

二次元有機量子ビット

山田 豊和* (千葉大学)

Toward 2D Organic Quantum Bits
Toyo Kazu Yamada* (Chiba University)

Quantum computation with entangled quantum bits requires an extremely high density of about 10^{12} Q-bits per square millimeter, with neighboring bits 2 nm apart. Q-bit densities, like those using photons, superconductors, and nitrogen-vacancy centers in diamond, are limited to around 1000 bits/mm². A new surface growth method for 2D Q-bit arrays utilizing organic molecules and magnetic atoms could significantly increase this density. These molecules allow for flexible designs, including 1D and 2D structures. We show progress in Q-bit growth on Cu(111) surfaces. We emphasize the need for electronic decoupling from the substrate to achieve long spin lifetimes, addressing challenges in using self-assembled monolayers and frameworks. All experiments were conducted using ultrahigh vacuum STM/STS at cryogenic temperatures.

キーワード：量子磁石，量子ビット，有機分子，グラフェン，表面合成，走査トンネル顕微鏡
(Keywords, Quantum magnet, Quantum bit, Organic molecule, Graphene, Surface synthesis, Scanning tunneling microscopy)

1. はじめに

1980年代から2010年代にかけて、人類は素子の微細化を進め、一人一台のスマートフォンを享受できる情報社会を実現した (Fig.1a)。現在、情報データセンターの消費電力量は60億 kWh以上に達しており、これは原子力発電所1基の発電量約21億 kWhを上回る。情報社会の発展とエネルギー削減問題は、喫緊の課題である。今後、GAFAM (Google, Apple, Facebook, Amazon, Microsoft) は、数百兆円規模に及ぶ人工知能や自動運転産業の発展を促進し、世界の情報量は現在の1000倍に増加すると予想される。このため、単

純に1000倍の電力と資源が必要となり、「地球温暖化」を一層促進することになる (Fig.1a)。

この地球規模の問題を解決するための一つの手段として、量子情報技術の活用が挙げられる。量子技術を用いた量子計算は、既存のコンピュータでは数百年かかる店舗シフト、物流経路、渋滞、作業プロセスなどの組合せ最適化問題を、わずか数時間で解決できるとされている (Fig.1b)。さらに、この量子技術は量子コンピュータにとどまらず、量子コミュニケーション、物質科学の発見、素粒子の探索、ナノサイエンス・メゾサイエンス (光触媒など)、半導体研究、医療用磁気センサ (脳波や心波)、エネルギー創出など、さまざま

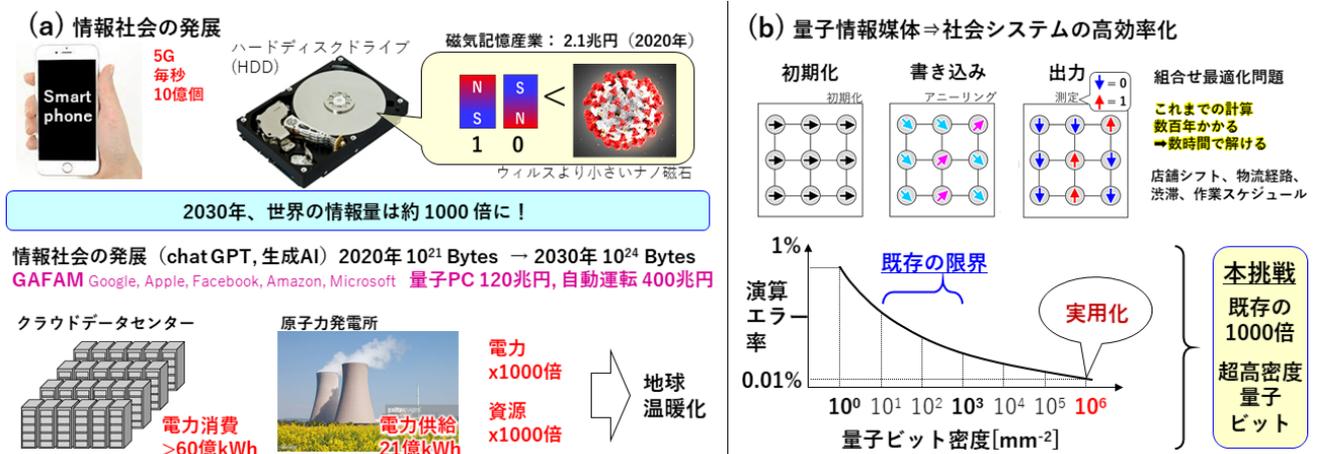


Fig.1 (a) 情報社会発展と消費電力拡大。Growth of information society and electric power costs. (b) 量子の力で情報社会発展に伴う地球温暖化を抑制する二次元・超高密度量子ビット媒体開発。Quantum computation utilizing 2D Q-bits, leading to ultrahigh density Q-bits.

