



Malte Behrens. Foto: Vladimir Unkovic

*Dieser Überblick führt in die Welt der Sonderforschungsbereiche (SFB) und die der Katalyse ein. Zudem beschreibt er, was die Forscher\*innen in dem hier vorgestellten SFB beschäftigt und antreibt.*

## Die Kunst der Katalyse im Sonderforschungsbereich

*... alles andere als nur oberflächlich*

von Malte Behrens & Franziska Günther

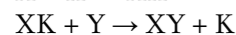
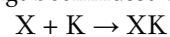
Als Katalysator wirken“ ist ein Ausdruck, der bereits Eingang in die Umgangssprache gefunden hat, und der dafür steht, dass durch Hinzunahme eines neuen Aspekts, einer neuen Tätigkeit oder auch einer neuen Person, eine festgefahrene Situation aufgelöst oder ein Durchbruch geschafft werden kann. Diese Verwendung für zwischenmenschliche Abläufe kommt der Bedeutung des chemischen Fachbegriffs schon recht nahe. Dieser beschreibt einen Katalysator als einen Hilfsstoff, der eine chemische Reaktion beschleunigt, ohne dabei verbraucht zu werden. Solche Reaktionen, und

damit die Katalyse, sind in unserem Alltag allgegenwärtig. Die meisten denken dabei vermutlich zuerst an Katalysatoren in Kraftfahrzeugen zur Abgasreinigung oder eventuell auch an großchemische Prozesse wie die katalytische Ammoniaksynthese, bekannt als Haber-Bosch-Verfahren, zur Herstellung von Düngemitteln. Katalytische Prozesse nutzen die Menschen aber schon seit Jahrtausenden, unter anderem bei der alkoholischen Gärung oder der Essigsäureherstellung. Dabei kommen Enzyme als komplexe molekulare Biokatalysatoren zur Anwendung. Seit Jahrmillionen werden fast alle

biochemischen Vorgänge in der Natur durch Enzyme katalysiert und ermöglichen damit chemische Reaktionen, auf denen das Leben auf der Erde basiert. Heutzutage ist Katalyse zusätzlich eine Schlüsseltechnologie in der chemischen Industrie, denn ungefähr 90 Prozent aller chemischen Reaktionen in dieser Industrie benötigen einen Katalysator. Ohne Katalysatoren gäbe es Treibstoffe, Düngemittel, Medikamente, Kunststoffe, Pflanzenschutzmittel etc. nicht in der gewohnten Form.

Der Begriff Katalyse geht auf den dänischen Chemiker Jöns Jakob Berzelius zurück, der den

Namen vom griechischen Wort *katalysis* für „Auflösung“ ableitete. Der deutsche Chemiker und Nobelpreisträger Wilhelm Ostwald etablierte im späten 19. Jahrhundert die heute noch gängige Definition, dass ein Katalysator ein Stoff ist, der, ohne im Endprodukt einer chemischen Reaktion zu erscheinen, ihre Geschwindigkeit, das heißt ihre Kinetik, beeinflusst. Das chinesische Schriftzeichen für Katalysator kann auch Heiratsvermittler bedeuten und beschreibt die Vorgehensweise eines Katalysators bereits sehr deutlich. Einfach ausgedrückt, bringt der Katalysator zwei Ausgangsstoffe, auch Reaktanten oder Edukte genannt (hier beispielsweise in Form von X und Y), dazu, miteinander zu reagieren, die ansonsten nicht zusammengekommen wären, und etwas Neues zu produzieren (XY). Die vereinfachte chemische Reaktion von  $X + Y \rightarrow XY$  kann durch den Katalysator K beispielsweise wie folgt beeinflusst werden:



Der Katalysator kann dabei eine Reaktion beschleunigen (oder verlangsamen, dies wird aber eher selten gewünscht) und setzt die dafür notwendige Aktivierungsenergie herab. Das bedeutet, dass die Reaktion über das Intermediat XK weniger Energie als Triebkraft benötigt als wenn die beiden Reaktanten ohne Katalysator miteinander reagieren würden. Als Folge kann die katalysierte Reaktion auch bei niedrigeren Temperaturen stattfinden. Obwohl Katalysatoren an der Reaktion beteiligt sind, werden sie nicht verbraucht, sondern sie werden nach der Reaktion zurückgebildet. Da hierfür zunächst immer mindestens ein Reaktant an den Katalysator binden muss und diese Bindung nach Umwandlung des Reaktanten in das Produkt wieder gelöst werden muss, verlaufen katalysierte Reaktionen immer nach einem mehrstufigen Mechanismus. Die Reaktion wird energetisch weniger anspruchsvoll und dadurch gegenüber dem unkatalysierten

Fall beschleunigt, aber gleichzeitig mechanistisch anspruchsvoller und schwieriger zu studieren. Die Katalyse verläuft also zyklisch unter Beteiligung und Rückbildung des Katalysators, der danach für einen neuen Reaktionszyklus zur Verfügung steht. Daher können kleine Mengen eines Katalysators auch große Mengen an Ausgangsmaterialien umsetzen. Dies ermöglicht ressourcenschonendere und effizientere Synthesen, weil weniger Energie zugeführt werden muss und gleichzeitig nur geringe Mengen eines geeigneten Katalysators benötigt werden. Gleichzeitig können die Ausgangsstoffe besser verwertet und die Reaktionen selektiv gestaltet werden, so dass mehr vom gewünschten Endprodukt und weniger ungewollte „Abfall“-Produkte entstehen. Katalyse gewährleistet damit einen sparsamen und nachhaltigeren Umgang mit Energie und Ressourcen. Der Großteil der katalytischen Prozesse in der chemischen Industrie basiert auf heterogener Katalyse, das heißt die Reaktanten (das Hochzeitspaar X und Y) und der Katalysator (der Hochzeitsvermittler K) liegen in verschiedenen Phasen vor und lassen sich deshalb auch leicht voneinander abtrennen. Gewöhnlich ist der Katalysator ein Feststoff, während die Ausgangsstoffe als Gas oder Flüssigkeit vorliegen. Ein Beispiel dafür ist die Abgasreinigung im Kraftfahrzeug, bei der die schädlichen gasförmigen Verbrennungsprodukte (Kohlenmonoxid CO, Kohlenwasserstoffverbindungen und Stickoxide NO<sub>x</sub>) an einem festen Katalysator (aus z.B. Platin, Rhodium oder Palladium) zu den nicht giftigen Abgasen (Kohlendioxid CO<sub>2</sub>, Wasser H<sub>2</sub>O und Stickstoff N<sub>2</sub>) umgewandelt werden. Im Gegensatz dazu befinden sich in der homogenen Katalyse die Reaktanten und der Katalysator in der gleichen Phase, indem beispielsweise beide gasförmig sind.

Große Bedeutung für die Aktivität des heterogenen Katalysators hat seine Oberfläche, Porosität und

Textur (Form, Größe und Volumen der Poren), an denen komplexe chemische Prozesse ablaufen. Diese Prozesse sind bei Metallen bereits einigermaßen gut verstanden, aber für Oxide noch deutlich weniger erforscht. Generell gilt, je größer die zur Verfügung stehende Oberfläche am Katalysator, desto mehr Moleküle können gleichzeitig reagieren. Prinzipiell wird mindestens einer der Ausgangsstoffe (X + Y) an der Oberfläche des Katalysators (K) adsorbiert. Wenn es sich um ein Molekül handelt, also einen Verbund aus mehreren chemisch miteinander verbundenen Atomen, kann diese Adsorption zum Aufbrechen der chemischen Bindungen führen. Die an den Katalysator gebundenen Molekülfragmente können dann neue Moleküle bilden (XY), die sich anschließend von der Oberfläche lösen. Diese Oberflächenreaktionen können nach verschiedenen grundlegenden Mechanismen erfolgen: dem Langmuir-Hinshelwood-Mechanismus, dem Eley-Rideal-Mechanismus oder dem Mars-van-Krevelen-Mechanismus, bei denen sich die einzelnen Reaktanten in verschiedenen Schritten an die Oberfläche adsorbieren und unterschiedliche Reaktionen vor der Desorption durchlaufen. Neben der Größe der Oberfläche spielt aber auch ihre Beschaffenheit eine wichtige Rolle. Bestimmte Stellen der Katalysatoroberfläche, die sogenannten aktiven Zentren, sind für die Reaktionen besonders wichtig. An ihnen findet die Bindung der Reaktanten zum Katalysator statt. Aktive Zentren können zum Beispiel dort auftreten, wo die kristalline Ordnung der Oberfläche, also die regelmäßige zweidimensionale Anordnung der Atome im Feststoffkatalysator, gestört ist. An Kristallecken und -kanten, aber auch bei Defekten in Form von Fehlstellen. Um einen idealen Katalysator synthetisieren zu könnten, sollte man diese aktiven Zentren kennen und in großer Anzahl herstellen können – eine große Herausforderung an die Analytik und Synthesechemie.

