

令和 2 年 7 月 15 日現在

機関番号：56101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2019

課題番号：16K04905

研究課題名(和文) 気相パルスレーザーアブレーション法による複合プラズモニック可視光応答光触媒の創製

研究課題名(英文) Synthesis of composite plasmonic photocatalysis in visible light operation by vapor-phase pulsed laser ablation

研究代表者

吉田 岳人 (Yoshida, Takehito)

阿南工業高等専門学校・創造技術工学科・教授

研究者番号：20370033

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：プラズモニック光触媒が注目されている。しかし金属ナノ粒子/主触媒結合系のナノ領域での構造制御及び金属種の選択性に難点がある。研究代表者が独自に開発してきた気相反応性パルスレーザーアブレーションを用い、複数種の金属ナノ粒子を高い粒径・担持数密度制御のもとに生成することが可能である。

本研究では、モフォロジー制御された主触媒に対して、複数種の金属ナノ粒子を堆積し、複合プラズモニック可視光応答型光触媒を創製した。複数種の金属ナノ粒子を用いることで、波長域(可視～紫外)選択性を広げることが可能となった。また化学的に安定度の低い廉価な金属の導入によるコスト低下を同時に実現することが可能となった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

光触媒TiO₂に金属ナノ粒子担持した構造で、プラズモニック効果による可視光応答光触媒活性が初めて報告されて以来、この分野の研究が盛んになった。

研究代表者はナノ構造機能材料の創製法として、いち早く気相反応性パルスレーザーアブレーション(PLA)法の開発に携わり、PLA法による金属ナノ粒子担持TiO₂複合構造を創製し、局在表面プラズモン共鳴による可視域光触媒活性を実現した。さらに金属種を複数化することで、駆動波長域選択性を広げることが可能となった(可視～紫外)。また化学的に安定度の低い廉価な金属の導入によるコスト低減を同時に実現できたことは、産業応用のみならず学術的にも意義深いといえる。

研究成果の概要(英文)：Plasmonic excitation phenomena of nanostructured metals have realized high performance of photocatalysts in the visible light operation. Pulsed laser ablation (PLA) is a candidate process to this purpose. We have formed TiO₂ nanocrystalline films supporting Au or Ag nanoparticles by the PLA processes. We confirmed that the balled Au and Ag nanoparticles had the localized surface plasmonic resonance absorption band in the range of 510-610 nm and 400-490 nm, respectively.

We clarified that the Au-supporting on TiO₂ nanocrystalline films demonstrated visible-light-driven photocatalytic activities. In the case of Ag, there is a critical issue where Ag nanoparticles dissolve during chemical reactions. For this problem, encapsulating Ag nanoparticles in TiO₂ films was suggested as one promising structure. We also clarified a novel structures which have (amorphous TiO₂)/(Ag nanoparticles)/(anatase TiO₂) multilayer structures, showed excellent visible light operations.

研究分野：半導体工学

キーワード：パルスレーザーアブレーション 気相反応 ナノ結晶 ナノ粒子 ナノ構造体 光電子機能 光触媒活性

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

地球環境保全を最優先しながら、工業社会を持続的発展させる上で、光触媒への関心と需要が飛躍的に高まってきた。中でも最も多用される TiO_2 に金属ナノ粒子担持した構造で、プラズモニック効果による可視光応答光触媒作用が初めて報告されて以来 (K. Awazu et al., J. Am. Chem. Soc. 130, 2008), この分野の研究が盛んになってきた。 TiO_2 光触媒の可視光応答化では、窒素 (N) ドーピングによる方法が有名であるが (R. Asahi et al., Science 293, 2001), 基本的に不純物ドーピングの手法は、特に紫外応答を可視応答化する程度に深い準位を作る場合、その準位が再結合中心や散乱中心として動作することとなり、これは光触媒動作として必要とされる、励起電子 (e^-) -正孔 (h^+) 対の電荷分離と相反するものである。

