

00299
VD 1966057

KATALYSE,
SAMENSPEL OP DE WEG VAN
DE MINSTE WEERSTAND

REDE

UITGESPROKEN BIJ DE AANVAARDING VAN
HET AMBT VAN BUITENGEWOON HOOGLERAAR
IN DE KATALYSE EN REACTIEKINETIEK
AAN DE KATHOLIEKE UNIVERSITEIT TE NIJMEGEN

OP 11 NOVEMBER 1966

DOOR

Dr. Ir. J. W. E. COENEN

*Mijne Heren Curatoren,
Mijnheer de Rector Magnificus,
Dames en Heren Hoogleraren, Lectoren, Docenten en Leden van de wetenschappe-
lijke staf,
Dames en Heren Studenten en voorts gij allen, die door uw aanwezigheid van uw
belangstelling blijkt geeft,*

Geachte toehoorders,

Het is vandaag een bijzondere dag. Op de elfde van de elfde van negen-
tienhonderd zes-maal-elf bereiden vele romantische Limburgers zich weer
voor op een jaarlijks terugkerend geëxalteerd leven, waarin een geacti-
veerde toestand bereikt wordt, waarin barrières geslecht zijn en reactie-
snelheden vergroot: zij bereiden zich voor op de vastenavond.

REINDERS noemde in 1939 de katalyse een reservaat voor romantische
chemici en niet ten onrechte. Het katalyse-onderzoek immers is een hun-
kerend streven, een zoeken naar de weg van de minste weerstand. Het
zoeken van de middeleeuwse alchimisten naar de Steen der Wijzen, die
goud moest vormen uit onedele grondstoffen, is in zekere zin het prille
begin van het katalyse-onderzoek. Ook bij katalyse immers treedt zulk
een magisch hulpmiddel op, dat de weg effent voor reacties met begeerde
produkten, die anders niet of nauwelijks verlopen. Het zoeken naar deze
stof, de katalysator, heeft zeker romantische karaktertrekken.

BERZELIUS gaf in 1835 de naam katalyse aan een groep chemische ver-
schijnselen met gemeenschappelijke kenmerken. Hij kon teruggrijpen op
vele experimentele observaties uit de voorafgaande vijftig jaar.

PRIESTLEY ontdekte in 1783 de dehydratatie van ethylalcohol bij leiden
van de damp door een verhitte, porseleinen buis, door de Hollandse
Scheikundigen in 1795 vollediger bestudeerd. Zij toonden de essentiële
functie van de buiswand aan en identificeerden ook het produkt etheen.
Door CLEMENT en DESORMES was in 1793 de zuurstofoverdragende functie
beschreven van stikstofoxiden bij de rond 1750 ontdekte bereiding van
zwavelzuur. In 1796 vond VAN MARUM de dehydrogenering van ethyl-
alcohol over metalen. In 1820 vond DAVY dat ethylalcohol damp met
lucht over fijn verdeeld platina reeds bij betrekkelijk lage temperatuur
volledig oxideerde. DÖBEREINER vond in het volgende jaar de partiële

oxidatie van dezelfde alcohol tot azijnzuur, eveneens met platina als katalysator. Enkele katalytische ontledingsreacties, zoals die van ammoniak en waterstofperoxide, waren ontdekt door THENARD. BERZELIUS had dus stof genoeg.

Het geven van een naam aan een groep impliceert een verbindend principe, een definitie. BERZELIUS' definitie was echter nog sterk fenomenologisch en beperkte zich tot het teweegbrengen van chemische reacties, door stoffen die niet aan de reactie deelnemen, enkel door hun aanwezigheid. Het waarom deed hij af met een bijna mystieke katalytische kracht. De beschouwingen van CLEMENT en DESORMES werden niet genoemd: deze reactie was te doorzichtig voor het katalysebegrip van BERZELIUS. Toch waren er reeds belangrijke dingen over deze verschijnselen gezegd. De SAUSSURE zocht reeds in 1814 de oorzaak in een verdichting der gassen aan het oppervlak, een verschijnsel dat wij thans adsorptie noemen. Terwijl sommigen sterk de nadruk legden op het onveranderd blijven van de katalysator, wezen anderen erop dat er zich wel degelijk een zekere verandering kan voltrekken. Zo wees PLEISCHL in 1823 op een structuurverandering van de platinakatalysator bij langdurig gebruik. WÖHLER vond in 1825 bij de katalytische oxidatie van ethanol over palladium: afzetting van kool, die bij volledige oxidatie zeer fijn verdeeld palladium achterlaat.

Door DULONG en THENARD, evenals door SCHWEGGER werd in 1825 een groot oppervlak van de contactstof belangrijk genoemd. SCHWEGGER nam een interactie van de reactanten met de katalysator aan, tussen chemisch en fysisch in liggend. Hij noemde ook het werk van CLEMENT en DESORMES. Door BELLANI werd in 1824 ook weer het belang van adsorptie voor katalyse onderstreept. Hij wees zelfs op het exotherme karakter van adsorptie. Ook LIEBIG bracht in 1829 een adsorptietheorie.

In het licht van al die waarnemingen lijkt de visie van BERZELIUS teleurstellend. Wij moeten ons echter realiseren dat nagenoeg alle observaties kwalitatief waren en de gehele kennis van het verloop van chemische reacties uiterst vaag.

Meer inzicht in het wezen der katalyse kon eerst ontstaan op basis van kennis van de kinetiek van chemische reacties. De grondslag hiervan ontstond in de tweede helft van de negentiende eeuw in een nauw samenspel met de opbouw van de thermodynamica, die inzicht geeft in chemische evenwichten.

De systematische studie der reactiekinetiek begon in 1850, toen WILHELMY metingen verrichtte aan de door zuur gekatalyseerde inversie van riet-suiker. De snelheid bleek evenredig met suiker- en zuurconcentratie. In de volgende decennia werden vele metingen van reactiesnelheden gepubliceerd.

In 1850 formuleerde WILLIAMSON de gedachte dat evenwicht dynamisch is, dat wil zeggen dat stilstand van een reactie bij evenwicht het resultaat is van gelijke heen- en teruggaande snelheden. Voortbouwend op het idee, door BERTHOLLET rond 1800 gepubliceerd, dat reactiesnelheden afhangen van de massa's der reagerende stoffen, formuleerden GULDBERG en WAAGE in 1867 de beroemde massawerkingswet: De snelheid is evenredig met de concentraties der reactanten tot een zekere macht. Aanvankelijk werd deze macht als empirische parameter geïntroduceerd, later werd geconcludeerd dat de exponent van de concentratie gelijk moest zijn aan de betrokken coëfficiënt uit de stoichiometrische reactievergelijking. Deze redenering voerde logisch tot het concept van de evenwichtsconstante. Zij observeerden ook reeds dat deze constante afhankelijk van de temperatuur is.

