

Information Theoretische Chemie

Mai 2021



Liebe Kolleginnen und Kollegen,

„Der Mai, der Mai, der macht alles neu!“ könnte das passende Motto für diese Ausgabe des *Information Theoretische Chemie* sein. Als unverbesserlicher Optimist sitze ich in meinem sonnendurchfluteten Büro und freue mich über das nahende Ende der Pandemie und der hoffentlich baldigen Rückkehr zu einem *normal socializing* ohne *distancing*. Die steigenden Aussentemperaturen des Mais und die wachsende Impfquote tragen ihren Teil dazu bei. Ich kann es kaum erwarten, Sie alle auf dem nächsten Symposium für Theoretische Chemie persönlich wieder zu sehen.

Leider wird es wohl bei einem virtuellen Wiedersehen im Würzburger Zoom bleiben und nicht zu einem persönlichen Treffen kommen, wie die Organisatoren der STC in Würzburg entschieden haben. Das ist ein kleiner Rückschlag für meinen Optimismus. Aber lesen Sie selbst! Denn nach dem Protokoll der letzten Mitgliederversammlung und den Neuigkeiten aus der DFG wird die virtuelle STC2020 vorgestellt. Es folgen Berichte von Gernot Frenking, dem letztjährigen Hückel-Preisträger (Herzlichsten Glückwunsch, lieber Gernot!) über eine Sommerschule auf Mauritius und von Sergey Bokarev über einen tollen online-Workshop zur molekularen Dynamik in ungebundenen Zuständen. Im Anschluss macht sich Joachim Sauer Gedanken zur computergestützten Katalysforschung im Jahr 2050.

Nach Klatsch und Tratsch gehört die große Bühne dieser Ausgabe aber den Nachwuchswissenschaftlern, denn gleich sechs (!) Nachwuchsgruppenleiter sind meinem Aufruf gefolgt und haben mir pünktlich und zuverlässig ihre Beiträge geliefert, die einen tollen Kontrapunkt zur letzten Ausgabe darstellen. Sie erinnern sich? Die vielen traurigen Nachrufe! Mein Dank dafür gilt den Herren Amirjalayer, Bischoff, Brehm, Höfener, Götze und Stauch, die sich über eine zeitnahe Einladung zu einem Seminarvortrag nach Heidelberg freuen dürfen!

Take care, stay home and healthy, and see you inZoom.

Ihr,

Andreas Dreuw

Heidelberg, Mai 2021

Impressum:

Lehrstuhl für Theoretische und computergestützte Chemie

Interdisziplinäres Zentrum für Wissenschaftliches Rechnen

Ruprecht-Karls Universität Heidelberg

Im Neuenheimer Feld 205

69120 Heidelberg

Mitgliederversammlung der AGTC Webkonferenz am 16.09.2020

Beginn: 16.09.2020 16:00 Uhr
Ende: 16.09.2020 17:45 Uhr

Sitzungsleitung: Prof. Dr. Leticia González (Universität Wien, Österreich)

- 1) Genehmigung der Tagesordnung
- 2) Genehmigung des Protokolls der Mitgliederversammlung 2019
- 3) Hans G. A. Hellmann-Preis Bekanntgabe
- 4) Bericht des Vorstands
- 5) Kassenprüfung
- 6) Diskussion zur Neuwahl des Vorstandes 2021
- 7) Neues aus der AGTC
- 8) Neue DFG-Leitlinien zur Sicherung guter wissenschaftlicher Praxis
- 9) Verschiedenes

TOP1

Die Tagesordnung wird einstimmig angenommen.

TOP2

Zum Protokoll der letzten Mitgliederversammlung der AGTC anlässlich des 55. Symposiums für Theoretische Chemie in Rostock (zu finden auf der Info-TC:

<http://www.theochem.de/agtc.infotc.html>) gibt es keine Anmerkungen und es wird ohne Gegenstimme genehmigt.

TOP3

Da das Symposium für Theoretische Chemie dieses Jahr aufgrund der COVID-Situation ausfallen muss (ursprünglich geplant in Innsbruck), wird der Hans G. A. Hellmann-Preis im Rahmen dieser Mitgliederversammlung bekanntgegeben. Der Preis ergeht an Jeremy Richardson (ETH Zürich) "für seine theoretischen Entwicklungen im Bereich der Instanton-Theorie für Tunnelreaktionen in ausgedehnten Systemen". Alle Anwesenden gratulieren herzlich!

Herr Richardson bedankt sich. Die Preisunterlagen werden ihm per Post zugesandt. Die Verleihung der Urkunde und sein Vortrag werden auf das nächste STC 2021 in Würzburg verschoben.

TOP4

Bericht des Vorstands

- Mitgliedschaft
Am 15. September 2020 zählte die AGTC 230 Mitglieder. Der Jahresbeitrag beträgt weiterhin 13.- Euro. Ab einem Lebensalter von 58 Jahren besteht die Möglichkeit einer Lebensmitgliedschaft analog zum Modell der Deutschen Bunsen-Gesellschaft. Es ist auch eine Mitgliedschaft möglich, ohne bei GDCh/GÖCh, DPG oder DBG Mitglied zu sein. Es gibt ein neues Formular für Änderungen oder neue Mitgliedschaften unter <http://theochem.de/Mitgliedschaftsantrag.pdf>, welches an geschaeftsstelle@bunsen.de zu senden ist.
- Website
Die Website der AGTC unter <http://theochem.de> ist teilweise veraltet. Aktualisierungen sind erwünscht. Senden Sie diese bitte an Annette Krappweis unter krappweis@kofo.mpg.de

- Emailverteiler: Es gibt einen neuen Emailverteiler unter agtc@lists.posteo.de der moderiert wird. Direkte Emails an den Verteiler sind immer noch nicht möglich, sondern ergehen bitte an Frau Dominique Mitireva unter geschaeftsstelle@bunsen.de oder an die Vorstandsvorsitzende unter leticia.gonzalez@univie.ac.at
- Hellmann-Preis
Der Hellmann-Preis wird nach Möglichkeit jährlich vergeben. Die Voraussetzungen für den Hellmann-Preis sind weiterhin ein Lebensalter von maximal 40 Jahren, eine herausragend abgeschlossene Habilitation oder äquivalente Leistung und bisher keine Lebenszeit-Professur. Der/die BewerberIn sollte verbunden mit der deutschsprachigen Forschungslandschaft sein. Daraus ergibt sich eine relativ kleine Anzahl an möglichen BewerberInnen, die sich nominieren lassen können. Der Vorstand bittet, alle NachwuchswissenschaftlerInnen, die sich dafür geeignet halten, nominieren zu lassen. Nominierungen sind bis zum 15. 3. 2021 an die AGTC-Vorsitzende zu senden. Eine Selbstbewerbung sowie Nachnominierungen sind nicht möglich. Die aktuelle Hellmann-Jury besteht aus: Irene Burghardt, Jürgen Gauss, Johannes Kästner, Oliver Kühn, Robert Berger, Bernd Engels, Beate Paulus (Vorsitz).
- Erich-Hückel Preis
Der Erich-Hückel Preis wird von der Gesellschaft Deutscher Chemiker (GDCh) an WissenschaftlerInnen verliehen, die sich durch hervorragende Arbeiten auf dem Gebiet der Theoretischen Chemie besondere Verdienste erworben haben. Er ist nach Erich Hückel benannt, mit 7.500 Euro dotiert und wurde erstmals 2016 an Werner Kutzelnigg verliehen. 2018 erhielt Hans-Joachim Werner den Preis. Der Erich-Hückel-Preis 2020 geht an Gernot Frenking. Die Verleihung wird auf der STC in Würzburg in 2021 verschoben. Die Deadline für Nominierungen für den Erich-Hückel-Preis 2022 wird 2021 bekannt gegeben. Alte Nominierungen der Vorjahre bleiben erhalten und neue Nominierungen sollen an die GDCh gerichtet werden.
- Jahresrückblicke / Trendberichte 2019
Die Trendberichte 2020 wurden von Benjamin Fingerhut (MBI Berlin), Thomas Jagau (U Leuven) und Vera Krewald (TU Darmstadt) vorbereitet.
- INFO-TC
Das Informationsblatt INFO-TC wird derzeit von Andreas Dreuw (Heidelberg) 2020/2021 verfasst. In Zukunft zeichnen Leticia González (Wien) 2022/23, Thorsten Klüner (Oldenburg) 2024/25 und Christoph Jacob (Braunschweig) 2026/27 dafür verantwortlich.
- STC
Dieses Jahr sollte das STC 2020 in Innsbruck (Österreich) vom 14.-17. September unter der Organisation von Prof. Klaus Liedl und Dr. Maren Podewitz stattfinden. Leider muss es wegen der COVID-Situation abgesagt werden. Im Jahr 2021 wird das STC von Prof. Bernd Engels, Prof. Roland Mitric und Prof. Volker Engel in Würzburg vom 19.-23. September 2021 abgehalten werden, nach Möglichkeit persönlich, je nach Corona-Situation eventuell auch online. Im Jahr 2022 wird das STC von Prof. Andreas Dreuw in Heidelberg (Deutschland) organisiert. Im Jahr 2023 soll die STC in der Schweiz unter der Organisation von Sandra Luber und Jeremy Richardson abgehalten werden. OrganisatorInnen für 2024 und 2025 aus Deutschland werden gesucht. Bei Interesse melden Sie sich bitte beim Vorstand der AGTC.

Die Kassenprüfung wurde von Alexander A. Auer (MPI für Kohlenforschung) durchgeführt, er berichtet selbst. Er empfiehlt den Kassenabschluß für 2019 zu nicht akzeptieren, da im Jahresabschluß der Finanzen der AGTC ein Fehlbetrag von 75 Euro auftritt, so daß für den Abschluß 2020 auf Korrektur des Abschluß 2019 bestanden werden müsse. Dieser Empfehlung folgend wird der Kassenabschluß einstimmig nicht akzeptiert. Beim Hellmann-Fonds-Konto geht das Preisgeld 2019 zweimal ab, da es 2018 nicht abgerufen wurde. Die Spenden belaufen sich auf 4695 Euro. Das Gesamtvermögen des Hellmann-Fonds sowie das Guthaben der AGTC haben sich gegenüber der Vorjahre erhöht.

TOP6

Diskussion zur Neuwahl des Vorstandes 2021

Momentan besteht der Vorstand aus L. González (Vorsitzende), W. Klopper (Stellvertreter), M. Reiher, P. Saalfrank, C. Marian, S. Grimme (GDCh), D. Marx (DPG, ab 1.1.2021 A. Gross) und C. Ochsenfeld (DBG). Die Vorstandswahl 2021 soll im Januar 2021 elektronisch erfolgen. Nominiert und einverstanden sind weiterhin Leticia González, Wim Klopper, Markus Reiher, Peter Saalfrank, Christel Marian, so wie Sandra Luber, Christine Peter, Christoph Jacob, Oriol Vendrell, und Carmen Hermann. Um weitere Nominierungen wird gebeten. Es gibt keine weiteren Vorschläge, Mitglieder der Hellmann-Jury sind nicht nominierungsfähig.

TOP7

Neues aus der AGTC

Es soll in Zukunft ein Promotionspreis der AGTC vergeben werden, nach Möglichkeit jährlich. Er soll der Förderung von ein bis zwei junger WissenschaftlerInnen aus dem Gebiet der Theoretischen Chemie dienen. Nominiert werden können alle Personen, die im Kalenderjahr vor dem Stichtag der Bewerbungseinreichung ihre Dissertation im Bereich der Theoretischen Chemie in Deutschland, Österreich oder der Schweiz abgeschlossen haben. Selbstbewerbungen sind erlaubt und erwünscht. Der nächste Stichtag ist der 1.2.2021. Die Ausschreibung wird demnächst veröffentlicht.

Nachtrag: Die Ausschreibung ist inzwischen unter <http://www.theochem.de/agtc.peyerimhoff.html> abrufbar. Der Preis wurde Sigrid Peyerimhoff-Promotionpreis getauft. Der Preis beinhaltet ein Preisgeld, die Übernahme der Teilnahmegebühren des STC, an dem die Preisverleihung stattfindet, sowie eine kostenlose AGTC-Mitgliedschaft für zwei Jahre. Geeignete Kandidat*innen werden in Bezug auf die wissenschaftliche Qualität und Originalität ihrer Arbeit beurteilt.