Erschwert wird die Erforschung aktiver Zentren außerdem darin, dass diese oft nur einen geringen Anteil an der gesamten Grenzfläche des Katalysators ausmachen und auch nur in Form von Vorstufen synthetisiert werden können, da sie erst bei der sogenannten Aktivierung des Katalysators entstehen. Die Einführung spezifischer struktureller Defekte, die Nanostrukturierung des Materials oder die Änderung der Oberflächenszusammensetzung können mögliche Wege zur Manipulation der katalytischen Aktivität bieten. Essentiell für einen Katalysator ist auch seine Regenerationsfähigkeit. Bei der Reaktion mit den Reaktanten werden sowohl die elektronische als auch geometrische Struktur des Katalysators kurzzeitig geändert, und es muss genauestens geprüft werden, ob die molekularen Veränderungen reversibel sind, um die langfristige Wirksamkeit des Katalysators sicherzustellen. Änderungen in der Struktur oder Textur durch Sintern, Rekristallisation oder chemische Umwandlung der Aktivkomponente können zur Alterung und damit zur abnehmenden Wirksamkeit (Desaktivierung) des Katalysators führen.

Angesichts dieser Komplexität ist es verständlich, dass neue Katalysatoren bisher meist durch Versuch und Irrtum gefunden wurden. Das langfristige Forschungsziel unseres Verbunds ist es, Katalysatoren in ihrer gesamten Komplexität zu verstehen und sie basierend auf diesem Verständnis gezielt zu designen, das heißt ihre geometrische und elektronische Struktur so anzupassen, dass sie spezifische Reaktionen selektiv ermöglichen. Um die gewünschte Reaktivität und Selektivität zu erzielen, werden umfassende fachübergreifende Forschungen benötigt. Weil Katalysatoren dynamische Materialien sind, die mit den Ausgangsmaterialien zusammenwirken, müssen die Katalysatoren unter den Reaktionsbedingungen, das heißt *in situ*, charakterisiert werden. Nur wenn man dem Katalysator

bei der Arbeit zuschaut, kann man erkennen, wie sich das Material während der Reaktion erst in den eigentlich aktiven Katalysator verändert. Die gezielte Entwicklung neuer Oxid-Katalysatormaterialien erfordert also genaueste Kenntnisse der Zusammenhänge zwischen Zusammensetzung, Defektstrukturen, Oberflächenbeschaffenheit und katalytischer Aktivität sowie Multimethodenansätze, um die komplexen katalytischen Eigenschaften und ihre Dynamik auf mehreren Skalen zu analysieren. Einen sehr guten Rahmen für diese komplexen, aufwendigen Forschungsarbeiten bieten Sonderforschungsbereiche.

#### Der Sonderforschungsbereich Transregio (SFB/TRR) 247

Sonderforschungsbereiche, kurz SFBs (oder in Englisch CRCs, collaborative research centres), sind von der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) geförderte Forschungsverbände, in denen Wissenschaftler\*innen bis zu zwölf Jahre interdisziplinär zusammenarbeiten, um langfristig konzipierte, aufwendige und innovative Forschung zu betreiben, einen neuen institutionellen Schwerpunkt an den beteiligten Hochschulen und Forschungseinrichtungen zu setzen, den wissenschaftlichen Nachwuchs im SFB gezielt zu fördern und die Chancengleichheit von Wissenschaftler\*innen zu verbessern. Durch die enge Zusammenarbeit verschiedener Fachdisziplinen können neue Forschungsansätze im Verbund entwickelt werden. An einem SFB Transregio (TRR) sind mindestens zwei verschiedene Hochschulen an der Antragstellung und den anschließenden Forschungsarbeiten beteiligt und ergänzen sich dabei komplementär und synergetisch. Jeder SFB besteht aus einer Vielzahl von Teilprojekten, deren genaue Zahl und Größe sich aus dem Forschungsprogramm ergibt.

Seit dem 1. Juli 2018 arbeiten im SFB/TRR 247 die Universität

Duisburg-Essen und die Ruhr-Universität Bochum unter dem Dach der Universitätsallianz Ruhr sowie das Max-Planck-Institut für Chemische Energiekonversion, das Max-Planck-Institut für Kohlenforschung und das Fritz-Haber-Institut der Max-Planck-Gesellschaft in Berlin eng zusammen. Seit dem Wintersemester 2020/2021 sind auch die Christian-Albrechts-Universität zu Kiel und die Technische Universität Kaiserslautern mit einzelnen Projekten in den Forschungsverbund integriert.

Der SFB/TRR 247 trägt den Titel „Heterogene Oxidationskatalyse in der Flüssigphase“ und besteht aus 22 Arbeitsgruppen aus der Chemie, der Physik und den Ingenieurwissenschaften unter der Leitung von 24 Professor\*innen. Die beteiligten Wissenschaftler\*innen haben eine langjährige Expertise in der Synthese von Nanomaterialien und deren physikalischer Charakterisierung (insbesondere an der Universität Duisburg-Essen), auf dem Gebiet der Katalyse (v.a. an der Ruhr-Universität Bochum) und in spezifischen hochentwickelten Synthese- und Analysemethoden (Max-Planck-Institute und das Fritz-Haber-Institut). Der SFB/TRR 247 baut auf Kompetenzen und Arbeiten aus dem SFB „Nanopartikel aus der Gasphase“, der von 1999 bis 2010 an der Universität Duisburg-Essen lief, und dem SFB „Metall-Substrat-Wechselwirkungen in der heterogenen Katalyse“, der von 2000 bis 2012 an der RUB durchgeführt wurde, auf und vereint die Nanotechnologie mit der Katalysatorforschung. Somit ergeben sich im Ruhrgebiet beste Voraussetzungen, um ein grundlegendes Verständnis der katalytischen Prozesse zu erarbeiten, das in der Vergangenheit kaum mit der praktischen Anwendung von Katalysatoren Schritt halten konnte. Die Mitglieder des SFB/TRR 247 möchten das Grundlagenwissen zur Katalyse vertiefen und dabei insbesondere die katalytisch aktiven Zentren und die Reaktionsmechanismen an den

Grenzflächen entschlüsseln, um die Wirkungsweise von Katalysatoren besser zu verstehen, damit zukünftig verbesserte Katalysatoren entwickelt und die natürlichen Ressourcen effizienter genutzt werden können.

