

Marc Amkreutz, *Modellierung und Strukturaufklärung amorpher Si-C-N-Prekursorkeramiken auf atomarer Ebene*.

Dissertation (in deutscher Sprache), Department Physik, Fakultät für Naturwissenschaften, Universität Paderborn (2003).

160 Seiten, 90 Abbildungen, 30 Tabellen.

Kurzfassung

In dieser Arbeit wurde die Struktur der bei der Pyrolyse entstehenden, amorphen Prekursorkeramiken im System Si-C-N mit Hilfe des DFTB-Verfahrens quantenmechanisch modelliert, aufbauend auf den schon existierenden, experimentellen Daten. Damit wurden mögliche Modelle der Struktur der realen, amorphen Keramiken geliefert, welche direkten Einblick in die Struktur geben und damit in ihre Besonderheiten auf atomarer Ebene.

Betrachtungen der zur Herstellung der Keramiken verwendeten Prekursoren führten zu der Feststellung, daß aufgrund der wenigen und nicht eindeutigen Daten keine konkreten Modelle für die tatsächlichen Strukturen der Polymerprekursoren bestimmt werden konnten. Somit war es nicht möglich, eindeutige Informationen über die Struktur des vorkeramischen Netzwerks zu erhalten und damit über geeignete Startstrukturen für das Generieren der amorphen Keramiken.

Es wurde ein der Pyrolyse angepaßtes Molekulardynamikregime, die *Simulierte Pyrolyse*, entwickelt, das sich als geeignet für die Simulationen erwies. Für die Startstruktur zeigte sich, daß nicht prekursorähnliche Startstrukturen geeignet waren, sondern eine α - Si_3N_4 -Struktur, welche entsprechend der Stöchiometrie der amorphen Keramik mit Kohlenstoff dekoriert wurde. Ausgehend von dieser ließen sich mit der Simulierten Pyrolyse amorphe Modelle von Prekursorkeramiken verschiedenster Stöchiometrie und Dichte generieren, die zudem noch unter Verwendung unterschiedlicher Prekursoren erstellt wurden. Die erzeugten Modelle stimmen mit den experimentellen Daten sehr gut überein und stellen somit mögliche Modelle für die tatsächliche, atomare Struktur der amorphen Keramiken dar. Charakteristische Eigenschaften dieser Strukturen sind eine Phasenseparation in amorphen Kohlenstoff und amorphes Si_3N_4 auf kleiner Ebene und eine gering ausgeprägte amorphe Schicht verbindender Si-C-Bindungen, das Auftreten gemischter Si-Tetraeder der Form $\text{Si}(\text{C},\text{N})_4$, größtenteils sp^2 -artig eingebauter Kohlenstoff und Hohlräume an den Randgrenzen der einzelnen amorphen Phasen. Durch die Hohlräume besitzt die restliche Struktur eine deutlich größere Dichte als die im Experiment bestimmte mittlere Dichte.

Diese Eigenschaften geben auch eine mögliche Erklärung für die Hochtemperaturstabilität der Keramiken. Die Phasenseparation und die Bildung von Hohlräumen in der amorphen Phase wirken zunächst der Kristallisation entgegen, erst durch stärkeres Aufheizen der Struktur können entsprechende Umordnungsprozesse angeregt werden.

Die Simulierte Pyrolyse ermöglicht es also, Prekursorkeramiken ungeachtet des zu ihrer Herstellung verwendeten Prekursors mittels einer universellen Startstruktur – mit entsprechenden Modifikationen der Dichte und Stöchiometrie – zu modellieren. Somit ist ein Verfahren zur Generierung der amorphen Prekursorkeramiken gefunden worden, das sehr universell und einfach ist. Der verwendete Prekursor gibt dabei nicht den Ausschlag. Vielmehr hängen Struktur und Besonderheiten der amorphen Keramik nur von ihrer Dichte und Stöchiometrie ab, und damit von der Position im Phasendreieck, wenngleich dies indirekt vom Prekursor beeinflußt wird.

Schlagwörter

DFTB-Verfahren, Molekulardynamik, Strukturmodellierung, Röntgenbeugung, Neutronenbeugung, Strukturfaktoren, Prekursor, Pyrolyse, amorphe Keramik, Phasenseparation, Hohlräume, Silizium, Stickstoff, Kohlenstoff