研究代表者は、ナノ構造機能材料の創製法として、いち早く気相パルスレーザーアブレーション (PLA) 法の開発に着手し、世界に先駆けて、Si ナノ結晶の生成と可視光発光性を実証するとともに、1次ナノ結晶の凝集構造を、稠密な薄膜から柱状構造を経て、カリフラワー/ファイバーといったポロシティの高い構造まで制御できることを検証した。最近では、 TiO_2 ナノ結晶の生成において、簡単なプロセスパラメータの調整で結晶構造 (アナターゼ/ルチル) の制御が可能であり、これが非熱平衡性の気相 PLA プロセスにおける冷却速度から説明できること、及び短時間放射加熱アニール (RTA) により粒子間の焼結を抑制しつつ表面欠陥の回復を行うことで、光触媒活性が向上することを実証した。

プラズモニック光触媒の実現に向けては、気相 (He) PLA 法により粒径 $6.1 \pm 1.3 \text{ nm}$ の Au ナノ粒子の分散堆積のプロセスを見出している。また、Au の真空蒸着による島状構造の堆積 (この際の見掛けの堆積膜厚をパラメータとする) と電気炉アニールによる粒状化により形成した Au ナノ粒子分散担持系において、局在表面プラズモン共鳴 (LSPR) による可視域光吸収帯を確認している。

2. 研究の目的

【概要】

近年、プラズモニック光触媒の研究が盛んになってきた。しかし、金属ナノ粒子/主触媒結合系のナノ領域での構造制御及び金属種の選択性に難点があり、光触媒活性増強の機構も充分には解明されていない。研究代表者が独自に開発してきた気相反応性パルスレーザーアブレーションを用いれば、複数種の金属ナノ粒子を高い粒径・担持数密度制御のもとに生成することが可能である。本研究では、モフォロジー制御された主触媒に対して複数種の金属ナノ粒子を多重堆積し、複合プラズモニック可視光応答型光触媒を創製する。複数種の金属ナノ粒子を担持することで、局在表面プラズモン共鳴吸収帯が重ね合わせ結合され、広範囲の波長域 (可視~紫外) に対する光触媒活性の増強が期待される。さらにこの系では、異種金属ナノ粒子間のプラズモニック効果の相互作用も予測され、これについても検証する。

【研究期間内に何をどこまで明らかにしようとするのか? (研究内容の具体性)】

複合プラズモニック可視光応答型光触媒に関連して、本研究代表者の進展状況を述べる。気相 PLA 法による主触媒 (TiO_2) の1次ナノ結晶の生成と2次凝集体構造の制御、及びプラズモニック金属ナノ粒子 (Au) 個別の生成法までは到達しているものの、両者を融合した、複合プラズモニック光触媒の創製について未着手である。ただし、他のプロセス (真空蒸着と電気炉アニール) により Au ナノ粒子を担持した気相 PLA 法 TiO_2 薄膜において、可視光 (490-500nm) 誘起の光触媒活性を確認している。また Au については、気相 PLA 法によるナノ粒子分散担持プロセスを確立している。

本研究期間では、以下の順で気相 PLA 法による複合プラズモニック光触媒を創製・評価する。1) 複数種の金属 (Ag, Cu, Al) のナノ粒子分散担持プロセスを構築し、これらが単独 (SiO_2 基板上) で局在表面プラズモン共鳴 (LSPR) 吸収を示すことを検証する。2) 薄膜状主触媒 (TiO_2) に金属ナノ粒子を1種類づつ担持し、光学特性から LSPR の確認と、各金属種の LSPR 帯に応じた光触媒活性を評価する。ここでは、可視光応答性 (Au) と紫外領域における触媒活性増強 (Ag, Al) の発現に注目する。“基板”が TiO_2 になったことによる下地材質の屈折率変化が各金属ナノ粒子の LSPR 吸収帯のシフトに及ぼす効果を検証する。3) 複数の金属ナノ粒子を多重堆積により、主触媒 (TiO_2) 表面に担持することで、複合プラズモニック光触媒を創製する。この段階では主触媒 (TiO_2) のモフォロジーは稠密な薄膜とする。光学的評価から複合体の LSPR が各々の金属の LSPR の重ね合わせ (加算的) となっているか、あるいは異種金属間特有の相互作用をもたらしているかを評価する。光触媒活性評価においても、照射波長依存性が各々の金属の LSPR 吸収の重ね合わせで解釈できるのか否かに着目する。例えば、Au と Ag の