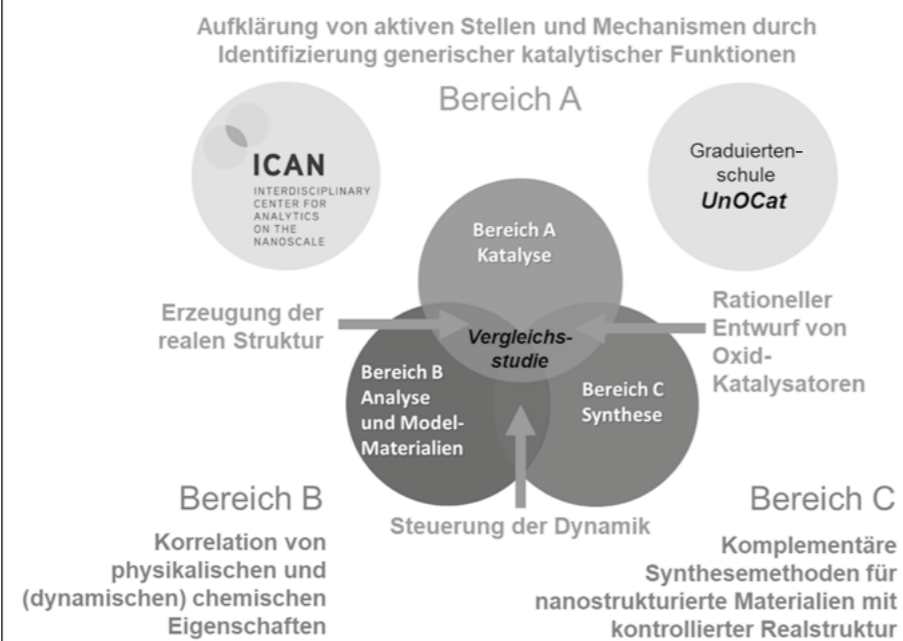
Prof. Dr. Malte Behrens, Sprecher des SFB/TRR 247 und UA Ruhr-Professor für Materialchemie von Katalysatoren sowie Leiter der Arbeitsgruppe „Anorganische Festkörperchemie“ an der Christian-Albrechts-Universität zu Kiel, betont, wie wichtig es ist, mehr darüber zu erfahren, wie katalytische Prozesse „auf atomarer Ebene funktionieren – insbesondere an der Grenzfläche zwischen dem Katalysator und einer Flüssigkeit – um künftig noch bessere Materialien herstellen zu können.“ Im SFB/TRR 247 werden erstmals ausgewählte Oxidationskatalysatoren disziplinübergreifend betrachtet, das heißt chemisch, physikalisch und ingenieurwissenschaftlich. Oxidation spielt in vielen Bereichen der Katalyse eine große Rolle und bedeutet, dass der oxidierte Stoff Elektronen abgibt. In einer groß angelegten Vergleichsstudie im Forschungsverbund sollen die Oxidationsreaktionen unter milden Reaktionsbedingungen vergleichend in der thermischen Flüssigphasenkatalyse, der Elektrokatalyse und der Photokatalyse untersucht werden. „Durch die Kopplung der drei verschiedenen Katalysebereiche können wir allgemein gültige Reaktivitätstrends erkennen. Die gezielte Variation der Reaktionsumgebung, der Ausgangsstoffe und der Katalysatoren wird es uns ermöglichen, Rückschlüsse auf die Art und Struktur des aktiven Katalysatorzentrums zu ziehen“, verdeutlicht Prof. Dr. Martin Muhler, stellvertretender Sprecher des SFB/TRR 247 und Lehrstuhlinhaber für Technische Chemie an der Ruhr-Universität Bochum. Als Materialbasis für die Katalysatoren sollen Verbindungen dienen, die ohne seltene und teure Edelmetalle auskommen wie die Kobalt-Eisen-Mischoxide vom Spinell ( $AB_2O_4$ )- und Perowskit

( $ABO_3$ )-Typ, wobei A und B die Metallkationen darstellen. Diese Übergangsmetalloxide sind aufgrund ihrer Fähigkeit zur isomorphen Kationensubstitution in ihrer Zusammensetzung flexibel und stellen damit eine ideale Materialbasis dar, um sowohl Struktur- als auch Kompositions-Aktivitäts-Korrelationen herzustellen. Mit Hilfe fortschrittlicher experimenteller und theoretischer Methoden sollen diese Materialien im Rahmen der Vergleichsstudie des SFB/TRR 247 systematisch analysiert werden.

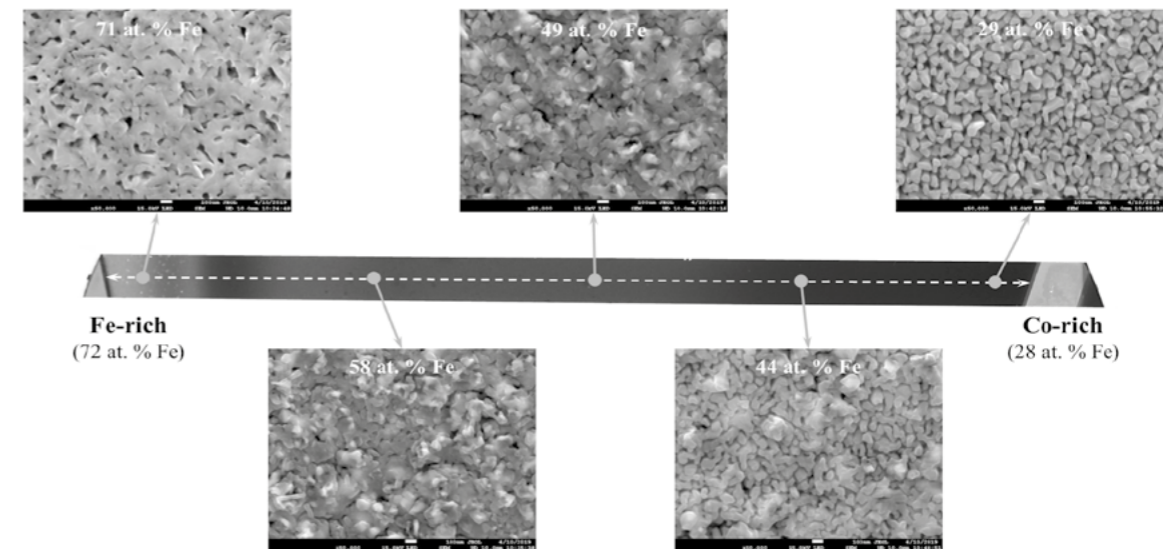
Alle Ergebnisse aus den Forschungsbereichen beziehungsweise Teilprojekten des SFB/TRR 247 werden in dieser gemeinsamen interdisziplinären Vergleichsstudie zusammengeführt, und jede einzelne Arbeitsgruppe liefert dabei ein wichtiges Puzzlestück, um das Gesamtbild des Reaktionsgeschehens zu vervollständigen. Wie bei einem 3D-Puzzle gibt es drei verschiedene Skalen, die zusammengebracht werden müssen: die spezifisch modifizierten Katalysator-Materialien,

die ausgewählten komplementären Oxidationsreaktionen sowie die verschiedenen Bereiche der Katalyse (thermische, Elektro- und Photokatalyse). Erst durch die gemeinsame Betrachtung aller Ergebnisse in der Vergleichsstudie können grundlegende Zusammenhänge zwischen Zusammensetzung, Syntheseparametern und Materialstruktur mit den katalytischen Eigenschaften hergestellt und validiert werden. Dieser dreidimensionale Forschungsansatz offenbart Muster und Zusammenhänge, die bei der Optimierung eines Katalysators für eine einzelne Reaktion in einem konventionellen eindimensionalen Forschungsansatz übersehen werden können. Nur durch die interdisziplinäre und koordinierte Forschungsarbeit kann ein wertvoller und konsistenter Datensatz gewonnen werden, um die komplexen offenen Fragen in der heterogenen Oxidationskatalyse anzugehen.

Der SFB/TRR 247 besteht aus drei miteinander eng verknüpften Forschungsbereichen, die auf spezifische Arbeiten im Bereich der Katalyse



(1) Forschungsbereiche des SFB/TRR 247. Quelle: eigene Darstellung



(2) Foto eines 300 nm dicken, kontinuierlichen  $(Fe_xCo_{1-x})_3O_4$ -Schicht-Zusammensetzungsgradienten (CCS, englisch: continuous composition spread), hergestellt auf einem Pt-beschichteten Si-Streifen mittels kombinatorischem, reaktiven Magnetronspütern bei 700 °C. Der CCS deckt einen Zusammensetzungsbereich von 28 at. % Fe bis 72 at. % Fe ab. Rasterelektronenmikroskopaufnahmen entlang des Gradienten zeigen eine zusammensetzungsabhängige Änderung der Oberflächen-Mikrostruktur der Schicht. Die grau-silbernen Bereiche an beiden Enden des CCS sind unbeschichtete Elektrodenflächen der Pt-Elektroden-schicht, die überall sonst durch die Fe-Co-O-Schicht bedeckt ist. Die freien Elektrodenbereiche werden für die elektrische Kontaktierung der CCS bei elektrochemischen Messungen benötigt. Quelle: © RUB, T. Piotrowiak

lyse (Forschungsbereich A), Charakterisierung (Forschungsbereich B) und Synthese (Forschungsbereich C) fokussiert sind (Abb. 1).

