

高温 539°Cにおける LaFeO₃ の結晶構造および電子密度分布 Crystal structure and electron density distribution of LaFeO₃ at a high temperature 539 °C

○尾本和樹¹ 八島正知^{1,2}

1 東工大・院総理工、2 東工大・院理工

ペロブスカイト型酸化物 LaFeO₃ 系材料は固体酸化物形燃料電池(SOFCs)の空気極や触媒として応用が期待されている。これまで LaFeO₃ の結晶構造、電気化学特性および熱力学的安定性については多くの研究者により調べられている。しかしながら、LaFeO₃ の電子密度分布の報告はなされていない。またペロブスカイト型遷移金属酸化物の遷移金属の 3d 軌道と酸素の 2p 軌道が形成する共有結合と物性の中に相関があると推定されている。そこで本研究では SOFCs が動作する高温における LaFeO₃ の電子密度分布を、放射光粉末回折データのリートベルト解析および最大エントロピー法(MEM)により研究した。放射光粉末回折測定を KEK の PF の BL-4B₂ の多連装回折計により実施した。図 1 に 539.4 °C で測定した LaFeO₃ の放射光回折データのリートベルト解析図形を示す。リートベルト解析により空間群 *Pnma* で精密化した格子定数は $a = 5.56756(1) \text{ \AA}$, $b = 7.85593(1) \text{ \AA}$, $c = 5.55605(1) \text{ \AA}$ であった。図 2 に MEM 解析により得られた LaFeO₃ の等電子密度面と(100)面上における電子密度分布を示す。Fe-O 結合間に電子密度の重なりがある。これは Fe-O 結合が共有結合を持つことを示している。Fe-O 結合間(最小価電子密度: 1.01 \AA^{-3})より La-O 結合間(最小電子密度: 0.53 \AA^{-3})の電子密度の方が低かった。従って、La-O 結合はよりイオン性である。第一原理計算により得られた LaFeO₃ の電子密度分布の結果でも、La-O 結合間よりも Fe-O 結合間の電子密度が高いことがわかり、大小関係に矛盾の無い結果を得た。

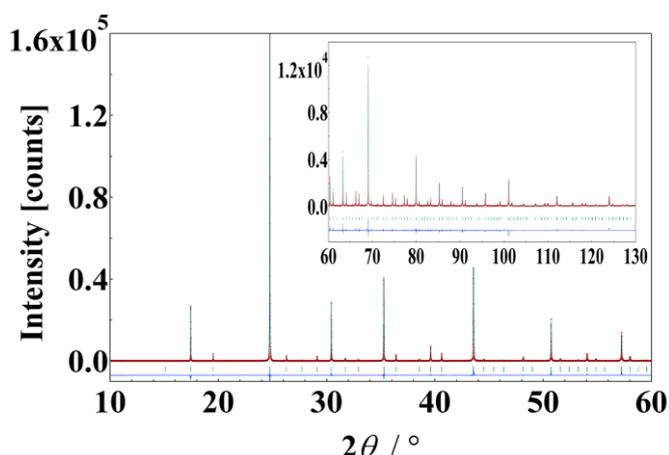


図 2 LaFeO₃ のリートベルト解析図形(539.4°C)

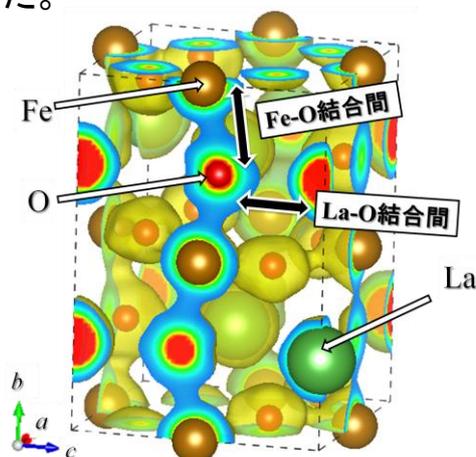


図 2 LaFeO₃ の等電子密度面(1.2 \AA^{-3})