複合プラズモニック光触媒であれば、可視光応答の発現と紫外領域の活性増強を評価する。4)最後に主触媒 (TiO_2) のモフォロジーを、比表面積の大きい凝集構造 (カリフラワー、ウェブ構造) とすることでさらなる触媒活性の向上が見込めるかを評価する。

以上は実験的アプローチであるが、LSPR は、金属粒径、粒子数密度、金属種、媒質の屈折率、金属粒子と主触媒の接触面積などに依存するので、各段階で、FDTD 法などのシミュレーションを用いたプラズモン場の解析を行い、これと実験結果を比較しながら、複合プラズモニック光触媒の動作機構を解明する。特に複数種の金属ナノ粒子が担持した複合プラズモニック光触媒において、応答波長域が各々の金属の LSPR 帯の重ね合わせに一致しない場合は、シミュレーションによるプラズモン場解析結果との比較を議論し、その機構に一定の解釈を与える。

【本研究の学術的な特色・独創的な点及び予想される結果と意義】

独自の気相反応性 PLA 法を用いれば、前節で述べたとおり、1次構造をナノ結晶とする主触媒 (TiO_2) の2次凝集体の表面に複数種の金属ナノ粒子が多重担持された、複合プラズモニック可視光応答型光触媒を生成することが可能である。光触媒粒子をナノ化すると、比表面積が格段に向上することで、高活性化が期待できる。しかしながら、光触媒動作が太陽光エネルギーの約4%に相当する紫外領域照射下に限定されることは免れない。この問題に対して、N-ドーピングによる可視光応答化が開発されたが、不純物ドーピングの手法は深い準位を形成する場合、その準位が再結合中心や散乱中心として動作することとなる。これは光触媒動作として必要とされる、励起 e^-h^+ 対の電荷分離と相反するものである。本応募課題が提案する複合プラズモニック可視光応答型光触媒では、波長応答範囲を可視域まで広げるばかりでなく、紫外域での応答性増強も可能にするものである。また主触媒である TiO_2 はイントリンシックな状態で動作させるので、 e^-h^+ 対の散乱や再結合を促すこともない。結果として、太陽光照射下において、これまでにない高効率な光触媒動作が期待できる。

3. 研究の方法

【概要】

気相反応性 PLA 法を駆使し、シングルナノ領域で、主触媒 (TiO_2) に複数種 (3種) のプラズモニック金属ナノ粒子が担持した、複合プラズモニック可視光応答型光触媒を創製する。ここで次の3点を実現・評価する、1)複数種金属ナノ粒子のプラズモニック効果により可視光応答化と紫外領域活性向上を同時実現する、2)主触媒 (TiO_2) の2次凝集構造の制御により触媒としての実効的比表面積を向上させる、3)多様化した場合、すべての金属種の LSPR 吸収帯が重ね合わせ的に電子供給サイトとして作用する可能性と、特定の金属ナノ粒子が主触媒側電子の収集 (還元) サイトすなわち助触媒として作用する可能性がある。後者の場合、金属の組み合わせによる相互作用について、プラズモニクスと助触媒動作の両面から議論する。

【初年度】

本研究では制御性の良い主触媒/金属ナノ粒子結合系の創製のため以下のような条件を満たす PLA 装置を用いる。1)紫外域に吸収端をもつ酸化物ターゲットに対応するため、Q スイッチ Nd:YAG パルスレーザーの第4高調波 (266 nm) 励起、2)到達真空度 10^{-6} Pa 以下で $10\sim 500$ Pa の領域で高純度 O_2 または He を安定導入、3)ターゲットの保持・回転機構を保有、4)生成粒子の捕集基板の設置、5)高真空ロードロック室とマニピュレータの操作によりプロセス室を高真空保持したままターゲットの交換が可能。これらの機能を有する気相反応性 PLA 法により、主触媒ナノ結晶 (TiO_2) 上に複数種のプラズモニック金属ナノ粒子 (Au , Ag , Cu , Al など) を担持した、複合プラズモニック光触媒を創製する。