Desweiteren wurde diskutiert, ob eine Ehrenmitgliedschaft der AGTC etabliert werden soll. Der Vorstand hat sich dagegen entschieden, da das Ziel der AGTC vorrangig sei, junge WissenschaftlerInnen zu unterstützen und zu fördern. In anderen Gesellschaften, beispielsweise der GDCh, existiert schon eine Ehrenmitgliedschaft. Sie ist für Mitglieder gedacht, die sich besonders um die Gesellschaft verdient gemacht haben und ist nicht zwangsläufig mit wissenschaftlicher Exzellenz verknüpft. Eine Ehrenmitgliedschaft würde auch erfordern die Änderungen der Statuten der AGTC. Als Gegenargument wurde vorgebracht, dass Ehrenmitgliedschaften renommierter WissenschaftlerInnen auch gut für die AGTC sein könnte, aber zumindest eine schöne Geste darstellen würde, die niemandem wehtun würde. Es wurde weiterhin vorgeschlagen, eine Ehrenmitgliedschaft zu koppeln an eine Sitzung während des STC, während welcher junge WissenschaftlerInnen das Ehrenmitglied näher kennenlernen können, in Analogie zum Nobelpreisträgertreffen in Lindau. Es wurde abschließend zusammengefasst, dass eine Ehrenmitgliedschaft momentan nicht eingerichtet wird.

TOP8

Neue DFG-Leitlinien zur Sicherung guter wissenschaftlicher Praxis

Andreas Dreuw berichtete, dass ein zentraler Punkt der neuen Leitlinien die öffentliche Freigabe von Quellcodes sei. Solch eine Freigabe entspreche oft nicht der gelebten Praxis in der

Theoretischen Chemie. Resentiments bestünden, weil durch Freigabe des Quellcodes ein Verlust des Wettbewerbsvorteils befürchtet werden müsse. Um solche Bedenken auszuräumen oder zumindest dokumentieren zu können, wird die DFG eine Website einrichten, wo die Leitlinien kommentiert werden können. Ein Link zu dieser Website soll noch über den Emailverteiler der AGTC versendet werden. Desweiteren wird es einen Workshop geben, an dem Andreas Dreuw als Mitglied des Fachforums Chemie teilnehmen wird. Christian Ochsenfeld kommentierte, dass „reichere“ Arbeitsgruppen die Klausel der Leitlinie umgehen könnten, indem sie einfach keine Anträge mehr zur Softwareentwicklung einreichen, während diese Vorgehensweise für Arbeitsgruppen mit weniger finanziellen Mitteln (beispielsweise Nachwuchsgruppen ohne Hausstellen) schwer möglich wäre und eine Entwicklung kommerzieller Software damit erschwert würde. Wolfram Koch regte an, dass sobald die Website zum Kommentieren freigeschaltet ist, die Mitglieder der AGTC eventuell durch die GDCh und die Bunsengesellschaft hinsichtlich einer Änderung der Leitlinien unterstützt werden könnten. Martin Quack kommentierte, dass die grundsätzliche Idee von offenen Quellcodes zu befürworten sei und für die Theoretische Chemie vorteilhaft sein könne. Daher regte er an, einen Kompromiss zu finden, so dass langfristig die Quellcodes öffentlich zugänglich gemacht würden.

TOP9

Verschiedenes

Andreas Dreuw berichtet, dass es für die DFG immer schwerer wird, GutachterInnen für Forschungsanträge zu finden. Es wird an alle appelliert, in dieser Hinsicht mehr für die Gemeinschaft zu tun.

Wien, 18.11.2020

Priv.-Doz. Dr. Philipp Marquetand

Prof. Dr. Leticia González

Neues aus der DFG vom Fachkollegium Theoretische Chemie

Mit der Amtsperiode der im Herbst 2019 neu-gewählten 49 Fachkollegien gibt es nun erstmalig ein eigenes Fachkollegium „Theoretische Chemie“ mit den aktuellen Mitgliedern Axel Groß, Thomas Heine, Oliver Kühn, Thomas Kühne und Andreas Dreuw, welches nun aus fünf anstatt bisher insgesamt vier Mitgliedern aus den ehemaligen Fachkollegien Chemische Festkörper- und Oberflächenforschung sowie Physikalische und Theoretische Chemie besteht. Einerseits hat sich dadurch der Stellenwert der Theoretischen Chemie innerhalb der DFG und der Chemie insgesamt weiter verbessert, andererseits gibt es anstatt eines gemeinsamen Fachforum Chemie nun zwei. Die Theoretische Chemie ist zusammen mit den Fachkollegien Molekülchemie (weiterhin elf Mitglieder) sowie Biologische Chemie und Lebensmittelchemie (weiterhin fünf Mitglieder) im Fachforum Chemie 2 vertreten und damit in einem anderen Fachforum wie die Kollegen aus der Physikalischen Chemie.

Da die relative Anzahl der Anträge aus der Theoretischen Chemie im letzten Jahr ca. 20% unter dem Schnitt des gesamten Fachforum Chemie lag, möchten wir deswegen zur vermehrten Einreichung von Forschungsvorhaben aufrufen. Die Bewilligungsquote ist in letzter Zeit zwar leicht gefallen, aber liegt mit zur Zeit 30% weiterhin im Sollbereich. Der pauschalisierte Standardsatz für Sachmittel für Projekte aus der Theoretischen Chemie liegt weiterhin bei 7500€ pro Jahr und Person, es kann aber beobachtet werden, dass dieser vermehrt nicht vollständig gewährt wird. Sämtliche Sachmittel, insbesondere auch der pauschalisierte Standardsatz und darüberhinausgehend sowieso, müssen durchgehend projektbezogen begründet werden. Arbeitscomputer und zum Teil auch Softwarelizenzen sind weiterhin der Grundausstattung zugehörig und können grundsätzlich nicht gefördert werden.

Gerade das Thema Forschungssoftware ist, zusammen mit dem Umgang mit Forschungsdaten, in Form des am 1.8.2019 in Kraft getretenen Kodex „Leitlinien zur Sicherung guter Wissenschaftlicher Praxis“ Gegenstand von Neuerungen mit der größten langfristigen Relevanz. Der Kodex selbst geht auf die Denkschrift „Sicherung guter wissenschaftlicher Praxis“ aus dem Jahre 1998 zurück, in der die Wissenschaft eine Selbstkontrolle initiiert und formuliert hat, die einen allgemeinen Konsens gefunden hat. Die Druckfassung des Kodex, welcher via <http://doi.org/10.5281/zenodo.3923602> verfügbar ist, beinhaltet die relativ abstrakten Ebenen eins und zwei und definiert im weitesten Sinne einen Berufsethos in Form von 19 Leitlinien (erste Ebene) und ihre Erläuterungen (zweite Ebene) welche bis spätestens 31.7.2022 (die Frist wurde Corona-bedingt bereits um ein Jahr verlängert) rechtsverbindlich umzusetzen sind, um weiterhin Fördermittel durch die DFG erhalten zu können.

Für die Theoretische Chemie besonders wichtig ist jedoch die sogenannte „dritte Ebene“ welche fachspezifische Ausführungen, Fallbeispiele und FAQs enthält und als dynamisches Dokument seit 10.12.2020 online über das Portal „Wissenschaftliche Integrität“ (<https://wissenschaftliche-integritaet.de/>) verfügbar ist. Wir möchten Ihnen insbesondere die aktuelle Implementierung der Leitlinie 13 zur „Herstellung von öffentlichem Zugang zu Forschungsergebnissen“ als Fallbeispiele zum „Umgang mit Forschungssoftware“ (<https://wissenschaftliche-integritaet.de/kommentare/umgang-mit-forschungssoftware-fallbeispiele/>) ans Herz legen. Darin werden nun „Minimalstandards“ wie mit käuflich erworbener, überlassener und selbstentwickelter kommerzieller und open-source Forschungssoftware zu verfahren ist festgehalten. Die aktuelle Version wurde in Kooperation mit der theoretischen Physik, welche den Vorstoß der theoretischen Chemie übernommen und unterstützt hat, in äußerst kontrovers geführten Diskussionen innerhalb der Arbeitsgruppe zur „Guten Wissenschaftlicher Praxis“ in möglichst liberaler Form durchgesetzt um sämtlichen Modellen zur Arbeitsgestaltung aller KollegenInnen gerecht zu werden. Da es sich aber wie gesagt um ein dynamisches Dokument handelt, bitten wir Sie, sich bei dringendem Änderungsbedarf direkt an uns zu wenden.

Beste Grüße,

Thomas D. Kühne (Verfasser)

Thomas Heine

Axel Groß

Oliver Kühn

Andreas Dreuw

STC 2021 (Mo. 20.- Fr. 24.9.2021): Leider virtuell

Nachdem die STC 2020 wegen der Coronapandemie abgesagt werden musste, war klar, dass die Tagung 2021 unbedingt stattfinden sollte. Die große Frage war allerdings, ob sie tatsächlich „leibhaftig“ stattfinden kann, also mit Besuchern vor Ort, oder ob man sie, wie so vieles, leider nur virtuell veranstalten kann. Eine Verschiebung auf 2022 sollte auf alle Fälle vermieden werden, damit der Kontakt untereinander nicht zu stark leidet. Zudem waren wir aus Würzburg Ende 2020 und ganz am Anfang 2021 noch sicher, dass es klappt, die Tagung ganz normal (vielleicht mit kleinen Einschränkungen) stattfinden zu lassen. In Folge kamen aber nur noch schlechte Nachrichten: verzögerte Impfkampagne und eine unerwartet heftige, dritte Welle mit bislang unerreichten Inzidenzzahlen, usw.. Als Reaktion auf diese Pleiten haben wir Ende April schweren Herzens beschlossen, dass die Tagung virtuell stattfinden wird.

Der Hauptgrund für unsere Entscheidung ist die Überzeugung, dass die größte Gruppe der STC-Besucher, die Studenten, zum Zeitpunkt der Konferenz vermutlich noch nicht geimpft sein wird. Dies bedeutet im Klartext: keine Impfung, keine Dienstreiseerlaubnis; keine Dienstreiseerlaubnis, keine Kostenerstattung. Letzteres wird es vielen nicht erlauben, nach Würzburg zu kommen und eine STC ohne den Nachwuchs verfehlt die Zielsetzung der AG TC. Wir können zwar nicht ausschließen, dass der Spuk im September doch vorbei ist, aber davon ausgehen können wir eher nicht. Da eine Organisation einer etwa 300 Personen umfassenden Tagung auf einer solch fragilen Basis mit ziemlich hohen finanziellen Risiken behaftet ist, haben wir uns schweren Herzens entschlossen, die STC2021 virtuell zu veranstalten. Dies geschieht in der Hoffnung, dass es die einzige virtuelle Tagung in der zukünftigen Geschichte der STC bleibt. Denn uns ist allen klar, den Vorträgen kann man auch bei einer virtuellen Tagung gut folgen und eine Diskussion der Poster ist ohne Frage mit Hilfe von Escape-Räumen ebenfalls möglich. Das Miteinander, das Knüpfen von Bekanntschaften und Netzwerken, also alles, was einen Tagungsbesuch extrem verschönert, bleibt auf der Strecke.

Um die Teilnahme trotzdem reizvoll zu machen, haben wir exzellente „Invited Speaker“ eingeladen. Zugesagt haben bereits T. Baumert (Kassel), O. Smirnova (Berlin), O. Kühn (Rostock), G. Stock (Freiburg), B. Mennucci (Pisa), S. Sharma, R. Mata (Göttingen) und R. Berger (Marburg). Die Liste zeigt, dass wir kein spezielles Thema ausgesucht haben, sondern eher verschiedene interessante Bereiche beleuchten. Zusätzlich werden wir 18 „contributed Talks“ aus den Einsendungen auswählen. Eiwichtiger Programmpunkt sind natürlich die Postersessions, welche an zwei Nachmittagen vorgesehen sind. Abgerundet wird das Programm durch fünf anstehende Preisverleihungen. So wurden bereits zwei Doktoranden mit dem Peyerimhoff-Preis geehrt und auch der Hellmann-Preis von 2020 (Prof. Dr. Jeremy Richardson) wird aus erwähnten Gründen erst in diesem Jahr verliehen. Hinzu kommt die Verleihung des Hellmann-Preis von 2021 und die Übergabe des Hückel-Preises von 2020, der an Prof. Dr. Gernot Frenking verliehen wurde.

