Halogen-Bridged Metal Complexes”, The 16thJapan-Korea Joint Symposium on Organometallic and Coordination Chemistry，東北大学(仙台), 2014年10月24日
●36
堀江航介，加藤恵一，山下　正廣，“長鎖置換基を導入したテルビウム-フタロシアニン積層型錯体の合成と磁気特性，錯体化学若手の会北海道・東北支部第 6 回勉強会，東北大学(仙台), 2014 年 11 月 15 日
●37
Goulven Cosquer, Kim Kimoon, Masahiro Yamashita, “Counter ions effect on crystal structure of cucurbituril coordination chain”，日本化学会第 95 回春季年会,日本大学(千葉), 2015 年 3 月 27 日
●38
佐藤純耶，船田尚，高石慎也，影澤幸一, Brian K. Breedlove，山下正廣，“(NH4)2MnF5 における単一次元鎖磁石的挙動に関する研究”，日本化学会第 95 回春季年会，日本大学(千葉),

2015 年 3 月 27 日
●39
堀井洋司, 加藤恵一, Brian K. Breedlove, 山下正廣, “フタロシアニン積層型 Dy(III)錯体の f–f 相互作用と磁気特性”, 日本化学会第 95 回春季年会, 日本大学(千葉), 2015 年 3 月 26 日
●40
前島夏奈, 影澤幸一, 加藤恵一, Brian K. Breedlove, 高石慎也, 山下正廣, “2次元ネットワーク構造を有するジカルボン酸架橋[MnIII(salen)]2+錯体における磁気特性の対アニオン効果”, 日本化学会第 95 回春季年会, 日本大学(千葉), 2015 年 3 月 27 日
●41
守田峻海, 加藤恵一, 高石慎也, Brian K. Breedlove, 山下正廣, “遅い磁化緩和挙動を示すテルビウム(III)–縮環フタロシアニン積層型錯体の合成”, 日本化学会第 95 回春季年会, 日本大学(千葉), 2015 年 3 月 27 日
●42
山林奨, 影澤幸一, Brian K. Breedlove, 山下正廣, “新規鉄(III)ジチオカルバメート錯体の構造とそのスピンクロスオーバー挙動の相関に関する研究”, 日本化学会第 95 回春季年会, 日本大学(千葉), 2015 年 3 月 27 日
●43
Mudasir Ahmad Yatoo, Ryo Nakanishi, Keiichi Kato, Masahiro Yamashita,“Synthesis and Characterization of Carbon Nanotube - Single Molecule Magnet Hybrids”, 日本化学会第 95 回春季年会, 日本大学(千葉), 2015 年 3 月 27 日
●44
Mritunjoy Kamila, Goulven Cosquer, Masahiro Yamashita, “Distant substitution effect on magnetic properties of Dy based single-ion magnets” , 日本化学会第 95 回春季年会, 日本大学(千葉), 2015 年 3 月 27 日
●45
沈勇兵, “Single-Molecule Magnet Based on Lanthanide and BEDT Network”, 錯体化学会第65回討論会, 国立大学法人奈良女子大学(奈良), 2015 年 9 月 21 日
●46
呉　彬, “Solid-state Electrochemistry in MOFs: Reversible Redox Activity of Ligand”, 錯体化学会第65回討論会, 国立大学法人奈良女子大学(奈良), 2015 年 9 月 21 日
●47
山林奨, “Research for the Relationship between Structure and Spin Crossover Phenomena in Iron(III) Dithiocarbamato Complex”, 錯体化学会第65回討論会, 国立大学法人奈良女子大学(奈良), 2015 年 9 月 21 日
●48
Afrin Unjila, “Syntheses and Properties of Pt(IV) Complexes with 2-(aminomethyl)pyridine”, 錯体化学会第65回討論会, 国立大学法人奈良女子大学(奈良), 2015 年 9 月 22 日
●49
佐藤純耶, “単分子磁石特性を有するM3N内包フラーレンの合成と評価”, 錯体化学会第65回討論会, 国立大学法人奈良女子大学(奈良), 2015 年 9 月 22 日
●50
中西　亮, “Dy(acac)3 錯体内包カーボンナノチューブの創製と評価”, 錯体化学会第65回討論会, 国立大学法人奈良女子大学(奈良), 2015 年 9 月 22 日
●51
宮田百香, “ナフタレンジイミド骨格を有する配位高分子の合成と構造”, 錯体化学会第65回討論会, 国立大学法人奈良女子大学(奈良), 2015 年 9 月 22 日
●52
Mian Mohammad Rasel, “Physical Properties of Semiconducting Pd/Pt-Halide Chain

Complexes with (2S,3S)-2,3-Diaminobutane-1,4-diol Ligands", 錯体化学会第65回討論会, 国立大学法人奈良女子大学(奈良), 2015 年 9 月 22 日
●53
Mritunjoy Kamila, "Slow magnetic relaxation of dysprosium ions bridged by bipyridine DTE ligand", 錯体化学会第65回討論会, 国立大学法人奈良女子大学(奈良), 2015 年 9 月 22 日
●54
Md.Ahsan Habib, "CO2 reduction electrocatalysts by using bifunctional macrocyclic metal complexes", 日本化学会第96春季年会, 同志社大学(京都), 2016 年 3 月 25 日
●55
Liang Zhifu, "Synthesis and properties of a tetra-aza-macrocycle with tetrathiofulvalene,for preparation of multi-functional metal complexes", 日本化学会第96春季年会, 同志社大学(京都), 2016 年 3 月 25 日
●56
Mritunjoy Kamila, "Effect of sample state on slow magnetic relaxation of a dysprosium complex", 日本化学会第96春季年会, 同志社大学(京都), 2016 年 3 月 26 日
●57
Bin Wu, "Solid-state Electrochemistry in MOFs: Reversible Redox Activity of Ligand", 日本化学会第96春季年会, 同志社大学(京都), 2016 年 3 月 26 日
●58
Ahmed hamdy Ahmed Radwan Fetoh, "Tuning of the Magnetic Properties of Manganese-Diarylethene Photochromic Complex by Light Irradiation", 日本化学会第96春季年会, 同志社大学(京都), 2016 年 3 月 26 日
●59
Unjila Afrin, "Syntheses of Quasi-one-Dimensional Halogen-Bridged Metal Complexes with 2-Aminomethylpyridine", 錯体化学会第66回討論会, 福岡大学(福岡), 2016 年 9 月 10 日
●60
Liang Zhifu, "Investigation of Double Decker Lanthanides single-ion magnets based on Dibenzotetraaza(14)annulenes", 錯体化学会第66回討論会, 福岡大学(福岡), 2016 年 9 月 10 日
●61
小林可奈, "フタロシアニン積層型セリウム錯体の単分子磁石特性", 錯体化学会第66回討論会, 福岡大学(福岡), 2016 年 9 月 10 日
●62
Yongbing Shen, "Coexistence of Single-Molecule Magnetism and Semi-Conductivity by Chemical Design", 錯体化学会第66回討論会, 福岡大学(福岡), 2016 年 9 月 11 日
●63
市川雄基, "Structures and physical properties of spin-crossover complexes containing nucleobase derivatives", 日本化学会第97回春季年会, 慶應義塾大学(横浜), 2017 年 3 月 17 日
●64
Goulven Cosquer, "Proton control of the magnetic properties of an annulene double-decker", 日本化学会第97回春季年会, 慶應義塾大学(横浜), 2017 年 3 月 17 日
●65
山林奨, "Slow Magnetic Relaxation and Spin Quantum Bit Properties of a Vanadylporphyrin Based Metal Organic Framework", 錯体化学会第67回討論会, 北海道大学, 2017 年 3 月 16 日.
●66
中西亮, "An endohedral metallofullerene single-molecule magnet DySc2N@C80

