

In-situ-Verfahren zur Bestimmung hoher Sauerstoffdefizite in Cer-Zirkon-Mischoxiden für den Einsatz in der Abgasnachbehandlung

Gefördert durch die Deutsche Forschungsgemeinschaft



In Zusammenarbeit
mit dem Institut für Energieforschung
und physikalische Technologien der TU Clausthal
(Prof. Dr.-Ing. Holger Fritze)



Im Projekt wurde die Defektchemie von Cer-Zirkon-Mischoxiden mittels unterschiedlicher Messverfahren *in situ* analysiert. Schwerpunkt der Untersuchungen waren zum einen die Ermittlung der Nichtstöchiometrie mit Hilfe einer hochtemperaturstabilen Nanowaage sowie der chemischen Expansion durch einen speziellen Vibrometer-Aufbau (Institut für Energieforschung und Physikalische Technologien, TU Clausthal). Zum anderen wurden die dielektrischen Materialeigenschaften von CZO-Pulvern durch Mikrowellenmessungen an einem Hochtemperatur-Hohlraumresonator untersucht (Lehrstuhl für Funktionsmaterialien, Universität Bayreuth). Darüber hinaus wurde für alle synthetisierten $Ce_{1-y}Zr_yO_2$ -Materialien ($y = 0; 0,20; 0,33; 0,50$) die elektrische Leitfähigkeit bestimmt.

Die Untersuchungen mit der Nanowaage an Schichten ergaben, dass die Zugabe Bildung von Defekten im Sauerstoffteigitter fördert - mit den größten festgestellten Nichtstöchiometrie bei $y = 0,50$. Ursächlich sind hier Gitterspannungen im Mischkristall. Durch die Korrelation der Daten der unterschiedlichen Messmethoden konnte zudem gezeigt werden, dass bei geringen Nichtstöchiometrien Leerstellen durch den Sauerstoffaustausch mit der Umgebung dominieren. Bei weiterer Reduktion von CZO interagieren die Defekte zunehmend miteinander. Im Falle hoher Nichtstöchiometrien wird der Ladungsträgertransportmechanismus des Hüpfens kleiner Polaron zunehmend gehemmt und die Leitfähigkeit steigt kaum noch mit der CZO-Reduktion an.

In Einklang mit den Ergebnissen zur Leitfähigkeit von gesinterten Keramiken und den dielektrischen Eigenschaften von Pulvern konnte auch gezeigt werden, dass das defektchemische Verhalten für CZO-Materialien weitgehend unabhängig vom Gefüge ist und die Volumenleitfähigkeit bereits bei 500 °C dominiert. Im Gegensatz dazu zeigten die Untersuchungen an reinem Ceroxid, dass die Morphologie hier entscheidenden Einfluss auf die Defektkonzentrationen im Material nimmt. Nanokristallines Ceroxid (Pulver, Schichten) weist höhere elektrische Verluste und geringe Aktivierungsenergien der Leitfähigkeit auf, was in der Literatur auf die Ausbildung von Raumladungszonen in den Korngrenzbereichen zurückgeführt wird. Messungen mit dem Vibrometer belegten zudem einen Zusammenhang zwischen der chemischen Expansion und der Nichtstöchiometrie in CZO. Aufgrund der höheren erreichbaren Nichtstöchiometrien in CZO war die gemessenen Expansion an CZO-Proben deutlich größer als die von reinen Ceroxid-Proben.

Kontakt

E-Mail: Ralf.Moos@uni-bayreuth.de
Telefon: +49 921 55 7401
www.funktionsmaterialien.de