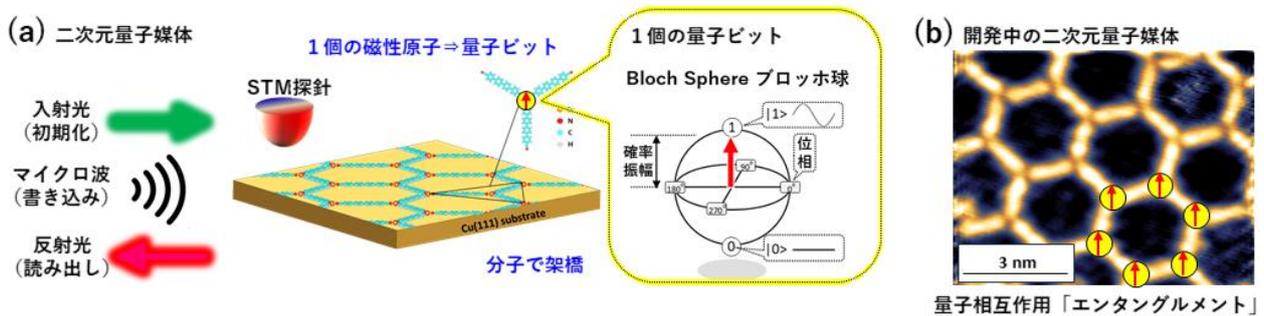


Fig.2 (a) 基板表面上での超高密度・二次元量子ビット媒体開発と可視光とマイクロ波による量子スピン情報制御。2D Q-bits prepared on a solid surface. (b) 開発中の二次元量子媒体の走査トンネル顕微鏡 (STM) 形状像。STM topographic image of 2D Q-bits array under development.

な分野に波及し、社会システムの効率化を通じた大幅な地球温暖化抑制が期待される。

この量子技術の「核」となるのが「量子ビット」である。しかし、実用化に向けて致命的な問題がある。Fig.1b の下段に示すように、実用化に必要な「100 万量子ビット/mm²」に対し、既存のトップダウン技術では 1000 量子ビット/mm²が限界である。そこで、我々は分子・原子の「表面合成技術」を用いて、超高密度の 1 兆 (=10¹²) 個の量子ビット/mm²を持つ媒体の開発に挑戦している。

2. 開発目標

超高密度の二次元固体量子情報媒体を作成するために、ボトムアップ式の真空エピタキシャル成膜法を活用する。Fig.2a は、本研究で開発する「二次元有機量子ビット媒体」の概要を示す。

まず、原子レベルで平坦かつ清浄な基板表面を準備する。この表面に、量子ビット配列の素材となる前駆体分子と磁性原子を吸着する。吸着した分子と原子は、自己組織的に結合し、規則的な二次元格子が形成されることが望ましい。各磁性原子が量子ビットとなり、Fig.2 に示すように、120 度対称で分子が配位する。また、基板からの結晶場によりスピン $S = 1/2$ を自発的に生じる。外部から磁界などの摂動を加えることで、スピンの分裂が起こり、二準位系が創出される(後述の Fig.3 参照)。

1 個の原子磁石の量子ビットは、熱拡散や基板原子との混合により量子スピン状態が変化しやすい。しかし、二次元格子を形成することで熱耐性が大きく向上する。分子が原子を支えることで柔軟性を保ちながら、原子の量子状態を保護できる。二次元ハニカム格子が実現すると、原理的に電子の速度は光速に近づき、グラフェンのようなディラック電子を持ち、エネルギーは速度に線形比例する。

さらに、ハニカム格子量子ビット系に強いスピン軌道相互作用を持つ物質 (Te, Bi, W, Ta など) を作用させることで、外部磁場がなくてもスピン分裂が生じ、二準位系が形成

される可能性がある。この際、ハニカム対称性に由来する電子バンド構造は「トポロジカル」に保護されるため、不純物や欠陥に対する耐久性が飛躍的に向上する。例えば、2D MOFs/Gr/インタカレート Bi/Ir(111)系が考えられる。

Fig.2b は、我々が開発している「二次元ハニカム格子」の走査トンネル顕微鏡 (STM) 像である。六角形の各交点には 1 個の磁性原子が存在する。この磁性原子が $S=1/2$ を基底状態に持ち、分裂できれば二準位となり、量子ビットとして利用できる。明るい線状部分は直鎖状有機分子であり、磁性原子周りに 120 度対称で配位するように設計されている。

