

# Theoretische Chemie: Von der Physik zur Katalyse

Prof. Dr. Vera Krewald  
*vera.krewald@tu-darmstadt.de*

Einweihung  
des Lichtenberg II Hochleistungsrechners  
11.07.2023

# Chemie



# Chemie

*“knallt und stinkt”*

*“nicht natürlich”*

*“gefährlich”*

*“giftig”*

*“Umweltverschmutzung”*

*“forever chemicals”*



# Chemie

*“knallt und stinkt”*

*“nicht natürlich”*

*“gefährlich”*

*“giftig”*

*“Umweltverschmutzung”*

*“forever chemicals”*



Chemie kann duften

Chemie im Leben

Chemie verstehen

... für die Medizin

... für die Umwelt

... für die Zukunft

# Chemie

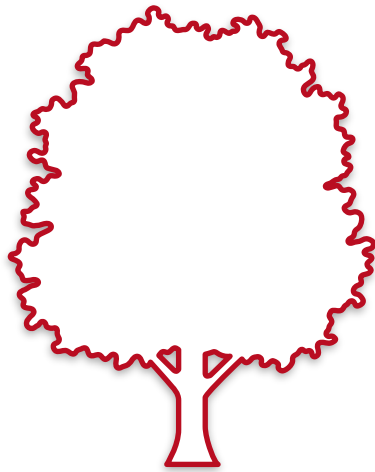
## **Stoffe verstehen und umwandeln**

# Chemie



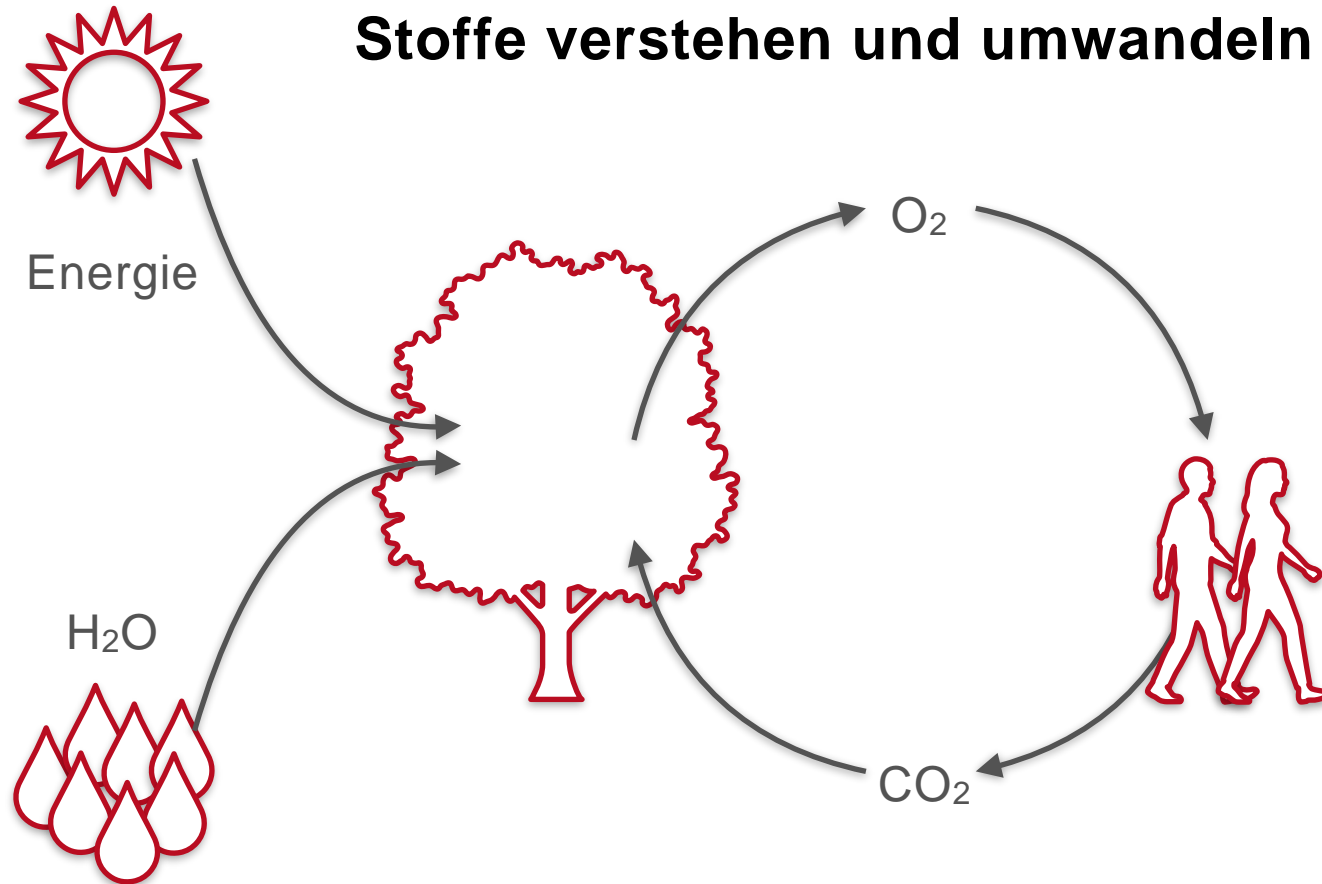
Energie

## Stoffe verstehen und umwandeln



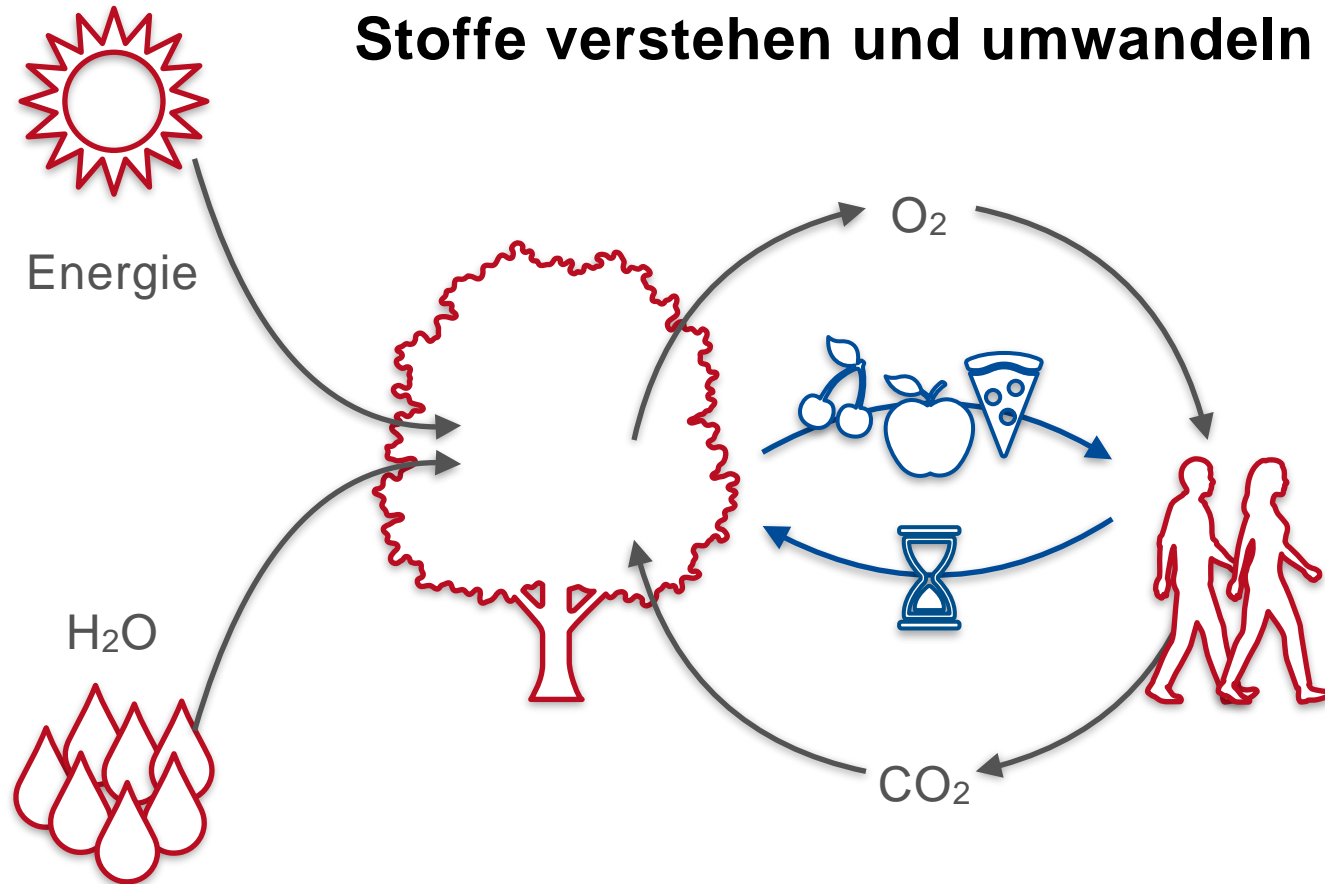
# Chemie

## Stoffe verstehen und umwandeln



# Chemie

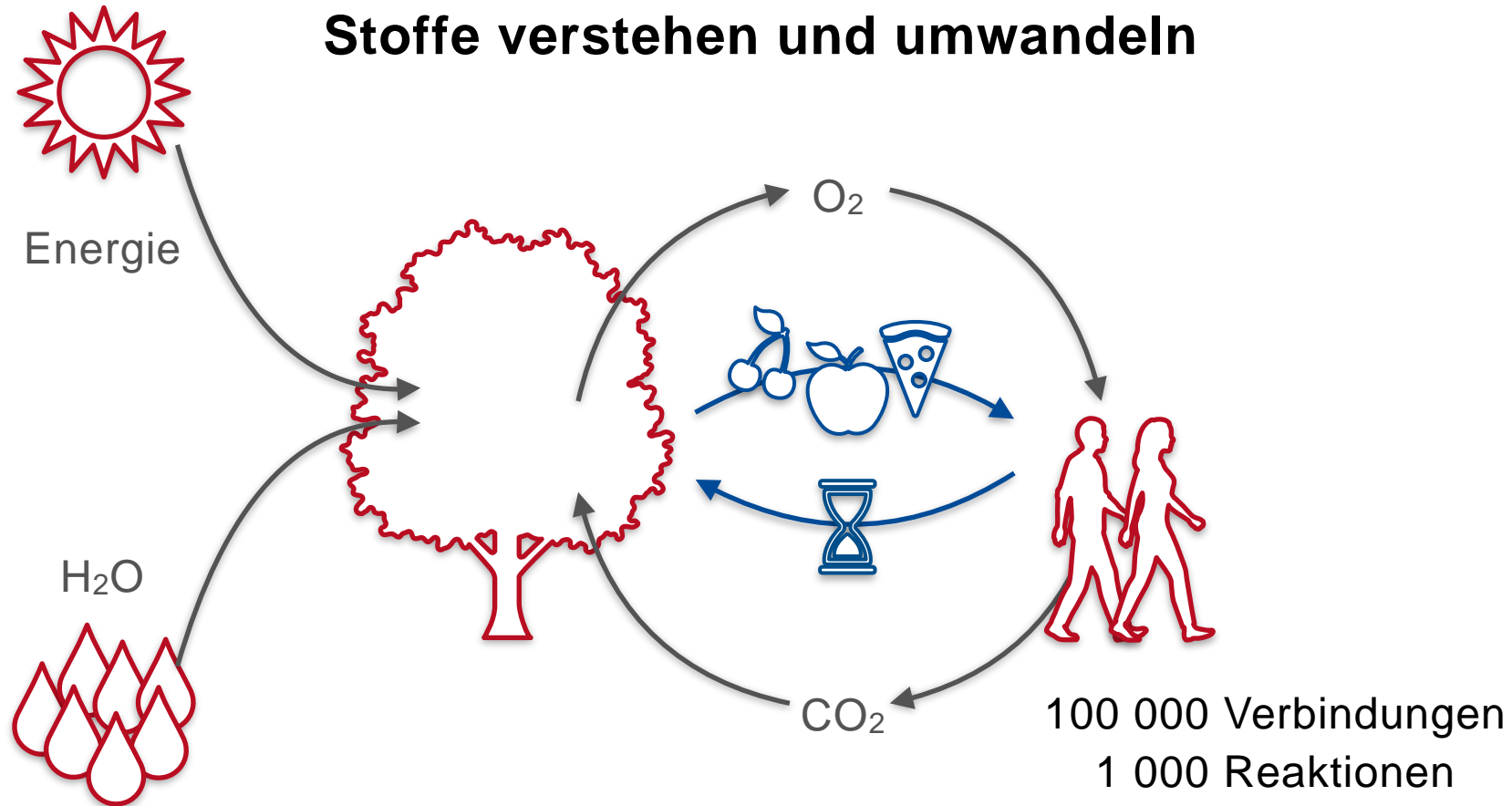
## Stoffe verstehen und umwandeln





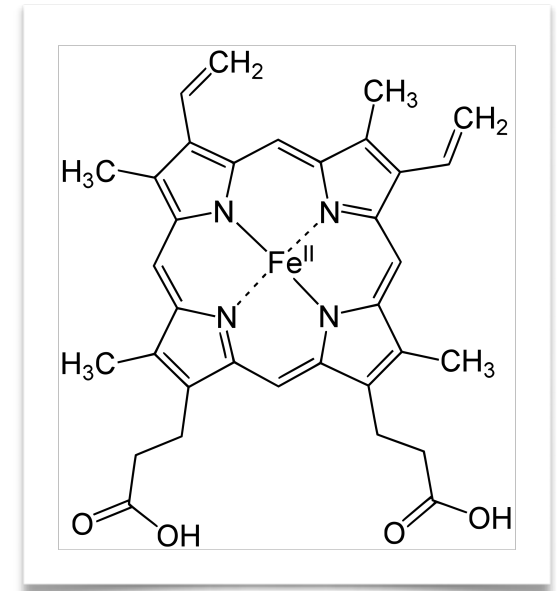
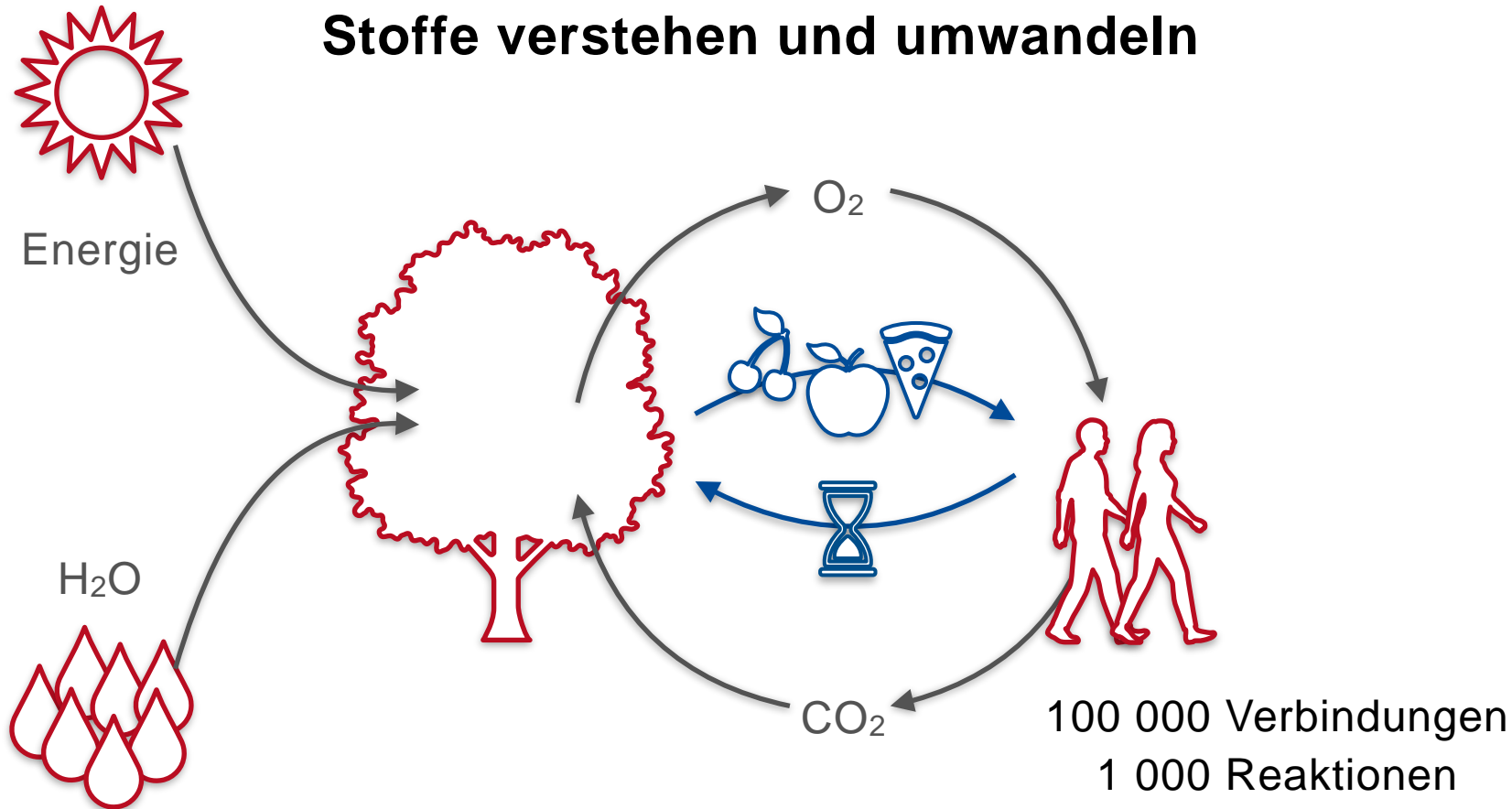
# Chemie