Da Konferenzen am Rechner ermüdender sind als im Hörsaal, reduzieren wir das Tagespensum. Dafür ist aber der Freitag für die Ehrungen vorgesehen. Weitere Informationen zum Zeitplan könnt ihr unserer Webseite www.stc2021.de entnehmen. Die Vorträge werden mit ZOOM übertragen. Kaffeepausen werden wir mit Wonder.me durchführen, da lockere Gespräche mit vielen Personen über Zoom unmöglich sind. Die Postersessions werden wir ebenfalls mit Zoom durchführen, allerdings verwenden wir hier Escape-Räume, sodass auch wirkliche Diskussionen am Poster stattfinden können. Damit die Postervorsteller auch mal die anderen Poster anschauen können, werden wir immer zwei Poster in einem Escaperaum unterbringen. Zusätzlich eröffnen wir die Möglichkeit, dass die Poster auch auf Twitter beworben und diskutiert werden können. Die zugehörige Seite haben wir bereits gesichert und entsprechende Hashtags werden wir noch bekanntgeben.

Unschlagbar ist eine virtuelle Tagung natürlich in den Konferenzgebühren (von den fehlenden Kosten für die Abendgestaltung mal abgesehen 😊). Für die STC2021 veranschlagen wir 30 € für Studierende und 50 € für Nicht-Studierende.

Es ist sehr schade, dass wir Euch nicht persönlich in Würzburg begrüßen können, wir hoffen jedoch, dass die STC2021 trotz alledem begeistern und in guter Erinnerung bleiben wird.

Bernd Engels, Volker Engel, Roland Mitric

Sommerschule „Computational Chemistry“ auf Mauritius für 50 junge Wissenschaftlerinnen und Wissenschaftler aus den Sub-Sahara-Staaten

Vom 30.9.2019 bis 11.10.2019 fand eine zweiwöchige Sommerschule „Computational Chemistry“ für 50 junge Wissenschaftlerinnen und Wissenschaftler aus den Sub-Sahara-Staaten auf Mauritius statt, die gemeinsam von Dozenten der Philipps-Universität Marburg und der Universität Mauritius organisiert und mit der Unterstützung weiterer Dozenten geleitet wurde. Die Finanzierung erfolgte zum größten Teil aus Mitteln der Volkswagenstiftung, die die Reise- und Aufenthaltskosten der Teilnehmer aus 10 afrikanischen Ländern und der Dozenten sowie die Lehrmittel finanzierte. Die Veranstaltung war für alle Beteiligten ein großes Abenteuer, da sowohl logistisch als auch inhaltlich Neuland betreten wurde und es viele Unwägbarkeiten gab.

Die Initiative zur Sommerschule entsprang einer seit Jahren existierenden Kooperation zwischen Prof. Ramasami von der Universität Mauritius und Prof. Frenking von der Philipps-Universität. Auf Vorschlag von Prof. Ramasami wurde unter Mitarbeit zweier weiterer Dozenten in Marburg, Prof. Robert Berger und PD Dr. Ralf Tonner, ein gemeinsamer Antrag auf eine Sommerschule „Computational Chemistry“ bei der VW-Stiftung gestellt. Die Disziplin Computational Chemistry bietet sich für den Wissenschaftstransfer in der Chemie für finanzarme Staaten an, da sie für Forschungsarbeiten keine besonders aufwendigen und teuren Instrumente benötigt. Bereits mit relativ moderat ausgestatteten Laptops und PCs können interessante Forschungsergebnisse erzielt werden, mit denen man sich in die internationale Wissenschaftsgemeinschaft einfügen kann. Da es auch für die akademische Forschung kostenfrei nutzbare Programmpakete gibt mit denen Methoden des state-of-the-art nutzbar sind, mangelt es in vielen Entwicklungs- und Schwellenländern zumeist nur an Vorwissen und Erfahrung, um auf dem Gebiet der Computational Chemistry wissenschaftlich arbeiten zu können. Diese Argumente haben die VW-Stiftung überzeugt und der Antrag wurde in vollem Umfang genehmigt.

Im Mai 2019 fand ein Vorbereitungstreffen der insgesamt 10 Dozenten aus Deutschland und Belgien statt, die von den Marburger Initiatoren eingeladen waren und zugesagt hatten. Es wurde ein Programm für die Sommerschule aufgestellt, wonach vormittags die theoretischen Grundlagen der Methoden der Computational Chemistry behandelt wurden, während am Nachmittag praktische Übungen mit vorinstallierten Programmen auf Laptops, die den Teilnehmern zur Verfügung gestellt wurden, erfolgten. Ein großes Unsicherheitspotential lag in dem Unwissen über den Wissensstand der Teilnehmer, so dass entsprechende Flexibilität gefragt war. Die angepeilte Zielgruppe waren junge Dozentinnen und Doktoranden, die aus ihrem Studium zumindest über Vorkenntnisse auf dem Gebiet der Theoretischen Chemie verfügten.

Für die Auswahl der Teilnehmer wurden alle Universitäten von über 40 Staaten der Sub-Sahara-Zone mit der Bitte um Veröffentlichung angeschrieben. Es gab über 250 Kandidaten, die bei der Bewerbung um Auskunft über ihre Kenntnisse und evtl. Erfahrungen auf dem Gebiet der Computational Chemistry gebeten wurden. Schließlich wurden 50 Teilnehmer aus 10 verschiedenen Ländern eingeladen, wobei neben den Kriterien der

Vorkenntnisse auch eine möglichst hohe Zahl von Wissenschaftlerinnen sowie eine Vielzahl verschiedener Nationalitäten angestrebt wurde. Mit Ausnahme einer kurzfristig erkrankten Person sind alle eingeladenen Teilnehmer erschienen. Die nicht unerheblichen logistischen Probleme (Buchung und Zusendung der Flugtickets, Auswahl der Unterkünfte, Bereitstellung der Seminarräume mit ausreichender EDV-Ausrüstung, Catering) wurden von der Arbeitsgruppe von Prof. Ramasami hervorragend gemeistert.

Für alle Beteiligten war der Beginn der Sommerschule am Montag, den 30.09.2019, ein mit Spannung erwarteter Startschuss in eine ungewisse Veranstaltung. Die anfängliche Unsicherheit und Aufregung auf Seiten der Dozenten und Teilnehmer wichen sehr bald zugunsten einer großen Erleichterung beiderseits. Die Dozenten erlebten höchst aufmerksame und wissbegierige Zuhörer, die den dargebotenen Stoff wie trockene Schwämme aufsaugten und nach einer kurzen Scheu die Dozenten in den Pausen und während der Nachmittagsitzungen mit Fragen belagerten. Was bei einigen Teilnehmern gegenüber Studenten in Deutschland vielleicht an Vorkenntnissen fehlte, wurde durch den Eifer und die unbändige Neugier wettgemacht. Von Seiten der afrikanischen Teilnehmer wurde es mit Freude und Begeisterung aufgenommen, dass die Dozenten zu allen Zeiten auf Fragen eingingen und theoretische Details des Vorlesungsstoffes wie auch praktische Fragen bei den Übungen erläuterten. Dies war der Haupttenor am Ende der ersten Woche, als die Teilnehmer in einer Diskussionsrunde gebeten wurden, ihre Eindrücke aus der ersten Woche und ihre Wünsche für die zweite Woche zu artikulieren. Wenn sich die Dozenten nach dem gemeinsamen Abendessen noch zu einer abschließenden Runde im Hotel versammelten, waren zwar Erschöpfung, aber auch ein gutes und befriedigendes Gefühl dabei.

Die zweite Woche verlief organisatorisch im Prinzip wie die erste Woche, aber man war nun vertraut miteinander und mit den organisatorischen Abläufen. Inhaltlich wurde in den zwei Wochen sehr viel Stoff erledigt, der alle Beteiligten viel Kraft kostete. Es kann nicht erwartet werden, dass die Teilnehmer nach dieser Sommerschule den vollen Methodenkanon der Computational Chemistry beherrschen; das ist nicht möglich und war auch nicht das Ziel der Veranstaltung. Aber die Vorlesungen am Vormittag und die praktischen Übungen am Nachmittag sowie die intensiven Diskussionen haben sie in Kontakt mit dem internationalen Forschungsstand gebracht und eine Grundlage gelegt, um dieses Wissen in Zukunft selbst anzuwenden und an Studenten weiterzugeben. Um eine Nachhaltigkeit der Sommerschule zu erreichen, wurde auch inzwischen ein Forum eingerichtet, auf dem sich die Teilnehmer mit den Dozenten weiterhin austauschen können. Das Förderprogramm der VW-Stiftung sieht Finanzierungsmöglichkeiten für weitere Sommerschulen vor. Erste Überlegungen über eine analoge Veranstaltung 2022, bei denen einige Teilnehmer der ersten Sommerschule als Tutoren fungieren könnten, sind daher bereits erfolgt.

Das nachfolgende Foto zeigt die Teilnehmer und Dozenten der Sommerschule „Computational Chemistry“ aus dem Jahr 2019. Am letzten Tag gab es ein Abschlussfest mit Galadinner, Musik und Tanz. Es war eine rundum gelungene Veranstaltung, für die sich all die Mühen gelohnt haben. Die Sommerschule war für die Organisatoren zu Beginn der Planungen ein Projekt mit ungewissem Ausgang – im Rückblick kann sie nur als voller Erfolg verbucht werden!.



Summer School/Workshop on Computational Chemistry
“Knowledge for Tomorrow – Cooperative Research Projects in Sub-Saharan Africa”
University of Mauritius, Mauritius, 29 September 2019 – 12 October 2019



Online Workshop "Molecular Quantum Dynamics Beyond Bound States"

Organizer

PD Dr. Sergey Bokarev
Institut für Physik,
Universität Rostock

Overview

Date: 10-12.03.2021
Place: open Zoom conference
Registered participants: 59 from 12 countries
Invited talks: 23
Contributed talks: 6
Proceedings: special issue in *Molecules*, deadline
31.08.2021