encapsulated in single-walled carbon nanotube”, 錯体化学会第67回討論会, 北海道大学, 2017 年 3 月 16 日.
●67
Goulven Cosquer, “Introduction of the Havriak-Negami Model for the fitting of Slow Magnetic Relaxation Data”, 錯体化学会第67回討論会, 北海道大学, 2017 年 3 月 16 日.
●68
村杉英昭, “ペロブスカイト型構造を有する有機-無機ハイブリッド金錯体の合成と物性”, 錯体化学会第67回討論会, 北海道大学, 2017 年 3 月 17 日.
●69
石見輝, “サンドイッチ型単分子磁石-リチウム内包フラーレン超分子錯体の合成”, 錯体化学会第67回討論会, 北海道大学, 2017 年 3 月 17 日.
●70
山林奨, “核酸塩基の水素結合を有する金属錯体の結晶構造及び磁気物性”, 錯体化学会第67回討論会, 北海道大学, 2017 年 3 月 17 日.
●71
IZUOGU David Chukwuma, “Slow Magnetic Relaxation of Lanthanide Ion Modulated by Unsymmetrically, Butterfly Functionalized Schiff Base”, 錯体化学会第67回討論会, 北海道大学, 2017 年 3 月 17 日.
●72
佐藤鉄, “Function pioneer of single-molecule magnet”, 日本化学会第 98 春季年会, 日本大学理工学部, 2018 年 3 月 21 日.
（国際）
●1
Kosuke Horie, Keiichi Katoh, Masahiro Yamashita, “Relationship between Magnetic Properties and Alkyl Chain Lengths of Double-Decker SMM Complexes”, International Symposium for the 70th Anniversary of the Tohoku Branch of the Chemical Society of Japan, Tohoku University, September 28, 2013.
●2
Takaumi Morita, Keiichi Katoh, Brian K. Breedlove, Masahiro Yamashita, “Dual Magnetic Relaxation Processes Observed for a Tetranuclear Terbium(III) Single-Molecule Magnet with a Fused Phthalocyaninato Ligand having Two Coordination Sites”, International Symposium for the 70th Anniversary of the Tohoku Branch of the Chemical Society of Japan, 1P053, Tohoku University, Sendai, Japan, September 28, 2013.
●3
Yoji Horii, Keiichi Katoh, Brian K. Breedlove, Shinya Takaishi, Masahiro Yamashita, “Magnetic behaviors of the multiple-decker complexes at relatively high temperature”, International symposium for the 70th Anniversary of the Tohoku Branch of the Chemical Society of Japan, Kawauchi-Kita Campus, Tohoku University Sendai, Japan, September 29, 2013
●4
Bin Wu, Shinya Takaishi, Brian K. Breedlove, Masahiro Yamashita, “Synthesis, structure properties of metal-organic framework with highly pi-conjugated planer ligands”, International Symposium for the 70th Anniversary of the Tohoku Branch of the Chemical Society of Japan, Kawauchi-Kita Campus, Tohoku University Sendai, Japan, September 29, 2013.
●5
Shuai Mu, Shinya Takaishi, Brian K. Breedlove, Masahiro Yamashita, “Synthesis, structure and optical properties of DPh-BTBT/P2V2TT co-crystal”, International Symposium for the 70th Anniversary of the Tohoku Branch of the Chemical Society of

Japan, Kawauchi-Kita Campus, Tohoku University Sendai, Japan, September 29, 2013.
●6
Shinichi Tomoguchi, Shinya Takaishi, Brain K. Breedlove, Masahiro Yamashita, "Insertion of single-molecule-magnets into Metal Organic Frameworks", International Symposium for the 70th Anniversary of the Tohoku Branch of the Chemical Society of Japan, Kawauchi-Kita Campus, Tohoku University Sendai, Japan, September 29, 2013.
●7
Shohei Kumagai, Shinya Takaishi, Hiroaki Iguchi, Takefumi Yoshida, Masahiro Yamashita, Hiroshi Okamoto, "Comparison of the Structures and the Properties of Quasi-one-dimensional Bromide-bridged Pd complexes with the Similar Counterions", International Symposium for the 70th Anniversary of the Tohoku Branch of the Chemical Society of Japan, Kawauchi-Kita Campus, Tohoku University Sendai, Japan, September 29, 2013.
●8
Takefumi Yoshida, Shinya Takaishi, Hiroaki Iguchi, Brian Breedlove, Masahiro Yamashita, "Electronic State of Halogen-Bridge Metal Complexes with R, R-cyclopentanediamine Ligand", International Symposium for the 70th Anniversary of the Tohoku Branch of the Chemical Society of Japan, Kawauchi-Kita Campus, Tohoku University Sendai, Japan, September 29, 2013.
●9
Takaumi Morita, Keiichi Katoh, Brian K. Breedlove, Masahiro Yamashita, "Magnetic Relaxation Analysis of Tetranuclear Lanthanoid(III)-phthalocyaninato Single-Molecule Magnets", 4th European Conference on Molecular Magnetism, P018, Karlsruhe Institute of Technology, Karlsruhe, Germany, October 7, 2013.
●10
Shohei Kumagai, Shinya Takaishi, Hiroaki Iguchi, Takefumi Yoshida, Masahiro Yamashita, "Comparison of Structures and Electronic States in Quasi-one-dimensional Halogen-Bridged Metal Complexes with Counterions Having Long Alkyl Chains", Sixth French Research Organizations – Tohoku University Joint Workshop on Frontier Materials (FRONTIER 2013), Katahira campus, Tohoku University, November 3, 2013..
●11
Ramjee Kandel, Brian K. Breedlove, and Masahiro Yamashita, "Cyclen-based ligands as linkers for CO2 reduction electrocatalysts", 4th Asian Conference on Coordination Chemistry, International Convention Center, Jeju, Korea, November 2, 2013.
●12
Shohei Kumagai, Shinya Takaishi, Hiroaki Iguchi, Takefumi Yoshida, Masahiro Yamashita, "Comparison of Structures and Electronic States in Quasi-one-dimensional Halogen-Bridged Metal Complexes with Counterions Having Long Alkyl Chains", 4th Asian Conference on Coordination Chemistry, International Convention Center, Jeju, Korea, November 2, 2013.
●13
Takefumi Yoshida, Shinya Takaishi, Hiroaki Iguchi, Brian Breedlove, Masahiro Yamashita, "Electronic State of Iodo-Bridged Pt Complex with R,R-cyclopentanediamine Ligand", 4th Asian Conference on Coordination Chemistry, International Convention Center, Jeju, Korea, November 3, 2013.
●14
Yoshie Ohke, Wei-Xiong Zhang, Takuya Shiga, Koichi Kagesawa, Keiichi Katoh, Brian K. Breedlove, Masahiro Yamashita, "Study for structure and magnetic property of Mn(III) salentype complexes bridged by carboxylic acid ligand with nucleobase moiety",