Im Gegensatz zu konventionellen Ansätzen in der Oberflächenwissenschaft, die auf idealen Oberflächen beruht, soll im Forschungsverbund gezielt die reale Struktur analysiert werden, also die oben erwähnten „gestörten“ Oberflächen, die die katalytische Aktivität entscheidend beeinflussen. Die ausgewählten Übergangsmetalloxide, Spinelle und Perowskite mit einer definierten realen Struktur (Morphologie, Defekttypen, Defektkonzentration usw.), werden im Forschungsbereich C mit verschiedenen, teils neu entwickelten Methoden synthetisiert. Die erzeugten Materialien haben die gleiche chemische Zusammensetzung, aber unterscheiden sich zum Beispiel in der Partikelgröße oder -form, Oberflächenrauigkeit, Defektkonzentration, Homogenität der Zusammensetzung oder Porenstruktur. Sie können in Form von Nanopartikeln, dünnen 2D-Filmen oder porösen

mesoskopischen Partikeln bis hin zu Dispersionen für Beschichtungszwecke erhalten werden. Hier ein Überblick über die verschiedenen im Forschungsverbund eingesetzten Synthesemethoden:

- Um ein breites Spektrum an Mesostrukturen, das heißt verschiedene Porositäten und Morphologien, anzufertigen, werden zwei komplementäre Synthesemethoden angewendet: das sogenannte Hard-Templating-Verfahren in der Arbeitsgruppe von PD Dr. Harun Tüysüz am MPI für Kohlenforschung, bei dem „Schablonen“ aus porösen Materialien verwendet werden, und das Kopräzipitations-Verfahren in der Gruppe von Prof. Dr. Malte Behrens (beide im Teilprojekt C1). Die relevanten Eigenschaften der mesoporösen Materialien werden dabei durch die Synthesebedingungen und durch die Porosität der Schablone beim Hard-Templating-Verfahren bzw. durch die Kristallstruktur und Partikeleigenschaften einer Vorläuferverbindung beim Kopräzipitations-Verfahren geschaffen.

- In Teilprojekt C2 (Prof. Dr. Christof Schulz, apl. Prof. Dr. Hartmut Wiggers) werden Eisen- und Kobalt-haltige Spinell- und Perowskit-Nanopartikel mit einstellbaren Materialeigenschaften in Sprayflammenprozessen auch in größeren Mengen synthetisiert. Die Partikelzusammensetzung kann durch Verwendung einer nahezu unbegrenzten Kombination von Ausgangsmaterialien verändert werden und die Partikelgröße und -morphologie kann durch ausgewählte Reaktionsbedingungen gezielt variiert werden.
- Einzelne Katalysatoreigenschaften, wie beispielsweise Form oder Größe der Nanopartikel vom Spinelltyp  $AB_2O_4$  (z.B.  $A = Co^{2+}$ ,  $B = Fe^{3+}$ ), können durch die thermische Zersetzung von molekularen Ausgangsmaterialien in organischen Lösungsmitteln (im Teilprojekt C3, Prof. Dr. Stephan Schulz) unabhängig voneinander eingestellt werden. Die gewünschten Eigenschaften der Nanopartikel werden durch die Verwendung verschiedener sogenannter oberflächenaktiver Substanzen, die



auch die Stabilität der Nanopartikel in Lösungen und ihr hydrophiles/hydrophobes Verhalten beeinflussen, sowie durch die Steuerung der Reaktionszeit und Temperatur erzeugt. Darüber hinaus wird die Kationen-zusammensetzung systematisch variiert, was zu einer Reihe von Kobalt-, Eisen- und gemischten Kobalt-Eisenoxiden führt, bei denen die Spinellstruktur erhalten bleibt. Das komplexe Zusammenspiel zwischen chemischer Zusammensetzung, Morphologie, elektronischer Struktur und elektrokatalytischer Leistung soll in Screening-Experimenten mit Sauerstoffentwicklungsreaktionen (OER,  $4\text{OH}^- \rightarrow 2\text{H}_2\text{O} + 4\text{e}^- + \text{O}_2$ ) und Sauerstoffreduktionsreaktionen (ORR,  $\text{O}_2 + \text{H}_2\text{O} + 4\text{e}^- \rightarrow 4\text{OH}^-$ ) untersucht werden.

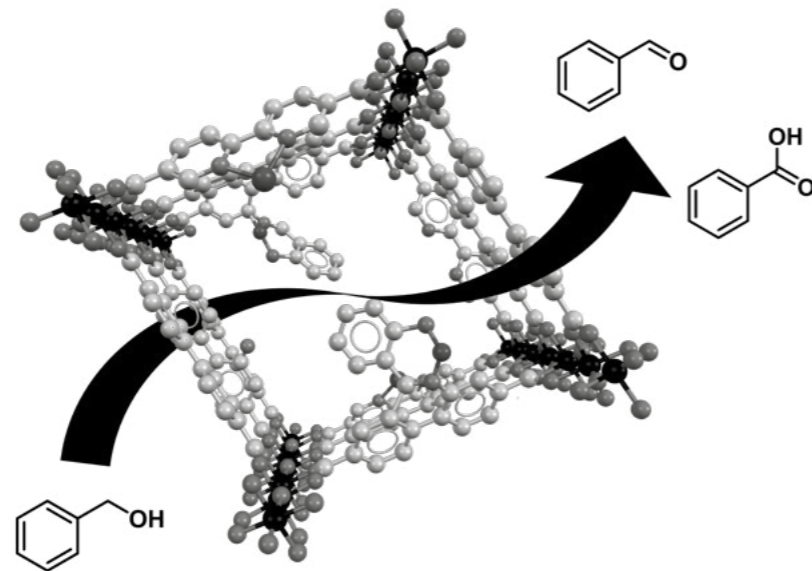
- Durch die Verwendung dünner Schichten mit einem lateralen kontinuierlichen Gradienten (CCS, continuous composition spread, Abb. 2) können verschiedene Zusammensetzungen der Katalysatormaterialien in einem Schritt synthetisiert werden (Teilprojekt C4, Prof. Dr. Alfred Ludwig). Die gewünschten Zusammensetzungsgradienten werden durch reaktives kombinatorisches Sputtern (dt. Kathodenzerstäubung) erzeugt.

- Bis heute war es nicht möglich, eine vollständige dreidimensionale Struktur und chemische Charakterisierung der obersten Atomsschichten von Elektrokatalysatoren durchzuführen. Die Atomsonden-Tomographie (APT, atom probe tomography) bietet einzigartige Einblicke in die Chemie und Struktur von Materialien auf atomarer Ebene und soll grundlegende Einsichten in das Zusammenspiel von Zusammensetzung, der Struktur der aktiven Spezies auf atomarer Ebene und katalytischer Aktivität geben (Teilprojekt C4, Prof. Dr. Tong Li).

- An den synthetisierten Katalysatoren wird durch gepulste Laser-Nachbearbeitung (PLPP, pulsed laser post-processing) auch ein maßgeschneidertes Defekt-Engineering implementiert (Teilprojekt C5, Prof.

Dr.-Ing. Stephan Barcikowski), das heißt die einzelnen Partikelmorphologien und Defektdichten werden durch definierte Pikosekunden- und Nanosekunden-Laserpulse gezielt modifiziert. Dies ermöglicht eine differenzierte Analyse der Defekttypen (in Zusammenarbeit mit Forschungsbereich B) und der katalytischen Leistung (im Forschungsbereich A).

- Zusätzlich sollen auch hochporöse Metall-organische Gerüstverbindungen (sog. MOFs, metal-organic frameworks) synthetisiert werden, die gut definierte Kobalt- und Eisenzentren innerhalb hochkristalliner anorganisch-organischer Hybridstrukturen aufweisen (Teilprojekt C6, Prof. Dr. Wolfgang Kleist). Diese porösen Materialien werden sowohl als molekular definierte Single-Site-Katalysatoren für Flüssigphasen-Oxidationsreaktionen als auch als Vorläufermaterialien für die Erzeugung von Kobalt-Eisen-Katalysatoren durch kontrollierte thermische Zersetzung verwendet. Anhand der mononuklearen und gleichförmigen Metallkomplexe in der klar definierten chemischen Umgebung



(3) Schematische Darstellung der Flüssigphasenoxidation von Benzylalkohol an einem postsynthetisch modifizierten Single-Site-Katalysator auf Basis der porösen Metall-organischen Gerüstverbindung DUT-5.  
Quelle: TU Kaiserslautern, Arbeitsgruppe W. Kleist

von MOF-basierten Katalysatoren können die einzelnen aktiven Metallzentren in Flüssigphasen-Oxidationsreaktionen genauer untersucht werden (Abb. 3). Dabei soll auch die mögliche Metallauslaugung während der katalytischen Reaktionen berücksichtigt werden.