Funding

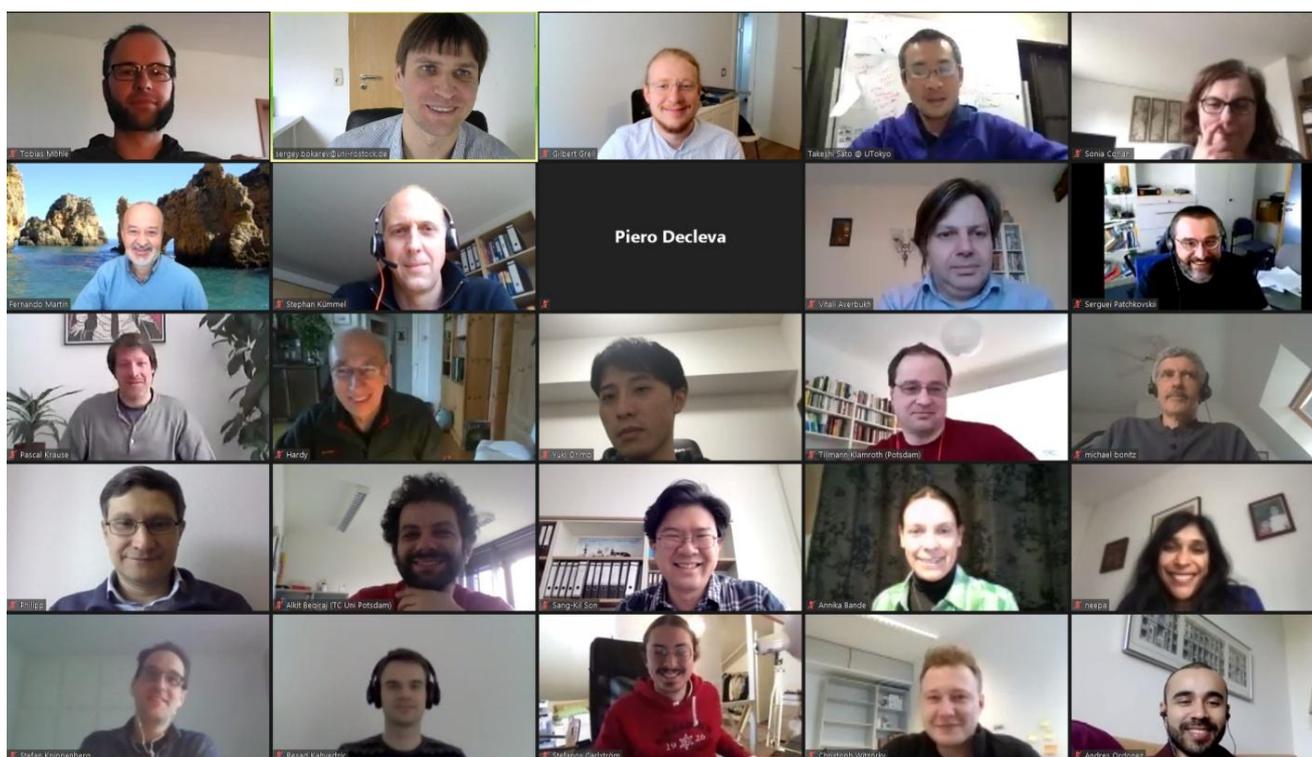
DFG BO 4915/1-1



The photon-in/electron-out processes provide a wealth of information about the electronic structure of the target system, which is encoded in the kinetic energy of the outgoing electron, its angular distribution, spin-polarization, etc. That is why different flavors of steady-state and time-resolved photoemission and Auger spectroscopies enjoy great popularity in studying molecules. This focused workshop addressed theoretical methods to describe various aspects of ionization and autoionization spectroscopies from UV/Vis to X-ray domains, the interaction of molecules and atoms with intense laser fields, as well as the electronic and non-adiabatic dynamics following the expulsion of an electron. It has brought theoretical physicists and chemists together to discuss recent advances in methodological developments and their applications.

Day 1

The first session's focus was the attosecond dynamics of ionization and high harmonic generation (HHG). The conference was opened by the talk of **Takeshi Sato** from the University of Tokyo. He described the underlying theory and implementation of the time-dependent multi-configurational self-consistent field (TD-MCSCF) and optimized coupled-cluster (TD-OCC) methods. With a variety of options, e.g., representing the orbitals in a basis of Gaussian-type functions or with the adaptive finite element approach, one affords an accurate representation of bound and continuum states and the gauge-invariant description of multielectronic dynamics as exemplified for HHG. He also gave a perspective on the application of quantum algorithms to such problems. In his talk, **Karl Michael Ziems** from the University of Jena discussed simple molecular models of reduced dimensionality. They allowed disentangling different ionization pathways such as direct, scattered, and inelastic electron emission manifesting themselves as shake- and knock-up and down effects and the associated Wigner photoionization time delays caused by different mechanisms. Further, **Yuki Orimo** from Tokyo University made an excursion into the technical details of the TD-MCSCF method in its finite element variant. To afford simulations of general molecules, one needs a fine spatial discretization and long-time propagation; he explained how the efficiency of these highly complicated calculations could be dramatically increased by using adaptive mesh refinement and intense parallelization. The morning session ended with an overview of how HHG spectra can be predicted with the tools common for quantum chemistry by **Tillmann Klamroth** from Potsdam University. In particular, he addressed the time-dependent configuration interaction singles (TD-CIS) method employing large atom-centered Gaussian bases to expand the orbitals and represent the continuum together with the heuristic ionization model. On the example of the H_2 molecule, the influence of non-adiabatic effects



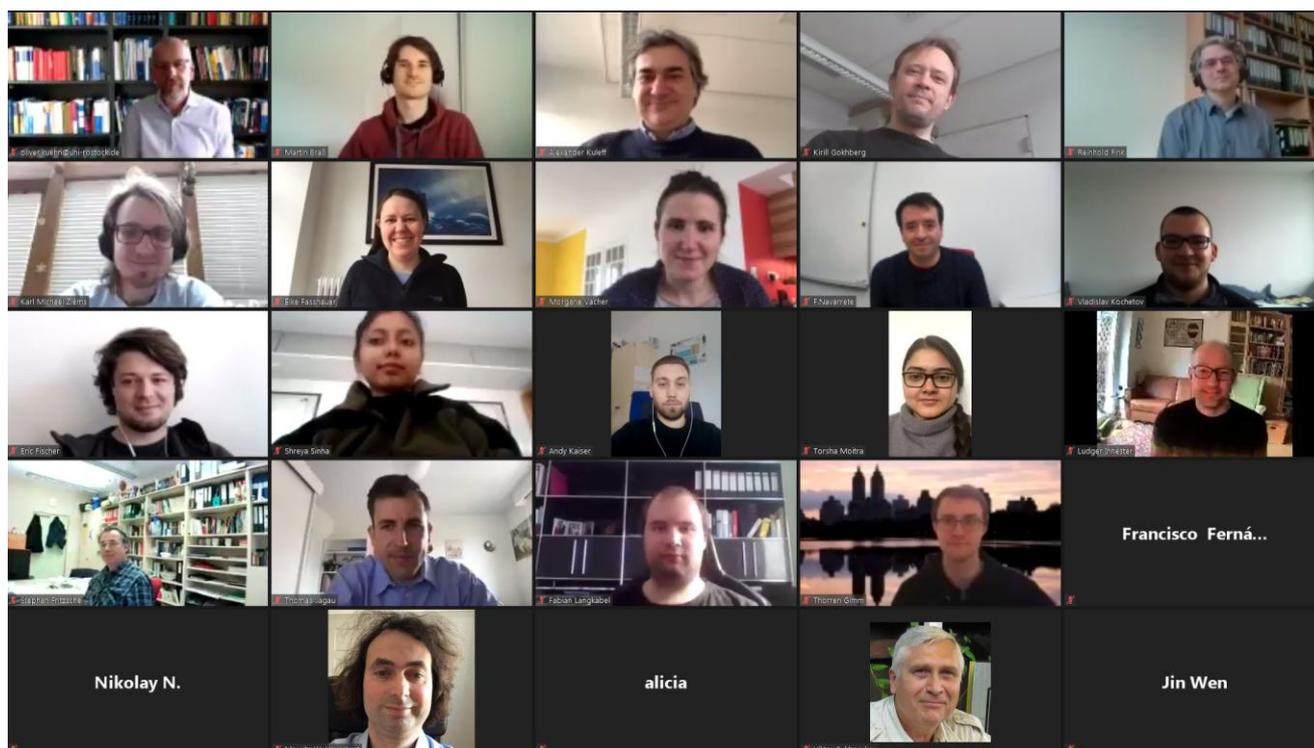
A snapshot of participants in the middle of the second workshop day.

has been studied and the capabilities of the pulse optimization to enhance HHG response have been demonstrated.

The next session zoomed in on the recent progress in the theoretical understanding of the photoelectron spectroscopy of chiral molecules from the circular dichroism effect. **Philipp Demekhin** representing Kassel University, has spoken about molecular frame photoelectron angular distributions (PADs) approaching the interpretation of the complete scattering experiments on oriented molecules. Molecular frame distributions obtained with a single-center expansion provide access to electron and nuclear dynamics, e.g., via angle-resolved Wigner time-delay and fragmentation dynamics. It allows for the enantiosensitive structure determination, distinguishing optical isomers, and probing the internuclear distances in molecules. In the subsequent talk, **Andrés Ordóñez** from Max-Born Institute in Berlin presented a thorough analytical study of the circular dichroism in optical pump/photoelectron probe spectra, performing orientation averaging without partial wave expansion. He aimed at the molecular details on conformers, clustering, substitution, and

vibrational state provided by PADs. Moreover, his detailed analysis allowed him to dissect enantiosensitivity and dichroism for two-color fields and propose an ionization scheme to generate measurable asymmetries easily.

After lunch, the focus of two sessions was put on nuclear dynamics. **Alexander Kuleff** from Heidelberg University surveyed the energy relaxation in polycyclic aromatic hydrocarbons subject to ionization aiming to interpret the XUV (ionization) pump/IR probe experiments. In particular, he focused on the multielectronic non-adiabatic dynamics occurring in the energetically-dense correlation bands just below the second ionization threshold. Although being extremely complicated at first glance due to the presence of many conical intersections, the relaxation dynamics of the whole class of systems was shown to be understood within a simple electron-phonon scattering model. **Morgane Vacher** from the University of Nantes discussed applications of machine learning to understand the chemical dynamics in the smallest chemiluminescence precursor – 1,2-dioxetane. In particular, a neural network was used to predict its dissociation time into fluorescing fragments. In the second part of



(Continuation) A snapshot of participants in the middle of the second workshop day.

her talk, she discussed the core-to-core X-ray emission spectroscopy simulations to probe the structural changes in the Fe carbene photosensitizer.

Closer to the evening, the colleagues from the USA have joined the workshop. In his talk, **Xiaosong Li** from the University of Washington in Seattle presented recent highlights obtained using ab initio nuclear-electronic orbital Ehrenfest dynamics method, including quantum nuclear effects to describe electron, hole, and proton transfer, as well as trapping in photoexcited systems such as water clusters. In a sense, in this method, electrons and protons are treated on the same footing, whereas other nuclei are moving classically on an average electron-proton potential surface. It was followed by Neepa Maitra's talk representing Rutgers University at Newark and giving a broad perspective on the exact factorization approach as applied to various problems with a focus on molecules in strong light fields. She has demonstrated which lessons can be learned from simple systems and processes therein, like the dissociation of H_2^+ and the charge-resonance enhanced ionization of this system in terms of the comparison of approximations with

the exact approach. In the last talk of the first day, **Sonia Coriani** from the Technical University of Denmark has focused on the coupled-cluster and TDDFT (damped) response techniques to predict photoelectron dynamical parameters with the multi-center B-spline representation of the continuum wave functions. She showed numerous examples of the photoionization cross sections and asymmetry parameters for the atomic to moderate-sized molecular systems. In the second part of her talk, she also focused on simulations of the "bound-state" X-ray spectroscopies.

Day 2

The second day started with diving into the sea of strong-field physics. **Serguei Patchkovskii** from Max-Born Institute in Berlin addressed the question of preparing and detecting Kramers-Henneberger ground states, which has been known so far only for excited Rydberg states. He theoretically justified an experimental scheme employing the center-of-mass atomic momentum spectroscopy, allowing for such detection on the example of the triplet helium atom and motivating the ongoing experiments. **Sang-Kil Son** from the

Center for Free-Electron Laser Science at DESY in Hamburg presented an approach to treat multiple photon ionization accompanied by multiple Auger decay events. He took the participants on tour, explaining how to cope with the astronomical amount of the electronic configurations needed to describe the dynamics of the formation of highly charged ions. In particular, he addressed the X-ray regime and theoretical simulation and interpretation of the resonance-enhanced and resonance-enabled multiple ionization (REMPI and REXMI) spectra obtained at free-electron laser facilities. **Vitali Averbukh**, representing Imperial College London, talked about the peculiarities of the theoretical description of the photoionization and Auger pump-probe experiments using the B-spline algebraic diagrammatic construction (ADC) approach. The key point of his talk was the dissection of the ion-photoelectron entanglement and the coherence between ionic states appearing in the ultrafast broadband photoionization of molecules. He has demonstrated how the thus developed theory can be utilized to interpret and design new experiments.

After a break, **Piero Decleva** from the University of Trieste gave an overview of the multi-center B-spline approach to the continuum, the technique frequently mentioned in other talks of the workshop and much relying on his developments. In particular, he discussed the close-coupling TDDFT formulation for the continuum solutions, including interchannel interactions. He showed numerous examples of molecular photoelectron spectra and applications to HHG and transient photoelectron spectroscopy of photoexcited molecules. **Stephan Kümmel** from Bayreuth University discussed the grid-based real-time TDDFT approach to the angularly resolved spectroscopy of the objects relevant to molecular electronics and made a perspective how it can be used to study more complicated processes such as excitation energy transfer in photosynthetic antennas. One of the focuses was the proper balance between computational effort and accuracy in the description of exchange-correlation effects.