生成された主触媒ナノ結晶に対しては、1)1次構造としてシングルナノ領域の結晶粒子の形成、2)酸素欠損のない組成、3)明確な半導体吸収端構造 (3.2eV) が重要であり、複数種プラズモニック金属ナノ粒子に対しては、1)凝集の少ないシングルナノ領域の結晶粒子の形成、2)(表面酸化層は許容するとして)中心部までは酸化されていない非貴金属ナノ粒子の形成、3)金属種に固有な LSPR 吸収帯の存在が重要である。そこでこれらを構造・光物性の視点から評価し、主触媒と複数種プラズモニック金属ナノ粒子から成る複合プラズモニック可視光応答型光触媒の創製に向けた基礎的検証とする。これらの結果を踏まえ、主触媒 (TiO_2) ナノ結晶表面に金属ナノ粒子が担持されたプラズモニック可視光応答型光触媒のプロセス条件を構築する。まず主触媒 (TiO_2) とプラズモニック金属ナノ粒子の相互作用を明らかにするため、主触媒 (TiO_2) ナノ結晶のモフォロジーは薄膜構造とし、プラズモニック金属ナノ粒子は、酸化しにくく比較データが豊富に蓄積されている Au とする。この試料において、光透過・反射スペクトルから、 Au ナノ粒子の LSPR 吸収帯を評価し、 TiO_2 上 (屈折率が大气、 SiO_2 と異なる) の値としての妥当性と、 TiO_2 薄膜としての吸収端変化の評価を行う。その上でメチレンブルー (MB)

水溶液の分解測定から、可視域応答性と紫外域活性増強の確認を行う。さらに、プラズモニック金属ナノ粒子を Ag として同様の評価を行う。

【中間年度】

初年度に概ね構築した、複合プラズモニック可視光応答型光触媒における複数種プラズモニック金属ナノ粒子の粒径と幾何学的配置を、より高精度で制御できるように気相反応性 PLA プロセスの進化を図る。粒径と幾何学的配置制御は、主に雰囲気反応性ガスの圧力調整により可能であるが、その他にもレーザーパルスエネルギー、照射エネルギー密度、ターゲット/堆積基板間距離などのプロセスパラメータによっても制御されることを実証している (Umezumi et al., Phys. Rev. B 76, 045328, 2007)。特に複数種プラズモニック金属ナノ粒子については、それぞれの金属種での粒径、数密度の制御を確立した上で、多重堆積による多様化した場合の幾何学的配置の制御法も把握する。また光触媒機能以前のプラズモニクス基礎として、プラズモニック金属ナノ粒子単体 (SiO₂ 基板上) 及び主触媒 (TiO₂) 上での光学特性 (透過・吸収, 反射) を精査する。プラズモニック金属ナノ粒子が多様化した場合の光学特性については、吸収帯が単純に重ね合わされるのか、あるいは異種金属間の相関により新たな現象が発現するのかを、実験とシミュレーションの両面から評価する。

さらに光触媒としての機能性を検証する。波長 410nm 以上の可視光誘起により、液相ではメチレンブルー溶液の分解、気相では 2-プロパノールの分解による CO₂ の発生を評価する。この O₂ 発生の評価には、すでにハードウェアとして本校に立ち上げ済みの、熱伝導型 GC と質量分析型 GC を中心に構成する発生ガス分析系を用いる。プラズモニック金属ナノ粒子の多様化が光触媒機能の拡張 (応答波長範囲・活性増強波長範囲の拡張) に及ぼす効果と、主触媒 (TiO₂) の凝集ナノ構造制御による比表面積の増加が光触媒機能 (活性) に及ぼす効果についての精査を開始する。

【最終年度】

最終年度は、初・中間年度において得られた結果をもとに、1) 複数種 (3種) 金属プラズモニックナノ粒子担持の TiO₂ ナノ結晶薄膜における可視光応答性発現と紫外域活性増強の同時実現性について検証する、2) 主触媒である TiO₂ ナノ結晶の 2 次凝集の自己組織化を制御し、カリフラワー、ウェブ構造などを形成し、比表面積が光触媒活性に及ぼす影響について解析する。特に 1) については、プラズモニクスと光触媒化学の立場から、複数種プラズモニック金属が光触媒活性に与える効果についての見解を与える。ここまで得られた研究成果は、原著論文をはじめ国内外学術会議、知的財産、場合によってはマスメディアをとおして広く公表することで外部からの評価を仰ぐ。