Inmiddels werd door MAXWELL en BOLTZMANN de kinetische gastheorie ontwikkeld op door CLAUSIUS gelegde grondslagen. Het lag toen voor de hand de uit deze theorie afgeleide frequentie van intermoleculaire botsingen in verband te brengen met de reactiesnelheid. Dit leverde helaas een totaal verkeerde grootte-orde.

De ontwikkeling van de reactiekinetiek verliep in deze tijd in nauw samenspel met de opbouw van de thermodynamica. Door VAN 'T HOFF en ARRHENIUS werd de volgende stap gezet. In 1885 gaf VAN 'T HOFF een betrekking voor de afhankelijkheid van de temperatuur van de evenwichtsconstante en legde verband met een analoge temperatuurafhankelijkheid van de reactiesnelheidsconstante. ARRHENIUS goot in 1889 deze temperatuurafhankelijkheid in de bekende vorm – produkt van een frequentiefactor en een van de temperatuur afhankelijke exponentiële factor – met introductie van het concept der activeringsenergie.

ARRHENIUS voerde de belangrijke hypothese in dat voor reactie tussen moleculen niet slechts botsing noodzakelijk was, doch dat de botsende moleculen voor reactie een weerstand te overwinnen hadden, reden waarom ze in een geactiveerde toestand moesten zijn, gekenmerkt door een grotere energie-inhoud en dat verder deze actieve moleculen een kleine fractie van alle moleculen vormen en ermee in evenwicht zijn.

In 1918 verifieerde MACLEWIS voor enkele bimoleculaire reacties van eenvoudige moleculen dat de uit de kinetische gastheorie te berekenen intermoleculaire botsfrequentie overeenstemt met de frequentiefactor uit de relatie van ARRHENIUS. Voor reacties van gecompliceerde moleculen was de overeenkomst echter ver te zoeken. Toch was het resultaat belangrijk: de grondslag voor a priori snelheidsberekening was gelegd, zij het met een empirische activeringsenergie.

Het is duidelijk dat het begrip activeringsenergie een centrale plaats inneemt. In de termen van een recenter ontwikkelde snelheidstheorie

wordt de activering een beter te visualiseren begrip. Deze theorie, waarvoor de grondslag door EVANS en POLANYI en door EYRING rond 1935 gelegd werd, wordt de theorie van de overgangstoestand genoemd. In principe kan de potentiële energie van een meeratomig systeem op basis van de golfmechanica berekend worden als functie van de interatomaire afstanden, ofschoon in de praktijk zeer aanzienlijke benaderingen noodzakelijk blijken. De grafische weergave in een meerdimensionele ruimte wordt het potentiaalvlak van het systeem genoemd. Dit blijkt een berglandschap: de dalen, energieminima, geven stabiele configuraties aan. Is er meer dan een dal, dan kan het systeem een chemische reactie ondergaan, een overgang namelijk van het ene dal naar het andere. Uit onze vakantie weten wij dat deze weg over een of zelfs over meer dan een bergpas voert. De natuur gaat ons voor in het volgen van de weg van de minste weerstand: de reactieweg voert over de bergpas van het potentiaalvlak. De toestand op de top van de pas wordt overgangstoestand of geactiveerd complex genoemd. In deze toestand bestaat reeds een begin van nieuwe bindingen, die het produkt karakteriseren, terwijl te verbreken bindingen uitgerekt worden. De hoogte van de pas boven het dal van uitgang is de activeringsenergie, een uitermate belangrijke factor voor de reactiesnelheid, de frequentie waarmee de bergpas gepasseerd wordt. Het is echter niet de enige factor: wij moeten de pre-exponentiële factor nog verklaren. De Alpen worden thans veel frequenter overschreden dan vijftig jaar geleden. Als ik hier met SCHUUR mag spreken: dit wordt niet veroorzaakt doordat de Alpen verzakt zijn. Het is ook niet in eerste instantie een concentratie-effect, ofschoon de bevolkingsdichtheid wel is toegenomen. Niet slechts de moeilijkheid van de weg, maar ook de waarschijnlijkheid van op reis gaan is belangrijk en deze wordt door velerlei factoren bepaald. De theorie van de overgangstoestand benadert het probleem door evenwicht tussen geactiveerd complex en uitgangstoestand aan te nemen. De evenwichtsconstante, die de concentratie van het complex vastlegt, wordt niet slechts door het energieverval, doch evenzeer door het entropieverval bepaald. De reactiesnelheid blijkt het produkt van een universele frequentie en deze evenwichtsconstante. Deze kan op grond van de statistische mechanica berekend worden. Tot op zekere hoogte kunnen wij zeggen dat de daartoe benodigde informatie besloten ligt in de vorm van het potentiaalvlak.

Keren wij nu terug naar de massawerkingswet van GULDBERG en WAAGE en bezien wij het kinetische gedrag van chemische reacties, dan blijkt dat slechts weinig reacties zich volgens de massawerkingswet gedragen. Bij vele reacties vindt men in plaats van de verwachte integrale exponenten der concentraties – gelijk aan de coëfficiënten van de stoichiometrische vergelijking – allerlei schijnbaar willekeurige, gebroken, soms negatieve

exponenten, ja zelfs heeft de gedaante van de vergelijking die de concentratie-afhankelijkheid geeft, soms weinig gemeen met de vergelijking van GULDBERG en WAAGE. Ook blijkt dat over een groter temperatuurgebied vele reacties niet het volgens ARRHENIUS te verwachten karakter van afhankelijkheid van de temperatuur vertonen.

Een verklaring voor dit wanordelijke gedrag werd door VAN 'T HOFF duidelijk uitgesproken, ofschoon het principe feitelijk al in de publikaties van GULDBERG en WAAGE ligt. De reactie verloopt in deze gevallen in een reeks van deelstappen. Voor deze enkelvoudige deelstappen geldt de massawerkingswet met integrale exponenten. De kinetiek van de complete reactie is een dikwijls gecompliceerde functie van de kinetiek der afzonderlijke stappen.

Vooraf voor reacties tussen drie of meer moleculen ligt een complex reactiemechanisme eigenlijk voor de hand. Het hedendaagse wegverkeer illustreert dit. Bij een botsing waarbij drie of meer voertuigen betrokken zijn, treffen al deze vehikels elkaar niet gelijktijdig. Zeer toepasselijk wordt de term kettingbotsing gebruikt. De derde wagen stuit op het reactieproduct van de twee oorspronkelijke ongevalspartners en zo vervolgens. Zo heeft ook simultane botsing van drie of meer moleculen een zeer geringe waarschijnlijkheid.

