

Hochfrequenzgestützte Charakterisierung von Cer-Zirkon-Mischoxiden für den Einsatz in der Abgasnachbehandlung

Melanie Zehentbauer, M. Sc.

Zusammenfassung

Durch die immer schärfer werdende Abgasgesetzgebung ist eine ständige Entwicklung von Drei-Wege-Katalysatoren und damit der Sauerstoffspeicherkomponente, welche heutzutage aus Cer-Zirkon-Mischoxide besteht, von Nöten. Um die Sauerstoffspeicherkomponente effizient weiterzuentwickeln ist ein genaues Verständnis der Cer-Zirkon-Mischoxide sowie der ablaufenden Prozesse während der Sauerstoffspeicherreaktion erforderlich.

Ziel dieser Arbeit war das Charakterisieren von Cer-Zirkon-Mischoxiden unterschiedlicher Zusammensetzungen hinsichtlich ihrer elektrischen Eigenschaften. Hierzu wurden Mischoxide mit einem Zirkonium-Anteil von 33 und 67 % homogenisiert und kalziniert. Die kristallinen und die morphologischen Eigenschaften spielen bei der Sauerstoffspeicherreaktion eine besondere Rolle, weshalb diese mittels XRD und REM bestimmt wurden.

Der defektchemische Ansatz beschreibt die Beziehung zwischen dem Reduktionsgrad der Sauerstoffspeichermaterialien und der elektrischen Leitfähigkeit: Je höher die Leitfähigkeit, desto stärker ist das Material reduziert. Zur Bestimmung der Leitfähigkeit wurden die Mischoxide in Form von Bulk-Proben mittels Vierleiter-Technik kontaktiert und in reduzierender (niedrige Sauerstoffpartialdrücke) sowie oxidierender Atmosphäre (hohe Sauerstoffpartialdrücke) bei Temperaturen von 600 bis 900 °C vermessen. Um definiert hohe und niedrige Sauerstoffpartialdrücke zu realisieren, musste die Gasanlage entsprechend modifiziert werden. Die messtechnische Erfassung des Sauerstoffpartialdrucks am Ort der Proben erfolgte über eine YSZ-Sonde. Bei den Messungen wies das Mischoxid mit 33 % Zirkonium-Anteil über den gesamten Messbereich eine höhere Leitfähigkeit auf, weshalb darauf geschlossen werden konnte, dass das Mischoxid im Vergleich zu den anderen beiden Sauerstoffspeichermaterialien aufgrund der kristallinen Eigenschaften am stärksten reduziert werden kann.

Eine weitere Methode zur Bestimmung der dielektrischen Eigenschaften stellt die hochfrequenzbasierte Charakterisierung der Mischoxide in Form von Pulverproben in einem Hohlraumresonator dar. Mit dieser Methode lässt sich aus den Hochfrequenzparametern *in operando* unter Betrachtung des TM_{010} -Modus die komplexe Permittivität (ϵ' und ϵ'') der Sauerstoffspeichermaterialien bestimmen und direkt miteinander vergleichen. Die Messanlage wurde so modifiziert, dass Proben temperaturen bis 550 °C sowie hohe und niedrige Sauerstoffpartialdrücke definiert eingestellt werden konnten. Diese wurden messtechnisch vor und nach der Probe mit einer konventionellen Lambda-sonde erfasst, was eine vorhergehende Temperaturkalibration erforderte. Es wurde eine temperaturprogrammierte Reduktion und eine stufenweise Reduktion bei gleichbleibender Temperatur durchgeführt. Hierbei beschrieben die dielektrischen Verluste den Oxidationszustand der Sauerstoffspeichermaterialien. Anders als bei den Leitfähigkeitsmessungen wies das Mischoxid mit 33 % Zirkonium-Anteil nicht die höchsten dielektrischen Verluste auf. Somit konnte die aktive Oberfläche als entscheidende Größe für den Sauerstoffspeicher dargestellt werden.

Da zwischen den dielektrischen Parametern aus den Hochfrequenzmessungen und der elektrischen Leitfähigkeit ein direkter Zusammenhang besteht, wurden die Messergebnisse am reinen Ceroxid miteinander verglichen. Die elektrische Leitfähigkeit, die aus den Hochfrequenzparametern bestimmt wurde, stimmte nicht mit den Leitfähigkeitsmessungen überein. Neben dielektrischen Verlusten gehen ebenso ohmsche Verluste in ϵ'' ein.

Kontakt:

Prof. Dr.-Ing. Ralf Moos

Telefon: +49 921 55 7400

E-Mail: Ralf.Moos@Uni-Bayreuth.de

www.funktionsmaterialien.de