Mittels der zahlreichen neu entwickelten Synthesemethoden können die angestrebten Strukturmerkmale für die Untersuchungen systematisch variiert werden, während die Reproduzierbarkeit und Phasenreinheit der Synthesemethoden durch eine vollständige Charakterisierung in ICAN (Interdisciplinary Center for Analytics on the Nanoscale) sowie ein katalytisches Screening im Forschungsbereich C sichergestellt wird. Das Screening ist ein systematisches Testverfahren, das sowohl die Reproduzierbarkeit unter festgelegten Synthesebedingungen als auch die erfolgreiche Änderung der katalytischen Eigenschaften unter variierten Synthesebedingungen bestätigt. Sobald die synthetisierten Materialien diese Tests bestanden haben, werden sie zur weiteren Analyse an die anderen Forschungsbereiche übergeben.



(4) Autoklave zur Dreiphasenkatalyse unter Hochdruck.  
Quelle: RUB, Arbeitsgruppe M. Muhler

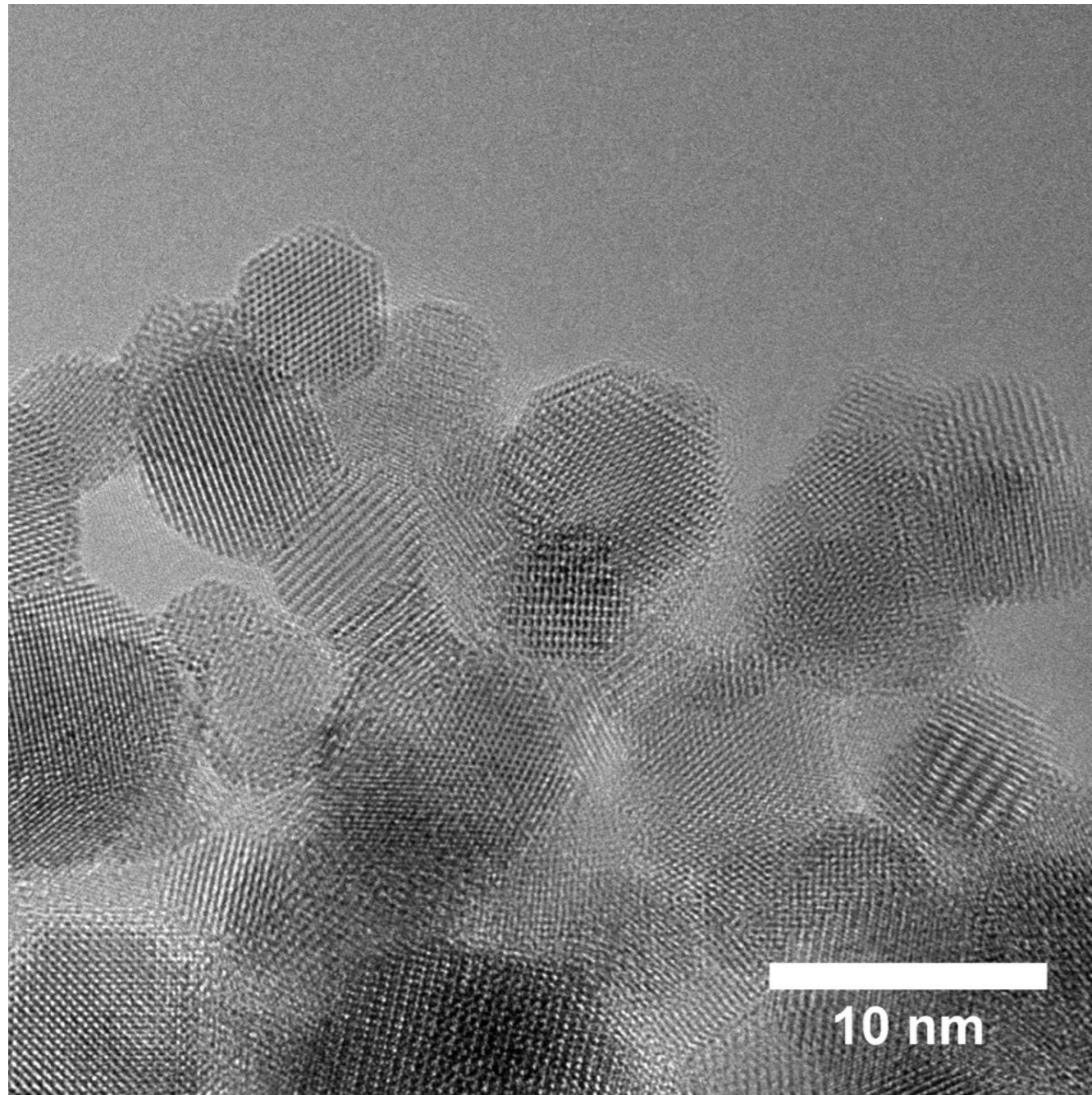
Die Forschungsgruppen für experimentelle und rechnergestützte Katalyse im Bereich A identifizieren die für die Katalyse relevanten Merkmale, indem die synthetisierten Mischmetalloxidmaterialien in einer ausgewählten Reihe von chemischen Reaktionen auf ihre Aktivität und Selektivität in der thermischen, Elektro- und Photokatalyse unter milden Bedingungen, das heißt bei Temperaturen unter  $200\text{ }^\circ\text{C}$ , getestet werden. Im Teilprojekt A1 (Prof. Dr. Malte Behrens, Prof. Dr. Martin Muhler) liegt der Fokus auf der thermischen Katalyse, das heißt die synthetisierten Übergangsmetalloxide in Form von Pulvern werden in ausgewählten Oxidationsreaktionen getestet (Abb. 4). In den durchzuführenden Untersuchungen werden die Reaktionsumgebung (Gasphase in den Forschungsarbeiten der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Malte Behrens versus

Flüssigphase in der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Martin Muhler), die Reaktanten (Isopropanol, Cyclohexen und Cyclohexan) sowie das Oxidationsmittel (Sauerstoff, Peroxide wie  $\text{H}_2\text{O}_2$ ) kontrolliert und schrittweise variiert, um die Auswirkungen auf die Struktur und Zusammensetzung der aktiven Zentren besser nachvollziehen zu können. Weil die Flüssigphasenoxidation oft mit Korrosion einhergeht, muss auch die Langzeitstabilität des Katalysators genau untersucht werden.

Die elektrokatalytische Aktivität eines Katalysatormaterials bestimmt die Energie, die für die Durchführung eines Oxidationsprozesses aufgebracht werden muss. Die elektrokatalytische Aktivität hängt sowohl von der Oberflächenstruktur, der Defektdichte und den Variationen der Zusammensetzung des zu untersuchenden Materials ab. In den

Arbeitsgruppen von Prof. Dr. Kristina Tschulik und Prof. Dr. Wolfgang Schuhmann (Teilprojekt A2) werden die synthetisierten Katalysatormaterialien mittels elektrochemischer Messungen, kombinierter elektrochemischer-spektroskopischer Messungen sowie elektrochemischer Einzelkomponentenanalysen, die meist noch an die geplanten Oxidationsreaktionen angepasst werden müssen, untersucht, um zu prüfen, wie die vorhandenen Materialdefekte sowie die Veränderungen in der Zusammensetzung und Struktur die Aktivität der Katalysatormaterialien beeinflussen. Besonders interessant sind Untersuchungen auf der Ebene einzelner Nanopartikel. Für diese Analysen wird die Nano-Impact-Methode in der Tschulik-Gruppe erweitert, um ausgewählte Oxidationsreaktionen an einzelnen Metalloxid-Nanopartikeln in Abhängigkeit des angelegten





(5) HRTEM-Bild (Hochauflösende Transmissionselektronenmikroskopie, englisch: high resolution transmission electron microscopy) von hochkristallinen nanoskaligen  $\text{LaCoO}_3$ -Partikeln aus der chemischen Gasphasensynthese.  
Quelle: © Jeremias Geiß, Markus Winterer, M. Heidelmann (ICAN)

Potentials zu untersuchen, während in der Schuhmann-Gruppe die Einzelpartikel-Elektrokatalyse anhand der Partikel-am-Stab-Methode (Particle-at-the-Stick) eingesetzt wird. Dabei werden hochauflösende elektrochemische Mikroskopietechniken eingesetzt, um die elektrokatalytischen Aktivitäten an einzelnen Nanopartikeln zu visualisieren.