## Stoffe verstehen und umwandeln



# Chemie

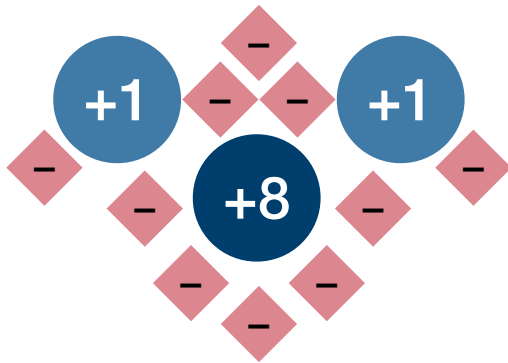
## Stoffe verstehen und umwandeln



Häm b im Hämoglobin

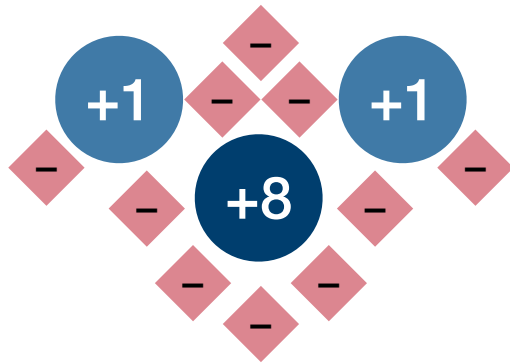
# Theoretische Chemie

**Physik**  
*Gesetze*

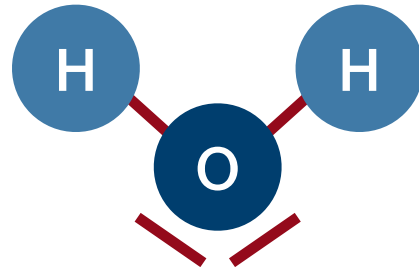


# Theoretische Chemie

**Physik**  
*Gesetze*



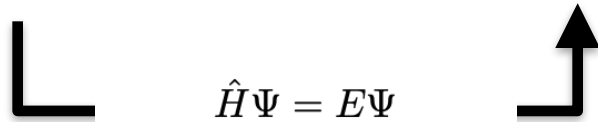
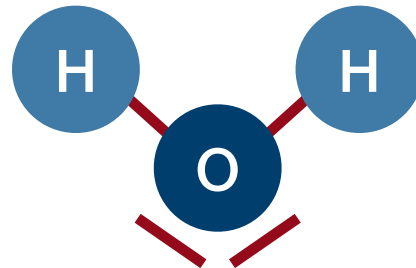
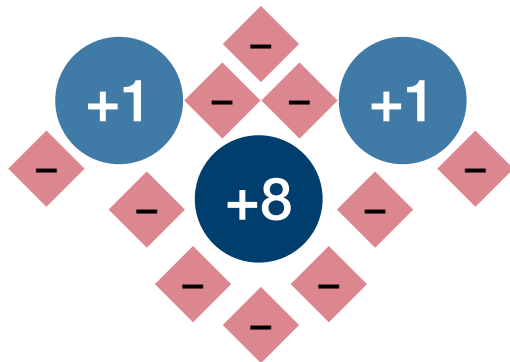
**Chemie**  
*Konzepte*



# Theoretische Chemie

**Physik**  
*Gesetze*

**Chemie**  
*Konzepte*



$$f(1) = h(1) + \sum_b J_b(1) - K_b(1)$$

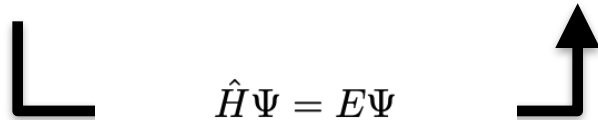
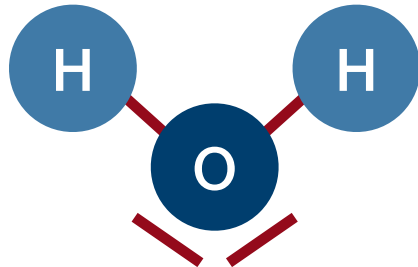
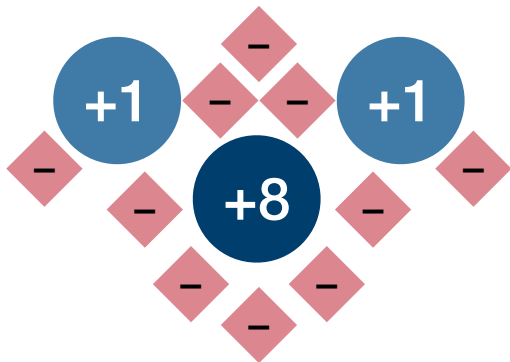
$$E = \sum_i^{\text{occ}} \langle i|h|i \rangle + 1/2 \sum_i^{\text{occ}} \sum_j^{\text{occ}} \langle ij||ij \rangle$$



# Theoretische Chemie

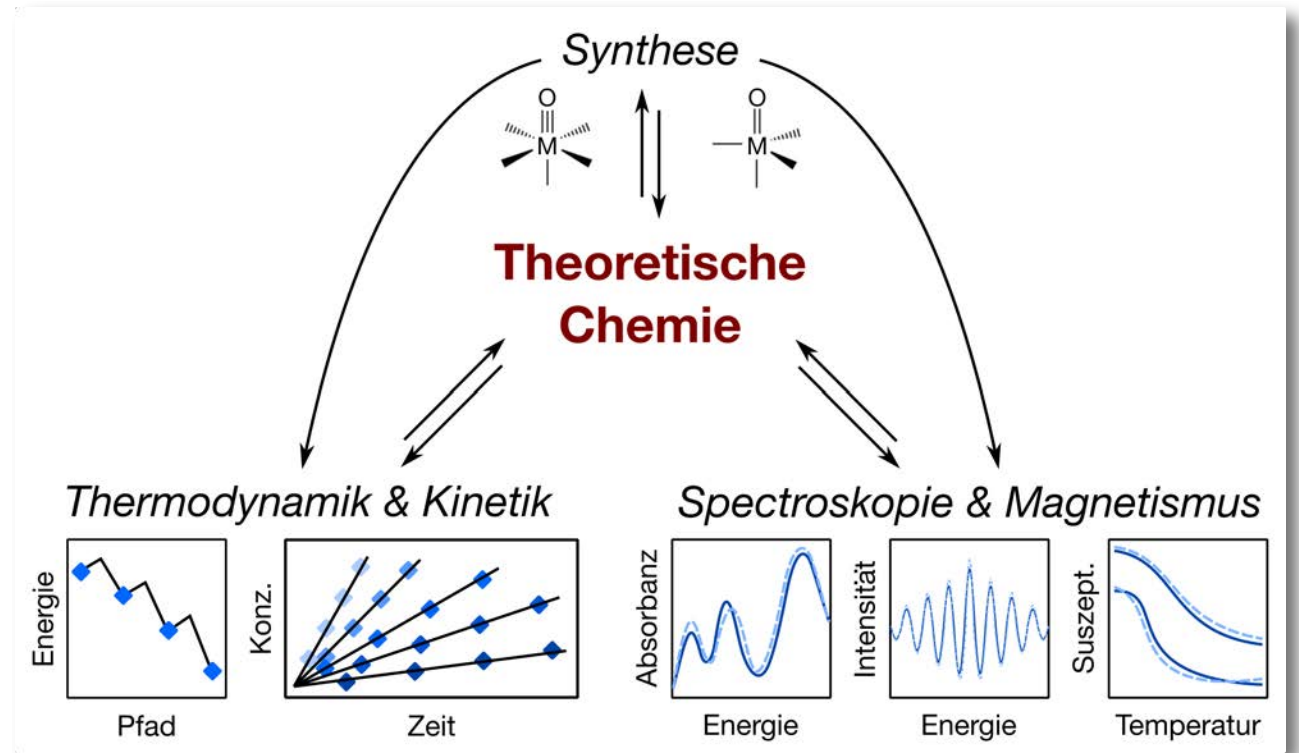
**Physik**  
*Gesetze*

**Chemie**  
*Konzepte*



$$f(1) = h(1) + \sum_b J_b(1) - K_b(1)$$

$$E = \sum_i^{\text{occ}} \langle i|h|i \rangle + 1/2 \sum_i^{\text{occ}} \sum_j^{\text{occ}} \langle ij||ij \rangle$$



# Theoretische Chemie



**Schrödinger Slater Hartree Roothaan**



**Born**

**Pauli & Bohr  
und viele mehr**

**Kohn**



# Theoretische Chemie



**Schrödinger Slater Hartree Roothaan**



**Born**

**Pauli & Bohr  
und viele mehr**

**Kohn**

$$\hat{H}\Psi = E\Psi$$

$$f(1) = h(1) + \sum_b J_b(1) - K_b(1)$$

$$E = \sum_i^{\text{occ}} \langle i|h|i \rangle + 1/2 \sum_i^{\text{occ}} \sum_j^{\text{occ}} \langle ij||ij \rangle$$

```
CALL QENTER('FMAT')

NDIM2M=(NS...
IDISK=0
CALL IDAFI...

IFSTA=1
DO ISYR=1,1
  NBR=NORB
  IF(NBR.E...
  NB3=(NBR...
  NBNB=NBR...
  ISYS=ISY...
  IS3RS=(I...
  DO ISYP=...
  NIP=NI...
  NOP=NO...
  NAESP=...
  IF(NOP...
  ISYQ=I...
  IS3PQ=...

import cmd
import pymol
from cmd import _cmd,lock,unlock,Shortcut
_feedback,fb_module,fb_mask,is_list
DEFAULT_ERROR, DEFAULT_SUCCESS, _ra

def resume(fname):
  r = DEFAULT_ERROR
  if os.path.exists(fname):
    if(re.search(r"\.py$|\..PYS$|\..pym$"):
      r = cmd.do("run %s"%fname)
    else:
      r = cmd.do("@%s"%fname)
  if is_ok(r):
    r = cmd.do("log_open %s,a"%fname)
  if _raising(r): raise pymol.CmdExcept
  return r

def log_open(fname='log.pml',mode='w'):
  try:
    try:
      if hasattr(pymol,"_log_file")
      if pymol._log_file!=None:
        pymol._log_file.close
        del pymol._log_file
    except:
      pass
```





# Theoretische Chemie

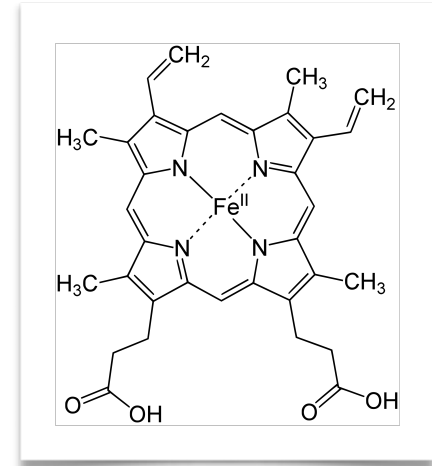


**Schrödinger Slater Hartree Roothaan**

$$\hat{H}\Psi = E\Psi$$

$$f(1) = h(1) + \sum_b J_b(1) - K_b(1)$$

$$E = \sum_i^{\text{occ}} \langle i|h|i \rangle + 1/2 \sum_i^{\text{occ}} \sum_j^{\text{occ}} \langle ij||ij \rangle$$



```
CALL QENTER('FMAT')

NDIM2M=(NS...
import cmd
IDISK=0
import pymol
CALL IDAFI...
from cmd import _cmd,lock,unlock,Shortcut
_feedback,fb_module,fb_mask,is_list
DEFAULT_ERROR, DEFAULT_SUCCESS, _ra

IFSTA=1
DO ISYR=1,
NBR=NORB
IF(NBR.E
NB3=(NBR
NBNB=NBR
ISYS=ISY
IS3RS=(I
DO ISYP=
NIP=NI
NOP=NO
NAESP=
IF(NOP
ISYQ=I
IS3PQ=

def resume(fname):
    r = DEFAULT_ERROR
    if os.path.exists(fname):
        if(re.search(r"\.py$|\..PY$|\..pym$
            r = cmd.do("run %s"%fname)
        else:
            r = cmd.do("@%s"%fname)
    if is_ok(r):
        r = cmd.do("log_open %s,a"%fname)
    if _raising(r): raise pymol.CmdExcept
    return r

def log_open(fname='log.pml',mode='w'):
    try:
        try:
            if hasattr(pymol,"_log_file")
                if pymol._log_file!=None:
                    pymol._log_file.close
                    del pymol._log_file
        except:
            pass
```