4th Asian Conference on Coordination Chemistry, International Convention Center, Jeju, Korea, November 3, 2013.

●15

Takaumi Morita, Keiichi Katoh, Brian K. Breedlove, Masahiro Yamashita, “Magnetic Relaxation Analysis of Hetero-Tetranuclear Lanthanoid(III)-Phthalocyaninato Quintuple-Decker Complex”, 4th Asian Conference on Coordination Chemistry, International Convention Center, Jeju, Korea, November 5, 2013.

●16

Yoji Horii, Keiichi Katoh, Nobuhiro Yasuda, Brian K. Breedlove, Shinya Takaishi, Masahiro Yamashita, “Dysprosium-phthalocyaninato multiple-decker complexes: Relationship between structures and magnetic properties”, 4th Asian Conference on Coordination Chemistry, International Convention Center, Jeju, Korea, November 5, 2013.

●17

Koichi Kagesawa, Yoshitaka Aono, Keiichi Katoh, Brian K. Breedlove, Masahiro Yamashita, “Chain Structured Mn(III) Salen Complex Bridged by Spin-Crossover Component”, 4th Asian Conference on Coordination Chemistry, International Convention Center, Jeju, Korea, November 5, 2013.

●18

Yoshitaka Aono, Koichi Kagesawa, Keiichi Katoh, Brian K. Breedlove, Masahiro Yamashita, “One-Dimensional Carboxylate-Bridged Mn(III) Salen Complexes Exhibiting Canted Antiferromagnetic Interactions”, 4th Asian Conference on Coordination Chemistry, International Convention Center, Jeju, Korea, November 5, 2013.

●19

Hiroaki Iguchi, Ayman Nafady, Alan M. Mond, Shinya Takaishi and Masahiro Yamashita, “Solid State Electrochemistry of Semiconducting Diplatinum-Iodide Chain Complexes”, 4th Asian Conference on Coordination Chemistry, International Convention Center, Jeju, Korea, November 6, 2013.

●20

Cosquer Goulven, “Modification of the Single-Molecule Magnet Behaviors of Lanthanide Complexes”, 4th Asian Conference on Coordination Chemistry, International Convention Center, Jeju, Korea, November 6, 2013.

●21

Cosquer Goulven, “Modification of the Single-Molecule Magnet Behaviors of Lanthanide Complexes”, The 2nd Japan-France Coordination Chemistry Symposium 2013, Nara (Todaiji Culture Center), November 26, 2013.

●22

Takaumi Morita, Keiichi Katoh, Brian K. Breedlove, Masahiro Yamashita, “Magnetic Relaxation Analysis of Hetero-Tetranuclear Lanthanoid(III)-Phthalocyaninato Quintuple-Decker Complex”, 6th French Research Organizations–Tohoku University Joint Workshop on Frontier Materials, P30, Tohoku University, Sendai, Japan, December 3, 2013.

●23

Yoji Horii, Keiichi Katoh, Nobuhiro Yasuda, Brian K. Breedlove, Shinya Takaishi, Masahiro Yamashita, “Dysprosium-phthalocyaninato multiple-decker complexes: Relationship between structures and magnetic properties”, Joint Workshop Frontier2013, Tohoku University, Sendai, Japan, December 3, 2013.

●24

Cosquer Goulven, “Modification of the Single-Molecule Magnet Behaviors of Lanthanide Complexes”, Frontier 2013, Tohoku University, Sendai, Japan, December 3, 2013.

●25

Takaumi Morita, Keiichi Katoh, Brian K. Breedlove, Masahiro Yamashita, “Magnetic Properties of Terbium(III)–Fused Phthalocyaninato Triple-Decker Complex”, The 14th International Conference on Molecule-Based Magnets, Holiday Inn Moskovskye Vorota, Saint Petersburg(Russia), July 6, 2014.

●26

Youji Horii, Keiichi Katoh, Brian K. Breedlove, Masahiro Yamashita, “Magnetic behaviors of multiple-decker phthalocyaninato terbium(III) SMM complexes at relatively high temperature”, The 14th International conference on Molecule-Based Magnets, Saint Petersburg(Russia), July 6, 2014.

●27

Koichi Kagesawa, Yoshitaka Aono, Brian K. Breedlove, Masahiro Yamashita, “Magnetic Property of Alternating Chain Magnet Constructed By Dicarboxylate-Bridged Mnganese-Salen Type Complex”, The 14th International Conference on Molecule-Based Magnets, Saint Petersburg (Russia), July 6, 2014.

●28

Yamabayshi Tsutomu, Keiichi Katoh, Masahiro Yamashita, “Relationship between Molecular Packing and Magnetic Properties of Terbium (III)-Phthalocyaninato Double-Decker SMM Complex”, The14th International Conference on Molecule-Based Magnets, Saint Petersburg (Russia), July 6, 2014.

●29

Takefumi Yoshida, Shinya Takaishi, Hiroaki Iguchi, Masahiro Yamashita, “Control of Electronic State in Quasi-One-Dimensional Bromo-Bridged Pd Complex by Ligand Field”, 41st International Conference on Coordination Chemistry, Suntec(Singapore), 21-25 July,2014.