4. 研究成果

【初年度 (平成 28 年度)】

気相パルスレーザーアブレーション (PLA) 法による TiO₂ 薄膜上へ Au ナノ粒子を担持する際に、PLA 法と電気炉アニール (FA) 法を併用することで、これまでの真空蒸着法と FA 法の併用よりも粒径分布幅を格段に小さくすることに成功した (規格化標準偏差として 40% の減少)。

また主触媒である TiO₂ 薄膜の光学特性評価 (光透過測定) を詳細に行い、1) 透過領域では干渉縞が観測されることから、平坦な薄膜であること、2) 干渉縞の間隔から既知のアナターセに一致する屈折率を持つこと、3) 半導体としての明確な吸収端構造を持ち、バンドギャップ幅はこれも既知のアナターセの値に一致すること、が判明した。

さらに、上述の気相 PLA 法による Au ナノ粒子担持 TiO₂ 薄膜系に関して、紫外光 (360nm) 励起の光触媒活性に注目して評価した結果 (メチレンブルー (MB) 分解法)、紫外光領域でも光触媒活性の増強を確認することができた。この効果は Au ナノ粒子の被覆率に敏感に影響されること、及び最大で TiO₂ 薄膜単独の約 2 倍の光触媒活性が実現できることが判明した。励起照射時間に対する MB 分解のレートは、ラングミュア-ヒンシェルウッドモデルにフィッティングできることもわかった。ちなみに TiO₂ 薄膜の結晶構造はアナターセに統一している。

この紫外域光触媒活性増強効果に関して、TiO₂ 薄膜から Au ナノ粒子への界面電子転送による、電荷分離促進の観点から考察を行った。

【中間年度 (平成 29 年度)】

気相パルスレーザーアブレーション (PLA) 法による TiO₂ 薄膜下へ、Ag ナノ粒子を内包担持させることで、これまでの Au ナノ粒子に加えて、2 種類の金属ナノ粒子による可視光応答型プラズモニック光触媒を創製・評価した。Ag ナノ粒子を TiO₂ 薄膜下かつ Si 基板上に配置したのは、Au よりは化学的に不安定な Ag ナノ粒子が触媒動作中に溶出してしまうことを防ぐためである。

気相 PLA 法による堆積と短時放射加熱 (RTA) 法によるポストアニールを組み合わせることで、Ag ナノ粒子の担持状態は、面積平均粒径: 20-35nm, 被覆率: 24-29%, 真円度: 0.92-0.94

であった。特に面積平均粒径は堆積時間とともに単調に増加する傾向をもつので調整することが可能である。これら担持されたAgナノ粒子の上層に、気相PLA法により、アナターセTiO₂ナノ結晶薄膜を膜厚50nm堆積することで主触媒とした。

上述のAgナノ粒子に対して光学測定を行うと、波長440nm付近に鋭い光吸収（ディップ）が観測された。これはすでに報告されているAgナノ粒子の局在表面プラズモン共鳴（LSPR）による吸収波長と一致している。また気相PLA法によるAgナノ粒子内包担持TiO₂薄膜系に関しては、可視光（410nm）励起の光触媒活性を評価した結果（メチレンブルー（MB）分解法）、同じ製法で堆積したアナターセTiO₂ナノ結晶薄膜よりも高い光触媒活性が得られることを確認した。可視光（410nm）励起での光触媒活性の増大が観測できたことは、この波長域でLSPR吸収を示すAgナノ粒子による電場増強効果が関与していると考えられる。

【最終年度（平成30年度）及び延長年度（令和元年度）】

中間年度までに到達した下層担持型のTiO₂主触媒層（50nm）/Agナノ粒子/Si基板構造の可視光（410nm）励起での光触媒活性を向上させることから着手した。しかしながら、TiO₂主触媒層の結晶性向上を目的としたRTA（600℃, 60s）を行うと、Ag-Ti-Oの多元型酸化物が生じてしまい、Agナノ粒子本来のLSPR（局在表面プラズモン共鳴）吸収が失われることが判明した。次に、TiO₂主触媒層にRTA（600℃, 60s）を施しアナターセ構造に相変態させてから、Agナノ粒子を表面担持させる構造をとったが、表面のAgナノ粒子は長期間の大気暴露もしくは光触媒活性評価における溶液中で容易に溶出してしまうことが判明した。

