

2024 年度
創発的研究支援事業 年次報告書【公開版】

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	2024 年 4 月 1 日～2025 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、形成されるヘテロ界面は水分解反応など環境エネルギー化学の基盤技術の舞台である。特に、水溶液環境で動作する電気化学反応系は、水電解水素発生反応のみならず、水による CO₂ 還元など、本質的に重要な研究対象である。本研究では、反応条件下において非破壊・非侵襲にリアルタイム界面観測が可能な新たな実験手法の開発に取り組み、より高次の非線形光学効果に基づく界面計測法を確立した。特に、フェムト秒・ピコ秒の異なる 3 パルス・ビームを用いて、時間領域分光法と周波数領域分光法をハイブリット化した分光スキームにより、バルク由来のバックグラウンド信号を大幅に低減し、さらにその強度を局所振動子(LO)として適度に調整することで、界面振動スペクトルの増感と高感度検出に成功した。さらに、計測のさらなる高精度化に向けて、新たに時間空間集光現象に関する物理的考察をすすめた。空間的・時間的な色むらが顕著な光パルスを活用することで時空間集光スキームを非線形分光法に応用することに成功し、レイリー領域内で生じるバックグラウンド信号の更なる低減と界面感度の向上を実現し、新たな非線形界面分光方法論を開拓することに成功した。その応用展開として、電気化学 CV 測定下での in-situ/オペランド界面分光に取り組み、CO₂ 還元電気化学反応において本質的となる炭素-銅電極系において、還元反応の新興に伴う分子変換や、銅電極の還元、炭素電極の還元的剥離現象を高い再現性と信頼性でオペランド観測することに成功した。また、CO₂ 還元や水電解の促進に有利な錯体塗布電極系に対して、オペランドヘテロダイナミクス計測を実施し、電気化学反応評価と共に電極及び界面水分子の H-up/H-down 応答の観測にも成功した。