●30

Hiroaki Iguchi, Shinya Takaishi, Ayman Nafady, Alan M. Bond, Masahiro Yamashita, “Physical and Electrochemical Properties of Semiconducting MMX-type Chain Complexes”, ICCC: 41st International Conference on Coordination Chemistry,Suntec International Convention & Exhibition Centre, Suntec(Singapore), July 21-25, 2014.

●31

Takaumi Morita, Keiichi Katoh, Brian K. Breedlove, Masahiro Yamashita, “Magnetic Properties of Terbium (III)–Fused Phthalocyaninato Triple-Decker Complex”, 41st International Conference on Coordination Chemistry, Suntec Singapore International Convention & Exhibition Centre, Suntec (Singapore), July 21, 2014.

●32

Shohei Kumagai, Shinya Takaishi, Hiroshi Okamoto, Hisaaki Tanaka, Shin-ichi Kuroda, Masahiro Yamashita, “One-Dimensional Bromide-Bridged Palladium(III) Chain Complex Having a Mott-Hubbard State at Room Temperature”, ICCC: 41st nternational Conference on Coordination Chemistry,Suntec International Convention & Exhibition Centre, Suntec (Singapore), July 21-25, 2014.

●33

Kosuke Horie, Takaumi Morita, Keiichi Katoh, Brian K. Breedlove, Masahiro Yamashita, “Synthesis and Magnetic Property of Octyloxy–Substituted Tb(III) Phthalocyaninato Double–Decker SMM Complex”, Summer School(Charge and Spin Transport In Non–Metallic Systems and Confined Geometries),
Mainz University (Germany), August 24, 2014.

●34

Takaumi Morita, Keiichi Katoh, Brian K. Breedlove, Masahiro Yamashita, “Terbium(III)–Fused Phthalocyaninato Triple-Decker Complex Having the Highest Magnetic Blocking Temperature”, Tohoku University’s Chemistry Summer School 2014, Tohoku University, Sendai(Japan), August 25, 2014.

●35

Takaumi Morita, Keiichi Katoh, Brian K. Breedlove, Masahiro Yamashita, “Highest Reported Temperature for Hysteresis of the Magnetization of a Single-Molecule Magnet”, 5th International Conference of Organic Semiconductors, Egret Himeji, Himeji (Japan), October 13, 2014.

●36

Youji Horii, Keiichi Katoh, Brian K. Breedlove, Masahiro Yamashita, “Magnetic behaviors of multiple-decker phthalocyaninato terbium(III) SMM complexes at relatively high temperature”, The 5th International Meeting on Spin in Organic Semiconductors, Egret Himeji, Himeji (Japan), October 15, 2014.

●37

Mahiro Kanari, Kouichi Kagesawa, Syouhei Kumagai, Brian K. Breedlove, Masahiro Yamashita, “Structure of Ni(pdt)2 complexes (pdt = 2,3-pyrazinedithiol) using various counter cations and their physical properties”, 5th International Meeting on Spin in Organic Semiconductors, Egret Himeji, Himeji (Japan), October 15, 2014.

●38

Youji Horii, Keiichi Katoh, Brian K. Breedlove, Masahiro Yamashita, “Magnetic behaviors of multiple-decker phthalocyaninato terbium(III) SMM complexes at relatively high temperature”, The 16th Japan-Korea Joint Symposium on Organometallic and Coordination Chemistry, Tohoku University, Sendai(Japan), October 24, 2014.

●39

Takaumi Morita, Keiichi Katoh, Brian K. Breedlove, Masahiro Yamashita, “Highest Reported Temperature for Hysteresis of the Magnetization of a Single-Molecule Magnet”, The 16th Japan-Korea Joint Symposium on Organometallic and Coordination Chemistry, Tohoku University, Sendai (Japan), October 24, 2014.

●40

Hiroaki Iguchi, Shinya Takaishi, Hiroyuki Matsuzaki, Hiroshi Okamoto, Hisaaki Tanaka, Shin-Ichi Kuroda, Ayman Nafady, Alan M. Bond, Masahiro Yamashita, “MMX-Chain-Based FlexibleFramework: Changing The Electronic States and Conductivity byDehydration and Electrochemical Oxidation”, MOF2014, Kobe Convention Center, Kob e(Japan), September 29, 2014.

●41

Wu Bin, Takaishi Shinya, Yamashita Masahiro, “Structures, Synthesis of Metal Organic Frameworks with Highly Pi-Conjugated Ligand”, MOF2014, Kobe Convention Center, Kobe (Japan), September 29, 2014.

●42

Yamato Shida, Shinya Takaishi, Masahiro Yamashita,“Synthesis of Porous Material That Has Tetraphenylmethane Unit to Store Hydrogen Gas”, MOF2014, Kobe Convention Center, Kobe (Japan), September 29, 2014.

●43

Shinichi Tomoguchi, Shinya Takaishi, Hiroaki Iguchi, Keichi Katoh, Brian Breedlove, Masahiro Yamashita,“In Situ Synthesis Metal Organic Frameworks Inserted Ferrocenium Ion Derivatives That Can Orientate Along Magnetic Field”, MOF2014, Kobe Convention Center, Kobe (Japan), September 29, 2014.

●44

Kouichi Kagesawa, “ 2D-Coordination polymer Composed of［Mn(salen)］Dimers Showing Antiferromagnetic Transition and Slow Relaxation of Magnetization”, 5th Asian Conference on Coordination Chemistry (ACCC5), The University of Hong Kong, Hong Kong, July 13, 2015.

●45

Yongbing Shen, “Single-Molecule Magnet Based on Lanthanide and BEDT Network”, 5th Asian Conference on Coordination Chemistry (ACCC5), The University of Hong