そこで結晶性のよい（RTA熱処理が施された）TiO₂主触媒層の上層にプラズモニック動作を担うAgナノ粒子を配置し、さらにこの上層をAgナノ粒子の溶出もしくはAgSO化を抑制する保護膜としてのTiO₂層（厚さ20nm程度、熱処理なし）で覆う、内包担持型複合構造を考案した。これはTiO₂保護層（20nm）/Agナノ粒子/アナターセTiO₂主触媒層/Si基板の積層構造を有する。保護膜TiO₂層には熱処理を加えることができないが、キャリア（電子）は表面に到達する必要がある。そのためTiO₂保護層の厚さ（標準20nm）が最重要パラメータとなる。

Agナノ粒子はパルスレーザーアブレーション法での堆積直後は島状構造となっており、これにRTA（400℃, 60s）を施すことにより、球状化させている。このRTA処理はこれまで大気雰囲気中で行ってきたが、Agナノ粒子がAgSO化し易いため、高純度窒素雰囲気でのRTA処理が可能となるプロセス改善を行った。

延長年度ではこれまでに考案した、金属ナノ粒子内包担持型プラズモニック光触媒における、TiO₂保護層（20nm）/Agナノ粒子/アナターセTiO₂主触媒層/Si基板の構造の、可視光（410nm）励起での光触媒活性評価から着手した。しかしながら、本内包担持構造の可視光励起光触媒活性は、2017年度までの下層担持構造型を上回ることができなかった。構造解析から、内包担持型ではRTA処理（400℃, 60s）による、島状構造から十分な粒状化を達成できておらず、その原因は下層アナターセTiO₂主触媒表面の凹凸が激しく、RTA処理時にAg原子が下層アナターセTiO₂主触媒層の表面空隙に浸透してしまい、粒状化のためのAgの自己拡散を阻害していることが判明した。

そこで下層アナターセTiO₂主触媒層の表面形状の平坦性を向上させる生成プロセスを再検討した結果、下層TiO₂主触媒層をPLAにより堆積する際、反応性雰囲気ガスであるO₂の圧力を低下することが有効であることが判明した。具体的にはこれまでの13 Paから9 Paに低下させた。このO₂、9 PaのPLA堆積とRTA（600℃, 60s, O₂）により形成された下層アナターセTiO₂主触媒層の表面構造は十分な平坦性を有しており、この上層に形成したAgナノ構造体はRTA（400℃, 60s）により十分な粒状化が達成されていることが確認できた。

このTiO₂保護層（20nm）/Agナノ粒子/アナターセTiO₂主触媒層構造の光透過から400nm近傍に光吸収帯が観測された。これが中間層のAgナノ粒子による局在表面プラズモン共鳴吸収と考えられる。可視域（410nm）励起による光触媒活性評価から、今回のO₂、9Pa中のPLAにより創製された金属ナノ粒子内包担持型構造は、これまでのO₂、13Pa中のPLAにより創製された際に比較して、1.4倍の活性を示した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 A. Higo, K Katayama, W. Nakamura, H. Fukuoka, T. Yoshida, T. Aoki, M. Yaga and I. Umezu	4. 巻 126
2. 論文標題 Expansion of laser-induced plume after the passage of a counter shock wave through a background gas	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Appl. Phys. A	6. 最初と最後の頁 304
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 K. Katayama, Y. Hourai, H. Fukuoka, T. Kinoshita, T. Yoshida, T. Aoki, and I. Umezu	4. 巻 124
2. 論文標題 Effect of counter shock wave on the expanding plume	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Applied Physics A	6. 最初と最後の頁 150-154
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 T. Yoshida, T. Watanabe, F. Kikuchi, T. Tabuchi, I. Umezu, and M. Haraguchi	4. 巻 122
2. 論文標題 Pulsed-laser-deposited TiO ₂ nanocrystalline films supporting Au nanoparticles for visible-light-operating plasmonic photocatalysts	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Applied Physics A	6. 最初と最後の頁 pp. 1-5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s00339-016-0035-6	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 I. Umezu, and T. Yoshida	4. 巻 99
2. 論文標題 Hierarchical Structure of TiO ₂ Nano-Aggregates Prepared by Pulsed Laser Ablation in Background Gas	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Electronics and Communications in Japan	6. 最初と最後の頁 pp. 40-45
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/ecj.11871	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計21件（うち招待講演 3件 / うち国際学会 10件）