**Born Pauli & Bohr und viele mehr Kohn**



# Theoretische Chemie

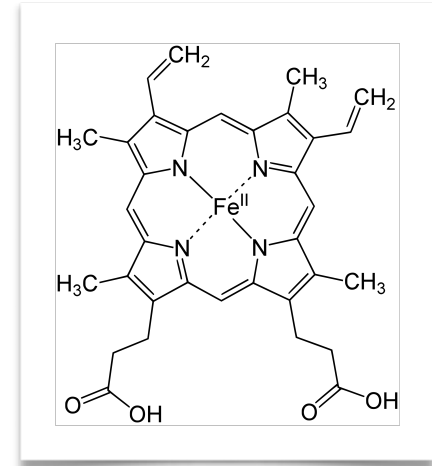


**Schrödinger Slater Hartree Roothaan**

$$\hat{H}\Psi = E\Psi$$

$$f(1) = h(1) + \sum_b J_b(1) - K_b(1)$$

$$E = \sum_i^{\text{occ}} \langle i|h|i \rangle + 1/2 \sum_i^{\text{occ}} \sum_j^{\text{occ}} \langle ij||ij \rangle$$



```
CALL CENTER('FMAT')

NDIM2M=(NS...
import cmd
IDISK=0
import pymol
CALL IDAFI...
from cmd import _cmd,lock,unlock.Shortcut...
_feedback,fb_module,fb_m...
DEFAULT_ERROR, DEFAULT_S...

IFSTA=1
DO ISYR=1,1
NBR=NORB
IF(NBR.E...
NB3=(NBR...
NBNB=NBR...
ISYS=ISY...
IS3RS=(I...
DO ISYP=...
NIP=NI...
NOP=NO...
NAESP=...
IF(NOP...
ISYQ=I...
IS3PQ=...

def resume(fname):
    r = DEFAULT_ERROR
    if os.path.exists(fname):
        if re.search(r"\.py$|\...
            r = cmd.do("run %s...
        else:
            r = cmd.do("@%s"%f...
    if is_ok(r):
        r = cmd.do("log_open %...
        if _raising(r): raise pymo...
        return r

def log_open(fname='log.pml',m...
try:
    try:
        if hasattr(pymol,"...
            if pymol._log...
                pymol._log...
                del pymol...
    except:
        pass
```



**Born Pauli & Bohr Kohn**

**und viele mehr**



# Stoffe verstehen

## Eigenschaften vorhersagen:

Physikalische Gesetze in  
chemische Konzepte  
übersetzen

# Stoffe verstehen

## Eigenschaften vorhersagen:

Physikalische Gesetze in  
chemische Konzepte  
übersetzen

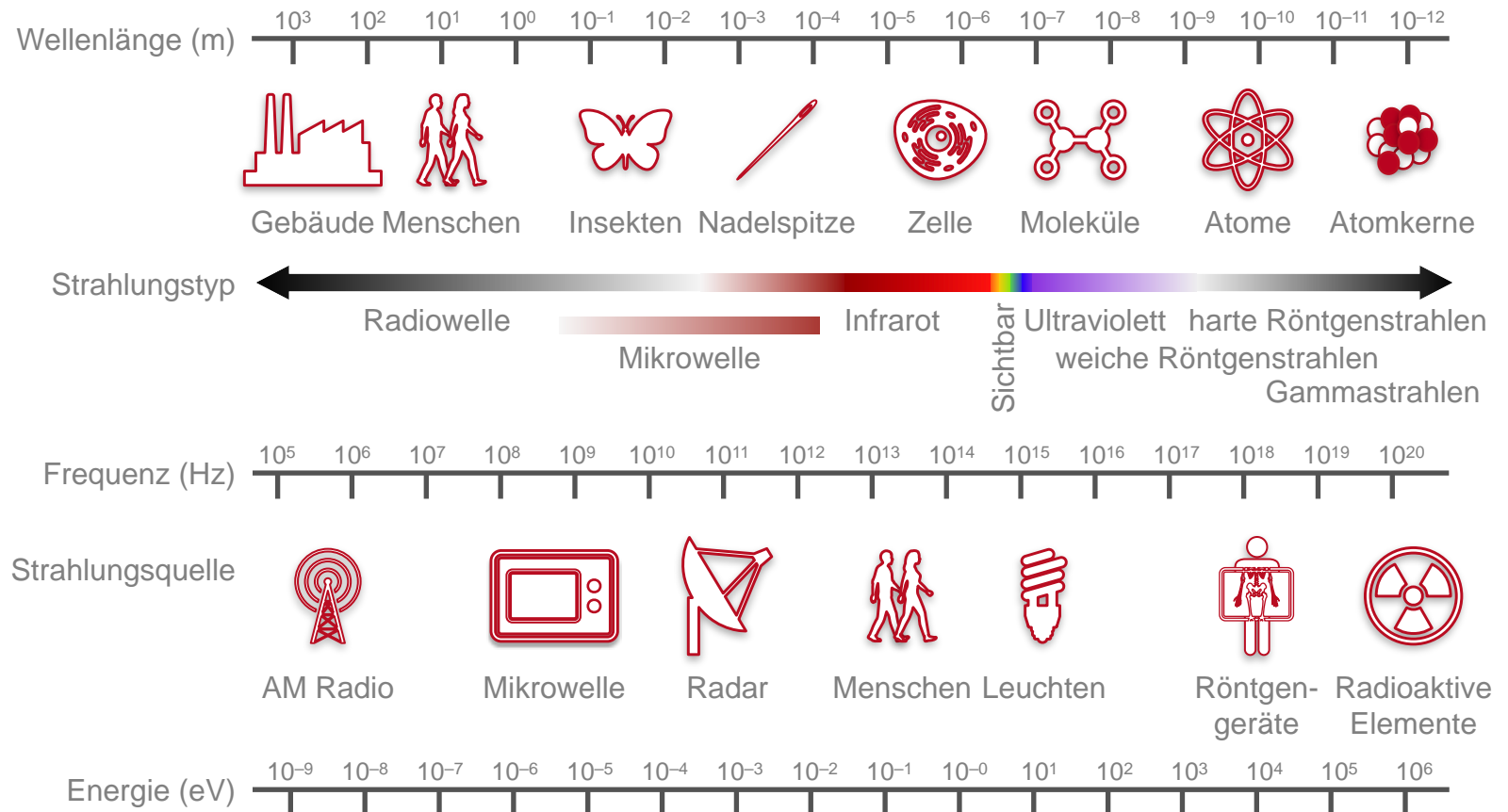
– Struktur eines Moleküls

# Stoffe verstehen

## Eigenschaften vorhersagen:

Physikalische Gesetze in  
chemische Konzepte  
übersetzen

- Struktur eines Moleküls
- Optische, vibronische,  
magnetische Eigenschaften



# Stoffe verstehen und umwandeln



## Eigenschaften vorhersagen:

Physikalische Gesetze in  
chemische Konzepte  
übersetzen

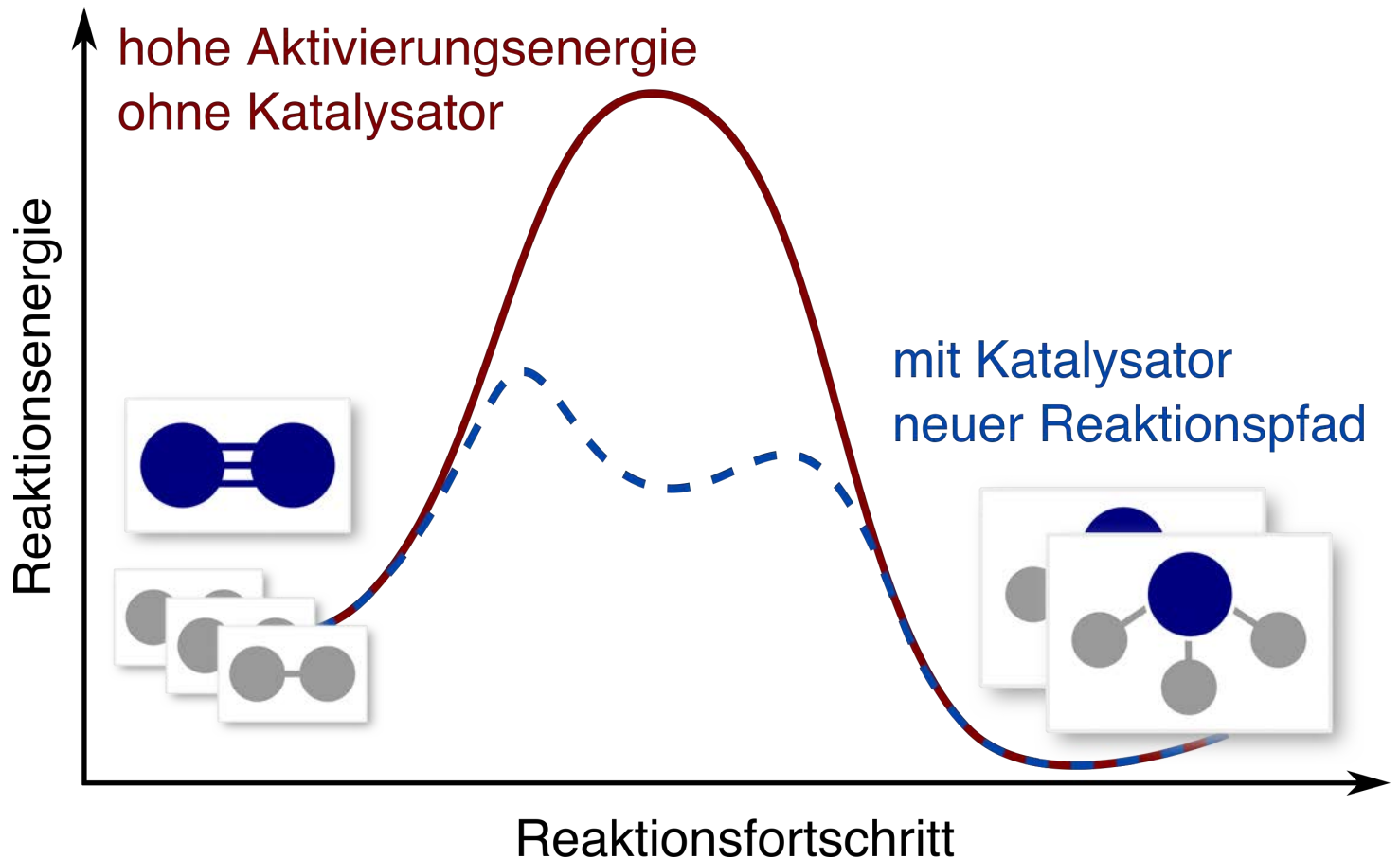
- Struktur eines Moleküls
- Optische, vibronische,  
magnetische Eigenschaften

# Stoffe verstehen und umwandeln

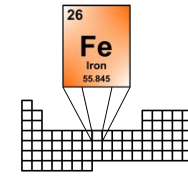
## Eigenschaften vorhersagen:

Physikalische Gesetze in  
chemische Konzepte  
übersetzen

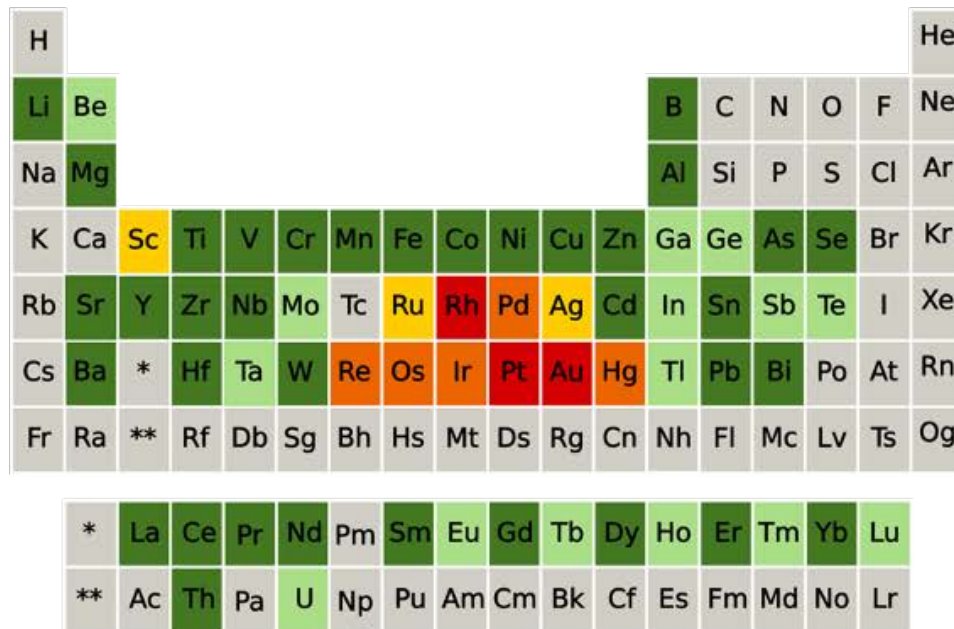
- Struktur eines Moleküls
- Optische, vibronische,  
magnetische Eigenschaften
- Reaktivität und **Katalyse**



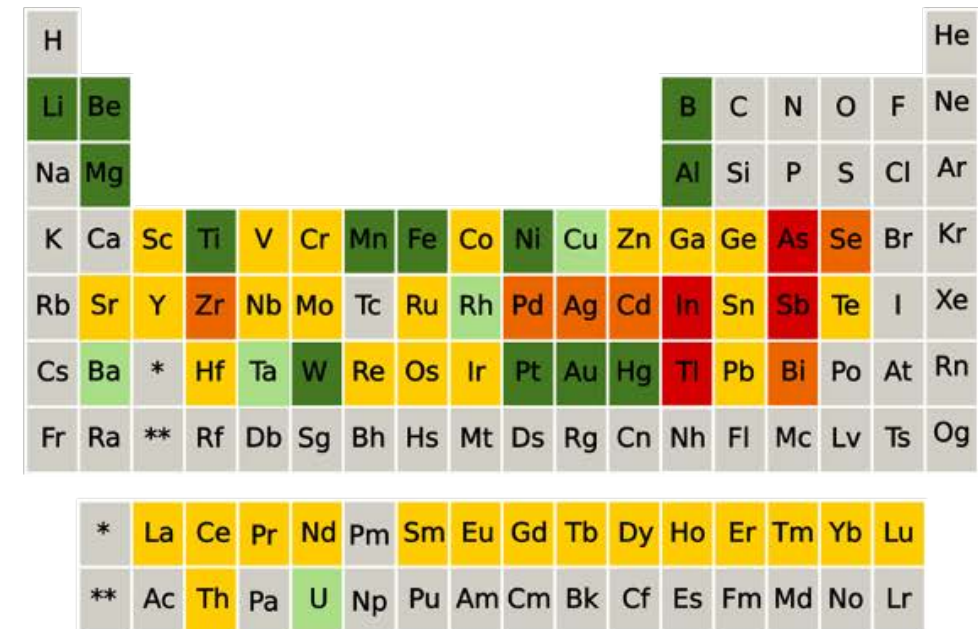
# Chemie und Katalyse für eine grünere Zukunft



## Umwelteinfluss



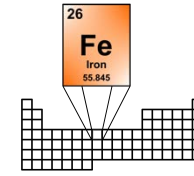
## Liefersicherheit



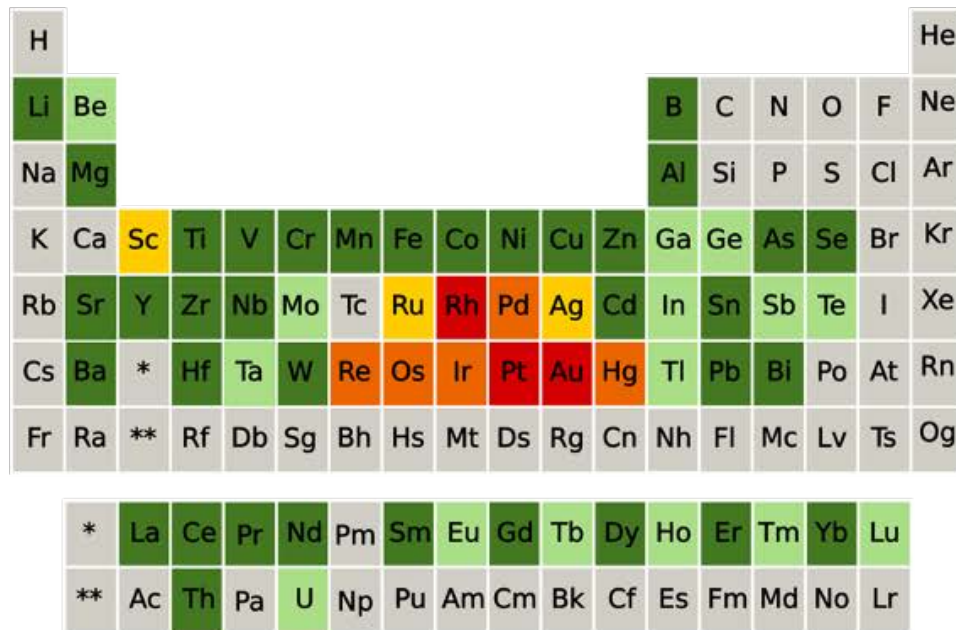
Adapted by U. I. Kramm from Graedel *et al.*, „Criticality of metals and metalloids“, *PNAS* 2015, 112, 4257.



