

酸化物双極子層を用いた光電極のフラットバンド電位の変調

Modulating the Flatband Potential at Oxide Photoanodes using Atomic-scale Dipoles

SLAC¹, Stanford 大², 東工大物質理工³, °疋田 育之¹, 立川 卓¹, 長田 礎², Kyuho Lee²,
西尾 和記^{2,3}, 小笠原 寛人¹, Harold Y. Hwang^{1,2}

SLAC¹, Stanford Univ.², Tokyo Tech.³, °Yasuyuki Hikita¹, Takashi Tachikawa¹, Motoki Osada²,
Kyuho Lee², Kazunori Nishio^{2,3}, Hirohito Ogasawara¹, Harold Y. Hwang^{1,2}

E-mail: hikita@stanford.edu

金属酸化物半導体は、その高い化学的安定性や物理化学的性質を自在に制御できることから、光触媒及び光電気化学的水分解に不可欠な材料である[1]。酸化物半導体の光吸収、電気伝導性などのバルク物性に加え、酸化物/水溶液界面のバンドアライメント制御は、光キャリアの空間的分離を決定付ける重要なパラメータの一つである[2]。近年我々は、*n* 型半導体 SrTiO₃ (001)単結晶を用い、最表面から数 nm 下にエピタキシャル成長した LaAlO₃ 層が (LaO)⁺層と(AlO₂)⁻層から形成される双極子を形成することで、1.3 V を超える範囲に渡ってフラットバンド電位 (E_{fb}) を変調することに成功した[3]。これまでで最大の変調範囲を実現した一方で、変調方向は *n* 型半導体の光電流を減少させる方向であった。

本発表では、同じく SrTiO₃ を用いて、 E_{fb} を 400 mV に渡って負方向にシフトさせ、光電流を増加させることに成功した研究について報告する。TiO₂ 終端した Nb-ドーパ SrTiO₃ (001)基板上に、パルスレーザ堆積法を用いて負に帯電した(AlO₂)⁻層を堆積した後、電荷中性な SrTiO₃ 層を数原子層堆積したヘテロ構造を作製した。本構造を水溶液に浸すことで、最表面に(AlO₂)⁻を補償する正電荷が表面吸着することで、双極子が完成する仕組みである。このヘテロ構造は、既に酸化物金属/半導体界面で実証した固定イオン電荷層と金属層内の遮蔽電子によって界面障壁高さを変調する原理を模したものである[4]。酸化物のバルク物性と独立に固液界面のバンドアライメントを制御できる技術は、光触媒や光電気化学素子を開発する上で有望であると考えられる。発表では、ヘテロ構造の作製手法、光電気化学、分光測定の詳細について報告する。

[1] A. Kudo, Y. Miseki, Chem. Soc. Rev. **38**, 253 (2009).

[2] M. G. Walter *et al.*, Chem. Rev. **110**, 6446 (2010).

[3] Y. Hikita *et al.*, Adv. Energy Mater. **6**, 1502154 (2016).

[4] T. Yajima *et al.*, Nature Commun. **6**, 6759 (2015).