Kong, Hong Kong, July 13, 2015.
●46
Mudasir Ahmad Yatoo, “1D Chain of Single-molecule Magnet Based on Lanthanides and Dithienylethene Ligand”, 5th Asian Conference on Coordination Chemistry (ACCC5), The University of Hong Kong, Hong Kong, July 13, 2015.
●47
Ryouhei Kimura, “Synthesis and structure of ladder-type Pd-halide chain complex”, 2015International Chemical Congress of Pacific Basin Societies
(Pacifichem2015), Hawaii Convention Center, Honolulu (Hawaii), December15, 2015.
●48
Md.Ahsan Habib, “CO2 reduction catalysts composed of modified cycloazaalkenes”, 2015International Chemical Congress of Pacific Basin Societies
(Pacifichem2015), Hawaii Convention Center, Honolulu (Hawaii), December15, 2015.
●49
Jyunya Sato, “Study of Single-Chain magnet-like behavior in (NH4)2MnF5”, 2015International Chemical Congress of Pacific Basin Societies
(Pacifichem2015), Hawaii Convention Center, Honolulu (Hawaii), December15, 2015.
●50
Mahiro Kanari, “Research about the structure of Ba2[Ni(pdt)2]4 11H2O(pdt=2,3-pyrazin-edithiolate) and its magnetic and electric properties”, 2015International Chemical Congress of Pacific Basin Societies
(Pacifichem2015), Hawaii Convention Center, Honolulu (Hawaii), December15, 2015.
●51
Susumu Yamabayashi, “Research for the relationship between structure and spin crossover phenomena in new type of iron(III)dithiocarbamato complex”, 2015International Chemical Congress of Pacific Basin Societies
(Pacifichem2015), Hawaii Convention Center, Honolulu (Hawaii), December15, 2015.
●52
Mian Mohammad Rasel, “Syntheses and physical properties of 1D halogen-bridged metal complexes by using hydroxyl functional groups”, 2015International Chemical Congress of Pacific Basin Societies
(Pacifichem2015), Hawaii Convention Center, Honolulu (Hawaii), December15, 2015.
●53
Ahmed hamdy Ahmed Radwan Fetoh, “Photoactivation of single molecule magnet behavior in manganese-based complex”, 2015International Chemical Congress of Pacific Basin Societies
(Pacifichem2015), Hawaii Convention Center, Honolulu (Hawaii), December15, 2015.
●54
Takefumi Yoshida, “Charge-transfer phase transition, phase separation, and visualization of local electronic states in a Pd-Br chain complex”, 2015International Chemical Congress of Pacific Basin Societies
(Pacifichem2015), Hawaii Convention Center, Honolulu (Hawaii), December15, 2015.
●55
Mritunjoy Kamila, “Modulation of magnetic dynamics of Dy-complexes driven by crystal packing”, 2015International Chemical Congress of Pacific Basin Societies
(Pacifichem2015), Hawaii Convention Center, Honolulu (Hawaii), December15, 2015.
●56
Kouichi Kagesawa, “Counter-ion effects on magnetic properties of dicarboxylate-bridged [MnIIII(s-alen)]complexes having two-dimensional network structure”, 2015International Chemical Congress of Pacific Basin Societies
(Pacifichem2015), Hawaii Convention Center, Honolulu (Hawaii), December15, 2015.

●57
Momoka Miyata, “Synthesis and structural change of naphtalenediimide-based coordination polymers”, 2015International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem2015), Hawaii Convention Center, Honolulu (Hawaii), December15, 2015.
●58
Wu Bin, “Metal organic Frameworks based on bulkiness building blocks for selective hydrogen adsporption”, 2015International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem2015), Hawaii Convention Center, Honolulu (Hawaii), December15, 2015.
●59
Goulven Cosquer, “Distant substitution effects on the magnetic properties of Dy-based single-ion magnets”, 42nd International Conference on Coordination Chemistry, Le Quartz Brest Congres ブレスト国際会議場、Brest/France, July4, 2016.
Ryo Nakanishi, “Synthesis and Characterization of Dy acetylacetonate complexes encapsulated in Carbon nanotube, 42nd International Conference on Coordination Chemistry, Le Quartz Brest Congres ブレスト国際会議場、Brest/France, July4, 2016.
●61
Mian Mohammad Rasel, “Pd(Ⅲ)Averaged Valence State above Room Temperature Induced by Hydroxy Groups of Ligand”, 42nd International Conference on Coordination Chemistry, Le Quartz Brest Congres ブレスト国際会議場、Brest/France, July4, 2016.
●62
Bin Wu, “Solid-State Electrochemistry in MOFs-Reversible Redox Activity of Ligand and Metal”, 5th International Conference on Metal-Organic Framework Compounds, Hilton Long Beach jHotel, California
(America), September 11, 2016.
●63
Hikaru Iwami, “希土類二核クラスターを有する金属有機構造体の合成”, 日本化学会第6回 CSJ 化学フェスタ, タワーホール船堀（東京）, November16, 2016.
●64
Ferdous Ara, “STM Study of Electronic and Spin States of Single Molecule Magents”, 12th International Symposium on Crystalline Organic Metals, Superconductors and Magnets, November 25, 2017.

●65
Yongbing Shen,”Hybrid Material Composed of 4f Dysprosium Ions and Organic Conductors”, 12th International Symposium on Crystalline Organic Metals, Superconductors and Magnets, November 26, 2017.

●66
Goulven Cosquer,”Coordination Molecular Compound Exhibiting Slow Magnetic Relaxation and Electrical Conductivity”, 12th International Symposium on Crystalline Organic Metals, Superconductors and Magnets, November 26, 2017.

2 米田グループ
①招待講演　　（国内会議 2 件, 国際会議 8 件）
（国内）
●1
米田忠弘, STM による磁性を持つ有機分子薄膜のスピン計測, 日本物理学会 2014 年秋季大会中部大学春日井キャンパス（春日井市）(2014 年 9 月 7-10)
●2
米田 忠弘,「STM による分子性磁石における近藤効果の観測」

日本物理学会 2012 年秋季大会, (2012 年 9 月 18 日 -9 月 20 日) 横浜国立大学, 横浜

（国際）
●1
Tadahiro Komeda (IMRAM, Tohoku University),‘Characterization and Manipulation of Spin of Single-Molecule-Magnet Double-Decker Phthalocyanine Molecule’ Chinese Chemical Society 中国化学会第 29 回（北京大学（中国・北京市）, Aug 4-7, 2014.
●2
Tadahiro Komeda, Vibrational Mode Detection of Alkanethiol Self Assembled Monolayer by Inelastic Tunneling Spectroscopy: Comparison of STM experiment and DFT calculation,14th Conference on Vibrations At Surfaces(VAS14), Kobe, Japan, Sep 24-29, 2012.
●3
Tadahiro Komeda, Molecular Magnetism Examined by Scanning Probe Microscope,
ICC-IMR workshop 'Development of Functionalized Molecule-based Magnetic Materials', Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai, Japan, Feb18-21, 2013.
●4
Tadahiro Komeda (IMRAM, Tohoku University), “Manipulation of Spin in Double Decker Phthalocyanine Molecule,” Workshop on Controlled Atomic Dynamics on Solid Surfaces: Atom and Molecular Manipulation (UEBA13), Spain, San Sebastián, May 14, 2013.
●5
Tadahiro Komeda, “Manipulation of spin of single-molecule-magnet double-decker,” the 12th European Conference on Molecular Electronics (ECME2013), England, London, September 6, 2013.
●6
Tadahiro Komeda (IMRAM, Tohoku University), ‘ Spin Control of Magnetic Molecules with Scanning Tunneling Microscopy’ DIET 14:Dynamics,Interactions and Electronic Transitions at SurfacesAsilomar Conference Grounds, Pacific Grove, CA, Oct 13-17, 2014.
●7
Tadahiro Komeda, “Spin Observation and Control of Magnetic Molecules with Scanning Tunnelling Microscopy”, ICCC2016 (42nd edition of the International Conference on Coordination Chemistry), Aug 3-8, 2016.
●8
Tadahiro Komeda, “Spin Control of Magnetic Molecules with Scanning Tunneling Microscopy”, ICMM2016 (The 15th International Conference on Molecule-Based Magnets), Sep 4-8, 2016.

