

2023 年度  
創発的研究支援事業 年次報告書

研究担当者	杉本敏樹
研究機関名	分子科学研究所
所属部署名	物質分子科学研究領域
役職名	准教授
研究課題名	次世代アクアナノ界面機能化学を拓く高次非線形分子分光
研究実施期間	2023 年 4 月 1 日～2024 年 3 月 31 日

**研究成果の概要**

水分子は種々の物質の表面に凝集・水和し、その界面は電気化学等の重要な化学技術の舞台である。本研究では、申請者らが展開してきた二次非線形レーザー分光研究を発展させ、これまで研究例が限られてきた溶液中の埋没界面の分光研究を推進する。

先ず、溶液中の触媒電極を電気化学条件下でその場観測し、電極の劣化挙動の解明や界面反応活性種観測およびリアルタイム反応追跡などを可能とする固液界面観測手法の開発とその高度化に取り組んだ。特に、(1) 溶液による光の吸収ロスがほとんど無視できる 3 つのフェムト秒光パルスの時間波形と照射タイミングを精密に制御・最適化した独自の三次非線形ラマン分光スキームの高度化を行った。その結果、溶液中に埋没したサブナノメートル厚さのモデル電極表面に対する高感度コヒーレントラマンスペクトルを取得することに成功した。従来のラマン分光法では界面分子系の観測にはプラズモン共鳴や電子励起共鳴が必須であったためラマン観測可能な分子系や物質系が極めて限られていたが、本手法の確立により、それらに全く頼ることなく様々な分子系や電極物質系に対して汎用的に高感度界面ラマンスペクトルの取得が可能になった。

さらに、ナノ界面機能の観測をもたらすために電子の集団応答とカップルさせたナノ非線形顕微分光計測の方法論開拓も行った。具体的には、温度・溶液濃度・電圧・擾乱を精密に制御した電解研磨を施したナノ Au 電極探針を作成することで、バックグラウンド散乱光を大幅に抑制させてナノ電極直下の分子由来の非線形分子信号を捉えることに成功した。特に、電子の集団応答が大きな Au のみならず、モデル電極材料として重要な Pt、Ni 基板の界面に対しても汎用的にナノ計測可能であることを示した。