The next session, among others, zoomed in on the processes of molecular defragmentation followed by an electron's expelling. In his lecture,

Fernando Martín from the Autonomous University of Madrid discussed how fragmentation could be a probe of the early time electron dynamics in the attosecond XUV-pump/XUV-probe and XUV-pump/IR-probe experiments, where not only interactions of an ion with the continuum but also of electrons in the continuum have to be considered. Accurate theoretical treatment of such processes requires pinpointing the coherent electron dynamics, ionization, and defragmentation, which occur on the timescales from attoseconds to picoseconds, respectively, representing a challenge for the theoretical method. **Victor Despré** from Heidelberg University made an overview of his works on the ultrafast electron dynamics such as charge migration and the possible control of such electron dynamics by the two laser pulses, which, in turn, can pave the way for the control of chemical reactions. In the second part of his talk, he considered non-adiabatic wave packet dynamics to reveal the long-lasting coherence and revival of charge migration in silane and the interpretation of the respective transient absorption experiments. **Stefan Knippenberg** from Hasselt University addressed with several methods such as ADC and TDDFT the issue of the mysterious photoelectron band in norbornane which is present in experimental electron momentum ($e,2e$) spectrum and is absent in the usual photoelectron spectra. In his study, he has found evidence that it can be caused by cage fragmentation and charge separation.

In the final session of the day, **Thomas Jagau** from KU Leuven presented his work on complex scaling and how it can be used to explain strong-field dynamics based on quasi-static quantum chemistry calculations. He considered the applications of the two electronic structure methods derived with the complex scaled basis functions: for small molecules, the CCSD variant was employed, and larger molecular calculations were enabled by the resolution-of-identity and integral prescreening within RI-MP2 technique. The examples showing applications to quasi-static ionization and charge resonance enhanced ionization were presented. **Pascal Krause** from Helmholtz-Zentrum Berlin reported on the usage of the complex absorbing boundaries together

with the time-dependent configuration interaction method to extract information on the photoelectron angular distributions and the shapes of the underlying molecular orbitals. In her closing talk, **Anna Krylov** from the University of Southern California explained how the Fano-Feshbach technique could be applied together with the equation of motion coupled cluster (EOM-CC) electronic structure method and the simple representations of the continuum, e.g., plane or Coulomb wave, to a very efficient calculation of the Auger decay spectra of small molecules. In the second part of her talk, she addressed applying the EOM-CC method to the RIXS spectroscopy of the OH radical in liquid water.

Day 3

Building a bridge to the previous day, the morning session of the third day continued to discuss autoionization. **Martin Braß** from Heidelberg University talked about how the theoretical calculations can be used to explain the very fine details of the energy-dependent band lineshape, such as asymmetries due to the Auger-Meitner effect, on the example of the X-ray excited nickel oxide and electron capture in holmium. The influence of many-body, interference, and environmental effects were discussed. **Annika Bande** from Helmholtz-Zentrum Berlin reported on the three-electron dynamics of the Auger-like interatomic Coulombic decay in quantum dots within a three electron model. The theoretical predictions were shown to hold for different geometric arrangements of quantum dots. **Kirill Gokhberg** representing Heidelberg University, discussed another flavor of autoionization – energy transfer mediated decay in atomic clusters and how the nuclear dynamics can influence its probability. It was shown on the example of the He-Li₂ cluster that despite the large delocalization of the nuclear wave packet, the nature of involved states are imprinted in the electronic decay spectra and can be used to interpret experiments on He-nanodroplets.

Continuing further the topic of autoionization, **Reinhold Fink** from the University of Tübingen discussed the situations when the one-center

approximation is valid for describing Auger spectra of polyatomic molecules, thus allowing for substantial computational savings. He has demonstrated on some examples how this simple treatment can indeed help understand the details of electronic structure and assignment of experimental spectra. In turn, **Gilbert Grell** from the Autonomous University of Madrid reported on how the spherically-symmetric continuum models still accounting for the ionic molecular potential but averaged, such as to take the full advantage of having spherical symmetry, can be used to approach Auger spectra and total decay rates.

The closing session focused on Green's functions theory. **Stephan Fritzsche** from the University of Jena introduced his approach to all-sided atomic calculations, including a plethora of excitation and relaxation events in atoms. He presented his code demonstrating that the high level of abstraction encoded in the program and data structures can render atomic calculations a comprehensive task. In the last talk of the meeting **Michael Bonitz** and **Jan-Philip Joost** from Kiel University discussed the propagation of the non-equilibrium one-particle Green's functions. In particular, the implementation and testing of the improved self-energies and developments making the propagation a linear-scaling step instead of cubic scaling. The applications included atoms and small molecules as well as extended systems like graphene nanoclusters.

These were exciting three days devoted to such a fascinating topic full of new insights and motivating discussions. I want to thank all the participants, speakers, and chairs for contributing.

Sergey I. Bokarev
sergey.bokarev@uni-rostock.de



Computational Catalysis 2050

"Im Jahre 2050 wird **Data Science** als dritte Säule des Erkenntnisgewinns in den Naturwissenschaften unverzichtbar sein, neben *Computation/Simulation* und *Experimentation*. In der Quantenchemie werden wir wissen, ob die theorie-basierte Suche nach besseren quantenmechanischen Näherungsverfahren, die durch clevere Algorithmen die Hardware optimal nutzen, obsolet geworden und durch *Machine Learning* Methoden überflügelt worden ist.

Wenn ich jetzt als Doktorand oder Postdoc anfinge, würde ich mich für Quantenchemie auf (realen) **Quantencomputern** interessieren. Damit könnte die Quantenchemie vielleicht die harte Wand tunneln, die der Lösung von sogenannten Multireferenzproblemen entgegensteht. Diese Methoden werden benötigt, um Systeme mit nahezu entarteten elektronischen Zuständen zu beschreiben, also z.B. Biradikale oder Übergangsmetallverbindungen. Die Physiker nennen das *strongly correlated systems*, wozu magnetische Kopplungen in Übergangsmetalloxiden gehören.

Übergangsmetallverbindungen dominieren in der Katalyse, und wenn das Gebiet *Computational Catalysis* die Limitierungen der nicht prediktiven Dichtefunktionaltheorie überwinden will, sind chemisch genaue (± 4 kJ/mol) Multireferenzmethoden für Systeme mit zwei Übergangsmetallatomen und einer entsprechenden Zahl von Liganden unverzichtbar. Gegenwärtige **Multireferenzmethoden** sind weder auf Systeme dieser Größe anwendbar, noch geht die Genauigkeit für die behandelbaren Systeme über 0,2 eV hinaus. Werden sich 2050 die auf Quantencomputer gesetzten Hoffnungen erfüllt haben, oder wurde auch bei Multireferenzproblemen ein Durchbruch mit *Machine Learning* erzielt?

In der Katalysatorforschung hat sich das Paradigma der **aktiven Zentren** (aktive Phasen) in den letzten 50 Jahren als wissenschaftlich äußerst produktiv erwiesen. Im Jahre 2050 wird *Computational Catalysis* (ebenso wie das Experiment) dieses Paradigma hinter sich gelassen haben und Katalysator und katalytische Reaktion als eine sich dynamisch ändernde Einheit betrachten."

Klatsch und Tratsch

Habilitationen und Berufungen

- Dr. Annika Bande hat sich im Dezember 2020 an der Freien Universität im Fachbereich Theoretische Chemie mit ihrer Arbeit *Electron Dynamics Response of Nanostructured Material on its Environment* und einem Vortrag zu "künstlichen ChemikerInnen" habilitiert, wo sie auch in Zukunft Lehrtätigkeiten übernehmen wird. Sie leitet als entfristete Wissenschaftlerin am Helmholtz-Zentrum Berlin mit einem Freigeist-Fellowship der VolkswagenStiftung die unabhängige Nachwuchsgruppe "Theorie der Elektronendynamik und Spektroskopie".
- Ralf Tonner hat den Ruf nach Leipzig auf die W3-Professur für Theoretische Chemie komplexer Materie (NF Thomas Heine) angenommen und hat dort bereits zum Wintersemester 2020/21 seinen Dienst angetreten.
- Christoph Jacob hat einen Ruf an die Humboldt Universität Berlin auf die W3-Professur für Theoretische Chemie (NF Sauer) abgelehnt und das Bleibeangebot der TU Braunschweig angenommen.
- Michael Römelt hat den Ruf an die Humboldt Universität Berlin auf die W3-Professur für Theoretische Chemie (NF Sauer) angenommen.

Preise

- Gernot Frenking erhält den Erich-Hückel-Preis der Gesellschaft Deutscher Chemiker für das Jahr 2020 für seine besonderen Verdienste um die Untersuchung und Analyse verschiedenster Aspekte der chemischen Bindung.
- Lars Goerigk, Senior Lecturer an der University of Melbourne, gewann eine "2020 Rennie Memorial Medal", die höchste Jungwissenschaftlerauszeichnung des "Royal Australian Chemical Institutes" (RACI).
- Markus Bursch und Lydia Schneider erhalten die von Frau Prof. Sigrid Peyerimhoff gestifteten Forschungs- und Förderpreise: Markus Bursch für seine herausragende Doktorarbeit zum Thema „Structure Optimisation of Large Transition-Metal Complexes with Extended Tight-Binding Methods“ am Mulliken Center für Theoretische Chemie der Universität Bonn, Lydia Schneider für ihre Masterarbeit zum Thema „Synthesis of pyrene-based ladder polymers“ am Kekulé-Institut für Organische Chemie und Biochemie der Universität Bonn.

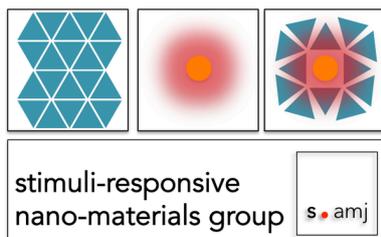
Stimuli-Responsive Nano-Materials Gruppe

Dr. Saeed Amirjalayer

Physikalisches Institut
Center for Nanotechnology (CeNTech)
Center for Multiscale Theory and Computation
Westfälische Wilhelms-Universität Münster
Heisenbergstr. 11, 48149 Münster

s.amirjalayer@wwu.de

<https://www.samirjalayer.de>



Die *Stimuli-Responsive Nano-Materials* Gruppe ist seit 2014 unter der Leitung von Saeed Amirjalayer an der Universität Münster und am *Center for Nanotechnology* ansässig. Das Forschungsziel der Gruppe ist der kontrollierte Transfer von dynamischen Phänomenen auf atomarer/molekularer Ebene in makroskopische Funktionalitäten. Gleichzeitig sollen die Prozesse auf der Nanoskala gezielt durch externe Reize (z.B. Licht oder mechanische Kraft) gesteuert werden, um neue Strategien für die Entwicklung „intelligenter“ Funktionsmaterialien im Bereich der Energiekonversion, Katalyse, Sensorik und Pharmazie zu etablieren.

Um einen grundlegenden Einblick in strukturelle und dynamische Eigenschaften entsprechender funktionaler Nanosysteme zu erhalten, werden in drei zentralen Forschungsfeldern

- 1) Gerichtete und kontrollierte intramolekulare Dynamik von Molekülen,
- 2) Strukturelle Phänomene an hybriden Grenzflächen,
- 3) Dynamik in Nanomaterialien,

unterschiedliche theoretischen Methoden eingesetzt und gezielt mit spektroskopischen und mikroskopischen Techniken kombiniert. Im Zentrum der Forschungsaktivitäten steht hierbei die Entwicklung von konsistenten Methoden zur Beschreibung von Gleichgewichts- und Nichtgleichgewichts-Phänomenen auf verschiedenen Längen- und Zeitskalen in hybriden und hierarchischen Systemen. Hierbei werden genetische Algorithmen und maschinelles Lernen eingesetzt, um atomistische Kraftfelder zu parametrisieren, welche eine akkurate und gleichzeitig effiziente Beschreibung ermöglichen.