De exacte kinetische beschrijving van complexe reacties is dikwijls moeilijk. In de loop der jaren zijn vele benaderingswijzen ontwikkeld om tot hanteerbare vergelijkingen te geraken, alle gebaseerd op het feit dat de deelreacties dikwijls sterk uiteenlopende snelheidsconstanten bezitten. Bijzonder vruchtbaar bleek het concept van de *snelheidsbepalende stap*, de langzaamste reactie uit de reactieketen, die domineert in het totale kinetische beeld. Het lokaliseren van deze stap is steeds een belangrijke schrede in de opheldering van een complex mechanisme.

Het wordt tijd nu terug te keren tot de katalyse. De ontwikkelingen in het reactiekinetische inzicht leidden rond 1900 ook tot een andere visie op katalytische verschijnselen. Allereerst manifesteert zich dit in de definitie. Formuleringen van NERNST, VAN 'T HOFF en OSTWALD leggen de nadruk op de *versnellende* werking van de katalysator op reacties die ook zonder katalysator zouden kunnen plaatsvinden. Wezenlijk is hierin dat de thermodynamische mogelijkheid voor het verlopen van de reactie – daling van de vrije enthalpie – door de katalysator niet gewijzigd wordt, doch dat slechts de weg geëffend wordt. Kinetische gegevens van reacties die met en zonder katalysator kunnen verlopen, laten zien dat de activeringsenergie van de gekatalyseerde reactie belangrijk lager is.

Het inzicht in complexe reacties veranderde ook de visie op de rol van de katalysator. In het voetspoor van CLEMENT en DESORMES, SCHÖNBEIN, DEACON en BERTHELOT werd nu algemener het idee geaccepteerd dat

katalytische reacties complexe reacties zijn, waarin de katalysator een der reactanten is. In de woorden van BERTHELOT: „Er vormen zich door de chemische werking van het contactlichaam intermediaire verbindingen, die op hun beurt in de mate waarin ze gevormd worden ook weer ontleden en die in de eindmetamorfose geheel verdwijnen.” Deze visie vond geleidelijk ingang. Voor bepaalde homogeen gekatalyseerde reacties, waar het betrekkelijk gemakkelijk was een mechanisme in termen van eenvoudige deelreacties met participatie van de katalysator op te schrijven en waar soms het bestaan van tussenprodukten experimenteel kon worden aangetoond, vond het idee van de chemische participatie van de katalysator gemakkelijk ingang. Voor de heterogene katalyse was dit een veel trager proces.

Ik noemde reeds dat vroeg in de negentiende eeuw, onder anderen door DE SAUSSURE, BELLANI en FARADAY, geconstateerd werd dat gassen door schone, vaste oppervlakken gebonden, verdicht kunnen worden. Deze verdichting – concentratieverhoging – vormde zelfs een der vroege verklaringen van de katalyse. Vermoedelijk was LANGMUIR een der eersten die twee verschillende types adsorptie aan vaste oppervlakken onderscheidde, te weten fysische adsorptie door VAN DER WAALS attractie en chemisorptie, door chemische binding der moleculen aan het oppervlak. Dat inderdaad chemisorptie een chemische reactie is, blijkt onder andere uit het specifieke karakter: niet bij alle combinaties vaste stof/gas treedt chemisorptie op. Er is ook een stoichiometrisch karakter: een duidelijke relatie tussen het aantal atomen in het oppervlak en het aantal te chemisorberen moleculen. De sterkte der chemisorptieve bindingen manifesteert zich in de adsorptiewarmte, die vaak nauw gecorreleerd is met de vormingswarmte van overeenkomstige verbindingen tussen het element waaruit het adsorbens bestaat en het betrokken gas. Dit laatste is door HAYWARD en TRAPNELL en door SCHUIT, VAN REIJEN en SACHTLER duidelijk aangetoond.

Chemosorptie en desorptie zijn dus chemische deelstappen van een complex reactiemechanisme bij heterogene katalyse. Hoe past dit inzicht nu in onze reactiekinetische beschouwingen? Onder de factoren die de snelheid van een chemische reactie bepalen, hebben wij de activeringsenergie als de belangrijkste leren kennen. Wij zagen ook dat deze door katalysatoren belangrijk verlaagd wordt. Verzakken de Alpen dan toch? Dit is geenszins het geval. Door toevoegen van de katalysator als nieuwe reactant betreden wij een nieuwe wereld. De configuratieruimte krijgt een of meer extra dimensies. In deze nieuwe meerdimensionale ruimte zijn ook nieuwe dalen en bergruggen; slechts begin- en eindtoestand hebben nog hetzelfde niveauverschil. Indien wij een goede katalysator gekozen hebben, is er over het nieuwe potentiaalvlak een weg te vinden met

lagere passen en niet te diepe dalen, de weg van de minste weerstand. Het is duidelijk dat de intermediaire verbindingen die met de katalysator gevormd worden, niet te stabiel moeten zijn: dan raakt de reactie in de put, namelijk een diepe put in het potentiaalvlak. De betrokken intermediaire verbinding vertoont dan neiging eindprodukt te zijn; de gewenste reactie loopt dood, doordat de volgende stap – in dit geval de snelheidsbepalende – te langzaam verloopt. BALANDIN heeft in 1954 dit gezichtspunt omschreven in een generalisatie die verband legt tussen de katalytische activiteit en de bindingssterkte in de met het oppervlak gevormde intermediaire verbindingen. Op basis van deze theorie worden „vulkaanvormige” curven verwacht: de hoogste activiteit ligt bij een middelmatige bindingssterkte. Dergelijk gedrag van reeksen katalysatoren is inderdaad voor verscheidene reacties waargenomen. Ik noem bijvoorbeeld het onderzoek van FAHRENFORT, VAN REIJEN en SACHTLER over de ontleding van mierzuur aan metalen. De stabiliteit van een intermediair gevormd oppervlakformiaat bleek hier bepalend voor de katalytische activiteit. De activiteit als functie van de vormingswarmte van het formiaat – die verwacht mag worden te correleren met die van het oppervlakformiaat – leverde een „vulkaancurve” op.