Katalytische Oxidationsprozesse können auch durch Lichtabsorption in Photokatalysatoren induziert werden. Im Teilprojekt A3 werden Nanopartikel vom synthetisierten Katalysatormaterial auf Photoabsorbieren abgeschieden, um die photokatalytische Funktionalität der ausgewählten Spinelle und Perowskite sowie deren Anwendung als Oxida-

tionskatalysatoren zu betrachten und letztendlich mit den Ergebnissen aus der thermischen und Elektrokatalyse zu vergleichen.

Die Oberflächenreaktivität von Katalysatoren, das heißt Änderungen der Morphologie, des Oxidationszustandes und der elektronischen Eigenschaften im Verlauf von Gas- als auch von Flüssigphasenreaktio-

nen, können mittels fortschrittlicher *in situ*- und *operando*-Mikroskopie- und Spektroskopiemethoden am Fritz-Haber-Institut der Max-Planck-Gesellschaft (im Teilprojekt A4, Prof. Dr. Beatriz Roldán-Cuenya) beobachtet werden. *In situ* bedeutet, dass die Messung unter den relevanten Reaktionsbedingungen stattfindet. *Operando*-Messungen finden ebenfalls unter den Reaktionsbedingungen statt, analysieren aber gleichzeitig auch noch das gewünschte Reaktionsprodukt.

Zusätzliche Einblicke in die Reaktionsmechanismen liefern quantenchemische elektronische und molekulare Strukturberechnungen (im Teilprojekt A5, Prof. Dr. Christof Hättig), die die experimentellen Ergebnisse ergänzen. Der Fokus liegt auf der Untersuchung der thermischen Oxidation von kurz-kettigen Alkoholen an Oberflächen von Übergangsmetalloxiden wie  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$  und verwandten Spinellen in der Gasphase und in der Flüssigphase mittels quantenchemischer *ab initio* Methoden. Insbesondere DFT (Dichtefunktionaltheorie) und korrelierte Wellenfunktionsmethoden werden eingesetzt, um die wichtigsten Zwischenprodukte und die geschwindigkeitsbegrenzenden Schritte von katalytischen Redoxreaktionen zu bestimmen und die Oberflächenstellen zu identifizieren, an denen die Reaktion abläuft. Für Grenzflächen zwischen Übergangsmetalloxiden und wässrigen Lösungen haben sich Methoden, die auf der quantenmechanischen Dichtefunktionaltheorie basieren, als sehr nützlich erwiesen. Sie ermöglichen die Untersuchung von Solvationseffekten wie Wasserstoffbrückenbindungen und Änderungen der Stabilität von Oberflächen (mit und ohne Defekten) oder reaktiven Adsorbaten.

*Ab initio*-molekulardynamische Computersimulationen von realistischen Grenzflächen zwischen Wasser beziehungsweise wässrigen Lösungen und Übergangsmetalloxiden (im

Teilprojekt A6, Prof. Dr. Eckhard Spohr) geben weitere Einblicke in die Struktur-Aktivitäts-Korrelationen unter *operando*-Bedingungen und sollen dazu beitragen, die Prinzipien des Zusammenspiels zwischen der Struktur der Oxidoberfläche, seiner Solvatisierung und der katalytischen Leistung besser zu verstehen. Bei Raumtemperatur können auch spezifische strukturelle Merkmale des Katalysators eingebettet werden. Besonderes Gewicht wird auf diejenigen Merkmale gelegt, für die die experimentellen Projekte im Forschungsverbund auf das Vorhandensein realer Struktur-Aktivitäts-Korrelationen hinweisen. Sie können aus TEM-Daten (Teilprojekt B7), aus Bestimmungen der stabilsten Oberflächenstrukturen, zum Beispiel durch *ab initio* Thermodynamik (Teilprojekt B4), oder aus Übergangspfadberechnungen für die Oxidation kleiner Moleküle (Teilprojekt A5) gewonnen werden.

Die Arbeitsgruppen im Forschungsbereich B werden die synthetisierten Katalysatormaterialien mit Hilfe hochentwickelter spektroskopischer, Beugungs- und bildgebender *in situ*- und *operando*-Analysemethoden in Kombination mit rechnergestützten Simulationen eingehender charakterisieren, um die Realstruktur der Katalysatormaterialien und Zusammenhänge zwischen den Veränderungen in den katalytischen Eigenschaften mit spezifischen Strukturmerkmalen aufzudecken. Um Strukturabweichungen zu identifizieren, werden die synthetisierten Materialien als Referenzmaterial verglichen. Im Forschungsverbund werden die folgenden Charakterisierungsmethoden im Forschungsbereich B eingesetzt:

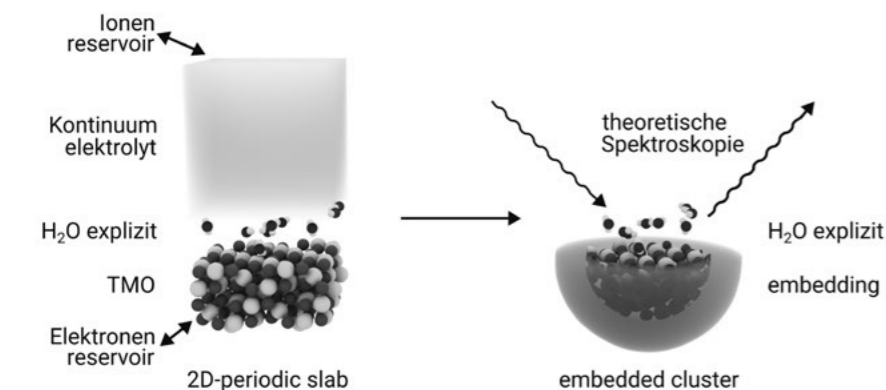
- Aktive Zentren in heterogenen Katalysatoren enthalten typischerweise atomare Ensembles um redox-aktive Metallkationen. Fokus des Teilprojektes B1 (Prof. Dr. Markus Winterer) ist die Ermittlung quantitativer Information über die Real-Struktur dieser Ensembles, um

so zu Struktur-Aktivitäts-Beziehungen und einem tieferen Verständnis der Oxidationskatalyse beizutragen. Hierzu werden hochkristalline Nanopartikel komplexer Oxide mit hohem Oberfläche-zu-Volumenverhältnis mit Hilfe der chemischen Gasphasenanalyse erzeugt und entsprechende Röntgenabsorptionsspektren mit Hilfe von Reverse Monte Carlo Simulationen auf Basis physikalisch-chemischer Modelle quantitativ analysiert (Abb. 5).

- Für elementspezifische Untersuchungen der synthetisierten Materialien werden Mössbauerspektroskopie und Röntgenabsorptionsspektroskopie (im Teilprojekt B2, Prof. Dr. Heiko Wende) eingesetzt. Diese Messung der magnetischen Eigenschaften werden weitere Erkenntnisse über die Wechselwirkung der paramagnetischen Übergangsmetallzentren liefern und Rückschlüsse auf elektronische und geometrische Strukturveränderungen ermöglichen.

- Die Ladungsträgerdynamik spielt bei der Katalyse eine entscheidende Rolle. Dazu gehören der Ladungstransfer von/zu Adsorbaten, der Ladungstransport im Katalysator, das Einfangen/Freisetzen von Ladungsträgern durch/aus Defekt- oder Oberflächenzuständen sowie die strahlende und nicht-strahlende Rekombination. Die wichtigsten kinetischen Engpässe der Ladungsträgerdynamik sollen bei photokatalytischen und elektrokatalytischen Prozessen sowie bei der thermischen Katalyse identifiziert werden (im Teilprojekt B3, Prof. Dr. Gerd Bacher). Die Ergebnisse lassen Rückschlüsse darauf zu, wie die Lebensdauer von Ladungsträgern, speziell von Löchern, verlängert werden kann, um die katalytische Aktivität der Spinell- und Perowskit-Katalysatoren zu verbessern.

