傾斜組成 Mg ドープ ZnO 薄膜の光触媒特性

Photocatalysis of compositionally-graded Mg-doped ZnO thin films

佐藤湧太 [1], 丸山伸伍 [1], 神永健一 [1] , 松本祐司 [1]　（東北大院工 [1]）

Yuta Sato[1], Shingo Maruyama[1], Kenichi Kaminaga[1] and Yuji Matsumoto[1]　(Tohoku Univ.[1])

E-mail: yuta.sato.q8@dc.tohoku.ac.jp

【緒言】ZnO は，紫外線照射条件下で水分解に活性を示す半導体光触媒であり，Mg ドープによるキャリア変調が可能である．先行報告からドーパント濃度を連続的に変化させた傾斜組成薄膜では光キャリアの長寿命化による高い光触媒活性能が期待されるものの[1]，その相関性は未解明な部分が多い．そこで，本研究では，Mg 濃度の異なる ZnO ターゲットを打ち分けることで任意の組成を持った薄膜合成が可能なガルバノ走査型パルスレーザー堆積(PLD)装置を用いて，Mg:ZnO 傾斜組成薄膜の作製を試み，その光触媒特性を調査したので報告する．

【実験】PLD 法を用いて，*c*-sapphire 基板上に ZnO バッファ層 100 nm を堆積させた．バッファ層上に，ZnO 単膜，$Mg_{0.2}Zn_{0.8}O$ 単膜，基板から薄膜表面にかけて Mg 0%から 20%までドープ量を濃度傾斜させた up-graded，および up-graded と濃度傾斜方向が逆向きの down-graded 薄膜をそれぞれ 50 nm 堆積させた．製膜条件は，酸素分圧 5 ×10^{-5} Torr，基板温度 650°C とした．各薄膜を硝酸銀水溶液(0.1 mol/L)に浸し，高圧水銀ランプを 1 時間照射することで，光反応を行った．薄膜の評価には，X 線光電子分光(XPS)による深さ方向分析および X 線回折(XRD)を用いた．

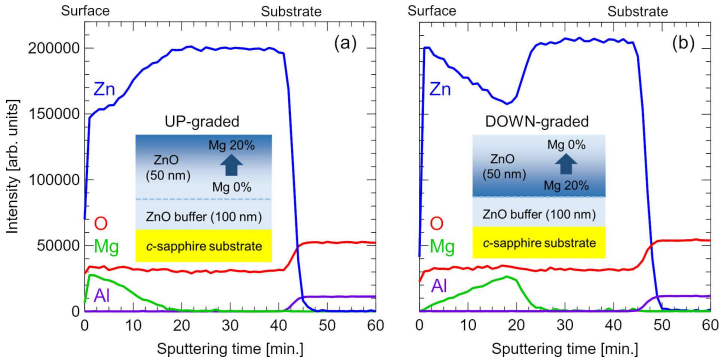

Fig.1 Depth profiles by XPS for (a) up-graded and (b) down-graded Mg:ZnO films.

【結果と考察】Fig.1 に示す up-graded，および down-graded 薄膜の XPS スペクトルにより，設計通りに膜厚方向の Mg の濃度勾配が実現していることがわかる．Fig.2 に示す光反応後の各薄膜の XRD 2*θ*-*θ* スキャンでは，すべての膜について還元反応による銀の光析出が確認された．さらに，Mg をドープしたサンプルについては，$Ag_7O_8NO_3$ ピーク[2]も確認され，正孔による水の酸化反応（酸素発生）に加え，銀イオンのさらなる酸化が進行した．ZnO の光銀反応で $Ag_7O_8NO_3$ を合成した報告例はなく，そのピーク強度は down-graded 薄膜で最も大きかった．このことから，ZnO の傾斜組成薄膜では，光触媒酸化反応の選択性が変化することが示唆された．詳細な光触媒特性とそのメカニズムについては当日報告する．

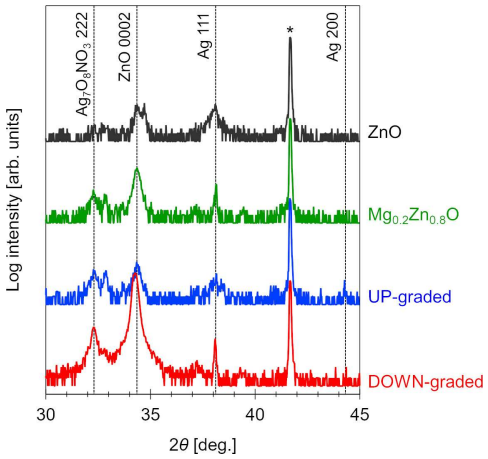

Fig.2 XRD patterns after photoelectrochemical reaction in $AgNO_3$ aq.

[1] R. Konno *et al.*, *Chem. Mater.* **33,** 226-233 (2021).　[2] R. Tanaka *et al.*, *CrystEngComm* **17**, 3701-3707 (2015).

【謝辞】本研究は、JSPS 科研費 20H02610 の助成を受けたものです。