

Kurzzusammenfassung

In dieser Arbeit wurden neuartige heterostrukturierte Uranoxid Materialien zur solar-getriebenen Wasserstoffproduktion mittels photoelektrochemischer Wasserspaltung getestet. Uranoxide eignen sich hierbei aufgrund ihrer elektronischen Struktur mit Bandlücken im Bereich von 1,8-3,2 eV, sowie ihrer elektrischen und katalytischen Eigenschaften als Elektrodenmaterialien. Da abgereichertes Uran als Abfallprodukt bei der Anreicherung von ^{235}U für Brennstoffe in Kernkraftwerken in großen Mengen anfällt (alleine 700.000 Tonnen in den USA), ist dessen Weiterverwendung ökonomisch interessant. Zudem stellt dessen aktuelle Zwischenlagerung in Form des gasförmigen UF_6 eine ökologische Gefahr durch unfallbedingte Freisetzung von toxischen Verbindungen dar. Obwohl die chemische Umwandlung des reaktiven UF_6 zu dem stabilen Feststoff U_3O_8 prozesstechnisch möglich ist, wird dieser Schritt aufgrund zu hoher Kosten (\$880 Millionen) eingespart. Um zu prüfen, ob die Darstellung von U_3O_8 dennoch wirtschaftlich sinnvoll sein kann, wurde das Material hinsichtlich seiner Anwendung in erneuerbarer Energiegewinnung untersucht. Hierzu wurde zunächst die Synthese und Zersetzung flüchtiger, luftstabiler metallorganischer Uranverbindungen zu Uranoxid Dünnschichten mittels thermischer und Plasma-assistierter Gasphasenabscheidung durchgeführt. Die resultierenden Materialien wurden über moderne spektroskopische Methoden analysiert und deren Performance in einer photoelektrochemischen Zelle getestet. Da die photoelektrokatalytischen Eigenschaften von Uranoxiden im Vergleich zu gängigen Metalloxidmaterialien (z.B. Fe_2O_3 , TiO_2 , ZnO) relativ unerforscht sind, wurde der experimentelle Ansatz durch *ab-initio* DFT-Berechnungen unterstützt. Hierbei wurde der Einfluss des U:O Verhältnisses auf die elektronische Struktur, sowie die thermodynamische Stabilität der UO_x Materialien anhand von theoretischer Berechnungen und Röntgen-Nahkanten-Absorptions-Spektroskopie untersucht. Des Weiteren wurde der Effekt von Dotierstoffen und Grenzflächenmodifikation durch die Darstellung von UO_x/MO_x Kompositmaterialien mittels *in-situ* Röntgen-Nahkanten-Absorptions-Spektroskopie und Transient-Absorptions-Spektroskopie erforscht. Die kombinierten Analyse-Methoden wurden gezielt eingesetzt, um ein tiefgehendes Verständnis der Funktion von Uranoxiden als Teil heterostrukturierter Elektrodenmaterialien in photoelektrochemischer Wasserspaltung zu erlangen.