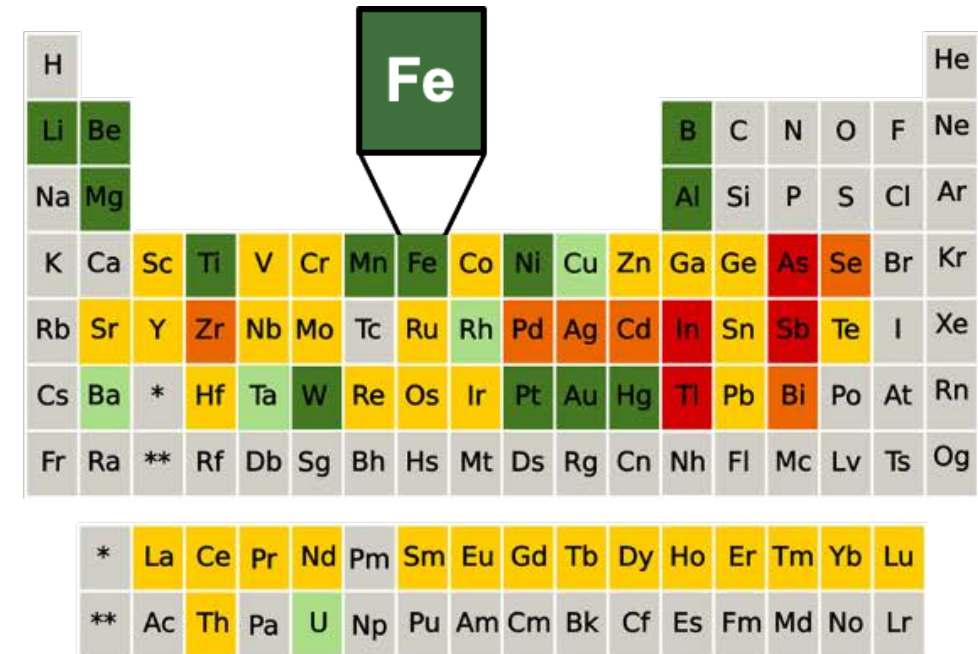
# Chemie und Katalyse für eine grünere Zukunft



## Umwelteinfluss

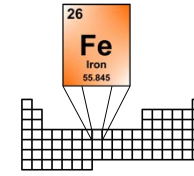


## Liefersicherheit



Adapted by U. I. Kramm from Graedel *et al.*, „Criticality of metals and metalloids“, *PNAS* 2015, 112, 4257.

# Katalyse mit Eisen für eine grünere Zukunft

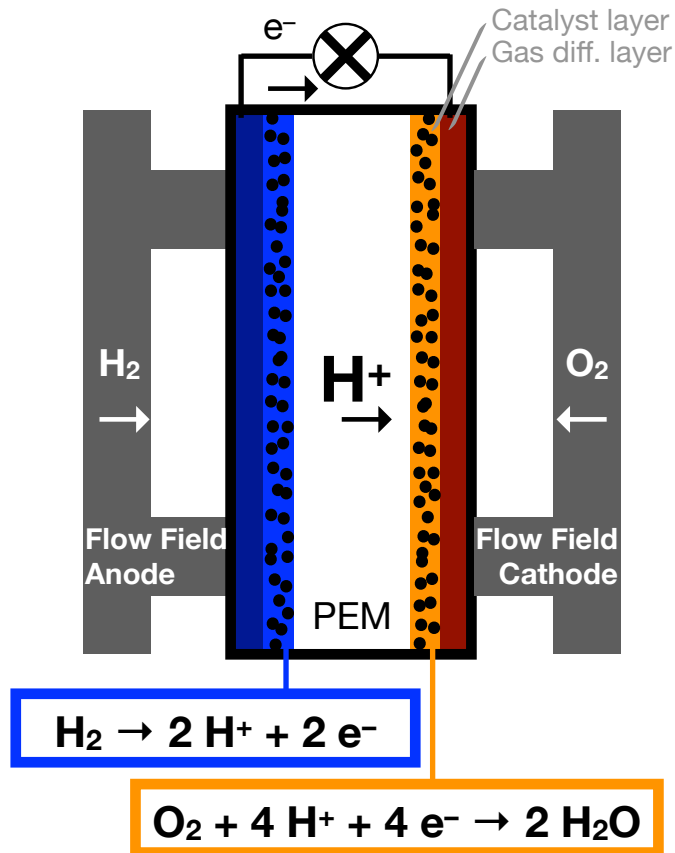


## Motivation

- Sauerstoffreduktion: Relevanz für grüne Mobilität
- Platin: effizient, stabil, teuer, kritisch
- Eisen: effizient, weniger stabil, günstiger, grün

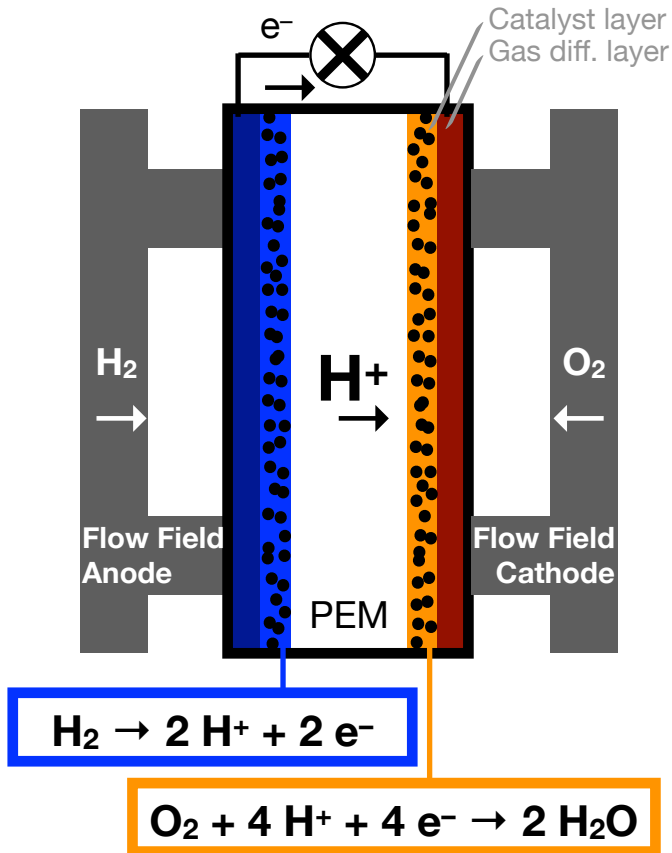
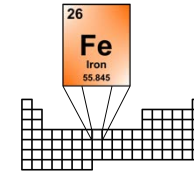
## Fragestellungen

- Identifikation des aktiven Zentrums
- Verständnis des Reaktionsmechanismus
- Verbesserung der Katalysatorstabilität



In collaboration with Prof. U. I. Kramm

# Katalyse mit Eisen für eine grünere Zukunft



## Motivation

- Sauerstoffreduktion: Relevanz für grüne Mobilität
- Platin: effizient, stabil, teuer, kritisch
- Eisen: effizient, weniger stabil, günstiger, grün

## Fragestellungen

- Identifikation des aktiven Zentrums
- Verständnis des Reaktionsmechanismus
- Verbesserung der Katalysatorstabilität

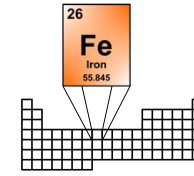
## Katalysatormaterial

*amorph, heterogen*



In collaboration with Prof. U. I. Kramm

# Katalyse mit Eisen für eine grünere Zukunft



## Motivation

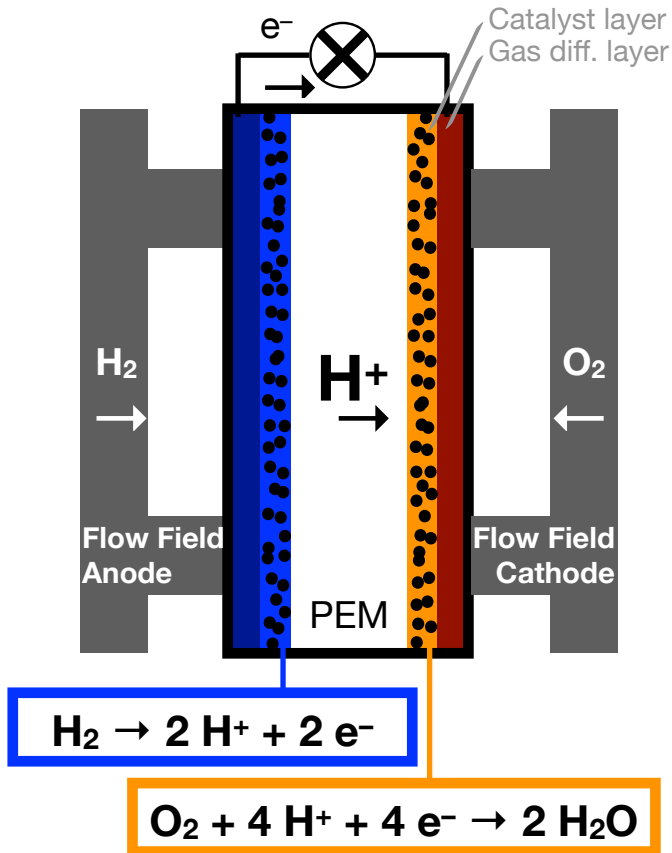
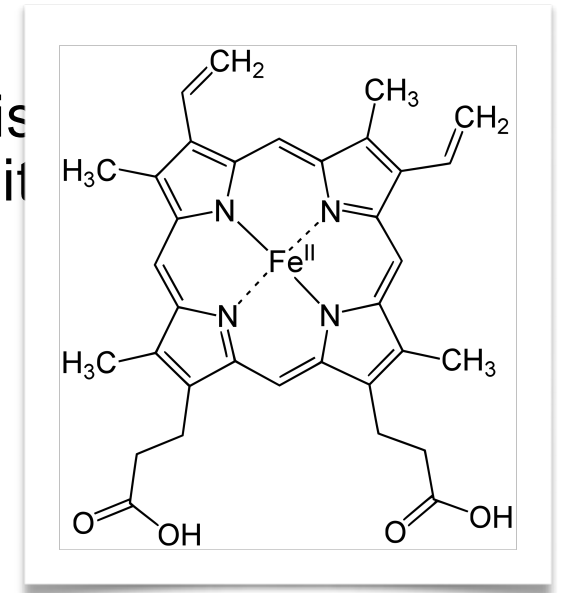
- Sauerstoffreduktion: Relevanz für grüne Mobilität
- Platin: effizient, stabil, teuer, kritisch
- Eisen: effizient, weniger stabil, günstiger, grün

## Fragestellungen

- Identifikation des aktiven Zentrums
- Verständnis des Reaktionsmechanismus
- Verbesserung der Katalysatorstabilität

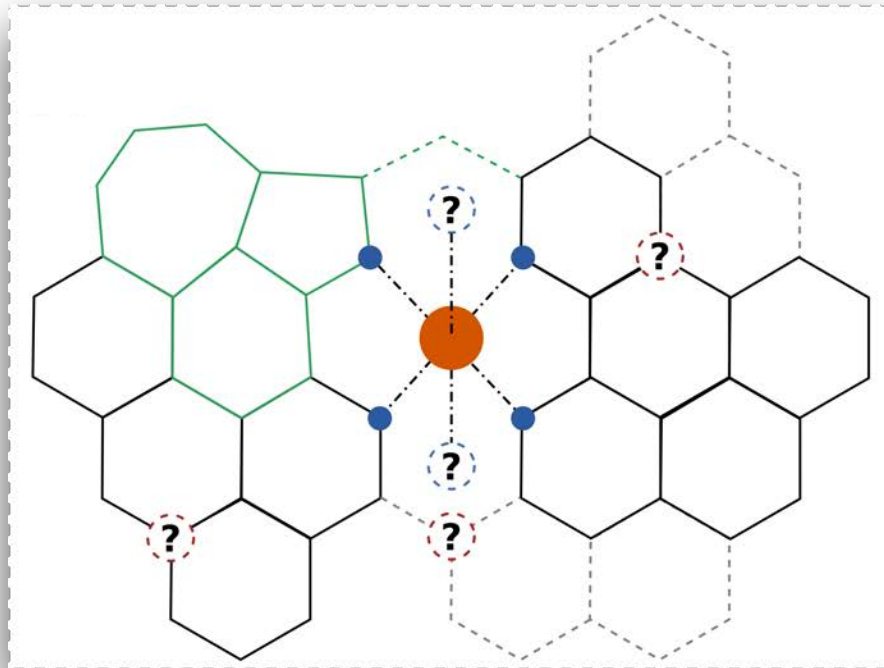
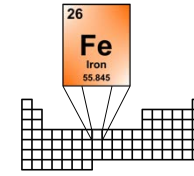
## Katalysatormaterial

*amorph, heterogen*



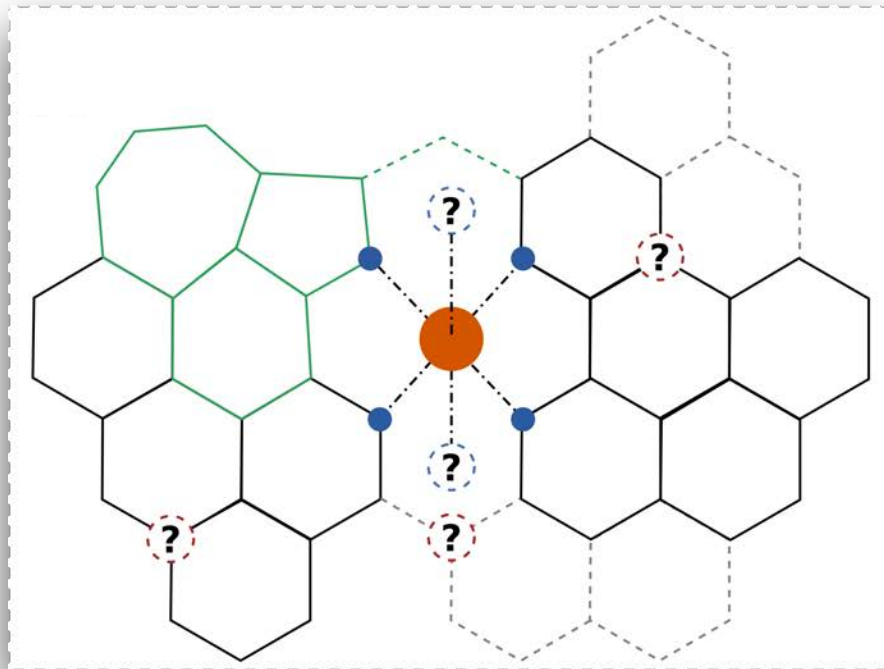
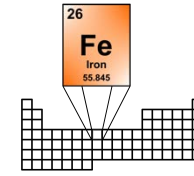
In collaboration with Prof. U. I. Kramm