量子素子にとって重要なのは、電子の“波”の性質を利用した量子ビット間の量子的相互作用(エンタングルメント)である。量子ビット間の距離は分子の長さ 2 nm で固定できるため、エンタングルメントが機能し、複数の量子ビットからなる量子スピン状態を扱うことが可能となる。これにより、二準位のスピン状態 $|1\rangle$ と $|0\rangle$ を重ね合わせた量子状態を作り出すことができる。Fig.2 に示すように、可視光で初期化と読み出しを行い、マイクロ波パルス ($\sim 10^9$ Hz) で情報を書き込む。

原子レベルのミクロな量子ビット情報を、マクロな可視光とマイクロ波を用いて制御する

3. 量子磁石

そもそも、量子ビットになる磁石とはどのような磁石であろうか? Fig.3 に、三次元(3D)バルク磁石、ゼロ次元原子磁石、有機分子磁石、そして、量子磁石の違いを示す。

Fig.3a のバルク磁石は、多くの磁性原子の規則配列が生み出すブロッホ波がスピン偏極電子状態密度バンドを形成する。これが磁石の源である。

一方、Fig.3b の 1 個の原子磁石は周期構造を持たないため電子軌道は離散するが、3d 軌道の場合、五重縮退している。このままでは各軌道の電子スピンは同じエネルギー位置に縮退しており、一個一個の電子スピンのアクセスできない。縮退を解くため、有機分子の配位子場や基板表面对称性に

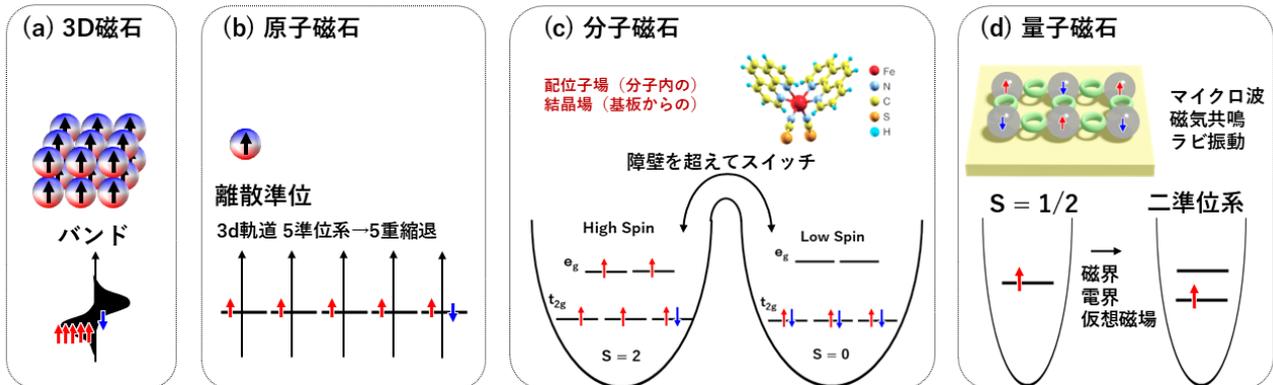


Fig.3 (a) The spin-polarized electronic density of states in bulk 3D magnets. (b) Discrete energy levels in 0D single-atom magnets. (c) The ligand field within the molecule and the substrate crystal field lift the orbital degeneracy in molecular magnets containing atomic magnets. High spin ($S=2$) and low spin ($S=0$) states can undergo phase transitions due to external perturbations like light, heat, or electric fields in spin-crossover molecules. (d) Quantum magnets have a ground state with $S=1/2$ and possess two levels, $|1\rangle$ and $|0\rangle$, by lifting orbital degeneracy. Microwave pulse irradiation creates superpositions of $|1\rangle$ and $|0\rangle$, confirmed through Rabi oscillation measurements.

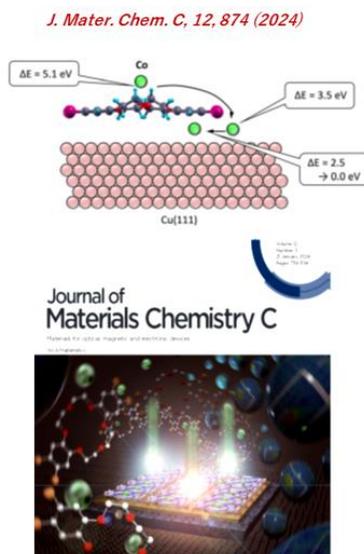
起因した結晶場を使う。Fig. 3c のスピncrossオーバー分子の例では、Fe 原子周りに窒素原子等を八面体配位することで軌道が分裂する。Fe 原子周りの窒素原子位置がわずかに変化することで、high spin ($S=2$) と low spin ($S=0$) 状態に相転移する。マクロには、光・熱・電界等の外部摂動で、この二相間のスイッチが可能である。¹