- Im Teilprojekt B4 (Prof. Dr. Rossitza Pentcheva) wird das theoretische Verständnis für die Übergangsmetalloxide erweitert und die Abhängigkeit der katalytischen Aktivität von strukturellen Merkmalen, chemischer Zusammenset-



(6) Links: Simulation der Katalysatoroberfläche in 2D unter elektrochemischen Bedingungen. Nur eine dünne Schicht expliziter Wassermoleküle befindet sich auf der Oberfläche, ergänzt durch ein Kontinuumsolvatationsmodell. Rechts: Ein aus der Oberfläche herausgeschnittener Cluster wird dann mit genauen Elektronenstrukturmethoden mittels einem „theoretischen Spektrometer“ genauer analysiert.

Quelle: RUB, D. Oelert

zung, Oberflächenmorphologie und Defekten auf der Grundlage von Berechnungen der Dichtefunktionaltheorie (DFT) analysiert. Basierend auf DFT-Berechnungen, die elektronische Korrelationen über die lokale Dichteanäherung hinaus berücksichtigen, werden Materialien und Materialkombinationen mit günstigen Bandlückengrößen und geeigneten Bandausrichtungen ermittelt, um eine effiziente Ladungsträgertrennung zu ermöglichen. Darüber hinaus werden ausgewählte Oxidationsprozesse auf Oberflächen mit unterschiedlichen kristallographischen Orientierungen oder Defekten untersucht, um die Beziehung zwischen der Energetik von Adsorbaten und Zwischenprodukten und den zugrunde liegenden strukturellen und elektronischen Eigenschaften herzustellen.

- Die adsorbierten Reaktanten, Reaktionszwischenprodukte und Produkte können mittels optischer Methoden an der Fest-Flüssig-Grenzfläche identifiziert werden (Teilprojekt B5, Prof. Dr. Eckart Hasselbrink). Die nichtlineare Optik bietet spektroskopische Methoden, die nur für Moleküle an Grenzflächen empfindlich sind und eine chemische Selektivität aufweisen.

Mit Hilfe der Schwingungssummenfrequenzspektroskopie werden die Zusammensetzung und der Zustand von Adsorbaten an der Oberfläche von abgeschiedenen katalytischen Nanopartikeln und dünnen Filmen *in situ* in Gas- und Flüssigphasenreaktionen untersucht. Die Interpretation der strukturellen Signaturen wird durch die Berechnungsergebnisse des Teilprojekts B8 unterstützt, in dem Schwingungsfrequenzen für verschiedene Adsorptionsstellen ermittelt werden.

- Eine der größten Herausforderungen bei der Charakterisierung heterogener Oxidationskatalysatoren besteht darin, dass das aktive Zentrum für die Katalyse oft nur einen geringen Anteil des gesamten Katalysatormaterials ausmacht. Aus diesem Grund sind oberflächen-selektive Ansätze oft so wünschenswert. Ein alternativer Ansatz ist die Verwendung einer volumensensitiven Sonde mit erhöhter Selektivität. In den letzten Jahren hat die Entwicklung von hochauflösenden Röntgenemissionsspektrometern mit größerem Raumwinkel und hoher Auflösung (XES) ein breites Spektrum an selektiven Röntgenabsorptionsmessungen (XAS) ermöglicht, die vorher nicht möglich waren.

Fortgeschrittene röntgenspektroskopische Verfahren werden zur *ex situ* und *in situ* Charakterisierung von Oxidationskatalysatoren im Teilprojekt B6 verwendet (Prof. Dr. Serena DeBeer). Mit Hilfe der Röntgenemissionsspektroskopie werden zeitaufgelöste elementenspezifische Veränderungen in der elektronischen Struktur eines Katalysators verfolgt. Darüber hinaus wird die zweidimensionale resonante Röntgenemissionsspektroskopie angewandt, um spezifisch für ein Metall zu selektieren und auf dessen Oxidationszustand, Anregungen und/oder Ortssymmetrie zu schließen. Zusammengefasst sollen die spektroskopischen Studien detailliertere und quantitative Einblicke in die elektronischen Strukturveränderungen der katalytischen aktiven Zentren liefern und eine Grundlage für die Anleitung eines wissensbasierten katalytischen Designs bereitstellen.

- Das Teilprojekt B7 (Prof. Dr. Robert Schlögl) arbeitet an der Charakterisierung der geometrischen und elektronischen Volumen- und Oberflächenstruktur von ausgewählten Oxidationskatalysatoren des Spinell- und Perowskit-Typ mittels Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) und Röntgenspektroskopie. Die Untersuchungen basieren auf *ex situ*, *quasi in situ* und *in situ* Experimenten, die es erlauben, relevante dynamische Änderungen der Volumen- und Oberflächenstruktur während der katalytischen Reaktion zu verfolgen. Die gewonnenen strukturellen Erkenntnisse dienen als Grundlage für die Modellierung der aktiven Strukturen in den Theorieprojekten.

- Im Teilprojekt B8 (Prof. Dr. Frank Neese, Prof. Dr. Rochus Schmid) werden zwei Gruppen mit sich ergänzenden Fachkenntnissen einen gemeinsamen Berechnungsansatz entwickeln, um realistische Modellstrukturen im Computer zu konstruieren, die reale Oberflächen-elektrokatalysatoren in Bezug auf Defekte, Lösungsumgebung und elektrochemische Potenziale am

besten beschreiben können (Abb. 6). In diesem Rahmen werden neuartige elektronische Strukturmethoden entwickelt, um die komplexen strukturellen und elektronischen Strukturanforderungen der Elektrokatalysatoren vom Spinelltyp zu erfüllen. Ziel ist die Entwicklung und Validierung von Multimethoden- und Multiskalen-Berechnungsprotokollen, die zur Untersuchung der spektroskopischen Reaktion der realen Oberflächenkatalysatoren verwendet werden sollen. Damit wird dazu beigetragen, den komplexen Informationsgehalt der *in situ* Röntgenphotoemissions- und Schwingungsspektroskopie-Untersuchungen der Kobaltheisen-Oberflächen zu entschlüsseln.

#### Datenbank

Ob chemische Analysen, Proben aus den experimentellen Synthesen oder hochauflösende Bilder auf Nanoebene – die Wissenschaftler\*innen im SFB/TRR 247 produzieren täglich große Mengen an Daten, die im Forschungsverbund in einer gemeinsamen Datenbank erfasst werden. Da es bislang aufgrund der Heterogenität der Daten kaum generalisierbare fachübergreifende Systeme auf dem Markt gibt, entwickelten Mitarbeiter des SFB/TRR 247 einen eigenen Ansatz. Die Datenbank wurde in 2018 aufgesetzt, fortlaufend an die Anforderungen im Forschungsverbund angepasst und umfasst Datensätze zu den synthetisierten Proben und Referenzmaterialien, durchgeführten Experimenten sowie weiterführenden Dokumenten wie beispielsweise Poster, Vortragsfolien oder Publikationen. Die Datenbankentwicklung basiert auf den FAIR-Prinzipien, damit die Daten langfristig auffindbar (findable), zugänglich (accessible), interoperabel (interoperable) und wiederverwendbar (reuseable) sind. Die gemeinsame webbasierte Datenbank ist eine wichtige Grundlage für die interdisziplinäre Arbeit und für das nachhaltige Forschungsdatenma-

nagement im Forschungsverbund. Sie bietet allen beteiligten Wissenschaftler\*innen einen einfachen und schnellen Zugang zu den relevanten Daten und gewährleistet damit den Wissenstransfer in und zwischen den Arbeitsgruppen an den unterschiedlichen Standorten. Außerdem vereinfacht die Datenbank die lückenlose Dokumentation und Nachverfolgung von Proben sowie Experimenten. Die langfristige Speicherung und leichte Zugänglichkeit der Messdaten spielt eine wichtige Rolle in der modernen koordinierten Forschung. Dies gilt insbesondere für den SFB/TRR 247, da die untersuchten Trends in der katalytischen Reaktivität auf verschiedenen Skalen erfasst werden und sich mit der Zeit weiterentwickeln. Auch die quantitative Charakterisierung der realen Struktur erfordert mehrere Messungen an derselben Probe und erzeugt erhebliche Datenmengen. Die einfache Handhabung des wachsenden Datenbestandes ist eine Voraussetzung für das Auffinden von Korrelationen zwischen verschiedenen und im Moment noch unbekanntem Parameterpaaren.