# Das katalytisch aktive Eisen-Zentrum



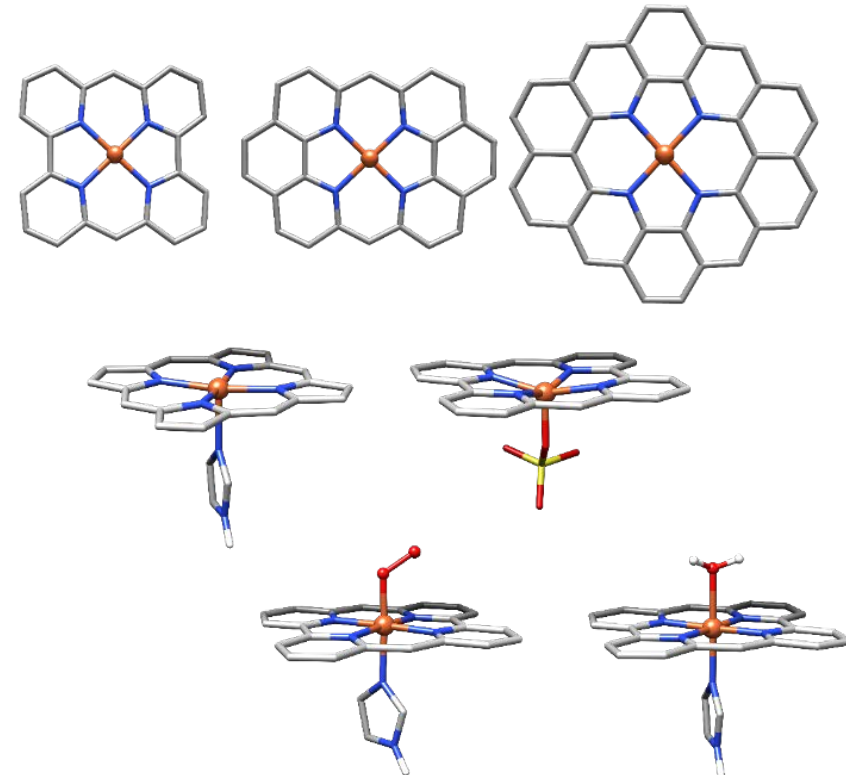
## Offene Fragen zum FeNC-Katalysator

# Das katalytisch aktive Eisen-Zentrum

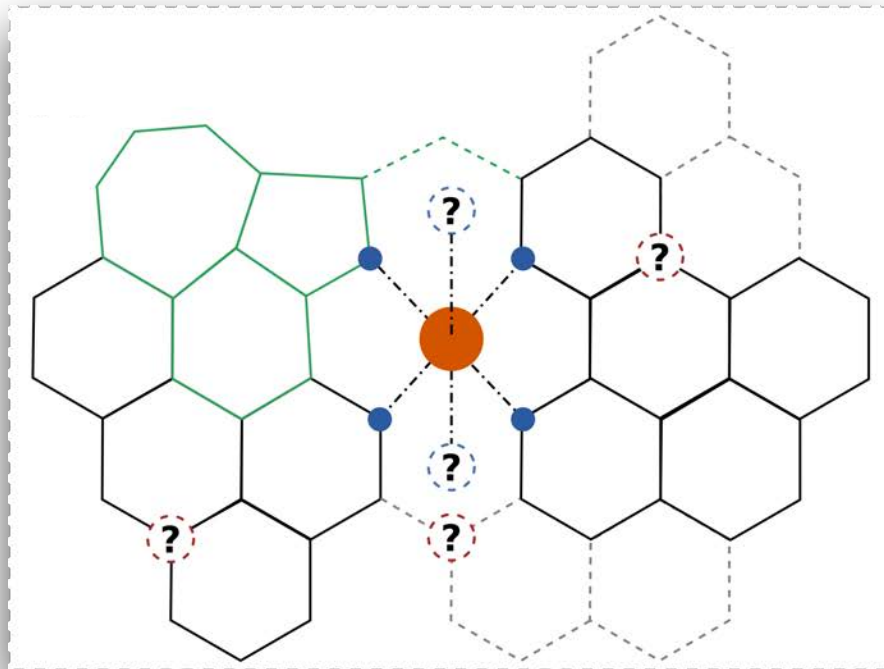
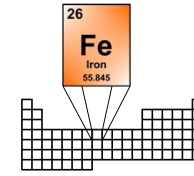


Offene Fragen zum FeNC-Katalysator

## (1) Strukturmodelle entwickeln

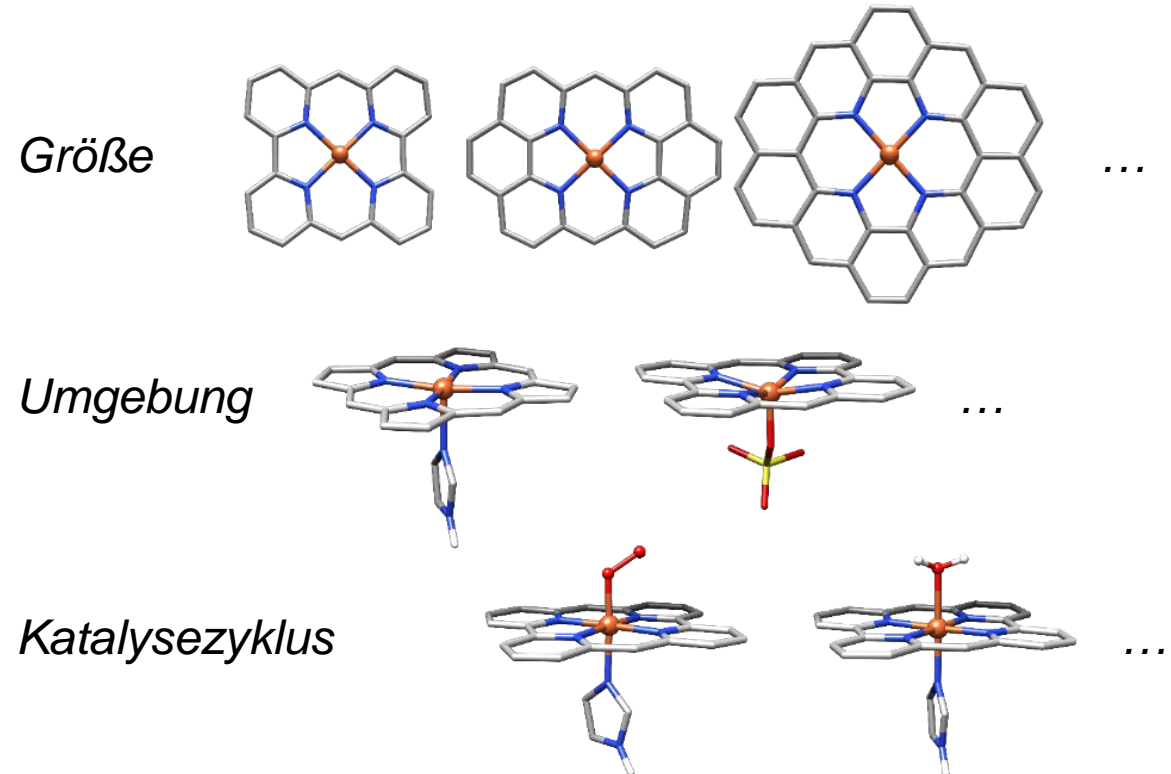


# Das katalytisch aktive Eisen-Zentrum

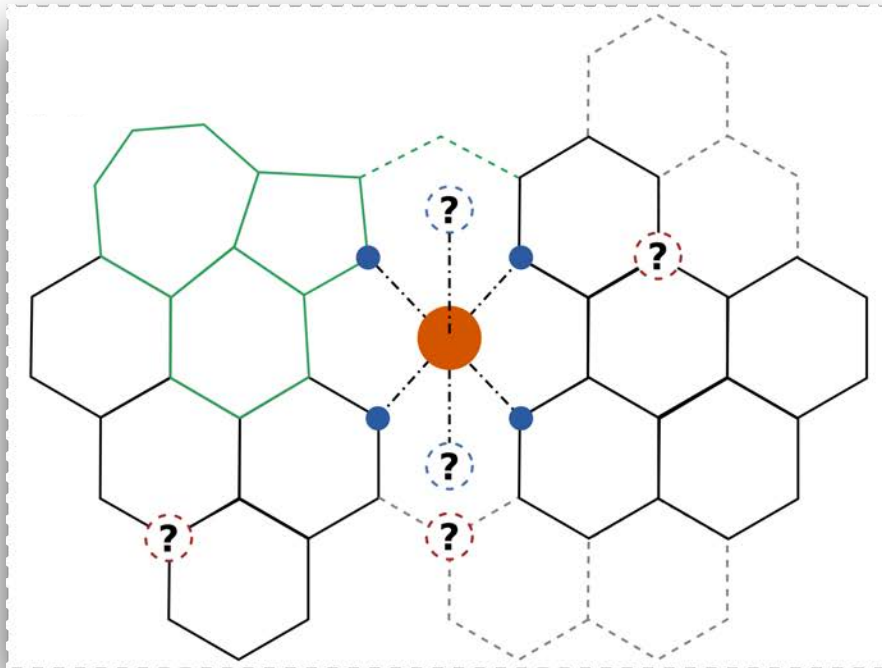
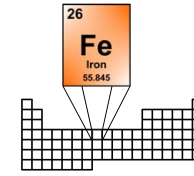


**Offene Fragen zum FeNC-Katalysator**

## (1) Strukturmodelle entwickeln



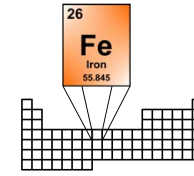
# Das katalytisch aktive Eisen-Zentrum



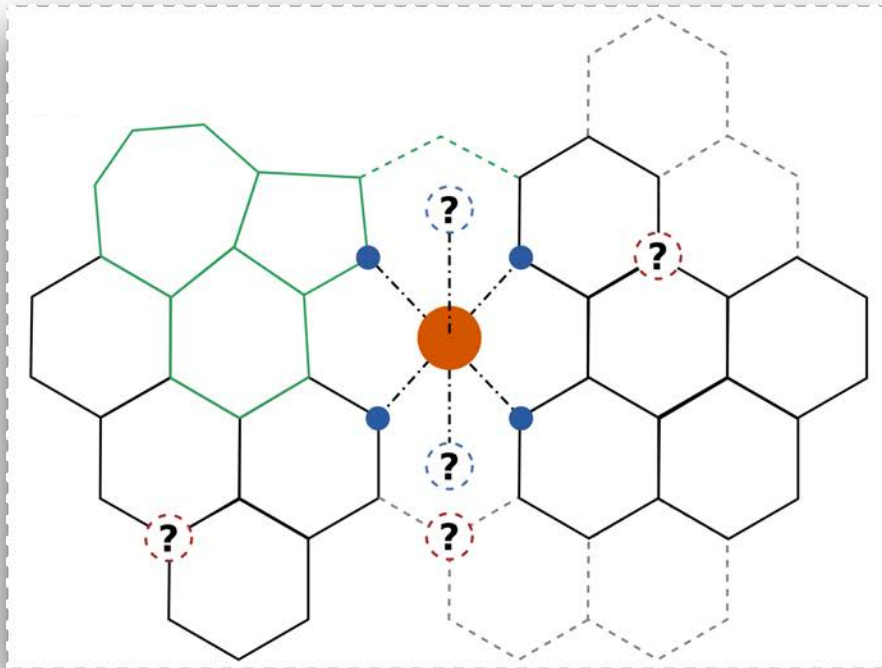
## Offene Fragen zum FeNC-Katalysator



# Das katalytisch aktive Eisen-Zentrum

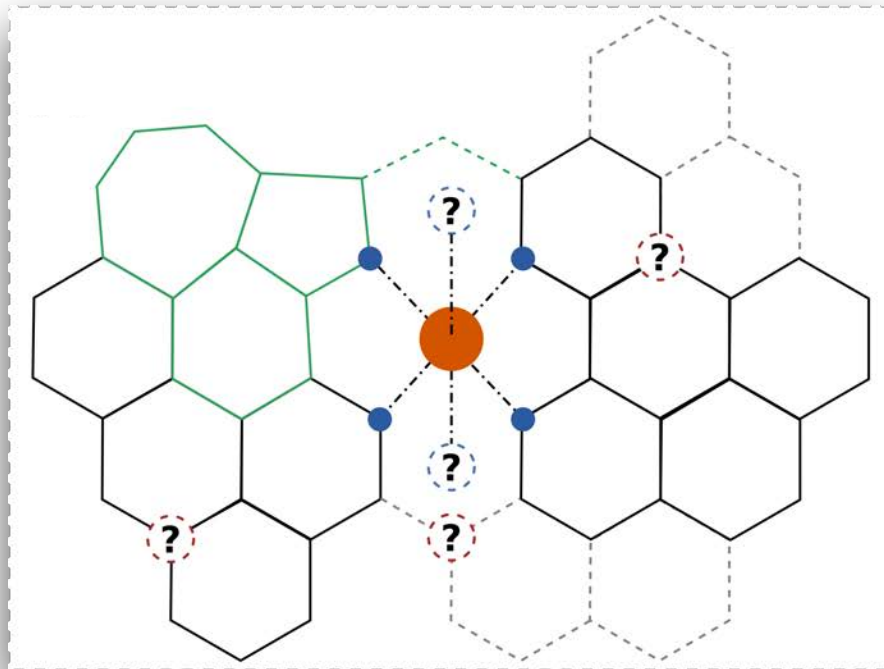
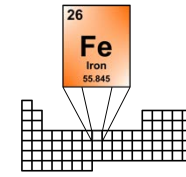