最後に、Fig.3d の量子磁石がある。原理的には、原子・イオン・ラジカルなど $S=1/2$ が発現できれば素材はなんでも

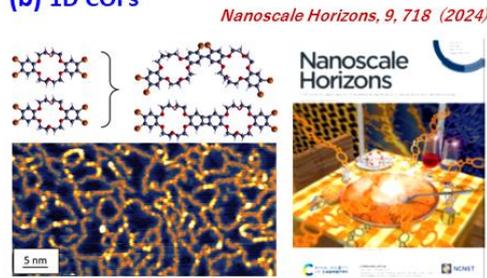
よい。この1つの状態を磁界・電界・仮想磁場などで分裂し二準位 $|1\rangle$ と $|0\rangle$ とし、マイクロ波パルスを用いて重ね合わせ状態： $\alpha|1\rangle + \beta|0\rangle$ を作り出せればよい。我々は、この量子磁石の二次元規則配列化を目指している。

Fig.3c の分子磁石でもスピン $S=1/2$ を基底状態にもつ系を作製し、これに磁界や、表面界面での空間反転対称性の破れに伴うランジュバ分裂の外部摂動を印加すれば、軌道縮退が解け二準位系が創り出せる可能性がある。

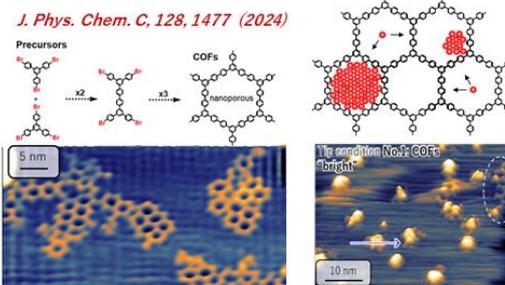
(a) 2D SAM + Co → 磁気ナノ粒子



(b) 1D COFs



(c) 2D COFs + Co → 磁気ナノ粒子



(d) 2D MOFs

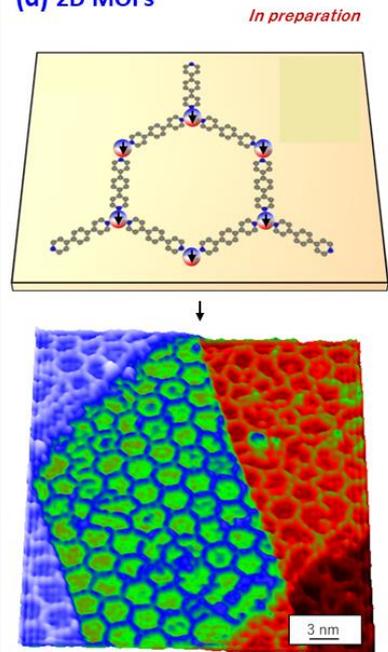


Fig.4 (a) A model illustrating the formation of Co nanoparticles through the adsorption of cobalt (Co) atoms on a two-dimensional self-assembled monolayer (SAM) of crown ether cyclic molecules. (b) Surface synthesis of one-dimensional polymer molecular films via the detachment of Br atoms from the ends of crown ether cyclic molecules and the formation of carbon-carbon covalent bonds. (c) Surface synthesis of two-dimensional covalent organic frameworks (2D COFs) using trisbenzene molecules as precursors, followed by the formation of Co atom clusters through Co atom adsorption. (d) Constructing two-dimensional metal-organic frameworks (2D MOFs) by cross-linking metal atoms with linear molecules as precursors.

4. 二次元固体有機量子ビット開発の経緯

〈4・1〉原子レベルで平坦・清浄な金属基板表面

二次元固体量子ビットの開発には、原子レベルで平坦な基板表面が求められる。貴金属表面は、過去数十年にわたる表面物性研究から、超高真空内でのスパッタ加熱法により、数百ナノメートル (nm) 幅以上の幅をもつ原子テラス作製法が確立している。本研究ではCu(111)を基板とした。²

〈4・2〉自己組織化単層(SAM)膜の活用

1個の原子磁石や分子磁石を基板表面に吸着し量子ビット機能が確認されても、熱揺らぎで容易に拡散してしまう。そこで、分子が密に規則配列した自己組織化単層 (self-assembled monolayer: SAM) 膜が活用できないか考えた。広くデバイス等で使用され耐久性と機能が保証されていた、フタロシアニン(Pc)分子・ポルフィリン(TPP)分子のSAM膜を使用した。研究を進める中で問題点が浮かび上がってきた。(1)Pc/TPP分子-SAM膜は78Kでも熱拡散し続け、(2)磁性金属原子を吸着するとSAM膜が乱され、(3)磁性原子は分子内に取り込まれずCu(111)基板と分子の間に潜り込んでしまった。³