②口頭発表　　（国内会議　0 件, 国際会議　5 件）
（国際）
●1
Tadahiro Komeda (IMRAM, Tohoku University) , “Modulation of the Molecular Spintronic Properties of Adsorbed Copper Corroles by Detecting Kondo Resonance Mapping” 第 28 回特別研究会「走査型プローブ顕微鏡」（ICSPA22）静岡県伊豆熱川, 2014 年 12 月 11-13.
●2
Tadahiro Komeda (IMRAM, Tohoku University), Adsorption and spin of single-molecule-magnet double-decker,19th International Vacuum Congress IVC-9, Paris, フランス , 2013 年 9 月 9 日－13 日
●3
J. Liu and T. Korneda (IMRAM, Tohoku University) , Kondo resonance observation of a organic radical molecule 12th International Conference on Atomically Controlled Surface, Interface and Nanostructures (ACSIN・2) in conjunction with 21st International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM21) , つくば, 日本 2013 年 11 月 4 日－8 日
●4

米田忠弘, (IMRAM, Tohoku University), “銀(111)に吸着した bis(phthalocyaninato)terbium (TbPc2)分子の近藤ピーク” 第 7 回 分子アーキテクトニクス研究会, 九州大学筑紫キャンパス(春日市), Oct20-21

●5

Tadahiro Komeda (IMRAM, Tohoku University), “Probing 4f Spin State of TbPc2 with Kondo Resonance of π Radical”, ICSPM 24, 24 th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, Hawaii Convention Center (Honolulu), Dec14-17, 2016.

ポスター発表　（国内会議　3 件, 国際会議　0 件）

（国内）

●1

Nguyen T. Trung, “Dopamine molecule on several substances: SPM study”, 物性研短期研究会「走査トンネル顕微鏡による物性研究の現状と展望」, 東京大学物性研究所, 2016 年 10 月 31 日

●2

ホウ・ジェ, “金(111)表面でのフォトクロミック・スピロピラン分子の原子操作:近藤共鳴観察によるラジカル検出”, 表面・界面スペクトロスコピー2016, 秋保温泉・岩沼屋(仙台), 2016 年 10 月 31 日

●3

Yu Wang, “STM Observation of Temperature Dependent Phase Transition of All-Trans-Retinoic Acid (ReA) on Au(111)”, 物性研短期研究会「走査トンネル顕微鏡による物性研究の現状と展望」, 東京大学物性研究所, 2017 年 1 月 3 日

3 北河グループ

①　招待講演　（国内会議　1 件, 国際会議　3 件）

（国内）

●1

北河康隆, “スピン分極した分子の構造最適化に向けた近似スピン射影法の展開”, 日本コンピュータ化学会 2016 秋季年会, 島根大学, 2016 年 10 月 22 日

（国際）

●1

Y. Kitagawa (Osaka University), “The Geometric and Electronic Structure of $TbPc_2$ Complex: A DFT Study”, International Symposium on Interactive Materials Science Cadet Program, Osaka, Nov. 19, 2014.

●2

Y. Kitagawa (Osaka University), “DFT study on the structure and electronic structure of double-decker phthalocyaninato-Tb (III) complex”, Vietnam Malaysia International Chemical Congress, Hanoi, Nov. 8, 2014.

●3

Y. Kitagawa (Osaka University), “Theoretical study on f-π magnetic interaction in neutral terbium (III) phthalocyanine (Pc) double-decker complex”, ICCC2016 (42nd edition of the International Conference on Coordination Chemistry), Jul 5, 2016.

②　口頭発表　（国内会議　5 件, 国際会議　0 件）

（国内）

●1

北河康隆,倉橋裕幸,加藤恵一,奥村光隆,山下正廣,中野雅由(大阪大学,JST CREST,東北大学), “$TbPc_2$ 錯体における Pc 環同士の回転障壁に関する理論的研究”, 日本化学会 第 95 春季年会, 日本大学, 2015 年 3 月 29 日

●2
北河康隆,倉橋裕幸,加藤恵一,川上貴資,山中秀介,山下正廣,奥村光隆,中野雅由(大阪大学,JST CREST,東北大学), “$TbPc_2$ 錯体における f-π軌道間の磁気的相互作用に関する理論的研究”, 第8回分子科学討論会, 広島大, 2014 年 9 月 21 日
●3
北河康隆,吉村翔平,加藤恵一,川上貴資,山中秀介,山下正廣,奥村光隆(大阪大学,JST CREST, 東北大学), “ダブルデッカー型フタロシアニン Tb(III)錯体の構造および電子状態に関する理論的研究”, 第 7 回分子科学討論会, 京都テルサ, 2013 年 9 月 26 日
●4
Yasutaka Kitagawa, “Electronic structure and magnetic interaction of terbium(III) phthalocyanine (Pc) double-decker complex on metal surface”, 錯体化学会第66回討論会, 福岡大学(福岡), 2016年9月11日
●5
Yasutaka Kitagawa, Yoshiki Natori, Reta Teramoto, Shogo Aoki, Hayato Tada, Keiichi Kato, Masahiro Yamashita, Masayoshi Nakano, “Electronic structure of $TbPc_2$ complex and its change on metal surface”, 錯体化学会第67回討論会, 北海道大学(札幌), 2017 年 9 月 17 日

③ ポスター発表　　(国内会議　2 件, 国際会議　2 件)

(国内)
●1
倉橋裕幸,北河康隆,加藤恵一,川上貴資,山中秀介,山下正廣,奥村光隆(大阪大学,JST CREST, 東北大学), ”$TbPc_2$ 錯体のフェニル環の回転による f-π 間の磁気的相互作用に関する理論的研究”, 錯体化学会第 64 回討論会, 中央大学, 2014 年 9 月 18 日
●2
倉橋裕幸,吉村翔平,北河康隆,加藤恵一,川上貴資,山中秀介,山下正廣,奥村光隆(大阪大学,JST CREST,
東北大学), “$TbPc_2$錯体におけるフタロシアニンの回転による電子状態変化の理論的研究”,
日本化学会第94春季年会, 名古屋大学東山キャンパス, 2013 年 3 月 27 日