Reeds in 1921 zijn door LANGMUIR, in aansluiting op zijn bevindingen betreffende chemisorptie, voor bimoleculaire heterogeen-katalytische reacties twee principemechanismen geformuleerd. In het ene, uitgewerkt door HINSHELWOOD, wordt naast elkaar chemisorptie van beide reactanten als eerste stap aangemerkt. De tweede stap bestaat in reactie tussen de gechemosorbeerde reactanten. Het tweede mechanisme, uitgewerkt door RIDEAL en meestal naar hem genoemd, veronderstelt als tweede stap reactie van een gechemosorbeerde reactant met de andere reactant uit de gasfase of uit fysisch geadsorbeerde toestand. In beide mechanismen wordt aangenomen dat de adsorptieprocessen evenwicht bereiken en de oppervlakreactie de snelheidsbepalende stap is. Vooral het LANGMUIR-HINSHELWOOD-mechanisme is veelvuldig gehanteerd in kinetische studies van katalytische reacties, en dikwijls werd een bevredigende beschrijving van het snelheidsgedrag verkregen. Overigens zij eraan herinnerd dat dit geen bewijs voor de juistheid van een gepostuleerd mechanisme is.

Het LANGMUIR-HINSHELWOOD-mechanisme bevat in zijn eenvoudigste vorm vele vereenvoudigende onderstellingen, die dikwijls sterk van de werkelijkheid afwijken. Vrij algemeen wordt echter aangenomen dat voor het merendeel der bimoleculaire reacties de basispremissie – beide reactanten gechemosorbeerd – geldig is.

Bij heterogeen-katalytische reacties is het vaststellen van het reactiemechanisme een omvangrijke opgave. Zoals wij zullen zien is het aantal mogelijkheden veel groter dan bij homogene reacties, terwijl de analyse,

namelijk de identificatie van species en de bepaling van concentraties, veel moeilijker is.

Zien wij de katalysator als reactant in het complexe mechanisme, dan geeft de grootte van het oppervlak essentiële informatie over de effectieve concentratie van deze reactant. Vanaf ongeveer 1920 zijn vele oppervlakbepalingsmethoden ontwikkeld. Door J. H. DE BOER is hieraan reeds omstreeks 1929 vruchtbaar werk gedaan. Kort voor de Tweede Wereldoorlog waren universele en betrouwbare methoden ter beschikking, vooral door het werk van EMMETT en BRUNAUER. De problemen van de katalyseonderzoeker leken nu dicht bij hun oplossing. Deze methodieken hebben ook een zeer wezenlijke bijdrage geleverd en zijn nog steeds essentieel voor onderzoek op dit gebied.

Al spoedig bleek echter, juist dank zij deze methode, hoe gecompliceerd de situatie in feite is. Dikwijls bleek de katalytische activiteit niet lineair samen te hangen met de grootte van het oppervlak. Ook bleek soms bij vergiftiging van het katalysatoroppervlak de activiteit tot nagenoeg nul te dalen met een hoeveelheid giftstof die slechts een kleine fractie van het oppervlak kon bezetten. Deze en andere observaties voerden tot twee belangrijke concepten, die gemeenschappelijk hebben het besef dat niet alle plaatsen van het oppervlak voor de katalytische reactie even belangrijk zijn.

Het ene concept wordt duidelijk als wij ons de opbouw van een katalysator voorstellen. De grootte van het oppervlak is dikwijls van de orde van $500 \text{ m}^2/\text{gram}$. Wil een poeder dit oppervlak bezitten, dan moet de deeltjesgrootte van de orde van een miljoenste millimeter zijn. In de praktijk ligt de grootte van de deeltjes echter tussen een duizendste millimeter en enkele millimeters. De deeltjes moeten dus poreus zijn. Alle actieve katalysatoren blijken poreuze bouwsels met een ingewikkeld systeem van spleet- of buisvormige poriën. Dientengevolge moeten wij niet slechts de echte chemische deelstappen – adsorptie, reactie, desorptie – in onze beschouwingen betrekken, maar ook het transport van de reagerende moleculen naar en van de katalysator. De snelheidsbepalende stap kan liggen in de genoemde transportprocessen, indien het oppervlak verborgen ligt in zo nauwe poriën dat de reagerende moleculen er slechts met moeite kunnen komen. Het wordt nu begrijpelijk waarom grootte van oppervlak en activiteit zo zelden evenredig zijn en ook waarom een kleine hoeveelheid gif een onevenredig grote reductie in activiteit teweeg kan brengen: het best toegankelijke en daardoor voor de reactie nuttigste deel van het oppervlak loopt ook de beste kans vergiftigd te worden.

Dit concept – het belang van transportprocessen – is van zeer grote betekenis voor de technische katalyse. Methoden voor meting van vorm en afmetingen der poriën – onder andere door middel van meting van

fysische adsorptie en capillaire condensatie en elektronenmicroscopisch – zijn ontwikkeld. In ons land hebben DE BOER en zijn school op dit gebied belangrijke bijdragen geleverd. In aansluiting op baanbrekend werk van THIELE en WHEELER is geleidelijk een speciale tak der wetenschappen ontstaan, de macrokinetiek, de synthese tussen de zuivere reactiekinetiek en de kinetiek van de transportprocessen.

Ik noemde een tweede concept ter verklaring van de gebrekkige correlatie tussen grootte van oppervlak en activiteit van de katalysator. Dit concept is eigenlijk van fundamentele betekenis dan het eerste. Door HUGH TAYLOR werd in 1925 geponeerd dat een katalytisch oppervlak heterogeen is, dat wil zeggen dat het een verzameling is van meer en minder actieve plaatsen. Een belangrijk argument voor deze stelling is het feit dat de adsorptiewarmte in de regel sterk afvalt met toenemende bezettingsgraad van het oppervlak. Hiervoor zijn drie groepen van mogelijke oorzaken te noemen:

1. afstotende interactie tussen geadsorbeerde moleculen. J. H. DE BOER heeft uitvoerige beschouwingen gewijd aan deze interactie;
2. verandering van het adsorbens ten gevolge van de adsorptie die reeds heeft plaatsgevonden. Deze blijkt bijvoorbeeld uit de verandering van de elektrische geleidbaarheid en de magnetische eigenschappen van metalen ten gevolge van chemisorptie;
3. a priori heterogeniteit van het oppervlak. Ongetwijfeld zijn alle drie oorzaken reëel, doch hun relatieve belang verschilt van geval tot geval.