つまり、このままでは安定な量子ビットとして使えないことが分かった。予めPc/TPPの中心に磁性原子を内包し、これを基板上で結合し二次元金属有機構造体(2D-MOFs)化できれば二次元量子ビットとして機能する可能性はある。Pc/TPP分子以外の策を模索した。そして、“クラウンエーテル(CR)分子”に着目した。CRは、その中心環で異種元素の原子・分子・イオンをトラップし内包できる機能を持つ(Fig. 4a)。⁴ CR分子SAM膜を作製し、コバルト(Co)原子を吸着した。すると、Pc/TPP SAM膜と異なり、CR-SAM膜は乱れなかった。各CR分子はCo原子をトラップした。しかし、Fig. 4aの断面モデルが示すようにCo原子はCR中央のリングでトラップされず、Cu(111)とCR分子の界面に移動しCo原子クラスター化してしまっただけであった。⁵

〈4・3〉二次元共有結合有機構造体(2D COFs)膜の活用

SAM膜の欠点は、1個1個の分子が弱い分子間相互作用で配列している点であった。そこで、より強固な分子間結合を用いれば、耐久性の向上が期待できると考えた。

原子レベルで平坦なCu(111)表面に前駆体分子を吸着しSAM膜を作製した。前駆体分子としてBr終端したCR分子を用いた。真空内で加熱しウルマン反応を起こした。Brが脱離し隣あうCR分子同士間で新たな共有結合が生じた。Fig. 4bに示すような一次元(1D)ポリマー膜を作製できた。⁶ 完全な直線状にならない理由は、分子間に基板からのCu原子を介する結合も混在するためと分かった。

この経験から、原子レベルでの平坦性と清浄を保持したまま「表面合成」により二次元分子格子膜の作成も可能と考えた。そこで、トリスベンゼン(TBB)分子を前駆体として、二次元・共有結合有機構造体(2D-COFs)を開発した。⁷

Fig. 4cにSTM形状像を示す。三回対称のTBB分子の終端Brが真空基板加熱で脱離し互いに新たな共有結合で連結することで、六角形が連結したハニカム格子を作製できた。Fig. 4c右部は、この2D-COFsにCo原子を吸着した結果である。Co原子(図中丸)は、六角形の穴の中で選択的に成長した。穴の大きさは約2nmである。厚さ一原子層で、約100個程度のCo原子集合体を作製できた。一方で、基板表面全体を覆うほどのCOFs膜はCu(111)表面ではできないことも分かった。ウルマン反応の際、Cu原子を介する準安定分子間結合の存在が要因と分かった。⁷

2D-COFsを用いた場合、格子自身には量子ビットは含まれない。COFsの作り出す大きさ約2nmの穴に量子ビットを配置する使い方になる。S=1/2を基底状態に持つ分子磁石を二次元多孔質膜の穴に配置すれば、二次元量子ビット配列になると考えられる。

〈4・4〉二次元金属有機構造体(2D MOFs)膜の活用

Fig. 4d上部に2D-MOFsを用いた量子ビット配列のイメージ図を示す。基板上で、磁性原子の回りに有機分子を対称的に配位する事で二次元ハニカム系が構築できる。この1個1個の磁性原子に基板からの結晶場と分子による配位子場が作用し、Fig. 3cに示す軌道分裂に伴うS=1/2基底状態が発現する系の探索が急務である。我々は第一原理計算と機械学習計算を併用しつつ、実験的に実現できる系を模索してきた。Fig. 4d下部は、我々が2024年に開発に成功した2D-MOFs膜である。一辺約2nmのハニカム格子を作製できた。Fig. 2で示したように格子の交点に磁性原子がある。

重要な点は、2D MOFs膜は基板の単原子ステップを越えて繋がっている点にある。つまり、表面全体を、一枚のカーペットで覆ったような、柔軟性のある量子ビット膜が実現できることを示唆している。

5. 基板との電子結合切断の重要性

Fig. 4で示したように、有機分子・分子磁石・磁性原子を組み合わせる事で、表面場を活用した二次元量子ビット配列を実現するための理解が少しずつ進んできた。その中で浮かび上がってきた重大な課題が、金属基板からの相互作用が、2D-COFsおよび2D-MOFs成長を阻害する点である。

(課題1) 貴金属基板は、原子レベルで平坦で清浄な表面を得るには極めて有用な材料である。しかし、加熱の際、表面上では、ステップ等の欠陥から無数の金属原子が表面上を