Basierend auf quantenmechanischen (QM) Rechnungen, entwickelt die Gruppe im ersten zentralen Forschungsgebiet Kraftfelder, welche eine atomare Beschreibung der intramolekularen Eigenschaften von responsiven (bio-) molekularen Einheiten, wie beispielsweise molekularen Schaltern oder molekularen Maschinen, ermöglichen. Diese atomistischen Modelle werden anschließend angewendet, um die Dynamik in wohldefinierten Umgebungen mit Hilfe von atomistischen Simulationen zu untersuchen. Die *Stimuli-Responsive Nano-Materials* Gruppe konnte in diesem Zusammenhang das erste QM-basierte Kraftfeld zur Beschreibung molekularer Motoren, welche von der Gruppe von Prof. B. L. Feringa (Nobelpreis 2016) synthetisiert worden sind, parametrisieren. Die Anwendung der entwickelten Potentiale ermöglichte die Solvatationsdynamik um diese lichtresponsiven Moleküle auf atomarer Ebene zu untersuchen (Abb. 1). Der Einfluss intramolekularer Dynamik auf die lokale Umgebung, welche elementar für die Übertragung molekularer Phänomene in makroskopische Funktionalität ist, bildet auch Gegenstand atomistischer Simulationen bei denen die Gruppe hybride QM/MM Methoden einsetzt.

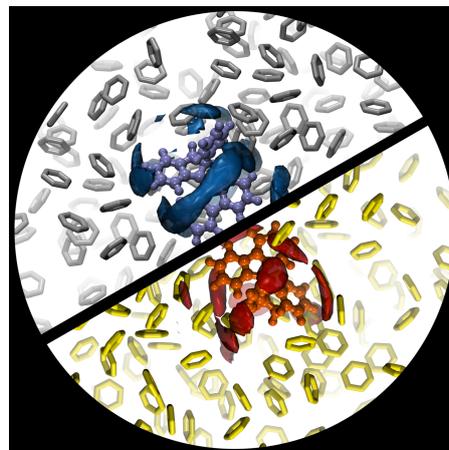


Abb. 1: Illustrative Darstellung der Solvatationsdynamik in Abhängigkeit des Zustandes eines molekularen Motors (*J. Phys. Chem. B* 2020)

Aufbauend auf diesen Arbeiten zu einzelnen Molekülen, befasst sich die Gruppe in einem weiteren Forschungsfeld mit der Modellierung struktureller Phänomene an heterogenen Grenzflächen. Hierbei steht die Korrelation der intermolekularen Wechselwirkung mit der Interaktion zwischen den Molekülen und der Oberfläche im Fokus. Die atomistischen Untersuchungen, welche die Wechselwirkung einzelner Moleküle, aber auch die molekulare Selbstassemblierungen an Grenzflächen umfassen, ermöglichen es, die dominierenden Beiträge hinsichtlich der strukturellen Eigenschaften der funktionalisierten Grenzflächen abzuleiten.

Im dritten Forschungsfeld wird die Dynamik von Molekülen an Grenzflächen untersucht. Dies umfasst unter anderem die atomistische Simulation des Wachstumsprozesses von Molekülschichten, aber auch chemische Reaktionen an Grenzflächen. Durch die Kombination von molekülmechanischen Simulationen mit quantenmechanischen Rechnungen konnten beispielweise die dominierenden strukturellen Beiträge für den Wachstumsprozess von Molekülen an Polymeren-Grenzflächen und deren elektronische Eigenschaften ermittelt werden. Ein weiterer Gegenstand der Forschung ist die Untersuchung von dynamischen Prozessen an Grenzflächen, welche auf die gezielte Wechselwirkung von Molekülen mit Metall-Oberflächen beruhen. In diesem Zusammenhang hat die Gruppe basierend auf atomistischen Rechnungen Reaktionspfade analysiert und konnte somit eine schrittweise Restrukturierung der atomaren Struktur einer Goldoberfläche vorhersagen (Abb. 2). Dieser wurde anschließend mit Hilfe der Rastertunnelmikroskopie experimentell bestätigt.

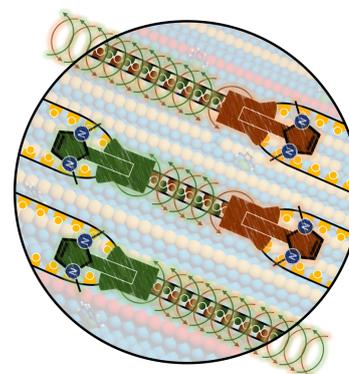


Abb. 2: Illustrative Darstellung der Reißverschluss-artigen Restrukturierung einer Goldoberfläche. (*Angew. Chem. Int. Ed.* 2020)

Ein wesentlicher Schwerpunkt der Forschungsinteressen bilden responsive, poröse Materialien (z.B. Covalent/ Metal Organic Frameworks COFs/MOFs), in denen „dreidimensionale Oberflächen“ vorliegen. Durch die Entwicklung von Kraftfeldern, basierend auf QM Rechnungen für diese Koordinationspolymere, wird die Wechselwirkung von Gastmolekülen mit der Oberfläche auf molekularer Ebene beschrieben. Die Erweiterung dieses theoretischen Ansatzes ermöglicht die Modellierung von lichtresponsiven Einheiten, welche in diesen Nanomaterialien eingebettet sind. Die Gruppen von Amirjalayer wendete diese theoretischen Modelle an, um sowohl die strukturellen Eigenschaften dieser responsiven Matrizen auf atomarer Ebene zu beleuchten (Abb. 3 links), als auch den Einfluss der photoresponsiven Grenzfläche auf die Dynamik der aufgenommenen Gastmoleküle aufzuzeigen (Abb. 3 rechts).

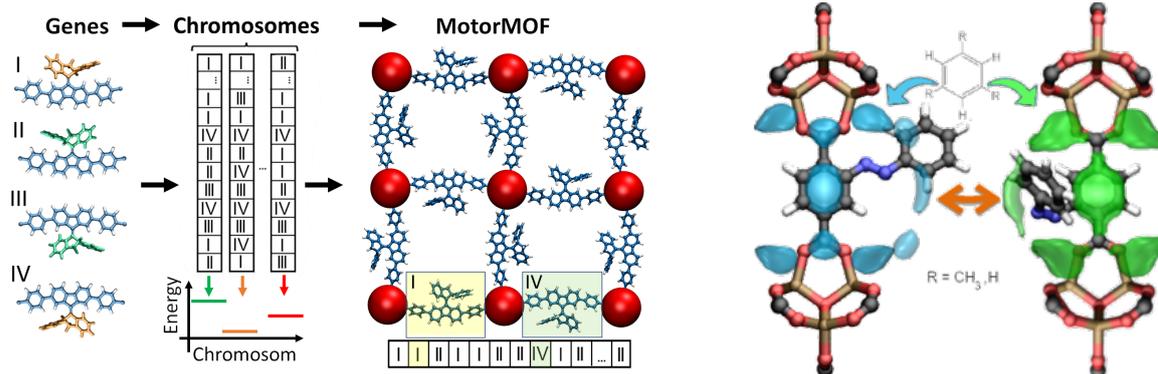


Abb. 3: Strukturanalyse eines molekularen Motors eingebettet in einem Metall-organischen Netzwerk (MotorMOF) mit Hilfe eines genetischen Algorithmus (links, *Phys. Chem. Chem. Phys.* 2021) und Vergleich der freien Energie Landschaft für die Wirt-Gast Wechselwirkung in Abhängigkeit der isomeren Zustände eines Azobenzol-funktionalisierten Metall-organischen Netzwerks (rechts, *Chem. Eur. J.* 2020).

Diese atomistischen Simulationen ermöglichen es, Strategien zu entwickeln, um die Struktur, aber auch die Dynamik von Molekülen durch externe Reize wie Licht zu steuern, welches entscheidend für die Entwicklung von Funktionsmaterialien in vielen Anwendungen (z.B. Katalyse, Pharmazie) ist.

AK Bischoff – Numerische Verfahren in der Elektronenstruktur



PD Dr. Florian A. Bischoff

Institut für Chemie

Humboldt-Universität zu Berlin

Unter den Linden 6, 10099 Berlin

Mail: florian.bischoff@hu-berlin.de

www.chemie.hu-berlin.de/en/forschung-en/theoretical-chemistry/ag-bischoff

Die Arbeitsgruppe Bischoff an der HU Berlin beschäftigt sich mit der numerischen Darstellung und Berechnung der molekularen Wellenfunktion. Mit Hilfe einer numerisch vollständigen Basis lassen sich molekulare Eigenschaften auch in chemisch neuartigen Situationen sehr präzise bestimmen, zudem lässt sich der quantenchemische Modellfehler klar vom Basissatzfehler abtrennen.

Für die Darstellung der Wellenfunktion wird eine Basis aus Multiwavelets (multiresolution analysis, MRA) verwendet, die sich automatisch der Beschaffenheit der darzustellenden Funktion anpasst. Sie besitzt eine hohe Auflösung besitzt wo nötig und eine niedrige wo möglich (Abb. 1). Die eigentlichen Basisfunktionen sind Legendre-Polynome, die in d -dimensionalen Boxen definiert sind, wobei $d = 3$ für effektive Einteilchenmethoden (Hartree-Fock und Dichtefunktionaltheorie), und $d = 6$ oder höher für korrelierte Methoden (MP2 und Coupled-Cluster) gilt.

Operationen wie Addition, punktweise Multiplikation, Differentiation, Integration oder Faltung mit einem Integralkern können direkt in MRA durchgeführt werden, und somit können quantenchemische Modelle ausgedrückt werden.

$$\left(\hat{T} + \hat{V}\right) \Psi = E\Psi \quad \Leftrightarrow \quad \Psi = (T - E)^{-1} \hat{V}\Psi \quad (1)$$

Der Potentialterm \hat{V} hängt dabei vom verwendeten

quantenchemischen Modell ab, und kann den Austausch-, Coulomb-, und Kernpotentialoperator enthalten (in HF), das Fluktuationpotential (in Coupled Cluster), oder die Funktionalableitungen nach der Dichte (in linear-response Theorien).[1]

In der Realraumdarstellung gibt es keine virtuellen Orbitale, in der eine korrelierte Wellenfunktion dargestellt werden könnte. Paarfunktionen, wie in MP2 oder CC2, werden daher direkt auf einem 6-dimensionalen Gitter dargestellt.

$$|\Psi_{ij}\rangle = \sum_{ab} |ab\rangle t_{ij}^{ab} = |\tau_{ij}(r_1, r_2)\rangle \quad (2)$$

Die Bestimmungsgleichungen für Coupled-Cluster lassen sich dennoch auf dem üblichen diagrammatischen Weg herleiten, wobei die virtuellen Orbitallinien a , b , etc als Teilchen r_1 und r_2 interpretiert werden, hier am Beispiel des D_{8b} -Diagramms für CC, zu dem die Singles $\sum_a |a\rangle t_i^a = \tau_i(r)$ beitragen.[2]

$$= g_{cj}^{kl} t_i^c t_k^a t_l^b = g_{\tau_{ij}}^{kl} |\tau_k \tau_l\rangle \quad (3)$$

Die Realraumdarstellung der Wellenfunktion in einer numerisch vollständigen Basis eröffnet völlig neue Möglichkeiten, quantenchemische Rechnungen durchzuführen. Zwei Anwendungsbereiche bieten sich hier besonders an: zum einen neuartige chemische Situa-

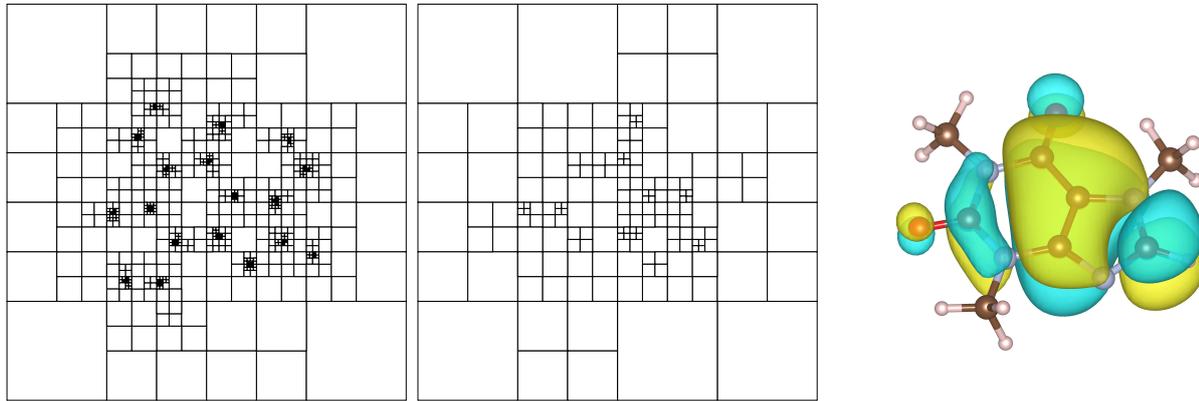


Abbildung 1: Das Koffein-Molekül: MRA-Struktur des Kernpotentials (links), des HOMO (Mitte), sowie ein Isoflächenplot des HOMO (rechts). Man erkennt deutlich die Adaptivität der verschiedenen Funktionen, die an den Kernorten mehr Basisfunktionen platziert als an Orten, wo sich die darzustellende Funktion wenig ändert. Sehr kleine Funktionswerte führen ebenfalls zu einem ausgedünnten Gitter, beispielsweise das HOMO an den Methylgruppen. Die Auflösung des HOMO ist auch deshalb besonders gering, da fast alle Atome in einer Knotenebene des Orbitals liegen und dort daher keine Cusps auftreten, die eine höhere Auflösung erfordern würden.

tionen, für die keine adäquaten Basissätze existieren, zum anderen neue quantenchemische Methoden, um Basissatz-Artefakte aus der Diskussion ausschließen zu können.