Het sterkste bewijs van het bestaan van a priori heterogeniteit werd in 1948 door de Russische onderzoekers ROGINSKY en KEYER door middel van gemerkte moleculen geleverd. Zij adsorbeerden op een oppervlak eerst waterstof tot gedeeltelijke bezetting, daarna deuterium op de rest. Bij desorptie bleek wat het laatst geadsorbeerd was het eerst te desorberen. Voor het bestaan van a priori heterogeniteit van katalytische oppervlakken kunnen nog vele andere argumenten worden aangevoerd. Er is ook eigenlijk weinig reden om eraan te twijfelen. Onze kennis immers van kristallijne stoffen geeft ons reeds voldoende redenen om werkelijk homogene oppervlakken als hoogst onwaarschijnlijk aan te merken. Bij een polykristallijne stof zal zelfs als wij ideale eenkristallen aannemen, het oppervlak zijn opgebouwd uit een aantal verschillende kristallografische vlakken. Verder zijn de intersectielijnen en -punten van kristallografische vlakken bijzondere plaatsen op het oppervlak. Tot zover ideale kristallen. Maar kristallen zijn nooit ideaal. Mijn leermeester BURGERS heeft enkele jaren geleden in een overzichtsvoordracht in Arnhem laten zien dat een groot deel der macroscopische eigenschappen van vaste stoffen slechts

begrijpelijk is door het bestaan van imperfecties. En deze imperfecties zijn ook aan het oppervlak bemerkbaar. Groeistappen, kristallietgrenzen, vacatures en dislocaties zullen het oppervlak verder heterogeen maken. De thermodynamica leert dat de natuur steeds een compromis moet sluiten tussen orde en wanorde, waardoor reeds bij evenwicht een zekere wanorde moet bestaan. Maar onze katalysatoren zijn in de regel geen evenwichtssystemen. Katalysatorbereidingsmethoden zijn erop gericht wanordelijke structuren te maken.

De kinetische behandeling van heterogeen-katalytische processen behoefde op grond van deze bevindingen dringend aanpassing. Impliciet in de benadering van LANGMUIR-HINSHELWOOD is de onderstelling van een van bezettingsgraad onafhankelijke bindingssterkte. Door TEMKIN en PYZHEV werd in 1940 een kinetische behandeling gegeven van ontleding en synthese van ammoniak waarin desorptie, respectievelijk adsorptie van stikstof als snelheidsbepalende stap werd aangenomen, terwijl niet de LANGMUIR-, doch de FRUMKIN-isothermvergelijking werd toegepast. In deze laatste vergelijking is het effect van oppervlakteheterogeniteit en onderlinge wisselwerking ingebouwd door empirische parameters. De onderstelling dat adsorptie van stikstof de snelheidsbepalende stap zou zijn, was door EMMETT aannemelijk gemaakt door vergelijkende snelheidsmetingen. De behandeling van TEMKIN en PYZHEV bleek een goede kinetische beschrijving te leveren. Het mechanisme van de ammoniaksynthese en ontleding werd in recenter jaren door een groep Japanse onderzoekers alsmede door ZWIETERING, SCHOLTEN en MARS van de Staatsmijnen in Limburg nader bestudeerd. Laatstgenoemden hebben een bijzonder fraai sluitend beeld opgebouwd, dicht aansluitend aan de benadering van TEMKIN, waarbij zorgvuldige metingen van reactie- en adsorptiekinetiek werden aangevuld met adsorptiemeting gedurende de reactie en met metingen van isotoopuitwisselingen. Het onderzoek illustreert dat alleen door zorgvuldig in elkaar passen van gegevens van verschillende technieken een betrouwbaar beeld van heterogeen-katalytische reacties kan worden opgebouwd.

Steeds nieuwe technieken van onderzoek komen ter beschikking. Terwijl in onze keukens machines taken overnemen waarin voorheen de huisvrouw energie dissipeerde, worden de katalyselaboratoria bevolkt met machines die informatie leveren betreffende de energieën en configuraties van de reagerende systemen. Zoals dit vaak gebeurt, werpen deze technieken, in eerste instantie gedacht voor beantwoording van vragen, dikwijls een groter aantal nieuwe vragen op.

Door de Russische onderzoekers YAROSLAVSKII en TARENIN werden in 1949 voor het eerst infraroodabsorptiespectra van aan vaste stoffen geadsorbeerde gassen waargenomen. Vooral door de Amerikaan EISCHENS is

de bruikbaarheid van de techniek zeer verbeterd. Deze techniek laat duidelijk zien dat bij adsorptie van een bepaald gas bijvoorbeeld aan een metaaloppervlak een aantal verschillende geadsorbeerde toestanden kunnen optreden. Een zelfde conclusie werd met een hele reeks andere methoden bereikt. Zo concludeerde EHRLICH uit het desorptiegedrag tot het bestaan van in sommige gevallen zelfs vier verschillende geadsorbeerde toestanden van een bepaald geadsorbeerd gas. Ook uit de verandering van elektrische weerstand en elektronenuittreearbeid als gevolg van chemisorptie worden indicaties verkregen over de wijze van binding. De oppervlakatomen blijken ten dele hun metaalkarakter te verliezen. Ook hier blijkt dat een bepaalde reactant op een bepaald katalytisch oppervlak in een aantal toestanden kan voorkomen.

Een zeer belangrijke groep van onderzoeksmethoden maakt gebruik van met isotopen gemerkte moleculen. Zo bijvoorbeeld geeft het onderzoek van waterstof-deuteriumuitwisseling met massaspectrometrische produktanalyse informatie over de bij hydrogenering en isomerisatie van koolwaterstoffen optredende intermediären. Kinetische isotooeffecten kunnen aanwijzingen geven welke reactie in een complex mechanisme snelheidsbepalend is. Labeling met C^{13} of C^{14} kan informatie geven omtrent de aard van intermediären. Deze tracermethoden leveren dikwijls een zeer vruchtbare aanvulling bij gegevens, verkregen uit infraroodonderzoek. Bij de laatstgenoemde methode worden in de regel namelijk slechts intermediären onderkend die in een vrij belangrijke concentratie op het oppervlak aanwezig zijn. De oppervlakteconcentratie van een belangrijk reactief intermediair kan echter zeer laag zijn.

De wijze van binding met het oppervlak hangt onder andere samen met de geometrische structuur van het oppervlak ter plaatse waar de adsorptie plaatsvindt. Deze geometrische factor in de katalyse is onder anderen door BALANDIN reeds rond 1929 naar voren gebracht. In oorspronkelijke opzet werd sterk de nadruk gelegd op de overeenkomst in roosterafstanden in het katalysatoroppervlak met vitale afstanden in het reactantmolecuul.

Op deze basis werden soms correlaties tussen katalysatorstructuur en katalytische activiteit gevonden, ofschoon er dikwijls veel belangrijke uitzonderingen waren. De neiging tot vorming van chemisorptiebindingen wordt primair door chemische factoren, namelijk door elektronenstructuur van de katalysator, bepaald. Uiteraard bestaat tussen het geometrische en elektronische aspect een nauwe wisselwerking. Recent werd door VAN HARDEVELD van het laboratorium van Staatsmijnen een interessante illustratie gegeven van een geometrisch effect bij chemisorptie. Hij maakt aannemelijk dat de door EISCHENS het eerst waargenomen chemisorptie van stikstof op nikkel in infraroodactieve vorm alleen plaatsvindt op

bepaalde kristallografische sites met vijf naastebuurnikkelatomen, aanwezig op (110) en (113) vlakken. De stikstofchemisorptie op andere plaatsen is niet infraroodactief. Er wordt zodoende een verband gelegd tussen kristallografische oppervlakteheterogeniteit en het voorkomen van verschillende chemisorptiespecies.