熱拡散する。これが分子と反応し、本来の目的にそぐわない準安定状態を作り出してしまふ。そのため、Fig.4b に示すような直線ではなく湾曲したポリマーや、Fig.4c のような部分的な COFs 形成に留まり、膜全体を覆うような COFs 膜ができにくい。

(課題 2) 貴金属基板のフェルミ準位には伝導電子が豊富にある。この電子の海に浮かぶ量子ビットは、伝導電子と強く相互作用し、量子ビット自体のスピン寿命 (spin lifetime) を大幅に縮める。

これらの課題を解決する策として、金属基板と量子ビットの間に“電子結合切断膜”を挟む方法が重要視されている。要は、フェルミ準位に電子を持たない半導体や絶縁体の上に量子ビットを配列してやればよい。しかし、通常、これらの物質は原子レベルで平坦な表面を乱す傾向にあるため、結晶性が高く、かつ、金属基板と整合性の高い材料が必要である。候補として、MgO/Ag(001), MgO/Fe(001), NaCl/Ag(001) などの絶縁膜がある。⁸⁻¹⁰ また、NbSe₂, TaS₂, Mn₂Te₃, Fe₃GeTe₂ 等に代表される原子層物質で使われている、カルコゲン元素 (S, Te, Se) 膜も電子結合切断膜として活用できよう。

さらに、グラフェン(Gr)も金属基板からの相互作用を切る機能を有するため、Gr/Ru(0001), Gr/Ir(111)も有益と考えられる。Fig. 5 に Gr/Ir(111)の STM 像を示す。実際に、Gr 上であれば分子磁石のスピンが保持され STS による量子スピン計測に成功できた。¹¹ 今後は、貴金属基板上に電子結合切断膜を製膜し、その上での表面合成による 2D-COFs 開発と量子磁石の吸着、あるいは 2D-MOFs 作製が、二次元量子ビット開発の重要な鍵となる。

6. STM による量子スピン計測技術

“量子スピン”は孤立した電子軌道にいる 1 個の電子である。この微小な存在にアクセスするには、外部から電子や電

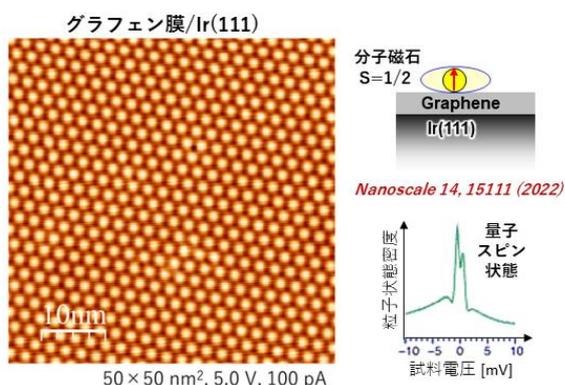


Fig.5 (左) Ir(111)上グラフェン膜の STM 像。STM topographic image of Gr/Ir(111). (右) グラフェン上での分子磁石の量子スピン状態 STS 計測。STS of molecular spin on Gr/Ir(111).

磁波(光)を使うしかない。当然、計測のために使う電子・光で量子状態は励起してしまふ。我々は、1 meV 以下までエネルギーを下げた電子を注入できる STM が量子スピン計測には有益と考える。また、応用上、可視光とマイクロ波によるスピン共鳴計測が重要と考え、STM にこれらを導入できる機構を自主開発している。

〈6・1〉 STM

原子レベルで微小な量子ビットを直接観察できる強力なツールとして、走査トンネル顕微鏡(STM)、がある。¹² Fig. 6a に概要を示す。STM では探針が試料表面を走査し試料形状を計測する。探針試料間距離 (z) は約 1 nm である。探針試料間に流れる“トンネル電流”を計測する。トンネル電流は、 $\exp(-2\kappa z)$ に比例するため ($\kappa \sim 0.1 \text{ nm}^{-1}$)、わずか 0.1 nm (= 10^{-10} m)の起伏変化でも大きな電流変化として計測できるため、Fe 単原子も容易に高さ約 200 pm の突起として観察できる(Fig. 6a)。我々の研究室では 4 台の超高真空 STM 装置を自主開発してきた (Fig. 6b)。STM 自体は高さ約 80 mm と小さい。しかし、宇宙空間と同じような不純物のない環境を準備するため、超高真空槽を準備しなくてはならない。また低温に冷やすためクライオスタット冷凍機も設置してある。