Als Beispiel für neuartige Chemie wäre die Untersuchung von Molekülen im starken Magnetfeld bestimmter Sterne anzuführen, wo Gaußfunktionen nur bis zu einer Magnetfeldstärke von etwa 1 a.u. (235 kT) zuverlässige Ergebnisse liefern. Wir konnten in einer Hartree-Fock-Studie zeigen, dass ab 2 a.u. das H_3 -Molekül stabil ist, sowohl im Dublett- als auch im Quartett-Zustand (Abb. 2a). Aufgrund der numerisch vollständigen Basis tritt außerdem das Problem

der Nicht-Invarianz bezüglich des Eichsprungs nicht auf.[3]

Quantenchemische Modelle zu untersuchen ohne Einfluss des Basissatzes ist nur schwer möglich, häufig nur für Atome. Mit Hilfe von MRA lassen sich auch leicht größere Moleküle untersuchen, beispielsweise bei der Bestimmung von lokalen Potentialen für den exakten Austausch (EXX). In einer aktuellen Arbeit konnten wir für das Benzol-Molekül in sehr hoher Genauigkeit das lokale Austauschpotential basierend auf einer HF-Rechnung berechnen und fanden Hinweise auf ein divergierendes Potential entlang der Hauptdrehachse, die auch eine Knotenachse des HOMO ist. (Abb. 2b).

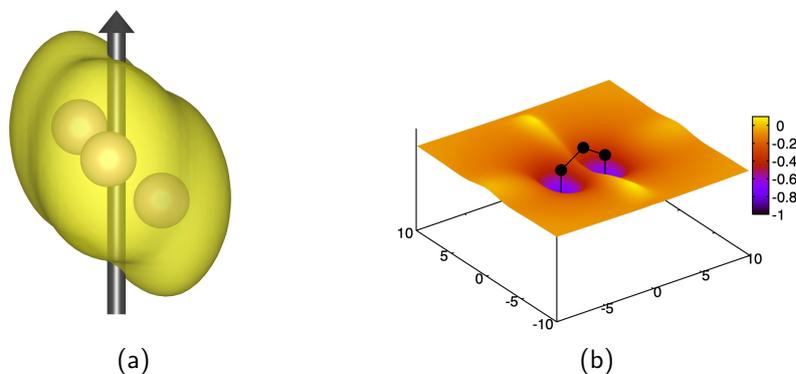


Abbildung 2: (a) Struktur des H_3 -Moleküls im Quartettzustand bei einer Magnetfeldstärke von 5 a.u.. Das Molekül bildet ein nahezu gleichseitiges Dreieck (68 pm, 68 pm, 73 pm), die Molekülebene ist um 42° Grad aus der Normalenebene des Magnetfelds gekippt. Die Bindungsenergie beträgt 170 kJ/mol. (b) Lokales Potential für den exakten Austausch im Benzolmolekül basierend auf einer HF-Dichte. Entlang der Hauptdrehachse beginnt das Potential augenscheinlich zu divergieren.

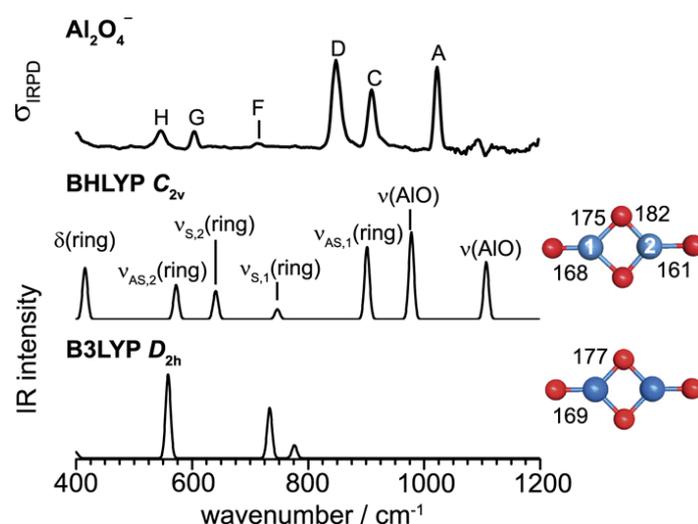


Abbildung 3: Experimentelle und theoretische Schwingungsspektren und Strukturen von Al_2O_4^- . Es findet eine Lokalisierung der Ladung statt, die zu einer Erniedrigung der Molekülsymmetrie führt.

MRA ist in vielerlei Hinsicht orthogonal zu bestehenden Implementierungen mit Gaußfunktionen als Basissatz. MRA liefert wenige Stellen der "richtigen" Zahl, während Gaußfunktionen viele Stellen der systematisch "falschen" Zahl liefert. Es treten weder systematische Fehler noch systematische Fehlerkompensation auf.

Neben der Methodenentwicklung in MRA findet auch Anwendungsforschung seinen Platz im AK Bischoff. In enger Zusammenarbeit mit Experimentatoren wurden die Strukturen und Schwingungsspektren kleiner Metalloxide $\text{M}_n\text{O}_m^{+/-}$ mit $\text{M}=\text{Fe}, \text{Al}$ in einer Reihe von Artikeln untersucht. Außerdem werden unterstützende Rechnungen für die Organik durchgeführt.[4]

Literatur

[1] F. A. Bischoff, Computing accurate molecular properties in real space using multiresolution analysis,

in *Advances in Quantum Chemistry*, Elsevier, 2019.

[2] Coupled-Cluster in Real Space. 1. CC2 Ground State Energies Using Multiresolution Analysis. J. S. Kottmann and F. A. Bischoff, *J. Chem. Theor. Comp.* **13**, 5945 (2017).

[3] Structure of the H_3 molecule in a strong homogeneous magnetic field as computed by the Hartree-Fock method using multiresolution analysis. F. A. Bischoff, *Phys. Rev. A* **101** (2020).

[4] Gas phase structures and charge localization in small aluminum oxide anions: Infrared photodissociation spectroscopy and electronic structure calculations. X. Song, M. R. Fagiani, S. Gewinner, W. Schöllkopf, K. R. Asmis, F. A. Bischoff, F. Berger, J. Sauer, *J. Chem. Phys.* **144**, 244305 (2016).

Nachwuchsgruppen stellen sich vor:

Martin Brehm



Abbildung 1: Der „AK Brehm“ beim STC 2019 in Rostock: (v.l.n.r.) Christoph, Moritz, Martin, Eliane, Christopher, Thomas.

Seit 2016 bin ich Postdoc und Habilitand an der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg am Lehrstuhl von Prof. Daniel Sebastiani. Dort habe ich in den letzten Jahren eine kleine Nachwuchsgruppe aufgebaut (*siehe Abb. 1*). Ein erfolgreich von mir eingeworbener DFG-Einzelantrag sichert die Finanzierung eines meiner Doktoranden sowie meiner eigenen Stelle. Abgesehen von den Forschungsaktivitäten beteilige ich mich aktiv an der Lehre am Institut, was mir sehr viel Freude bereitet. Im Frühjahr 2021 werde ich meine Habilitationsschrift einreichen; das Verfahren läuft bereits. In diesem Artikel möchte ich einige der Forschungsschwerpunkte meiner Gruppe kurz vorstellen.

Doch zunächst ganz kurz zu meinen bisherigen Stationen. Von 2009 bis 2014 habe ich in Leipzig und Bonn in der Gruppe von Prof. Barbara Kirchner promoviert. Danach folgte ein Postdoc-Aufenthalt am Helmholtz-Zentrum für Umweltforschung (UFZ) Leipzig in der Gruppe von Prof. Gerrit Schüürmann bis 2016. Im November 2020 begann ich einen Gastaufenthalt an der Universität Zürich in der Gruppe von Prof. Jürg Hutter, um einige kürzlich entwickelte Methoden im Programmpaket „CP2k“ zu implementieren.

Ich bin ein treuer Besucher der STC-Konferenzen, und habe seit dem STC 2012 in Karlsruhe keines davon ausgelassen. Zweimal hatte ich sogar schon die Gelegenheit, meine Ergebnisse dort in Form eines Vortrages zu präsentieren (*2017 in Basel, 2019 in Rostock*). In insgesamt 45 Publikationen (*h-Index 21*) teile ich meine Forschungsergebnisse mit der Gemeinschaft.



Anschrift:

Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg
Institut für Chemie – Theoretische Chemie
von-Danckelmann-Platz 4
06120 Halle (Saale), Deutschland

Email: Martin_Brehm@gmx.de

Homepage: <https://brehm-research.de>

Vorhersage von Schwingungsspektren

Ein zentrales Arbeitsgebiet meiner Gruppe ist die Entwicklung von Methoden zur Vorhersage von Schwingungsspektren für Systeme der kondensierten Phase. Da diese Ansätze auf *ab-initio*-Molekulardynamik (AIMD) basieren, beschreiben sie den vollen Lösungsmiteleinfluss, liefern realistische Bandenformen, und reproduzieren sogar näherungsweise einige anharmonische Effekte.¹ Die molekularen elektromagnetischen Momente werden durch unser Verfahren der Voronoi-Integration² direkt aus der Gesamtelektronendichte erhalten, was eine zeitaufwändige Lokalisierung der Orbitale erspart. Mit Hilfe einer klassischen Näherung³ sind auch die magnetischen Momente zugänglich, was eine Berechnung von Raman Optical Activity- (ROA-) sowie von Vibrational Circular Dichroism- (VCD-)Spektren ermöglicht.⁴ Diese chiralen spektroskopischen Verfahren gehören zu den wenigen Methoden, welche direkt die absolute Konfiguration organischer Verbindungen aufklären können, weshalb eine Vorhersage solcher Spektren große Relevanz besitzt. Im Jahr 2016 konnten wir erstmals das ROA-Spektrum einer Flüssigkeit mit *ab-initio*-Methoden vorhersagen – es stimmt recht gut mit dem Experiment überein (siehe Abb. 2).⁵

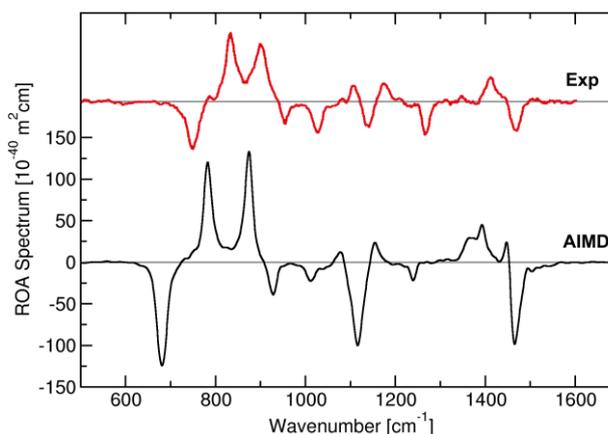


Abbildung 2: Experimentelles (*rot*) und vorhergesagtes (*schwarz*) Raman Optical Activity- (ROA-) Spektrum von flüssigem Propylenoxid.⁵

Drei Jahre später haben wir auf der Grundlage von Realtime-TDDFT eine Methode entwickelt, die es erstmals ermöglicht hat, auch Resonanz-Raman-Spektren von Bulkphasen-Systemen vorherzusagen. Am Beispiel von Uracil in Wasser zeigen wir, dass es unerlässlich ist, die expliziten Lösemittel-Effekte zu berücksichtigen, um das experimentelle Spektrum zu reproduzieren.⁶ Unser Verfahren liefert das Resonanz-Raman-Spektrum nicht nur für eine gewählte Laser-Wellenlänge, sondern für sämtliche Wellenlängen gleichzeitig (siehe Abb. 3). Das ermöglicht ein tiefgreifendes Verständnis der vibronischen Kopplung im untersuchten System sowie das Design neuer, interessanter Experimente.