## (2) Eigenschaften vorhersagen



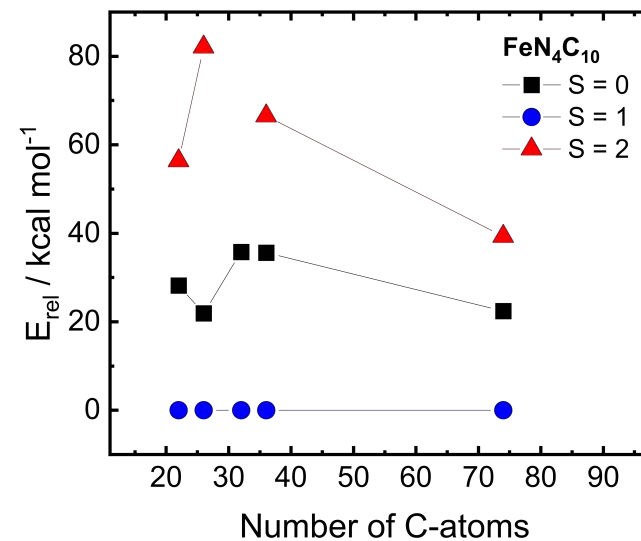
## Offene Fragen zum FeNC-Katalysator

# Das katalytisch aktive Eisen-Zentrum

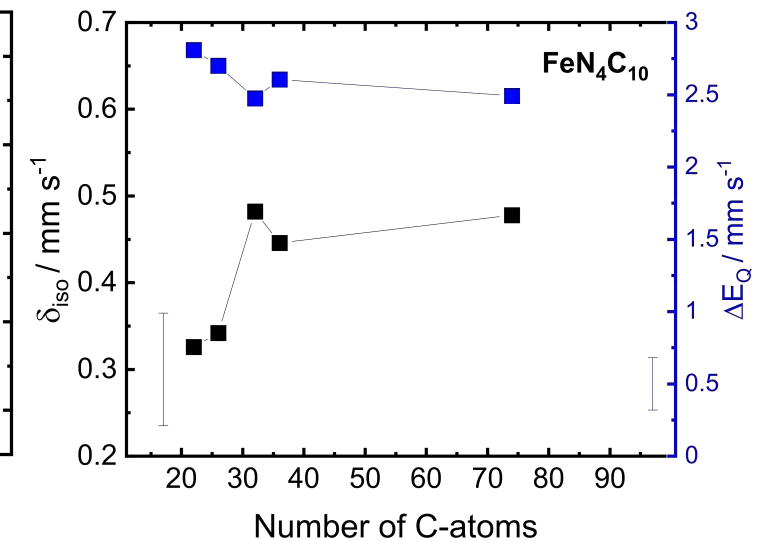


## (2) Eigenschaften vorhersagen

### Spinzustände



### Mößbauer-Spektroskopie

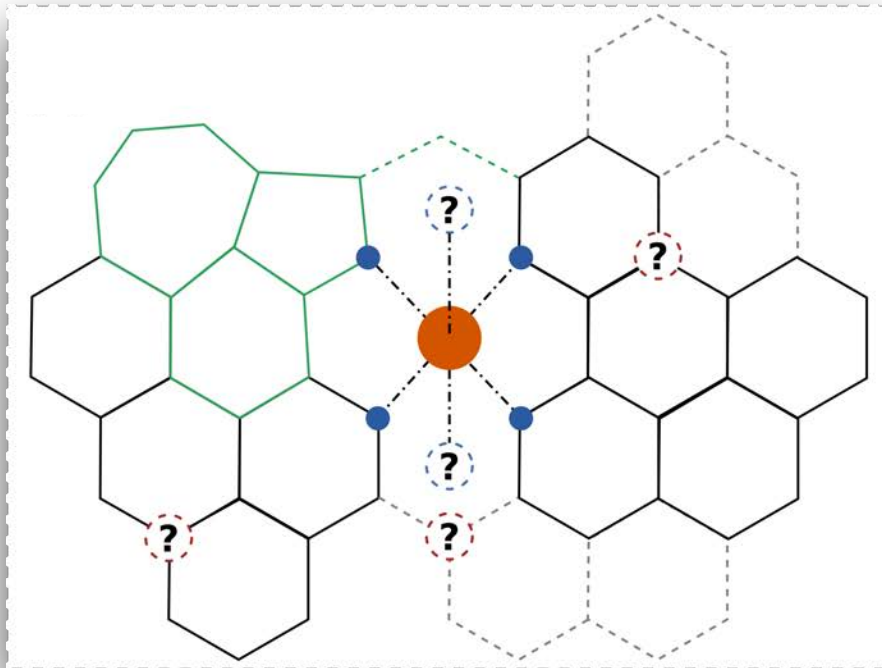
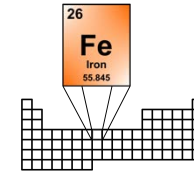


## Offene Fragen zum FeNC-Katalysator

*Chem. Commun.* **2021**; *Adv. Energy Sust. Res.* **2021**; *J. Am. Chem. Soc.* **2022**

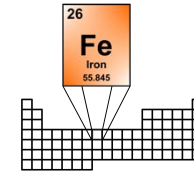


# Das katalytisch aktive Eisen-Zentrum

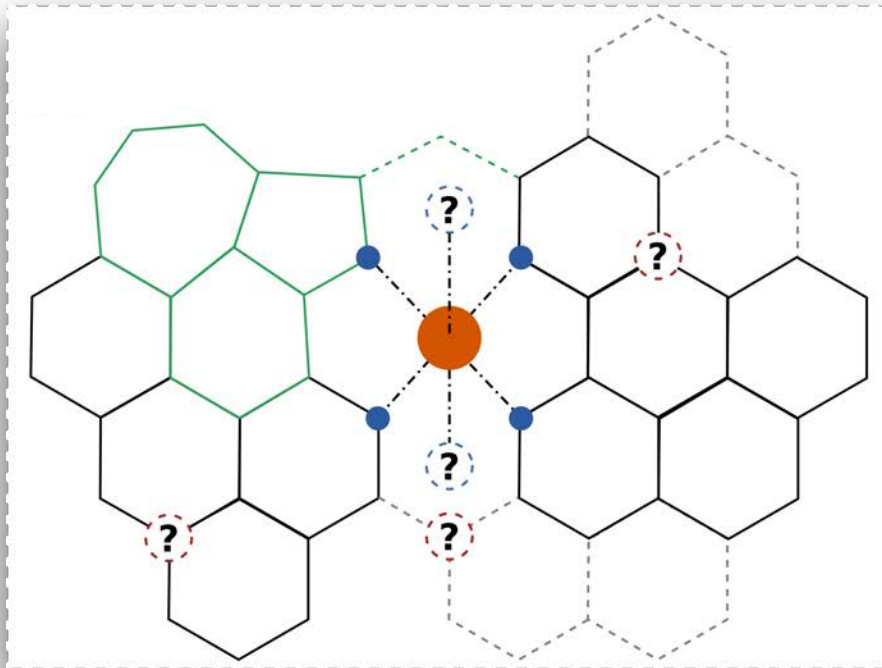


## Offene Fragen zum FeNC-Katalysator

# Das katalytisch aktive Eisen-Zentrum

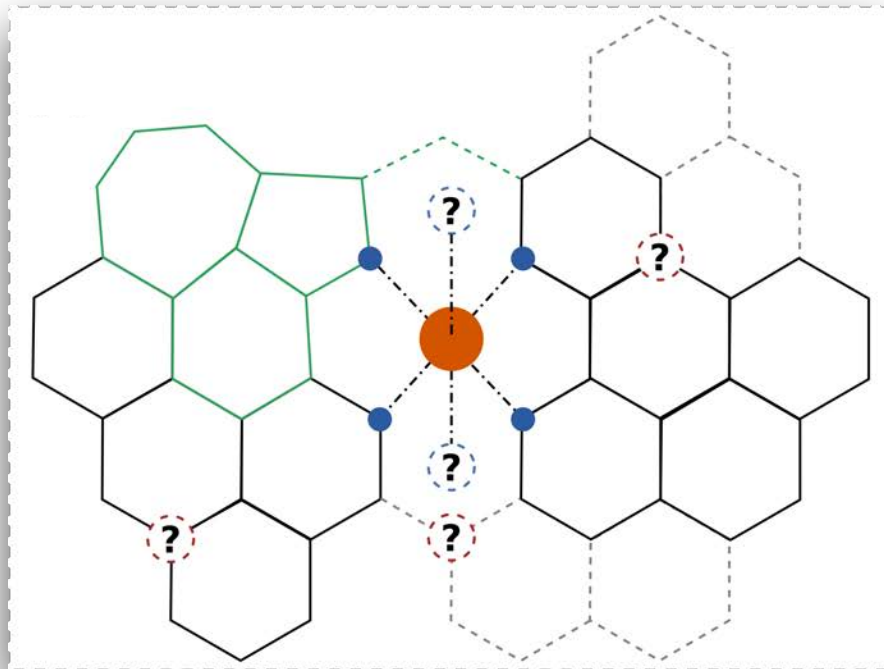
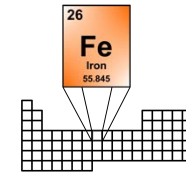


## (3) Vergleich mit dem Experiment



## Offene Fragen zum FeNC-Katalysator

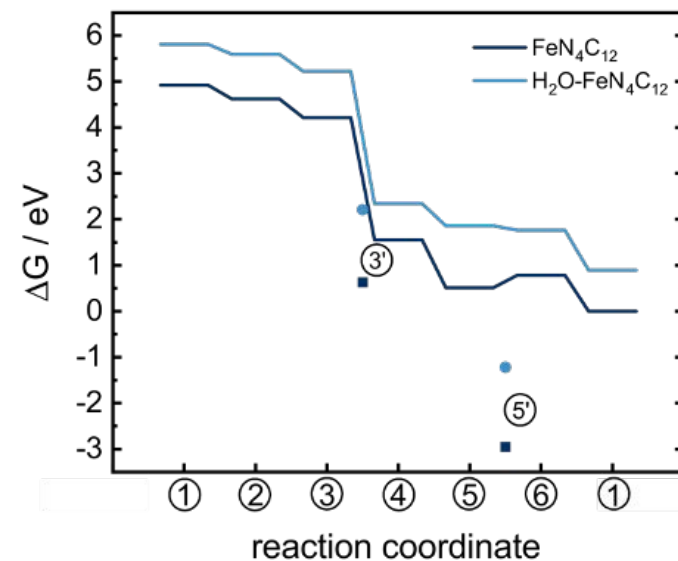
# Das katalytisch aktive Eisen-Zentrum



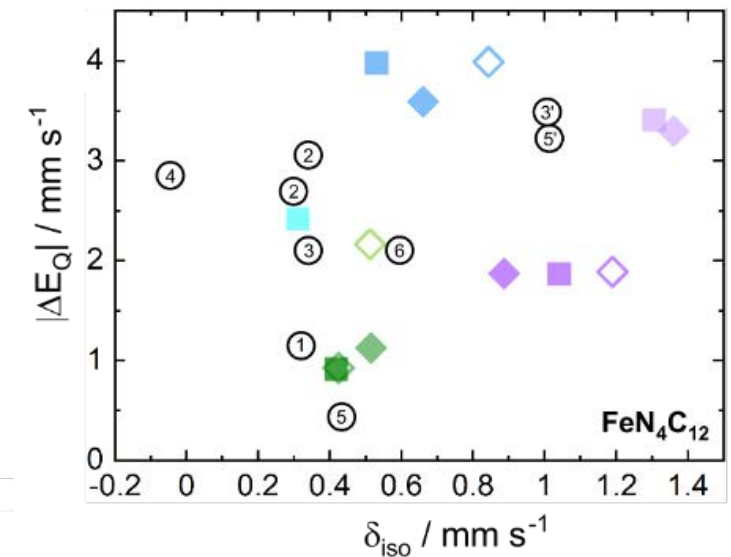
## Offene Fragen zum FeNC-Katalysator

### (3) Vergleich mit dem Experiment

#### Thermodynamik



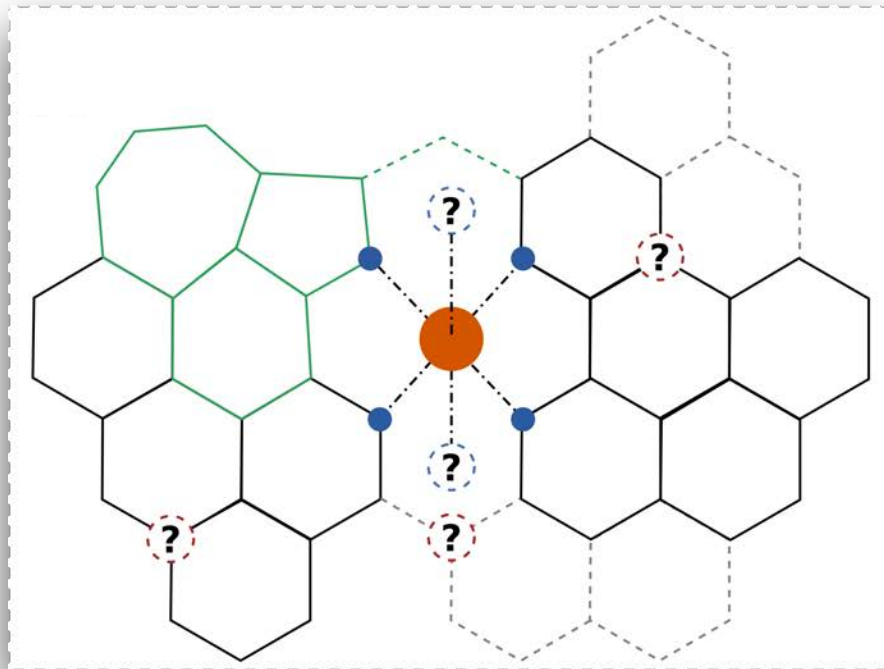
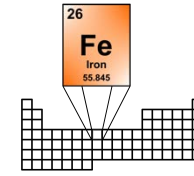
#### Mößbauer-Spektroskopie



*Chem. Commun.* **2021**; *Adv. Energy Sust. Res.* **2021**; *J. Am. Chem. Soc.* **2022**

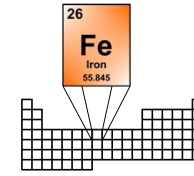


# Das katalytisch aktive Eisen-Zentrum

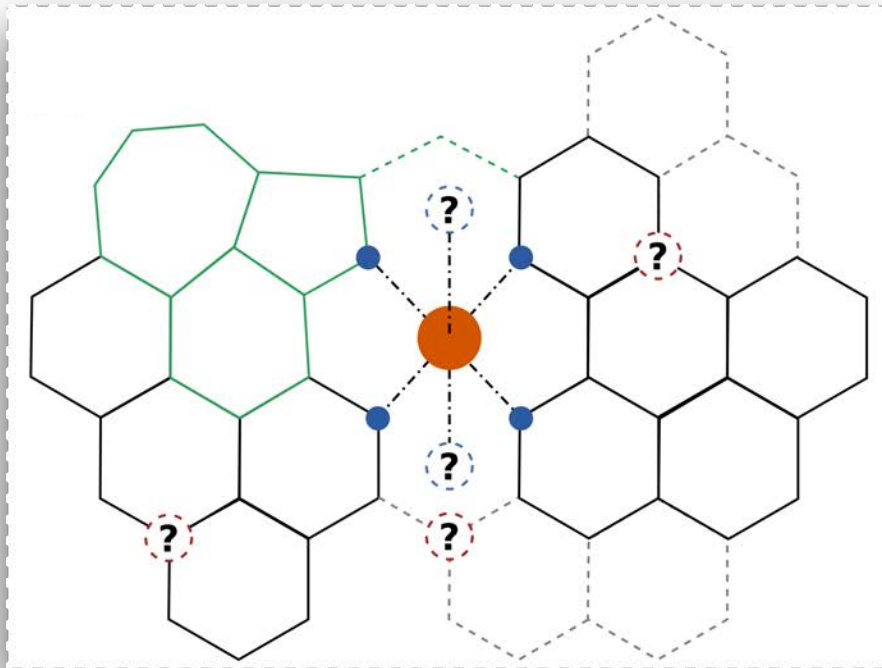


## Offene Fragen zum FeNC-Katalysator

# Das katalytisch aktive Eisen-Zentrum

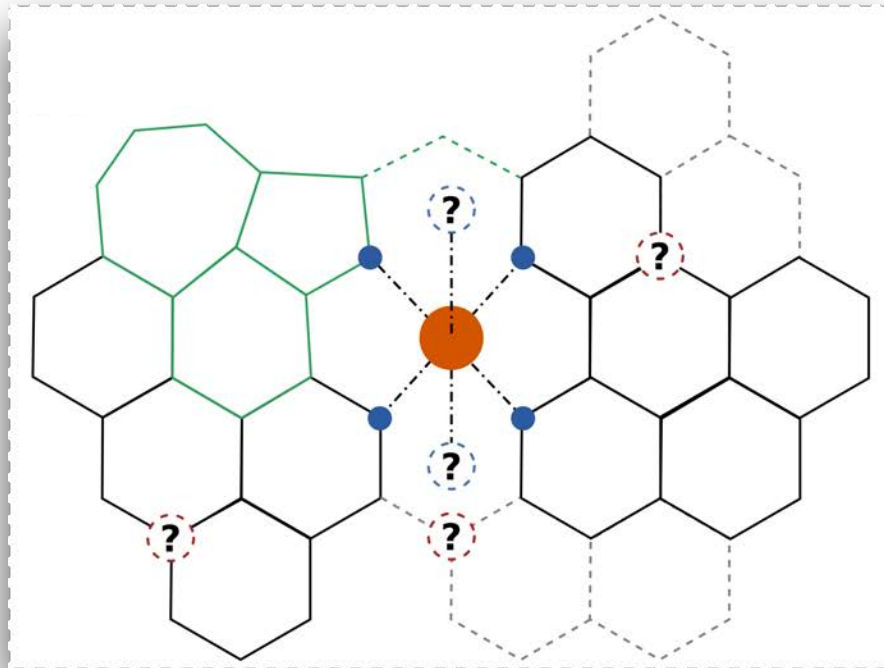
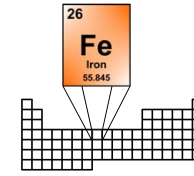