〈6・2〉 STS

STM の優れた点は、試料表面の各原子位置で、試料のフェルミ準位近傍 ($\pm 3 \text{ eV}$) の非占有と占有の電子スピン状態密度のエネルギー変化を計測できる点にある。走査トンネル分光法 (STS) と呼ぶ。各試料原子位置で、トンネル電流の電圧変化を計測し ($I-V$ 曲線)、これを数値微分すると微分伝導 dI/dV 曲線が得られる。この dI/dV 曲線が電子状態密度に比例する。各原子位置の各エネルギーでの dI/dV 値を二次元画像化すると電子状態密度二次元空間マッピングができる。さらに、探針先端に磁性原子を吸着すると、スピンの大きさと方向に依存してトンネル電流量が変化する。この差分を画像化すれば磁気像やスピン分布像が計測できる。

〈6・3〉 QPI

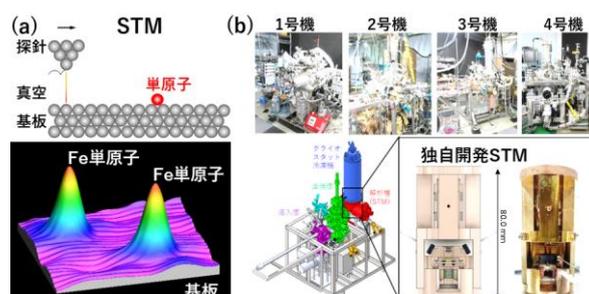


Fig.6 (a) STM 原理モデルと Fe 単原子の STM 観察例。STM model and STM 3D view of two isolated Fe atoms. (b) 自主開発した四台の超高真空低温 STM 装置群。Home-built STM setups.

STS の中で近年盛んなのが Quasi-Particle Interference (QPI) 計測である。¹³ STS マッピングと基本同じであるが、干渉波を計測するため広領域 (100×100 nm²) を 400×400 画素で、一画素あたり約 200 点で dI/dV 曲線を計測する (約 10-30 時間要する)。伝導電子や準粒子が存在する表面では干渉波が存在する。 dI/dV 像で二次元干渉波を計測しフーリエ変換像を取る。つまり、Fig.2 の二次元量子ビット格子の作り出す“二準位空間分布”を計測できる。マイクロ波を印加しながら QPI 像を測定する事で、量子ビット間エンタングルメントの直接可視化も可能である。

〈6・4〉マイクロ波と可視光

ダイヤモンド内にある窒素空孔 (NV) は $S=1/2$ 基底状態を有するため量子ビットとして扱える。炭素原子で NV スピンは強固に保持され、ダイヤモンド内の電子は強い共有結合による炭素原子間に固定されるため、自由電子はいない。結果として、室温・大気でも安定に存在できる量子ビットである。光学顕微鏡にマイクロ波印加用コプラナ導波路を取り付けることで、Fig.7 に示すようにスピン共鳴計測が可能となる。Fig.6 の超高真空 STM 装置に、現在、可視光とマイクロ波照射を可能とする機構を開発中である。作製した二次元量子ビット配列の量子スピン共鳴計測をその場で行い、量子ビット機能の確認、つまりラビ振動計測による量子重ね合わせ状態の制御を行うことができる。

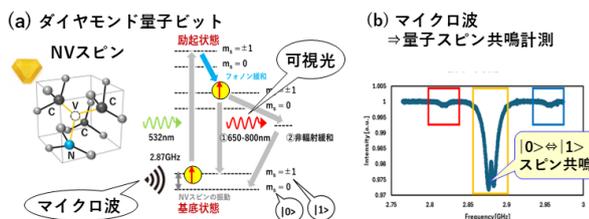


Fig.7 (a) ダイヤモンド内 NV 量子ビット。NV spin within a diamond. (b) NV 量子スピン共鳴計測。NV spin resonance.

7. まとめ

原子分解能を有する STM を用いた次世代・超高密度・二次元固体量子ビット開発の経緯について報告した。原子レベルで平坦な基板表面上での有機分子と磁性金属の相互作用が、規則的な配列を決定すること、そして基板の伝導電子と量子ビットの相互作用を切ることが、量子ビット開発の安定化および量子ビットの長寿命化において重要であることが明らかになってきた。

8. 謝辞

本研究は、山田研の学生の皆様及び多くの共同研究者の

皆様、堀江 正樹 博士、ピーター クリュージャー 博士、解良聡 博士、稲見 栄一 博士、福谷 圭介 博士、長谷川 友里 博士、根本 諒平 博士、Nana Nazriq 博士、佐々木 健人 博士、小林 研介 博士、Wulf Wulfhekel 博士、Amadeo Lopez Vazquez de Parga 博士の御助力により実施できた。ここに心より感謝の意を表す。また、科学研究費補助金 23H02033、小笠原敏晶記念財団、東電記念財団研究助成、松籟科学技術振興財団、カシオ科学振興財団、村田学術振興財団助成金の支援を賜ったことに対し、深く感謝申し上げる。