(国際)
●1
Y. Kitagawa, T. Matsui, K. Katoh, T. Kawakami, S. Yamanaka, M. Yamashita, M. Okumura (Osaka University,
JST CREST, Tohoku University), “DFT studies on double-decker phthalocyaninato-Tb complex”, 53rd Sanibel Symposium, St. Simons Island, GA, USA, Feb. 19, 2013.
●2
Y. Kitagawa, Y. Natori, K. Katoh, M. Yamashita, M. Okumura (Osaka University, JST CREST, Tohoku University), “Theoretical study on exchange interaction between f and π electrons in Tb(III)-phthalocyanine double-decker complex”, 11th Triennial Congress of the World Association of Theoretical and Computational Chemists (WATOC 2017), Munich, German, Oct. 28-31, 2017.

4 白石グループ

① 招待講演　　(国内会議 3 件, 国際会議 2 件)

(国内)
● 1
白石誠司, 「分子を介した電気的・動力学的スピン輸送」
日本化学会・先端ウォッチング, 2013 年 3 月・立命館大学

●２
白石誠司, “Electric spin conversion”, 日本磁気学会シンポジウム“Spin Conversion Science”（2014 年 9 月, 慶應義塾大）
●3
白石誠司, “スピントロニクスの現状と展望, グラフェンにおけるスピン輸送とスピン変換”, 第102回有機デバイス研究会（2015 年 7 月 27 日, 静岡大学浜松キャンパス）

（国際）
●1
Masashi Shiraishi, “Spin-orbitronics using Bi- and carbon-related materials”, Workshop on Emergent Relativistic Effects in Condensed Matter, Regensburg , Germany, Sep 1,2016.
●2
Masashi Shiraishi, “Carbon-based spin-orbitronics”, Korea-Japan Spinorbitronics Workshop, Kyushu University, Fukuoka, Dec 9, 2016.

② 口頭発表 （国内会議 2 件, 国際会議 2 件）
（国内）
●1
大島諒, 酒井敦, 安藤裕一郎, 新庄輝也, 浜屋宏平, 河原憲治, 吾郷浩樹, 白石誠司 : 単層グラフェンを用いたスピン流－電流変換の観測とその評価（第 38 回日本磁気学会学術講演会, 2pD-3, 慶應義塾大学 日吉キャンパス（神奈川）, 2014 年 9 月 2-5 日）
●２
R. Ohshima, A. Sakai, Y. Ando, T. Shinjo, K. Hamaya, K. Kawahara, H. Ago and M. Shiraishi : Spin-charge conversion in CVD-grown single-layer graphene at room temperature（第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 20p-S2-7, 北海道大学 札幌キャンパス（北海道), 2014 年 9 月 17-20 日）
（国際）
●１
R. Ohshima, A. Sakai, Y. Ando, T. Shinjo, K. Kawahara, H. Ago and M. Shiraishi : Detection of Spin-charge Conversion in Single-layer Graphene at Room Temperature (5th International Meeting on Spin in Organic Semiconductors, O-06, Himeji, October 13-17, 2014)
●2
R. Ohshima, A. Sakai, Y. Ando, T. Shinjo, K. Hamaya, K. Kawahara, H. Ago and M. Shiraishi: Spin-charge conversion in single-layer graphene at room temperature (59th Annual Magnetism & Magnetic Materials Conference, FB-03, Honolulu, November 3-7, 2014)

(4)知財出願
①国内出願（ 0 件）

②海外出願（ 0 件）

③その他の知的財産権
該当なし

(5)受賞・報道等
①受賞
【山下グループ】

●1
日本結晶学会, ポスター賞, 吉田健文, 2013 年 9 月
●2
日本化学会東北支部創設 70 周年国際会議, ポスター賞, 熊谷翔平, 2013 年 9 月
●3
国立開発法人科学技術振興機構, H25 年度ライジングスター賞, 影澤幸一, 中西亮, 2013 年
＊●4
錯体化学会, 平成 26 年度錯体化学賞, 山下正廣, 2014 年 5 月 12 日
●5
Tohoku University's Chemistry Summer School 2014, ポスター賞, 守田峻海, 2014 年 8 月 25 日
●6
錯体化学会, 錯体化学会第 64 回討論会ポスター賞, 青野良賢, 2014 年 9 月 19 日
●7
日本化学会, 日本化学会第 95 春季年会 2015, 熊谷翔平学生講演賞, 熊谷翔平, 2015 年 5 月 1 日
●8
The 5th Asian Conference on Coordination Chemistry, 優秀ポスター賞, 李 朝陽, 2015 年 7 月 16 日
●9
錯体化学会第66回討論会, 学生講演賞, 吉田健文, 2016 年 10 月 3 日
●10
第6回 CSJ 化学フェスタ, 優秀ポスター発表賞, 村杉英昭, 2016 年 12 月 15 日
●11
錯体化学会, 若手研究会「錯体化学会若手の会・夏の学校 2017」, 優秀ポスター賞, 村杉英昭, 2017 年 8 月 2 日
●12
第10回東北大学化学系サマースクール, ポスター賞, Mohammad Rasel Mian, 2017 年 8 月 21 日
●13
錯体化学会第67回討論会, ポスター賞, 山林奨, 2017 年 9 月 18 日

【米田グループ】 該当なし

【北河グループ】
●1
大阪大学総長奨励賞, 北河康隆, 2013 年 8 月 1 日
●2
大阪大学総長奨励賞, 北河康隆, 2015 年 7 月 14 日
【白石グループ】
●1
第 2 回 RIEC Award, 白石 誠司, 2012 年 11 月
●2
平成25年度日本磁気学会優秀研究賞・白石誠司・2013 年9月4日
●3
第5回大阪大学総長による表彰・白石誠司・2013 年 6 月 10 日
●4
第5回応用物理学会シリコンナノテクノロジー分科会論文賞・白石誠司 他 5 名・2014 年3月19日

②マスコミ(新聞・TV等)報道(プレス発表をした場合にはその概要もお書き下さい。)
山下グループ
1. 科学新聞, 中性有機ラジカル分子で初めて近藤共鳴の観測に成功, 2012 年 12 月 7 日
2. 科学新聞, 単一分子に裏と表, 2013 年 2 月 22 日