Verscheidene moderne technieken geven de mogelijkheid van waarneming van de oppervlaktestructuur op werkelijk atomaire schaal. De meest spectaculaire van deze technieken is de door MÜLLER in 1937 bedachte veldemissie-elektronenmicroscopie en de toepassing van dit instrument voor veldionenmicroscopie, door dezelfde onderzoeker in 1951 ontwikkeld. Met behulp van laatstgenoemde techniek kan men van het oppervlak van een eenkristalletje van een hoogsmeltend metaal een afbeelding verkrijgen waarop ieder metaalion zichtbaar is. De verschillende kristalvlakken, alsook dislocaties en vacatures, worden direct waarneembaar. Dezelfde techniek maakt het mogelijk een metaaloppervlak volledig te zuiveren van geadsorbeerde verontreinigingen en zelfs van een gestoorde oppervlaktemetaallaag. Het lijkt dus een ideale techniek om er chemisorptie mee te observeren. Dit blijkt echter niet mogelijk, omdat in het proces van de beeldvorming – door geïoniseerde heliumatomen – de geadsorbeerde stoffen verwijderd worden. Toch levert de techniek een belangrijk gegeven op: het metaaloppervlak zelf blijkt in bepaalde gevallen veranderd door de chemisorptie die erop heeft plaatsgevonden.

Zelfs op een hoogsmeltend metaal als wolfraam vinden atoomverplaatsingen plaats bij kamertemperatuuradsorptie van CO of N₂. Wij zien hieruit dat het denken in termen van een bepaald aantal vaste sites voor chemisorptie wel eens ver bezijden de waarheid kan zijn. Uit de veld-elektronenemissie kan in hetzelfde instrument de elektronenuittreearbeid van verschillende kristallografische vlakken gemeten worden voor en na chemisorptie. Uit de hierbij verkregen resultaten kan geconcludeerd worden dat de verschillende geadsorbeerde toestanden van een gas op een bepaald metaal althans ten dele zijn terug te voeren tot de specificiteit der kristalvlakken. De verschillende omringing op de verschillende vlakken voert ook tot verschillende bindingssterkte.

Een andere nieuwe techniek is de diffractie van langzame elektronen. Het principe is ontdekt door GERMER en DAVISSON in 1927, hetzelfde jaar waarin THOMSON de meer bekende elektronendiffractie van snelle elektronen ontdekte. Door een aantal technische verbeteringen, waardoor instantane waarneming der diffractie-effecten mogelijk is, terwijl toepassing van ultrahoogvacuum het werken met schone oppervlakken mogelijk maakt, is de techniek recent tot een waardevol instrument uitgegroeid. Door de geringe indringdiepte der langzame elektronen kan

juist de oppervlaktelaag, die ons in verband met de adsorptie en katalyse in hoge mate interesseert, geobserveerd worden. Ik noem enkele observaties van MACRAE aan nikkel-eenkristallen. Wordt een (110)-vlak van een nikkel-eenkristal geobserveerd, dan blijkt uit het diffractiepatroon dat de tweedimensionale structuur van de oppervlaktelaag volkomen identiek is aan die van overeenkomstige dieper gelegen kristalvlakken. Slechts blijkt de afstand tot het naastvolgende netvlak in het rooster circa 5% groter dan de normale netvlakkenafstand, terwijl ook de amplitude van de warmtebeweging der oppervlakatomen groter is dan die der dieper gelegen atomen. Uit de relatie tussen intensiteiten en golflengte kon verder tot het bestaan van één of twee atoomlagen dikke groeistappen op het oppervlak besloten worden. Deze observaties bevestigen de verwachtingen. Op dit oppervlak werd nu zeer geleidelijk zuurstof geadsorbeerd. Korte tijd vervaagde het diffractiepatroon: wanorde trad in de plaats van orde, doch daarna ontstond een nieuw scherp diffractiepatroon. Een nieuwe geordende oppervlaktestructuur was ontstaan door verplaatsing van vele nikkelatomen. En dit alles bij kamertemperatuur. Dit werd niet slechts bij zuurstofadsorptie, een zeer exotherm proces, doch ook bij waterstofadsorptie op nikkel waargenomen. Bij verder voortgezette adsorptie traden bij bepaalde bezettingsgraden weer nieuwe structuren op van perfecte tweedimensionale orde. Ook hier zien wij dus weer de mogelijkheid van verschillende gechemosorbeerde toestanden op een bepaald kristalvlak.

Dat chemisorptie en katalyse blijvend veranderingen in de structuur van heterogene katalysatoren teweeg kunnen brengen, is op zichzelf niet nieuw. Ik noemde reeds de observatie van PLEISCHL uit 1823, dat bij knalgaskatalyse aan platina het metaal vezelig wordt. Het Pt-Rh-gaas bij de katalytische oxidatie van NH_3 rekristalliseert sterk. Door GWATHMEY en CUNNINGHAM wordt bij het verlopen van katalytische reacties aan koper-eenkristallen groei van bepaalde kristalvlakken waargenomen. Deze macroscopische observaties zijn echter slechts na lange tijd en meestal met bij hoge temperatuur verlopende reacties mogelijk. Door deze nieuwe, uiterst gevoelige techniek blijkt nu dat bij lage temperatuur bij zeer normale deelreacties van katalytische processen drastische veranderingen van de oppervlaktestructuur van de katalysator kunnen plaatsvinden. Het idee van een welomschreven aantal fixed sites vervaagt steeds meer.

In de beschouwingen van TAYLOR over de aard van actieve centra speelden onregelmatigheden in het oppervlak een belangrijke rol. Wat is nu het belang van roosterstoringen? De literatuur over dit onderwerp is tegenstrijdig. Soms wordt door blootstellen aan energierijke straling een aanzienlijke verhoging van activiteit bereikt, mogelijk toe te schrijven aan roosterstoringen. Directe elektronenmicroscopische observatie van

dislocatiedichtheden aan films schijnt in sommige gevallen wel, in andere weer niet op een samenhang te wijzen. Vele conclusies zijn enigszins suspect door blootstelling aan de lucht bij prepareren. Onderzoek aan koudgedeformeerde, polykristallijne plaatjes door UHARA geeft bij een bepaalde uitgloeitemperatuur scherpe daling van activiteit en van sommige mechanische eigenschappen te zien, beide toegeschreven aan verdwijning van dislocaties. Toch is waarschijnlijk dat storingen in metalen niet essentieel zijn voor katalytische activiteit. Het is echter wel mogelijk dat het ook voor katalyse bijzondere plaatsen zijn.