## (4) Katalysezyklus

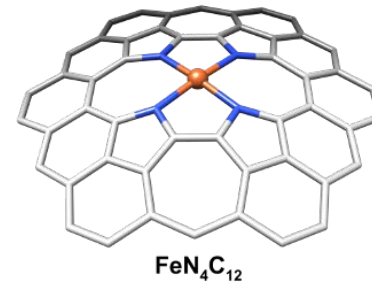


## Offene Fragen zum FeNC-Katalysator

# Das katalytisch aktive Eisen-Zentrum



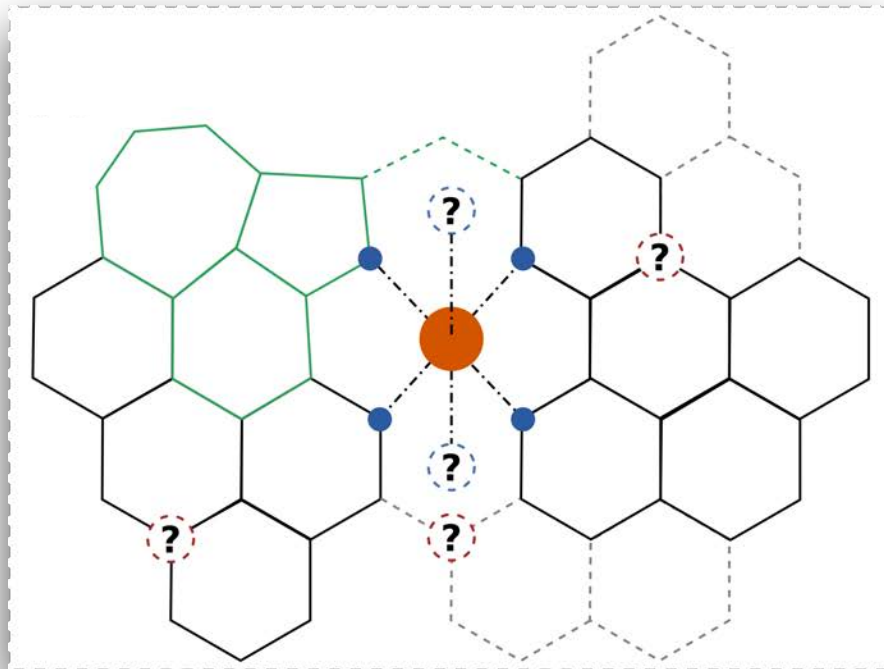
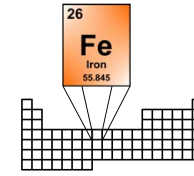
## (4) Katalysezyklus



## Offene Fragen zum FeNC-Katalysator

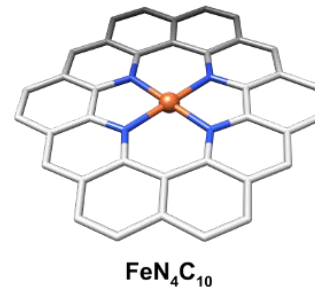
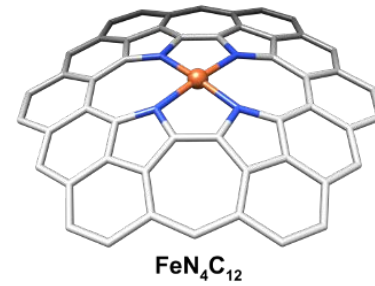


# Das katalytisch aktive Eisen-Zentrum

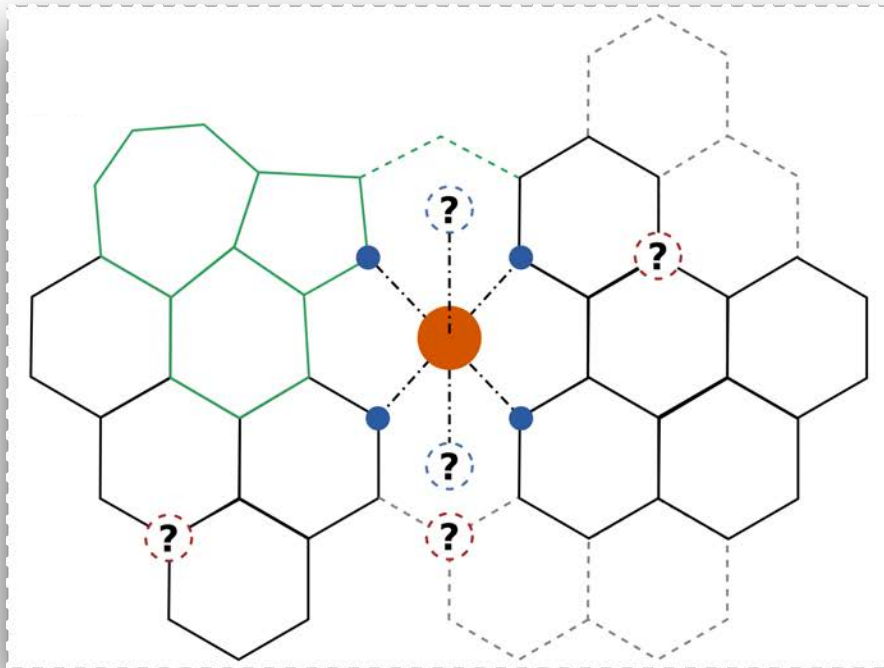
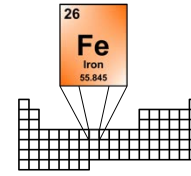


Offene Fragen zum FeNC-Katalysator

## (4) Katalysezyklus

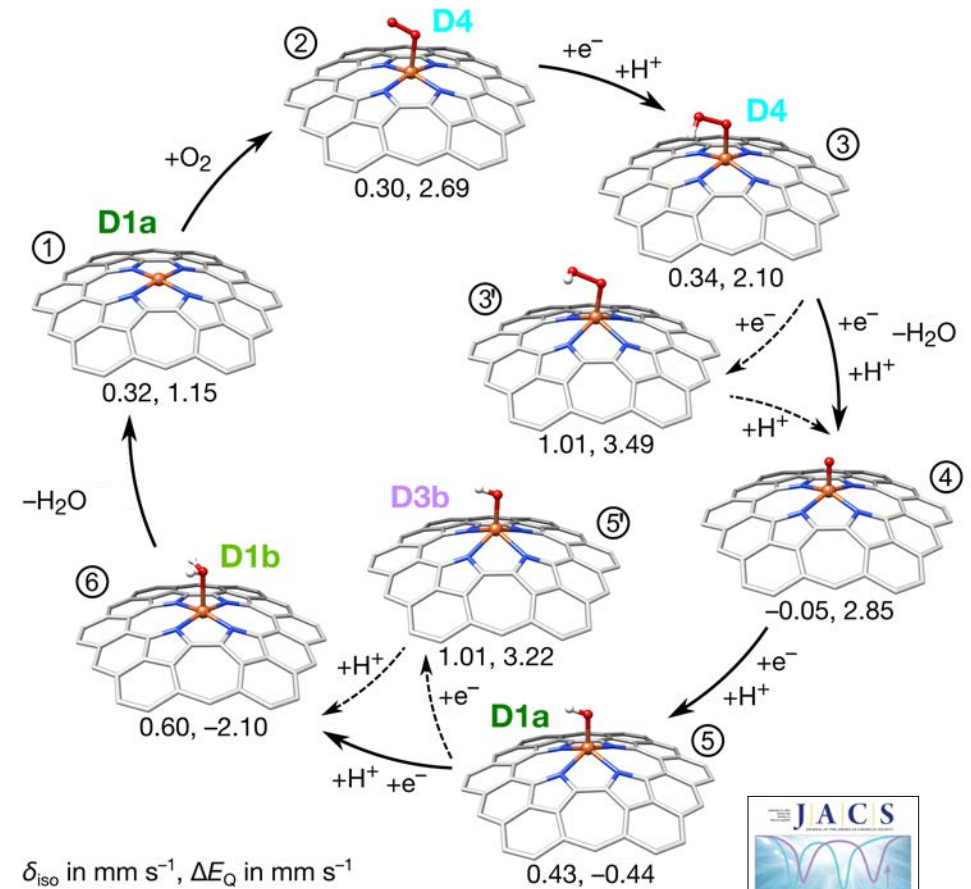
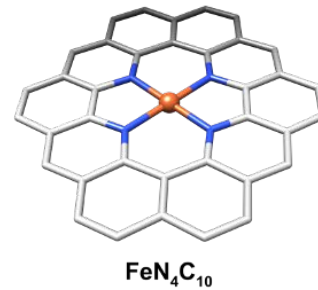
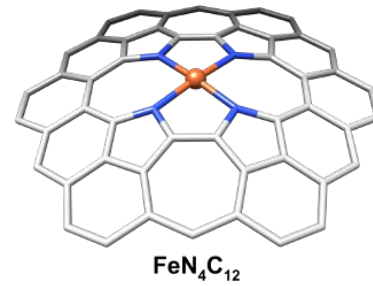


# Das katalytisch aktive Eisen-Zentrum

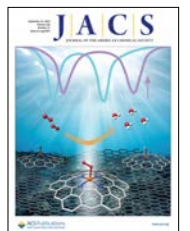


Offene Fragen zum FeNC-Katalysator

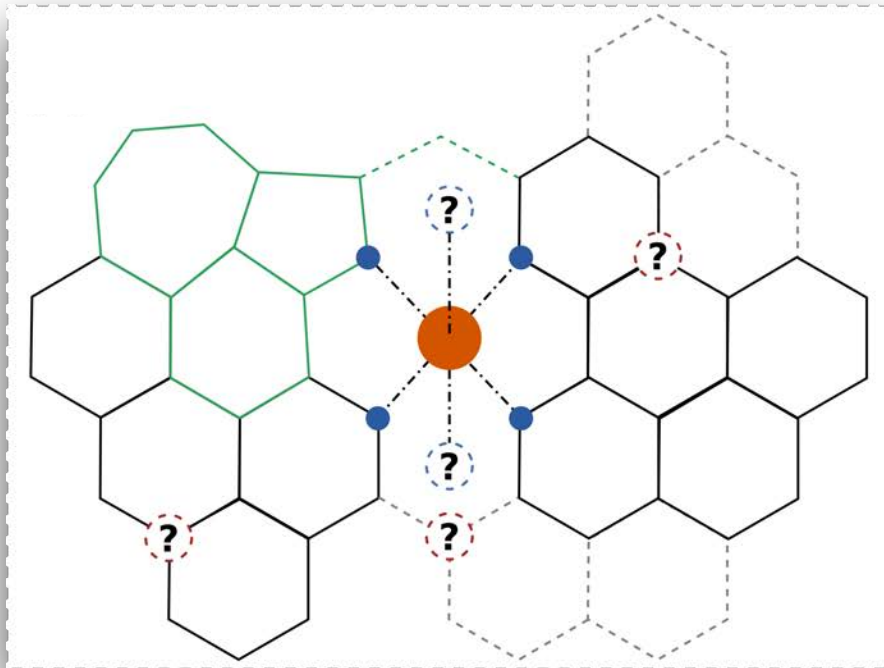
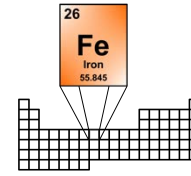
## (4) Katalysezyklus



*J. Am. Chem. Soc.* 2022

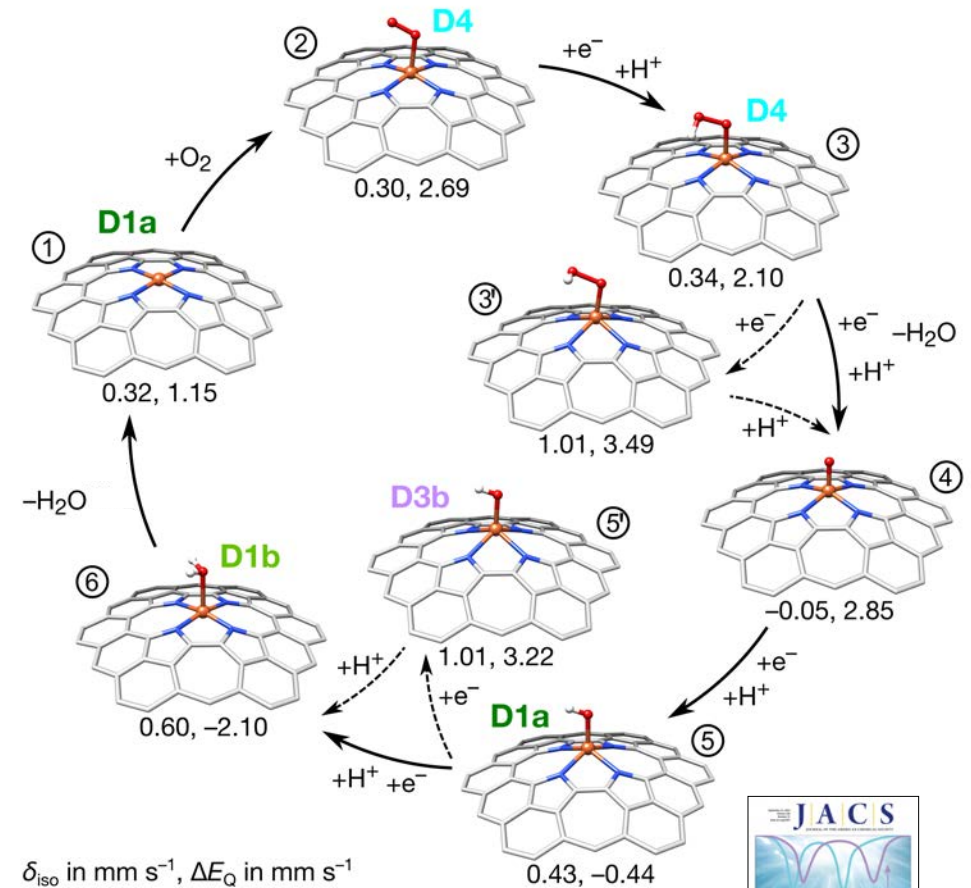
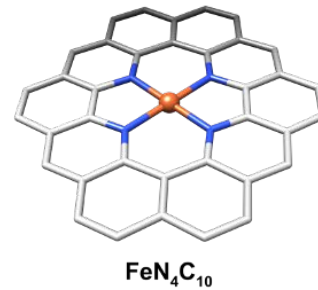
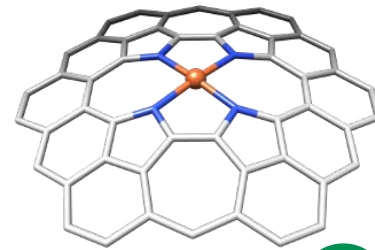


