
Kurzzusammenfassung

Die vorliegende Dissertationsarbeit befasst sich mit der Synthese, Verarbeitung und dem grundlegenden chemischen Verständnis von hochentropischen Oxiden (HEOs) und hochentropischen Sulfiden (HESs) unter Verwendung von Metallalkoxiden und -thiolaten. Ausgangspunkt der Arbeit ist die zentrale Hypothese, dass nicht allein thermodynamische Entropieeffekte, sondern insbesondere die Chemie der eingesetzten Vorstufen eine entscheidende Rolle für Homogenität, Phasenstabilität und strukturelle Kontrolle multikomponentiger anorganischer Materialien spielen. Ziel war es daher, systematisch zu untersuchen, wie unterschiedliche Precursorstrategien die Ausbildung entropiestabilisierter Phasen beeinflussen.

Ein zentraler Teil der Dissertation beruht auf der Multi-Source-Precursor basierten Synthese von hochentropischen Materialien. Ein Teil dessen ist die Synthese von hochentropischen Oxidfasern mittels polymerunterstütztem Elektrosponnen unter Verwendung von PVP als viskose Matrix. Durch die Anpassung eines polymerunterstützten Spinning-Verfahrens an multikomponentige Metallsysteme konnten kontinuierliche $(\text{MnFeNiCoZn})_3\text{O}_4$ Nanofasern mit homogener Elementverteilung hergestellt werden. Die Ergebnisse belegen, dass klassische Spinning-Strategien auch für moderne Hochentropiematerialien geeignet sind, sofern Spinnparameter, Polymeranteil und thermische Behandlung sorgfältig abgestimmt werden.

Der umfangreichste Teil der Arbeit bildet die systematische Untersuchung alkoxidbasierter hochentropischer Oxide. Diese ermöglichte die Kontrolle von Hydrolyse- und Kondensationsreaktionen, sodass gezielt verschiedene M:O Stöchiometrien einschließlich MO_2 , M_2O_3 sowie gemischtvalente Systeme des Typs $(\text{M}^{\text{IV}}_3\text{M}^{\text{III}}\text{M}^{\text{V}})\text{O}_2$ erreicht werden konnten. Dieser vorstufenbasierte Ansatz erlaubte klare Korrelation zwischen Precursorreaktivität, Oxidationsstufenkompatibilität und Phasenbildung. Besonders hervorzuheben ist die erfolgreiche Stabilisierung gemischtvalenter HEOs, die über klassische äquimolare Systeme hinausgehen.

Im Gegensatz zur Synthese von hochentropischen Oxidmaterialien als Pulver stellt die Herstellung von Dünnschichten mit homogener Metallverteilung eine Herausforderung dar. Im Rahmen dieser Arbeit wurden HEO-Dünnschichten erfolgreich durch den Einsatz eines Gemisches molekularer Alkoxide in einem kommerziellen Verdampfer hergestellt. Dieses technische System ermöglicht die kontrollierte Injektion multimetallischer Precursorlösungen und schlägt eine Brücke zwischen lösungsbasierter Chemie und plasmagestützter Dünnschichtdeposition. Die

Charakterisierung der resultierenden Dünnschichten zeigen, dass precursorbasierte Hochentropiekonzepte erfolgreich auf funktionelle Beschichtungen übertragen werden können.

Abschließend wurde das Precursorkonzept für hochentropische Materialien durch die Synthese von tetravalenten Metallthiolaten und deren Einsatz in thiolbasierten Sol-Gel Routen zur Herstellung von hochentropischen Sulfiden erweitert. Der nicht hydrolytische Thio-Sol-Gel Prozess ist ein bislang wenig untersuchtes Forschungsgebiet. Die resultierenden Ergebnisse zeigen, dass Thiolatprecursoren eine effektive Schwefelquelle darstellen und gleichzeitig eine homogene Metallverteilung ermöglichen.

Die in dieser Dissertation dargestellten Ergebnisse verdeutlichen, dass Hochentropiematerialien nicht ausschließlich durch thermodynamisch getriebene Phänomene entstehen, sondern, dass Precursorchemie, Reaktionskinetik und Prozessführung entscheidende Faktoren für ihre erfolgreiche Synthese sind.