1. 発表者名 T. Araki, T. Imai, T. Yoshida, I. Umezu, Y. Hosokawa, and M. Haraguchi
2. 発表標題 Ag-nanoparticle-included TiO ₂ nanostructures formed by pulsed laser ablation applied to visible-light-operating photocatalysts
3. 学会等名 15th International Conference on Laser Ablation (COLA 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Yoshida, T. Araki, T. Imai, Ikuro Umezu, and Masanobu Haraguchi
2. 発表標題 TiO ₂ -based nanostructures for plasmonic photocatalytic applications synthesized by vapor-phase pulsed laser ablation
3. 学会等名 25th Advanced Materials Congress (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 荒木 崇志, 今井 武史, 吉田 岳人, 梅津 郁朗, 原口 雅宣
2. 発表標題 気相パルスレーザーアブレーション法によるTiO ₂ ナノ結晶薄膜/Agナノ粒子複合ナノ構造の創製と可視光励起触媒活性
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 荒木 崇志, 今井 武史, 吉田 岳人, 梅津 郁朗, 原口 雅宣
2. 発表標題 相パルスレーザーアブレーション法によるAgナノ粒子内包担持型TiO ₂ 複合ナノ構造の創製と可視光励起触媒活性
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Yoshida, I. Umezu, and M. Haraguchi
2. 発表標題 TiO ₂ -based nanostructures for photocatalytic applications synthesized by vapor-phase pulsed laser ablation
3. 学会等名 The 4th Annual World Congress of Smart Materials (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 今井武史, 田淵武尊, 吉田岳人, 梅津郁朗, 原口雅宣
2. 発表標題 気相パルスレーザーアブレーション法によるAuナノ粒子担持TiO ₂ ナノ構造体の紫外光誘起光触媒活性
3. 学会等名 レーザー学会 中国・四国支部 関西支部連合 若手学術交流研究会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 今井 武史, 田淵 武尊, 吉田 岳人, 梅津 郁朗, 原口 雅宣
2. 発表標題 気相パルスレーザーアブレーション法による Au ナノ粒子担持TiO ₂ ナノ構造体の紫外光誘起触媒活性
3. 学会等名 第65回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 荒木 崇志, 吉田 岳人, 梅津 郁朗, 原口 雅宣
2. 発表標題 気相パルスレーザーアブレーション 法による Ag ナノ粒子構造体の作製とその構造
3. 学会等名 第65回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 T. Yoshida, T. Tabuchi, F. Kikuchi, I. Umezu, and M. Haraguchi
2. 発表標題 Enhanced photocatalytic activities of PLD TiO ₂ films supporting Au nanoparticles under UV irradiation
3. 学会等名 10th International Conference on Photo-Excited Processes and Applications (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 T. Yoshida, I. Umezu, and M. Haraguchi
2. 発表標題 UV and visible plasmonic photocatalysis applications of TiO ₂ -based nanostructures synthesized by vapor-phase pulsed laser ablation
3. 学会等名 6th Annual World Congress of Nano Science & Technology (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 田淵 武尊, 菊地史人, 吉田岳人, 梅津郁朗, 原口雅宣
2. 発表標題 気相パルスレーザーアブレーション法によるAuナノ粒子担持TiO ₂ ナノ構造体の光触媒活性
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第37回年次大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 菊地史人, 渡辺てい, 田淵武尊, 吉田岳人, 梅津郁朗, 原口雅宣
2. 発表標題 パルスレーザーアブレーション法による金属ナノ粒子担持型光触媒の作製と特性評価
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第37回年次大会
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	原口 雅宣 (Haraguchi Masanobu) (20198906)	徳島大学・大学院社会産業理工学研究部(理工学域)・教授 (16101)	
研究 分担者	梅津 郁朗 (Umezu Ikurou) (30203582)	甲南大学・理工学部・教授 (34506)	