文 献

- (1) Miyamachi, T.; Gruber, M.; Davesne, V.; Bowen, M.; Boukari, S.; Joly, L.; Scheurer, F.; Rogez, G.; Yamada, T. K.; Ohresser, P.; Beaurepaire, E.; Wulfhekel, W. "Robust Spin Crossover and Memristance across a Single Molecule" *Nat. Commun.*, 3 (1), 938 (2012).
- (2) Nazriq, N. K. M.; Krüger, P.; Yamada, T. K. "Carbon Monoxide Stripe Motion Driven by Correlated Lateral Hopping in a 1.4×1.4 Monolayer Phase on Cu(111)" *J. Phys. Chem. Lett.*, 11 (5), 1753 (2020).
- (3) Inami, E.; Yamaguchi, M.; Nemoto, R.; Yorimitsu, H.; Krüger, P.; Yamada, T. K. "Direct Imaging of Precursor Adcomplex States during Cryogenic-Temperature On-Surface Metalation: Scanning Tunneling Microscopy Study on Porphyrin Array with Fe Adsorption at 78.5 K" *J. Phys. Chem. C*, 124 (6), 3621 (2020).
- (4) Nemoto, R.; Krüger, P.; Putri Hartini, A. N.; Hosokai, T.; Horie, M.; Kera, S.; Yamada, T. K. "Well-Ordered Monolayer Growth of Crown-Ether Ring Molecules on Cu(111) in Ultra-High Vacuum: An STM, UPS, and DFT Study" *J. Phys. Chem. C*, 123 (31), 18939 (2019).
- (5) Yamada, T. K.; Nemoto, R.; Nishino, F.; Hosokai, T.; Wang, C.-H.; Horie, M.; Hasegawa, Y.; Kera, S.; Krüger, P. "On-Surface Growth of Transition-Metal Cobalt Nanoclusters Using a 2D Crown-Ether Array" *J. Mater. Chem. C*, 12, 874 (2024)
- (6) Yamada, T. K.; Nemoto, R.; Ishii, H.; Nishino, F.; Chang, Y.-H.; Wang, C.-H.; Krüger, P.; Horie, M. "Designing 2D Stripe Winding Network through Crown-Ether Intermediate Ullmann Coupling on Cu(111) Surface" *Nanoscale Horiz.* 9 (5), 718 (2024).
- (7) Yamada, T. K.; Kanazawa, S.; Fukutani, K.; Kera, S. "Growth of Transition-Metal Cobalt Nanoclusters on 2D Covalent Organic Frameworks" *J. Phys. Chem. C*, 128 (3), 1477 (2024).
- (8) Schintke, S.; Messerli, S.; Pivetta, M.; Patthey, F.; Libioulle, L.; Stengel, M.; De Vita, A.; Schneider, W.-D. "Insulator at the Ultrathin Limit: MgO on Ag(001)" *Phys. Rev. Lett.*, 87, 276801 (2001).
- (9) K. M. Nazriq, N.; Krüger, P.; Kazu Yamada, T. "Improving MgO/Fe Insulator-Metal Interface Structure through Oxygen-Precoating of Fe(001)" *Appl. Surf. Sci.*, 618, 156628 (2023).
- (10) Olsson, F. E.; Paavilainen, S.; Persson, M.; Repp, J.; Meyer, G. "Multiple Charge States of Ag Atoms on Ultrathin NaCl Films" *Phys. Rev. Lett.*, 98 (17), 176803 (2007).
- (11) Ayani, C. G.; Calleja, F.; Ibarburu, I. M.; Casado Aguilar, P.; Nazriq, N. K. M.; Yamada, T. K.; Garnica, M.; Vázquez De Parga, A. L.; Miranda, R. "Switchable Molecular Functionalization of an STM Tip: From a Yu-Shiba-Rusinov Tip to a Kondo Tip" *Nanoscale*, 14 (40), 15111 (2022).
- (12) Wang, Y.; Chen, Y.; Bui, H. T.; Wolf, C.; Haze, M.; Mier, C.; Kim, J.; Choi, D.-J.; Lutz, C. P.; Bae, Y.; Phark, S.; Heinrich, A. J. "An Atomic-Scale Multi-Qubit Platform" *Science*, 382, 87 (2023).
- (13) Gozliniski, T.; Li, Q.; Heid, R.; Nemoto, R.; Willa, R.; Yamada, T. K.; Schmalian, J.; Wulfhekel, W. "Band-Resolved Caroli-de Gennes-Matronic States of Multiple-Flux-Quanta Vortices in a Multiband Superconductor" *Sci. Adv.*, 9 (36), eadh9163 (2023).