# Das katalytisch aktive Eisen-Zentrum

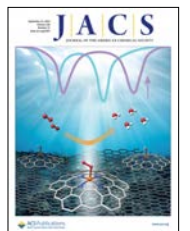


Offene Fragen zum FeNC-Katalysator

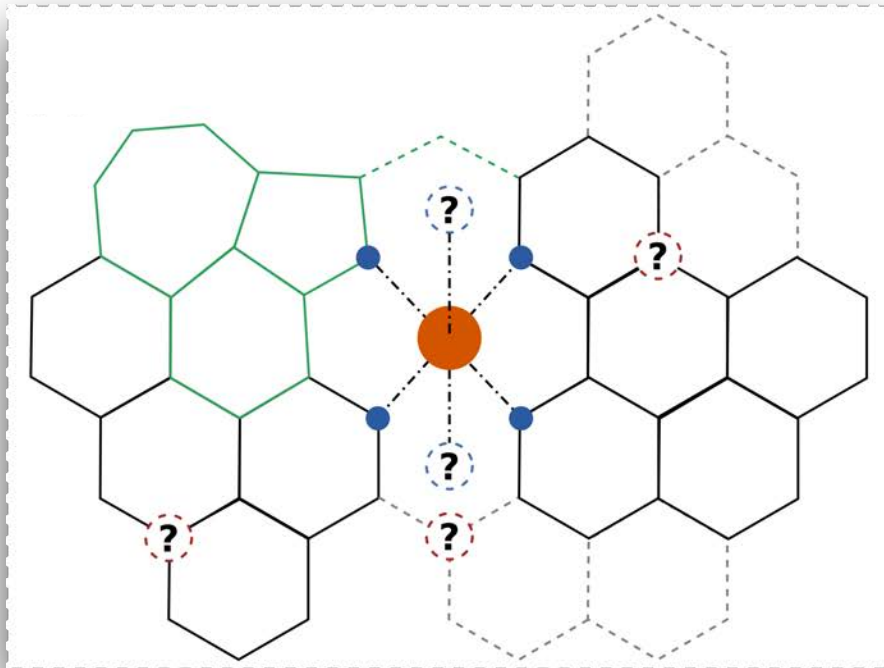
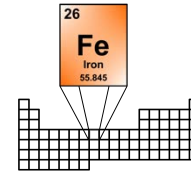
## (4) Katalysezyklus



*J. Am. Chem. Soc.* 2022

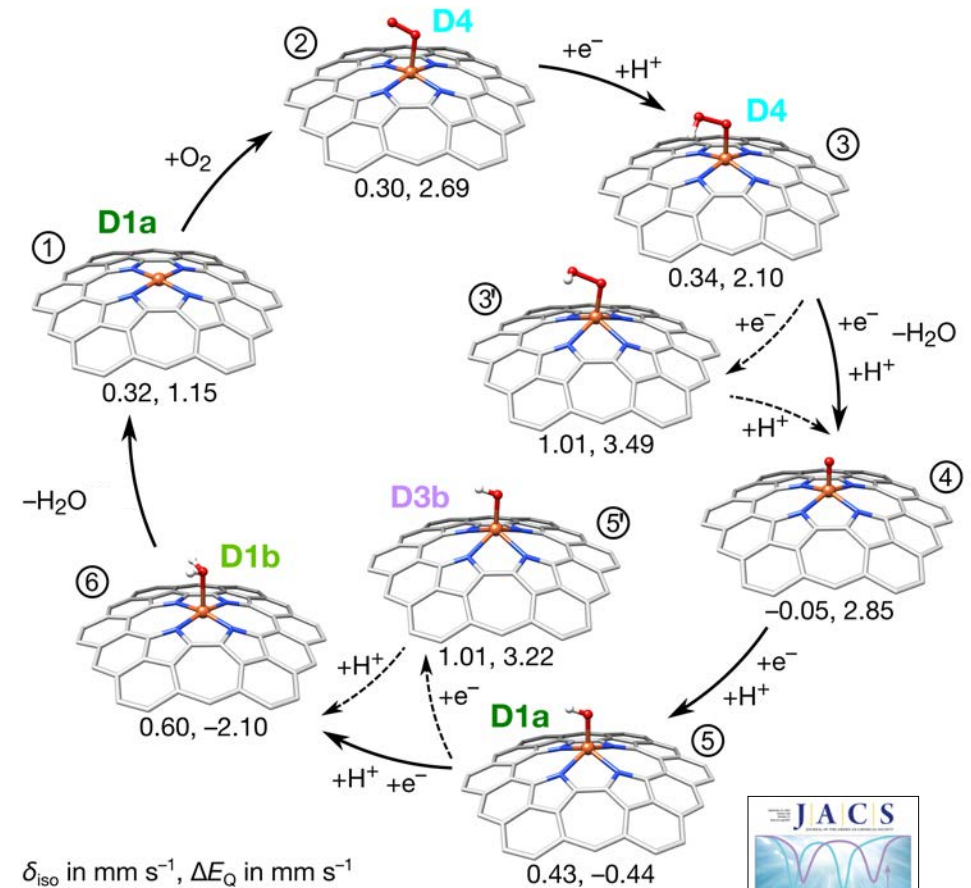
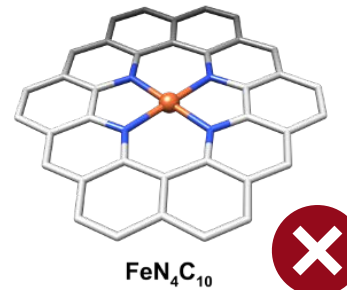
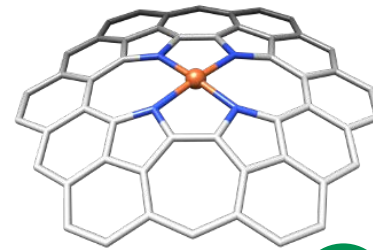


# Das katalytisch aktive Eisen-Zentrum

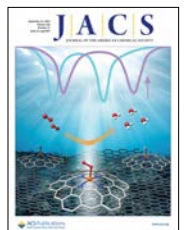


Offene Fragen zum FeNC-Katalysator

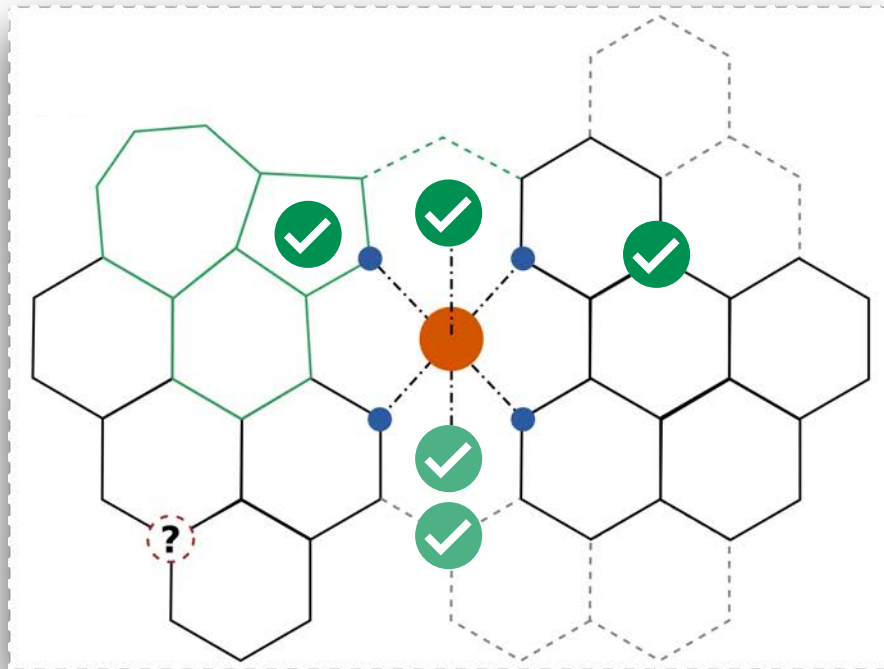
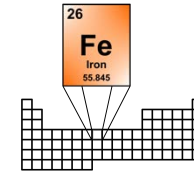
## (4) Katalysezyklus



*J. Am. Chem. Soc.* 2022

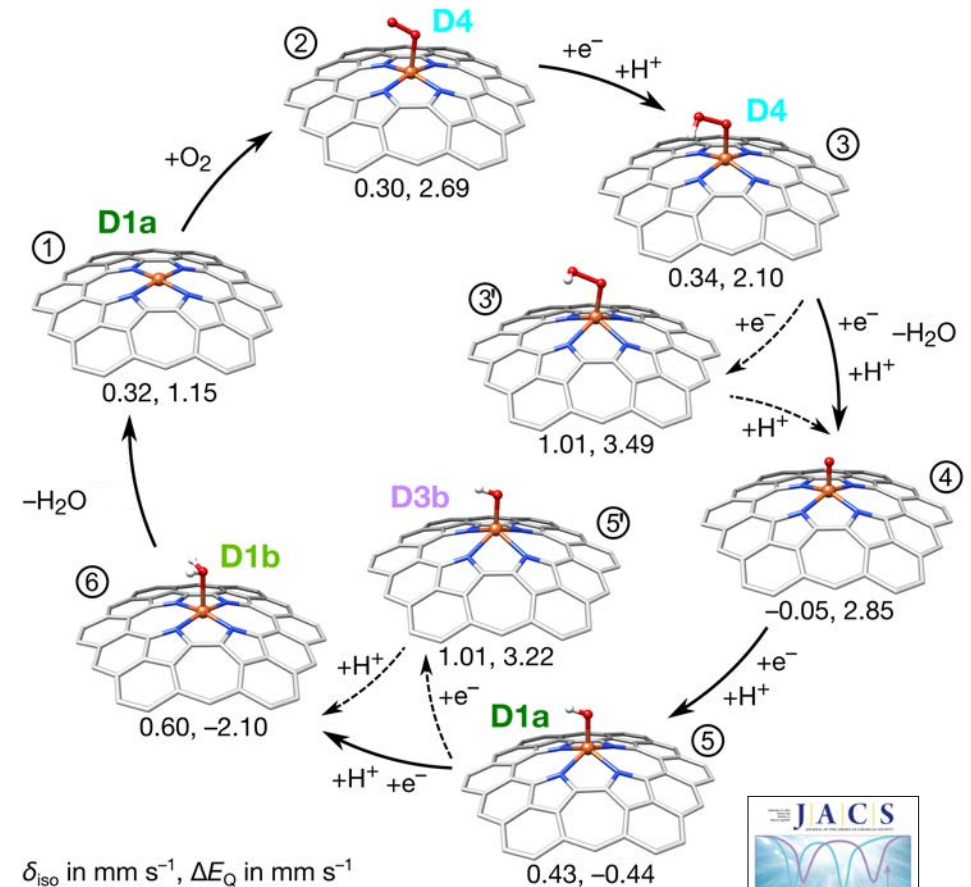
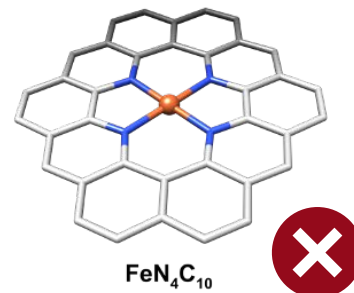
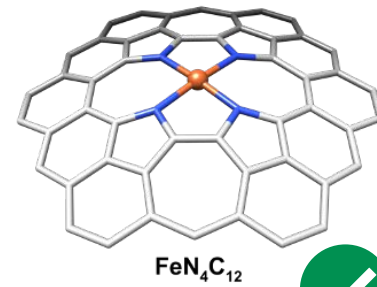


# Das katalytisch aktive Eisen-Zentrum

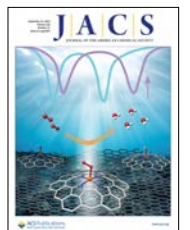


## Offene Fragen zum FeNC-Katalysator

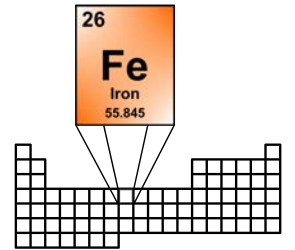
### (4) Katalysezyklus



*J. Am. Chem. Soc.* 2022



# Quantenchemie für **Katalyse**: nur mit Hochleistungsrechnern!



C. Gallenkamp, L. Ni, U. I. Kramm

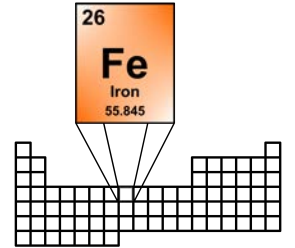
Gefördert durch



Projektnummer 443703006

# Quantenchemie für **Katalyse**: nur mit Hochleistungsrechnern!

Katalysatoren eröffnen niederenergetische Reaktionspfade.  
Ihre quantenchemische Vorhersage und Analyse ermöglicht  
die systematische Verbesserung katalytischer Prozesse.



C. Gallenkamp, L. Ni, U. I. Kramm

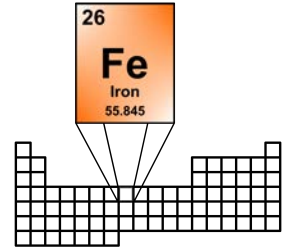
Gefördert durch



Projektnummer 443703006

# Quantenchemie für **Katalyse**: nur mit Hochleistungsrechnern!

Katalysatoren eröffnen niederenergetische Reaktionspfade.  
Ihre quantenchemische Vorhersage und Analyse ermöglicht  
die systematische Verbesserung katalytischer Prozesse.

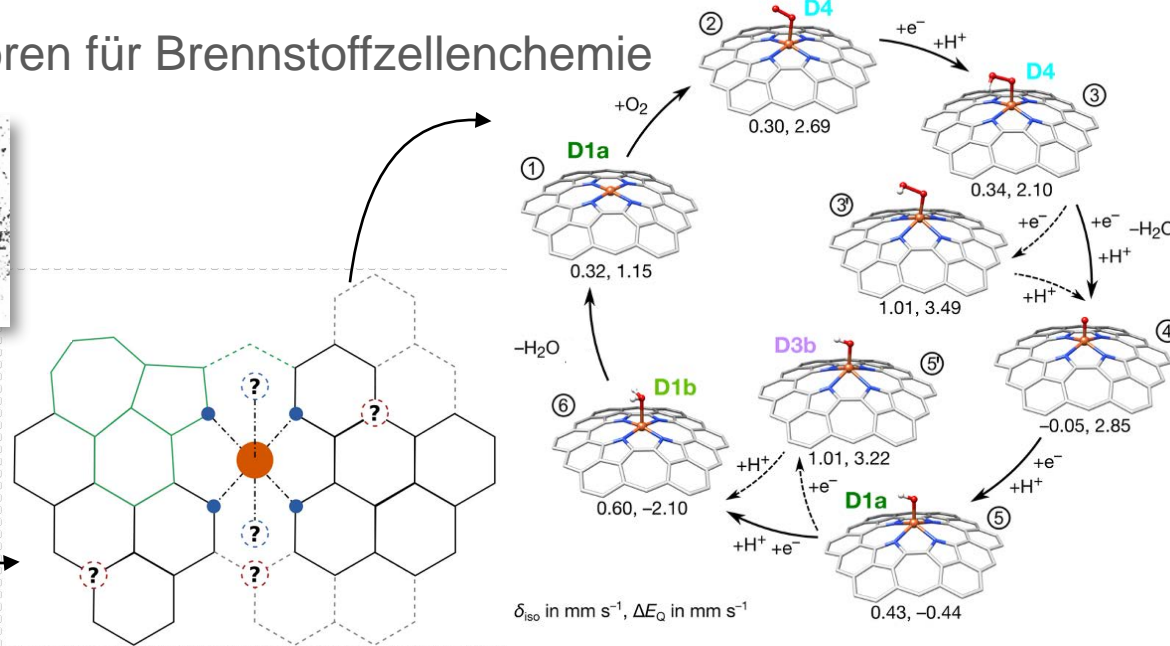


C. Gallenkamp, L. Ni, U. I. Kramm

## FeNC-Katalysatoren für Brennstoffzellenchemie



Prof. U. I. Kramm, TUDa



## Gefördert durch

**NHR4  
CES** NHR for  
Computational  
Engineering  
Science



Gefördert durch  
**DFG** Deutsche  
Forschungsgemeinschaft



**MERCK'SCHE  
GESELLSCHAFT  
FÜR KUNST  
& WISSEN  
SCHAFT E.V.**

Projektnummer 443703006