③その他

(6)成果展開事例
山下グループ
① 実用化に向けての展開
- 本研究で得られた $TbPc_2$ 単一分子スピンバルブについて、民間企業1社と共同研究中。

② 社会還元的な展開活動
- 得られた成果の一部は、新聞で発表している。
- 本研究成果は学会発表、各種雑誌および招待講演として報告している(§6. 成果発表等 参照)。
- 本研究成果をインターネット(JST の HP)で公開し、一般に情報提供している。

米田グループ
① 実用化に向けての展開
- $TbPc_2$ 単一分子スピンバルブについて、産総研とデバイス開発展開中。

② 社会還元的な展開活動

北河グループ
① 実用化に向けての展開
- 本研究で得られた知見をもとに、現在、産総研関西センター電池ユニットとの共同研究を実行中。

② 社会還元的な展開活動
- 本研究成果の一部を、市民向け講座(第 38 回(平成 28 年度)基礎工学部公開講座)で紹介した。
- 本研究成果は学会発表、各種雑誌および招待講演として報告している(§6. 成果発表等 参照)。

白石グループ
① 実用化に向けての展開
特記事項なし
② 社会還元的な展開活動
研究業績 2.に関して京都大学よりプレス発表を行った。また、本成果が Nature Nanotechnology 誌の Research Highlights に紹介された(DOI:10.1038/nnano.2016.103)。

§5 研究期間中の活動
5．1 主なワークショップ、シンポジウム、アウトリーチ等の活動

平成 25 年度
【山下グループ】

年月日	名称	場所	参加人数	概要
2013 年 9 月 28 日～30 日	日本化学会東北支部創立 70 周年国際会議	東北大学川内キャンパス	1,300 人	学術交流
2013 年 12 月 12 日	チーム内ミーティング	東北大学理学部化学棟	9 人	研究進捗報告のためのミーティング
2014 年 2 月 21 日～23 日	第 1 回東北大学リーディング大学院研究会	東北大学理学部化学棟	100 人	研究分野連携のための研究会

【米田グループ】

年月日	名称	場所	参加人数	概要
2013 年 4 月～2014 年 3 月	チーム内ミーティング（非公開）	東北大学・多元物質科学研究所・セミナー室	10 人	研究進捗のためのミーティング
2014 年 2 月 18 日	セミナー（非公開）	東北大学・多元物質科学研究所・セミナー室	15 人	情報収集・意見交換

平成 26 年度

【山下グループ】

年月日	名称	場所	参加人数	概要
2014 年 4 月～2015 年 3 月	グループ内ミーティング（非公開）	東北大学理学部	35 人	研究進捗の為のミーティング
2015 年 1 月 15 日	セミナー	東北大学理学部	60 人	情報収集・意見交換
2015 年 2 月 20 日～22 日	第 2 回東北大学リーディング大学院研究会	東北大学理学部	100 人	研究分野連携のための研究会

平成27年度

年月日	名称	場所	参加人数	概要
2015 年 4 月 18 日	セミナー	東北大学理学部	100 人	学術交流
2015 年 6 月11日	セミナー	東北大学理学部	100 人	学術交流

2015 年 8 月 24 日－25 日	セミナー	東北大学理学部	100 人	学術交流
2015 年 10 月 10 日	セミナー	東北大学理学部	100 人	学術交流
2016 年 1 月 13 日	セミナー	東北大学理学部	100 人	学術交流
2016 年 2 月 19－21 日	東北大学研究会	東北大学理学部	100 人	研究分野連携のための講演会
2015 年 4 月～2016 年 3 月（月1回）	グループ内ミーティング（非公開）	東北大学理学部セミナールーム	35 人	研究進捗報告のためのミーティング

平成 28 年度

年月日	名称	場所	参加人数	概要
2016 年 4 月 12 日	セミナー	東北大学理学部	70 人	学術交流
2016 年 5 月 31 日	セミナー	東北大学理学部	70 人	学術交流
2016 年 6 月 17 日	講演会	大阪大学基礎工学研究科	30 人	学術交流
2016 年 7 月 29 日	セミナー	東北大学理学部	70 人	学術交流
2016 年 8 月 4 日	セミナー	東北大学理学部	70 人	学術交流
2016 年 9 月 13 日	講演会	大阪大学基礎工学研究科	10 人	学術交流

2016 年 10 月 25 日	セミナー	東北大学理学部	70 人	学術交流
2017 年 1 月 24 日	セミナー	東北大学理学部	70 人	学術交流
2017 年 2 月 2 日～4 日	セミナー	東北大学理学部	70 人	学術交流
2017 年 3 月 6 日	セミナー	東北大学理学部	70 人	学術交流
2016 年 4 月～2017 年 3 月（月 1 回）	グループ内ミーティング（非公開）	東北大学理学部セミナールーム	35 人	研究進捗報告のためのミーティング

平成 29 年度

年月日	名称	場所	参加人数	概要
2017 年 6 月 6 日	講演会	東北大学理学部	50 人	学術交流
2017 年 6 月 9 日	講演会	東北大学理学部	50 人	学術交流
2017 年 9 月 13 日	講演会	東北大学理学部	50 人	学術交流
2017 年 9 月 29 日	講演会	東北大学理学部	50 人	学術交流
2017 年 10 月 25 日－26 日	講演会	東北大学理学部	50 人	学術交流

2018 年 2 月 23 日	講演会	東北大学理学部	50 人	学術交流
2017 年 4 月～ 2018 年 3 月 （月 1 回）	グループ内ミーティング（非公開）	東北大学理学部セミナールーム	50 人	研究進捗報告のためのミーティング

§8 最後に

古典磁石を用いた磁気記録メモリデバイスは「ムーアの限界」に直面している。この「ムーアの限界」を超すためには、古典磁石をナノサイズまで小さくしないといけないが、古典磁石をナノサイズにすると磁石として働かなくなる。そこで我々の研究の特徴はこの「ムーアの限界」を打ち破るために、ナノサイズの磁石である「単分子量子磁石」を用いることである。これは1個の分子が1個の磁石として働くために、1個のメモリー素子として働く。そのために「ムーアの限界」を超えることが可能となる。CREST 期間中に単分子量子磁石を用いた巨大磁気抵抗効果(GMR)およびトンネル磁気抵抗効果(TMR)を観測することができたので、目標の80%は達成していると確信している。あとはこの単分子量子磁石を用いて、磁気記録デバイスを作成するところが最後の関門であり、最大の難関である。ソニーや東京エレクトロンやベンチャー会社などの協力により、デバイス化の実現を目指す予定である。

プロジェクトの運営に関しては、合成と測定とデバイス作成と理論の密接な協力の下で、かなりうまく運営ができたと自負している。