Men kan het centrale probleem in de katalyse, de wijze van binding van het actieve intermediair met de katalysator, vanuit twee extreme gezichtspunten benaderen. Het eerste gezichtspunt ziet de katalysatorreactant als het hele kristal van de vaste stof met zijn collectieve eigenschappen zoals kristalstructuur, elektronenenergiebanden, enzovoort en gepoogd wordt een verband te leggen tussen de bindingssterkte met het oppervlak en de vaste-stofeigenschappen. De afwijkende toestand aan het oppervlak moet als een correctie worden ingevoerd. Het tweede gezichtspunt redeneert vanuit het metaalatom waarmee de binding tot stand komt en legt de nadruk op analogieën met overgangsmetaalcomplexen. In dit geval moet het feit dat het metaalatom deel uitmaakte van een metaalrooster als correctie worden ingevoerd. Door de veelzijdige experimentele gegevens die erop wijzen dat de samenhang met het rooster in aanzienlijke mate verbroken wordt in de vorming van de chemisorptieve binding, als ook door de sterke ontwikkeling van het theoretische inzicht in de structuur van metaalcomplexen, is het tweede gezichtspunt sterk in opkomst. De volledige ontraadseling van het complexe mechanisme is nog voor geen enkele heterogeen-katalytische reactie uitgevoerd. De finale oplossing zal een zeer veelzijdige inspanning vergen.

Wagen wij het nu ons af te vragen: waartoe toch al die inspanning? Door velen is reeds geconstateerd dat nieuwe katalysatoren en processen empirisch gevonden worden en dat inzicht in het waarom achteraf komt. Wat is dan de rechtvaardiging van de omvangrijke wetenschappelijke inspanning voor verdieping van inzicht in de katalyse?

Een eerste evidente rechtvaardiging ligt in de menselijke weetgierigheid. Door KOMMANDEUR werd in zijn oratie het construeren van wetenschappelijke bouwsels vergeleken met het bouwen van kathedralen: beide op het oog onnutte bezigheden, die resulteren in schoonheid die de eeuwen trotseert. Beide zijn ook een menselijk tribuut aan de Schepper.

Voor het industriële laboratorium spreekt een ander gezichtspunt overtuigender taal: voor de stoottroepen der empirisch werkende uitvinders, die de tastbare resultaten opleveren, is het fundamentele onderzoek de intendance, die onmisbaar materiaal aanvoert. Iedere nieuwe technische

ontwikkeling spruit voort uit de op dat moment bestaande stand van de wetenschap, waarvan het inzicht een essentieel deel uitmaakt. Uiteraard behoort tot die stand van de wetenschap niet slechts de in het eigen laboratorium verworven kennis. Voor het assimileren van het elders verworven is het noodzakelijk in eigen huis en team specialisten te hebben, die de taal der specialismen leren verstaan door eraan bij te dragen door eigen onderzoek. Reeds vroeg in de geschiedenis van de technische katalyse, bij de ontwikkeling van de industriële synthese van ammoniak, was dit samenspel tussen inzicht en experimenteertechniek essentieel voor het bereikte resultaat.

Het nut van nieuwe katalytische processen zal ik niet in zijn algemeenheid bespreken. Eén facet wil ik belichten. Op deze plaats, in Nijmegen, past het niet bijbelse aanbevelingen lichtvaardig terzijde te schuiven. Indien echter de wereldbevolking het „gaat en vermenigvuldigt u” blijft volgen, dan kunnen de „leliën des velds” beter niet ten voorbeeld strekken. Weliswaar zijn alle pessimisten gelogenstraft die de ondergang der mensheid voorspelden uit de verschillend gearde groei van bevolking en hulpbronnen, maar hoe is de toekomstverwachting?

Voorzichtige extrapolaties voorspellen voor het jaar 2000 een verdubbeling van de wereldbevolking. Om verder de huidige bevolking over de *gehele* wereld adequaat te voeden, is een verdubbeling van de voedselproductie vereist. In de komende vijfendertig jaar moet dus de wereldvoedselproductie verviervoudigd worden. Hetzelfde geldt voor de productie van textielgrondstoffen. Daarvoor zal samenwerking op ongehoorde schaal nodig zijn, samenwerking tussen landen en volken, tussen wetenschappelijke en technische disciplines.

De katalyse speelt in belangrijke mate mee in de oplossing van deze wereldvraagstukken. De wereldproductie van landbouwprodukten steeg tussen 1950 en 1960 met 30%, de wereldbevolking met 19%. Dit was mogelijk door voortdurend stijgende gigantische productie van gebonden stikstof, langs katalytische weg. De katalytische hydrogenering van vette oliën levert een belangrijke bijdrage tot de voor menselijke consumptie toegankelijke hoeveelheid vetten.

De tijd is niet ver meer dat volledig synthetische voedingsbestanddelen een praktische mogelijkheid worden. De technisch gerealiseerde synthese van lysine, een essentieel aminozuur, waarin katalyse een zeer grote rol speelt, is een vroege voorloper.

De bijdrage van de katalyse voor het kleden der mensheid spreekt duidelijk uit het feit dat de wolproductie, meer dan verdubbeld sinds 1900, voorbijgestreefd is door de productie van volledig synthetische vezels, ofschoon deze eerst in 1940 begon. Productie van alle synthetische vezels verloopt over een aantal katalytische stappen. Voor vezels van het

nylontype – een der belangrijkste groepen – zijn vijf tot acht katalytische stappen vereist.

Geachte toehoorders,

Vanmiddag heb ik op carnavaleske wijze een bonte optocht van observaties en technieken aan u laten voorbijtrekken. Ik hoop u op deze wijze duidelijk gemaakt te hebben dat katalyse een complex gebeuren is, een samenspel van parallel- en volgreacties, dat juist in zijn complexiteit de weg van de minste weerstand naar het doel vindt. Zo ook is de studie der katalyse een complexe aangelegenheid, waarin vele technieken met succes worden toegepast en waar de doelmatigheid eist dat dit in samenspel gebeurt in een team van specialisten. In zijn inleiding tot het Derde Internationale Katalysecongres in 1964 gaf DE BOER een statistiek van het gemiddelde aantal auteurs per bijdrage: 1,94 in 1956; 2,26 in 1960; 2,55 in 1964. Mede daarom misschien komt Nederland als klein land in de studie der katalyse behoorlijk voor de dag. Samenspel, teamwork is in het Nederlandse katalyse-onderzoek al sinds de Hollandse Scheikundigen een aanvaarde zaak. De teams van Shell en Staatsmijnen hebben recenter de waarde van het principe gedemonstreerd. Zin voor samenspel en gecoördineerd optreden ligt in de Nederlandse volksaard: rechte rooijlijnen en alle winkels om zes uur dicht, soms vervelend, maar zeker doelmatig.