#### Nachwuchsförderung

Ein weiterer wesentlicher Bestandteil des SFB/TRR 247 ist die integrierte Graduiertenschule UnOCat „Understanding Oxidation Catalysis“, um den wissenschaftlichen Nachwuchs im Forschungsverbund zu fördern und auf eine erfolgreiche Karriere an Universitäten, Forschungseinrichtungen oder in der Industrie vorzubereiten. Dazu gehört neben der Vermittlung von spezifischem wissenschaftlichen Fachwissen auch der Erwerb von fachübergreifenden Schlüsselqualifikationen. Ein sehr wichtiger Bestandteil ist die Schulung von Kommunikationsfähigkeiten durch Vorträge auf nationalen und internationalen Konferenzen und Workshops, das Verfassen wissenschaftlicher Publikationen und der interdisziplinäre Austausch inner-

halb des Forschungsverbundes. Die unterschiedlichen wissenschaftlichen Hintergründe – die Nachwuchswissenschaftler\*innen kommen aus der Chemie, Physik oder den Ingenieurwissenschaften – und die verschiedenen Perspektiven für den weiteren individuellen beruflichen Werdegang erfordern individuell abgestimmte Qualifizierungsmaßnahmen.

#### Chancengleichheit

Ein wichtiges Anliegen des SFB/TRR 247 ist neben der Nachwuchsförderung auch die Förderung der Chancengleichheit zwischen Wissenschaftlerinnen und Wissenschaftlern. Immer noch nimmt die Zahl der Wissenschaftlerinnen mit steigender Qualifikationsebene im deutschen Wissenschaftssystem ab. Eine große Rolle spielt dabei die Vereinbarkeit von Familie und wissenschaftlicher Karriere, dazu zählen auch die Betreuungsmöglichkeiten für die Kinder vor Ort. Aber auch inzwischen überholte Strukturen im akademischen Bereich können den Wissenschaftlerinnen immer noch eine wissenschaftliche Karriere erschweren. Mit der Chancengleichheitsstrategie im SFB/TRR 247 sollen die Anzahl der Wissenschaftlerinnen auf den höheren Qualifikationsebenen erhöht, die Nachwuchswissenschaftlerinnen gezielt beim Aufbau ihrer wissenschaftlichen Karriere unterstützt und die Arbeitsplätze familienfreundlicher gestaltet werden. Dafür werden unterstützende Maßnahmen umgesetzt, wie zum Beispiel die je nach Bedarf organisierte Kinderbetreuung, die Einrichtung von Heimarbeitsplätzen und Eltern-Kind-Zimmern sowie Veranstaltungen zur Gendersensibilisierung. Im Rahmen des EMPOWER-Programms, dem Karriereprogramm zur Förderung von Frauen im SFB/TRR 247, werden die Wissenschaftlerinnen durch eine gezielte und individualisierte Ausbildung und Qualifizierung auf ihre zukünftige akademische Karriere vorbereitet. Die verstärkte Einbin-

dung von Wissenschaftlerinnen ist ein wichtiges Erfolgskriterium für den Forschungsverbund.

### Summary

This article presents thermal oxidation catalysis in the gas phase and potential improvements emerging from liquid phase reactions, as well as the application of light as a driving force in photocatalysis.

In thermal gas phase catalysis, the selective oxidation of 2-propanol to acetone is studied and the effect of adding water into the reactive gas mixture is investigated. Within the framework of a comparative study, over 80 different catalysts with spinel or perovskite structures were examined. The reaction path consists of two major pathways, a high-temperature and a low-temperature channel, with the maximum in the conversion curve of the reactant 2-propanol appearing in the latter. In general, doping cobalt oxides with a low atomic percentage of iron is beneficial for selective 2-propanol oxidation to acetone. When adding water to the process stream, the low-temperature maximum shifts to higher temperatures, but its magnitude is also increased.

In photocatalysis, the roles of cocatalysts and photoabsorbers in the mechanisms of 'dream reactions', such as photocatalytic water splitting into hydrogen and oxygen, are investigated. The mixed perovskite oxide  $\text{SrTiO}_3$  is a frequently studied photoabsorber, which can be used in combination with  $\text{Rh/Cr}_2\text{O}_3$  and  $\text{CoOOH}$  as cocatalysts for overall water splitting. Recently, the successful use of  $\text{SrTiO}_3$  doped with Rh or Fe ions has been demonstrated for the selective dehydrogenation of alcohols to aldehydes using visible light.  $\text{SrTiO}_3$  is very versatile in photocatalysis, which is also shown by the oxidation of hydrogen chlo-

ride to chlorine. This reaction is the photocatalytic variant of the exothermic Deacon process. In this way, hydrogen chloride present in waste streams can be recycled, thus closing the life cycle of chlorine, which is an important industrial chemical. Moreover,  $\text{SrTiO}_3$  can be used alongside Pt or  $\text{Co}_2\text{Fe}_2\text{O}_4$  cocatalysts for the photocatalytic steam reforming of methanol. In this case, methanol can be used as a versatile energy carrier from which hydrogen can be produced where it is needed.

### Die Autor\*innen

Nach seinem Studium der Chemie an der Christian-Albrechts-Universität zu Kiel promovierte **Malte Behrens** 2006 zu den „Mechanismen von Festkörpersynthesen bei moderaten Reaktionstemperaturen an Beispielen aus der Chemie der Chromchalkogenide“. Von 2006 bis 2008 arbeitete er als Postdoktorand am Fritz-Haber-Institut der Max-Planck-Gesellschaft in Berlin. Im Anschluss übernahm er die Leitung der Arbeitsgruppe „Nanostrukturen“ am FHI. 2013 habilitierte er an der TU Berlin zur „Materials Chemistry of Cu/ZnO-based Catalysts for Methanol Synthesis and Steam Reforming“. 2014 nahm er den Ruf als Professor für Anorganische Chemie an die Universität Duisburg-Essen an. Seit 2020 ist er als Professor für Anorganische Chemie an der Christian-Albrechts-Universität zu Kiel tätig und leitet dort die Arbeitsgruppe Festkörperchemie und Katalyse. Er ist kooptiertes Mitglied an der Universität Duisburg-Essen und der Ruhr-Universität Bochum und Sprecher des dortigen Sonderforschungsbereichs Transregio (SFB/TRR) 247 sowie UA Ruhr-Professor für Materialchemie von Katalysatoren.

**Franziska Günther** studierte von 2003 bis 2009 Geographie an der Friedrich-Schiller-Universität Jena. Von 2009 bis 2015 arbeitete sie als wissenschaftliche Mitarbeiterin und später Postdoktorandin am Max-Planck-Institut für Biogeochemie in Jena, wo sie 2013 auch promovierte. Danach wechselte sie an das Leibniz-Zentrum für Marine Tropenforschung in Bremen, um ein interdisziplinäres deutsch-chinesisches Forschungsprojekt von 2015 bis 2018 zu koordinieren. Parallel studierte sie ab 2016 Hochschul- und Wissensmanagement an der Hochschule Osnabrück, das sie 2018 mit dem MBA abschloss. Seit Oktober 2018 koordiniert sie den Sonderforschungsbereich Transregio (SFB/TRR) 247 an der Universität Duisburg-Essen. Seit März 2021 ist sie als Geschäftsführerin am Erwin L. Hahn Institute for Magnetic Resonance Imaging tätig.



Franziska Günther. Foto: Vladimir Unkovic

# DuEPublico

Duisburg-Essen Publications online

UNIVERSITÄT  
DUISBURG  
ESSEN

*Offen im Denken*

ub | universitäts  
bibliothek

Dieser Text wird via DuEPublico, dem Dokumenten- und Publikationsserver der Universität Duisburg-Essen, zur Verfügung gestellt. Die hier veröffentlichte Version der E-Publikation kann von einer eventuell ebenfalls veröffentlichten Verlagsversion abweichen.

**DOI:** 10.17185/duepublico/75315

**URN:** urn:nbn:de:hbz:464-20220118-143343-1

Erschienen in: UNIKATE 57 (2021), S. 9 - 22

Alle Rechte vorbehalten.