

分子科学討論会および日本表面真空学会学術講演会 における優秀講演賞の受賞に寄せて

ナノスケール物性研究部門 吉信研究室 博士後期課程3年 亀山 理紗子

この度、2023年開催の第17回分子科学討論会ならびに、2023年度日本表面真空学会学術講演会におけるポスター発表に対して、学生優秀講演賞を受賞しました*。日々の地道な研究が実を結んだこと、それを評価していただいたことを非常に嬉しく思います。

受賞対象となった研究は「2色レーザー誘起空気プラズマによる広帯域赤外パルス光源を用いた振動分光法の開発」です。以下、開発の経緯と手法の特色を紹介します。

私が所属する吉信研究室では、モデル触媒表面における反応機構を研究しています。最近では、テラヘルツパルスを用いた表面反応の駆動を目指して、テラヘルツ分光を専門とする物性研究所松永研究室との共同研究を進めています。今回用いた2色レーザー誘起空気プラズマによるパルス光は、瞬間的に強力な電場を印加できるテラヘルツ光源として知られていますが、0-5000 cm^{-1} にわたる非常に広帯域の赤外(IR)成分をもつことも特徴の一つです¹⁾。

私はこの広帯域性に着目して、分子の振動分光への応用を考えました。今日、表面に吸着した分子の分析手法は数多く存在します。その中でも、振動和周波発生(V-SFG)分光法は、原理的に界面選択的な計測法であり、超短パルス光源を用いればサブピコ秒で発展する高速な分子ダイナミクスの追跡ができます²⁾。私は修士課程での研究経験から、凝縮相の計測データから表面の信号を抜き出すことに困難を感じたため、このV-SFG分光法に魅力を感じていました。

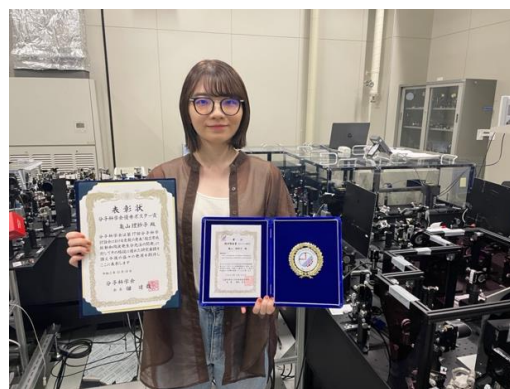
しかし、従来のV-SFG分光法には入射光の性質に基づく課題があります。V-SFG分光法では、分子振動に共鳴する周波数をもつIR光と、単色の可視光を入射光として、その和の周波数をもつ光(SFG光)を検出します。このIR光の発生手法として、固体結晶を用いた差周波発生(DFG)によるものが主流です。この手法で発生できるIR光の周波数帯域は狭いうえに、固体のフォノンが600 cm^{-1} 以下の低周波数領域に多く存在するため、低周波数のIR光発生には不利に働きます。したがって、V-SFG分光法の検出帯域・周波数の下限には制限があります。

上記の問題点2つを克服する手段として、我々は2色レーザー誘起空気プラズマによるIRパルス光を用いた超広帯域

V-SFG分光の提案と原理実証を行いました。学会発表では、アクリル樹脂の振動スペクトル計測から600-3000 cm^{-1} にわたる広帯域V-SFGスペクトルを示しました。現在では、装置の改良を重ねて250-3300 cm^{-1} までのV-SFGスペクトルの取得に成功しています。これにより、従来法では観察されてこなかった振動モードに対してのダイナミクス研究ができるようになることを期待しています。

また、今回開発した手法は広帯域IRパルス光のスペクトル評価にも用いることができます³⁾。つまり、表面分子だけでなくバルク物質の振動分光にも拡張ができます。今後は、開発した計測法をポンプ・プローブ分光法へ応用していき、表面・バルク相で起こるキャリアと分子の相互作用について洞察を深めていきたいと考えています。

以上の研究は、主にJST CREST「革新的反応」のご支援のもと、物性研究所吉信研究室と松永研究室との共同研究にて遂行しました。この場をお借りしまして、日頃よりのご支援・ご指導に心よりの感謝を申し上げます。



参考文献

1. Y. Chen, Y. He, L. Liu, Z. Tian, X.-C. Zhang, and J. Dai, *Photonics Insights* **2**, R06 (2023).
2. Y.-R. Shen, "Second harmonic and sum-frequency generation spectroscopy: Basics and Applications" (WORLD SCIENTIFIC, 2023).
3. R. Kameyama, S. Tanaka, Y. Murotani, T. Matsuda, N. Kanda, R. Matsunaga, and J. Yoshinobu, *Opt. Lett.*, **49**, 3978 (2024).

*受賞対象となったポスターは物性研究所A棟266号室前に掲示しています。