Ik zeide reeds dat het vandaag een bijzondere dag is. 11 november is wapenstilstandsdag, een dag waarop in 1918 na grote verscheurdheid het samenspel in de wereld weer op gang kwam. Op die zelfde dag, 11 november 1918, schreven SIR ERIC RIDEAL en SIR HUGH TAYLOR samen het voorbericht voor hun boek „Catalysis in Theory and Practice”. Zonder enige vergelijking met deze reuzen van de katalyse wil ik hopen dat mijn woorden vandaag een voorbericht zijn voor vruchtbaar werk in Nijmegen in „Catalysis in Theory and Practice”.

Mijne Heren Curatoren,

Voor het in mij gestelde vertrouwen dank ik u zeer. Het gezin waaruit ik stam, heeft vele bindingen met het onderwijs en het verheugt mij dat ook ik thans een onderwijstaak mag vervullen. Met inzet van mijn beste krachten zal ik pogen mij uw vertrouwen waardig te tonen.

Dames en Heren Leden van de Senaat en van de Wetenschappelijke Staf van deze Universiteit,

Het is een bijzonder voorrecht in uw midden te zijn opgenomen, waardoor de gelegenheid zich voor mij opent met u geregelde contacten te onderhouden.

Mijne Heren Leden van de Faculteit der Wiskunde en Natuurwetenschappen,

Reeds herhaaldelijk had ik het voorrecht deel te nemen in uw overleg over de belangen en taken van onze faculteit. Ik verheug mij op een vruchtbare samenwerking.

Dames en Heren Leden en Medewerkers van de Vakgroep Scheikunde,

Bij vergelijking met langer gevestigde instellingen voor hoger onderwijs zou onze vakgroep klein kunnen schijnen. Mijn nieuwe universitaire contacten hebben echter mijn horizon verbreed en ik heb geleerd dat groot en klein betrekkelijk zijn. De insektenklasse der Duizendpoten heet in wetenschappelijke taal Myriapoda, in het Engels Centipedes. Bij nadere studie blijken deze dieren in het bezit van negen tot 173 paar poten, waarover ze hun last verdelen. Zo zou dus ook onze vakgroep een duizendpoot genoemd kunnen worden. Mijn bijdrage is dan een buitenbeentje. Niettemin wil ik trachten naar draagvermogen mee te werken en mijn stappen in goed samenspel te coördineren met de andere ledematen. Ik heb bij mijn eerste wankel schreden reeds veel steun van u ondervonden, waarvoor ik u hartelijk dankzeg.

Mijnheer de Directeur van de Faculteit voor Wiskunde en Natuurwetenschappen,

Uw steun zal ik in de komende jaren van opbouw zeer behoeven. Mijn ervaring tot op heden geeft mij het vertrouwen dat ik op deze steun kan rekenen.

Velen droegen bij tot mijn vorming en ik kan vandaag niet allen met name noemen. Tot enkelen wil ik een persoonlijk woord richten.

Waarde Burgers,

De vele jaren waarin ik in contact met u heb mogen werken, zijn voor mij

van grote betekenis geweest. Uw werk over de gedragingen van de vaste stof en de invloed der imperfecties kan ook de katalysatoronderzoeker inspiratie geven. Uw kritiek op de imperfecties van uw medewerkers was steeds verguld met mildheid en humor. Mijn eerste contact met de katalyse lag in een onderzoek dat ik onder uw stimulerende leiding verrichtte.

Hooggeachte De Boer,

Uw verdiensten in het gebied der katalyse en adsorptie behoef ik hier niet te roemen: ze zijn internationaal bekend en hoog geschat. Ik wil hier slechts spreken van uw betekenis voor mij. Uw uitmuntende colleges te Delft gaven mij de eerste systematische introductie tot mijn vakgebied. Onze gesprekken zijn voor mij zeer vruchtbare inspiratiebronnen geweest. Uw leiding in goede teamgeest met BURGERS heeft mij veel geleerd. Het is een voorrecht thans een bijdrage te mogen leveren tot het onderwijs in ons vakgebied.

Waarde Schuit en Sachtler,

Van vele katalytici kan ik veel leren. Voor uw beider voorbeeld geldt dit in vele opzichten.

Mijne Heren Leden van de Raad van Bestuur van Unilever,

Uw beleid maakte het ontstaan mogelijk van een vruchtbaar wetenschappelijk klimaat te Vlaardingen, een klimaat waaraan ik veel te danken heb. Ik zeg u gaarne dank voor uw toestemming mijn werk in Unilever Research te combineren met mijn nieuwe taak.

Waarde Peteri, Boldingh, Boekenoogen en Ruiter,

Het Vlaardingse Laboratorium is voor velen een vruchtbare voedingsbodem. Ik heb er steeds een goed dieet voor mijn groei gevonden. HEIN en JAN, jullie in het bijzonder ben ik dankbaar voor je persoonlijke belangstelling en stimulering, zowel in het wetenschappelijke als in het persoonlijke vlak.

Dames en Heren Medewerkers van onze Researchgroep in Vlaardingen,

Uw werk heb ik in mijn oratie niet genoemd. U weet echter dat mijn gedachten over samenspel en teamwork in uw kring ontstonden. Ik dank u allen voor uw veelzijdige hulp en het vele werk dat u voor mij deed. Ik hoop dat mijn nieuwe taak in uw kring niet slechts voelbaar wordt door mijn periodieke afwezigheid, doch meer door vernieuwde visie, die ik uit mijn nieuwe functie meebreng.

Dames en Heren Studenten,

Ruim een halfjaar geleden richtte BOLDINGH in Utrecht bij een gelegenheid als vandaag zich tot zijn studenten met de aanbeveling geen knieval te doen voor de weg van de minste weerstand. Ik verstout mij thans u aan te bevelen dit wel te doen.

Dat in de wetenschap uitspraken snel verouderen of in hun tegendeel verkeren is juist. Kritische zin dient u daarom bewust te ontwikkelen. Ik moet u echter erop wijzen dat de discrepantie tussen BOLDINGH en mij geen tegenspraak inhoudt:

BOLDINGH sprak over de menselijke weg van de minste weerstand, terwijl ik de chemische, de reactiekinetische bedoel. Ik hoop dat u duidelijk geworden is dat deze chemische weg ons leert dat een combinatie van vele intelligent gekozen deelinspanningen efficiënter kan zijn dan een haastige poging om het doel langs de kortste weg te bereiken. Het zal u verder duidelijk zijn dat de snelheidsbepalende stap bijzondere aandacht verdient.