

(La, Rh):SrTiO₃ 薄膜におけるドーパント比のコントロールDopant ratio control in (La,Rh):SrTiO₃ thin films東大物性研¹, °(M2) 江面 周士¹, 森泰蔵¹, リップマー ミック¹Univ. of Tokyo, ISSP¹, °Shuji Ezura¹, Taizo Mori¹, Mikk Lippmaa¹

E-mail: 2666728511@edu.k.u-tokyo.ac.jp

【背景】Rh:SrTiO₃は可視光下で水素生成水分解が可能な、最も優れた光電極材料である。ドーピングされたロジウムの価数は薄膜作製条件に依存し、作製条件を変えることで、Rh⁴⁺:SrTiO₃ Rh³⁺:SrTiO_{3-δ}の両方を得ることができる⁽¹⁾。しかし、Rh⁴⁺:SrTiO₃ではバンドギャップ内に位置する未占有のRh⁴⁺準位によって急速なキャリア再結合が起こり、Rh³⁺:SrTiO_{3-δ}では、ギャップ内の酸素欠陥準位によって光キャリアのトラップが引き起こされることから、ロジウムのみをドーピングしたSrTiO₃の光触媒活性は高くない。そこで、酸素欠陥のない状態でロジウムの価数を3+に安定化させるために、(La,Rh):SrTiO₃薄膜の作製を行った。しかし、高い光触媒活性を持つ(La,Rh):SrTiO₃薄膜を得るためには、薄膜中のドーパント比を正確に1:1にコントロールする必要があり、そのズレを0.01at%以下に抑えなければならない一方で、パルスレーザー堆積法においてドーパント比をその精度でコントロールする方法はない⁽²⁾。

本研究ではパルスレーザー堆積法において、Rh:SrTiO₃ターゲットとLa:SrTiO₃ターゲットの二つのターゲットを交互に入れ替えながら(La,Rh):SrTiO₃薄膜を作製し、それぞれのパルス数を調整することで、そのドーパント比のコントロールを試みた。

【実験・結果】光電極薄膜はパルスレーザー堆積法を用い、作製中に二つのターゲットを交互に入れ替えることで作製された。この時、それぞれのパルス数を調整することで、ドーパント比をコントロールした。図に各サンプルにおけるサイクリックボルタンメトリー測定から得られた-1.0 V vs. Ag/AgClにおける光電流密度とドーパント比の関係を示す。横軸に示されるドーパント比は、各ターゲットにおける堆積割合から計算されたものである。この結果から、実際の1:1のドーパント比はサンプルDのあたりに位置していることが予想され、光電流密度の値にピークが現れたことから、この方法によってドーパント比のコントロールが可能であることが示唆された。

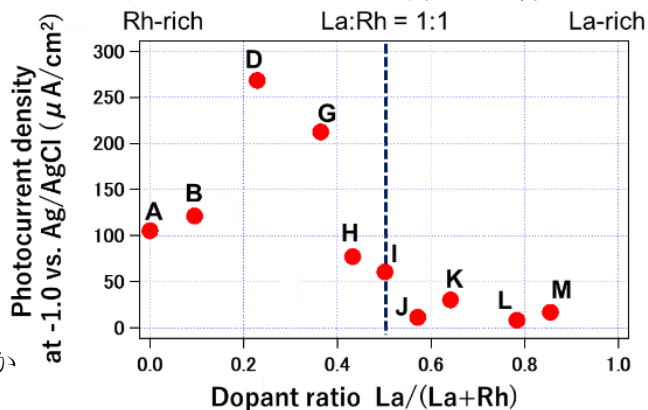


Figure. Measured photocurrent vs dopant ratio. The dopant ratio was calculated from the deposition rate of each target

(1) Y. Hosokawa, “photoelectrochemical activity of co-doped SrTiO₃”, thesis (2018) (未公開)

(2) X. Guo, Y. Pu, W. Wang, L. Zhang, J. Ji, R. Shi, Y. Shi, M. Yang, and J. Li, ACS Sustainable Chem. Eng., 7, 13041 (2019)