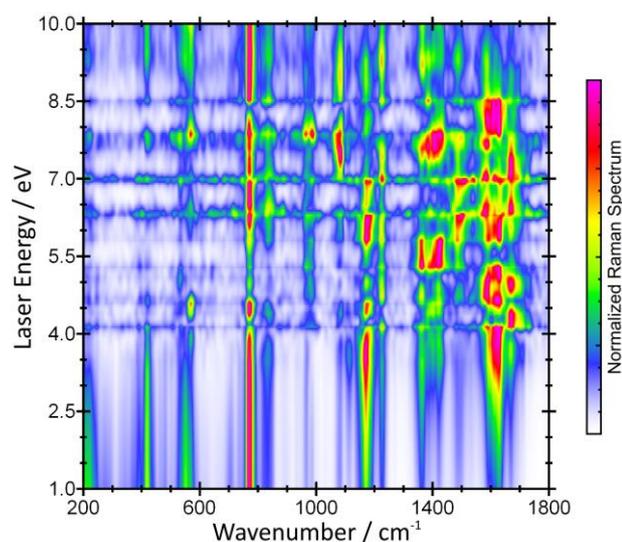


Abbildung 3: Vorhergesagtes Resonanz-Raman-Spektrum von Uracil in Wasser für alle möglichen Laser-Wellenlängen (*vertikale Achse*).^{4,6}

Weiterhin erwähnenswert ist wohl ein in 2018 entwickeltes Verfahren („BQB“) zur effizienten Kompression von Elektronendichte-Trajektorien (*wie sie in der Berechnung von Spektren benötigt werden*), das ein verlustfreies (!) Kompressionsverhältnis von ca. 40 : 1 ermöglicht – unser kleiner Beitrag zur „Big Data“-Problematik.⁷

Momentan arbeiten wir an der Entwicklung eines Ansatzes zur Vorhersage von Sum Frequency Generation- (SFG-)Spektren auf Grundlage der Voronoi-Integration, sowie an der Erweiterung des Resonanz-Raman-Ansatzes auf die Vorhersage von Tip Enhanced Raman Spectroscopy (TERS) und Raman-Mikroskopie.

Lösen von Cellulose in Ionischen Flüssigkeiten

Für einen nachhaltigen chemischen Produktzyklus sind nachwachsende Rohstoffe unerlässlich. Mit einem geschätzten Vorrat von 700 Milliarden Tonnen ist Cellulose dafür ein hervorragender Kandidat. Leider sind die klassischen Verfahren, um Cellulose zu raffinieren (*Kraft-Prozess und Viskose-Prozess*) alles andere als „grün“. Daher war das Interesse groß, als im Jahr 2002 entdeckt wurde, dass bestimmte ionische Flüssigkeiten (ILs) Cellulose lösen können.⁸ Inzwischen werden Prozesse auf Grundlage von ILs sogar industriell zu diesem Zweck eingesetzt, aber es ist nach wie vor nicht völlig verstanden, welche Wechselwirkungen für den Lösungsprozess besonders wichtig sind.

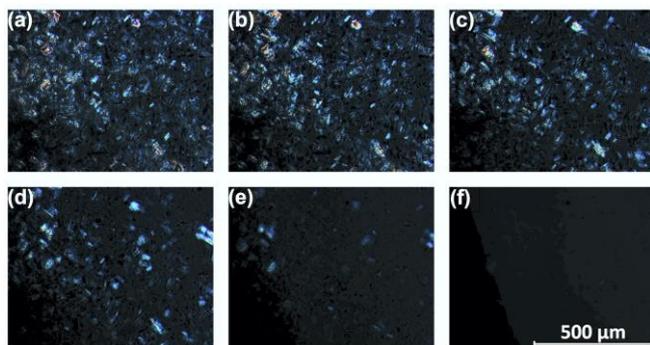


Abbildung 4: Kristalline Cellulose löst sich in der ionischen Flüssigkeit [EMIm][OAc].¹⁰

In meiner Gruppe arbeiten wir daran, mittels Molekulardynamik-Simulationen ein mikroskopisches Verständnis dieses Lösungsprozesses zu erhalten. Aufgrund der nötigen Zeit- und Längenskalen nutzen wir dafür hauptsächlich Kraftfeld-MD. Allerdings sind Kraftfelder zur akkuraten Beschreibung der Wasserstoffbrücken in diesen Systemen kaum verfügbar. Deshalb entwickeln wir selbst derartige Kraftfelder, die wir an Referenz-AIMD-Simulationen anpassen, um die gerichteten Wechselwirkungen möglichst präzise zu modellieren.⁹

Für unsere Forschung gehen wir enge Kooperationen mit experimentell arbeitenden Gruppen ein. So konnten wir kürzlich Triazolium-basierte ILs als neue Klasse von Cellulose-Lösungsmitteln vorschlagen (*siehe Abb. 4*).¹⁰ Einige der synthetisierten ILs wurden von uns erstmals in der Literatur charakterisiert. Im Vergleich zu den sonst eingesetzten Imidazolium-Kationen besitzt das 1,2,3-Triazolium-Kation eine geringere Acidität, was zu einem reduzierten Gleichgewichtsanteil an *N*-heterocyclischen Carbenen (NHCs) in der Lösung führt, und so den Anteil an unerwünschten Nebenprodukten reduziert. In einer Folgestudie konnten wir zeigen, dass aromatische Anionen hervorragend geeignete Bausteine für Cellulose-lösende ILs sind, und konnten ein semi-quantitatives Modell zur Vorhersage der Cellulose-Löslichkeit auf Grundlage von MD-Simulationen aufstellen.¹¹ Die Löslichkeit wird hauptsächlich durch die Konkurrenz der H-Brückendonoren und -Akzeptoren beeinflusst (*siehe Abb. 5*).

Gerade laufende und zukünftige Projekte umfassen die Erweiterung unseres Kraftfeldes auf weitere ILs und Biopolymere sowie die Berechnung von Freien-Energie-Profilen von für die Solvatation relevanten Prozessen mittels Kraftfeld-Metadynamik. Auch der Einfluss des Wasser-Anteils in der IL auf das Löslichkeitsverhalten wird gegenwärtig von uns untersucht.

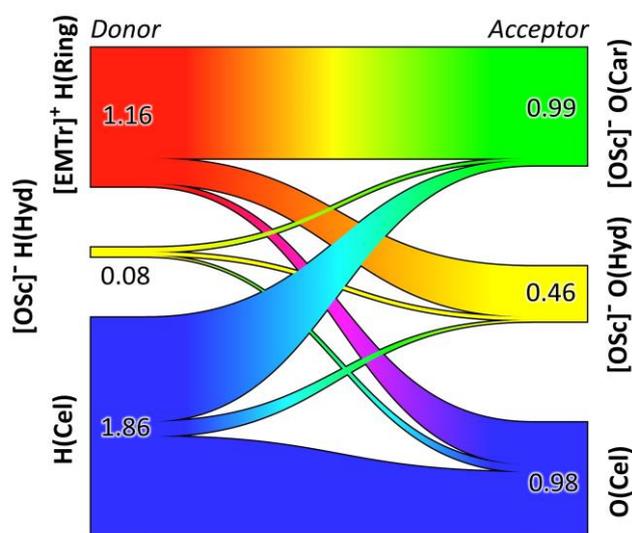


Abbildung 5: Die Konkurrenz zwischen Wasserstoffbrückendonoren (*links*) und -akzeptoren (*rechts*) ist maßgeblich für die Cellulose-Löslichkeit.¹¹

Vorhersage der Selektivität Organischer Reaktionen

Die Vorhersage der Enantioselektivität von organischen Reaktionen hat eine große Relevanz zur Optimierung der Reaktionsbedingungen (*Lösemittel, Katalysator, Temperatur*). Statische Ansätze wie NEB versagen hier häufig, da sie die großen entropischen Effekte jenseits der harmonischen Näherung sowie den expliziten Lösemittel-Einfluss nicht berücksichtigen können. Eine Kombination aus AIMD und Metadynamik ist eine hervorragende Wahl, um die Freien-Energie-Profile und somit die Selektivität solcher Reaktionen in Lösemittel aufzuklären.

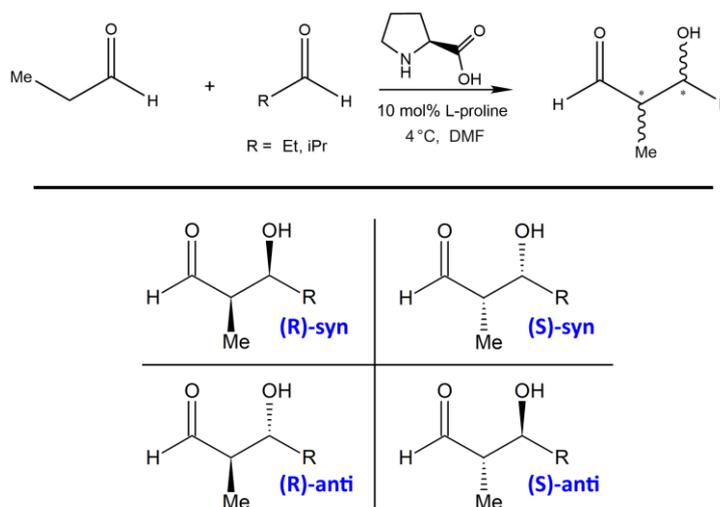


Abbildung 6: Prolin-katalysierte Aldol-Reaktion zweier Aldehyde. Das (*S*)-*anti*-Produkt wird bevorzugt gebildet.¹²

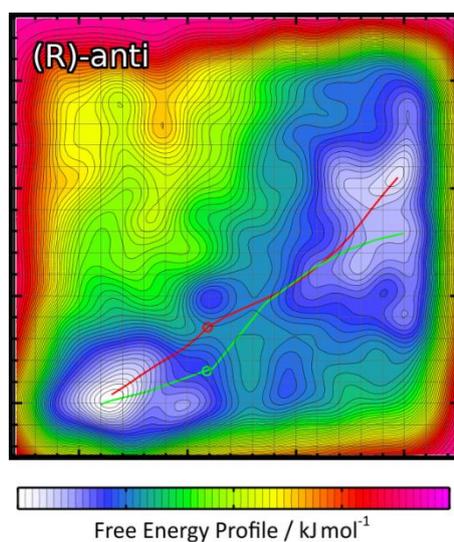


Abbildung 7: Freie-Energie-Profile ermöglichen die Vorhersage der Stereoselektivität.¹²

Leider treten in solchen Simulationen viele unerwünschte Nebenreaktionen der (*nach Bindungsbruch*) reaktiven Spezies mit dem Lösemittel auf, wodurch die erforderliche Rechenzeit stark ansteigt. Wir haben kürzlich ein Simulationsprotokoll namens „Hybrid AIMD“ entwickelt,¹² das diese unerwünschten Nebenreaktionen unterdrückt, und damit das gesamte Verfahren deutlich effizienter macht. Damit waren wir in der Lage, die Enantioselektivität einer organokatalytischen Reaktion in explizitem Lösungsmittel (*siehe Abbildung 6*) korrekt vorherzusagen – einschließlich dem Einfluss des Substituenten R auf das *syn* : *anti*-Verhältnis.¹² Eines der berechneten Freien-Energie-Profile ist in Abb. 7 gezeigt. Unser Verfahren ist auch auf eine Vielzahl anderer Reaktionen anwendbar (*in Arbeit*).

Weitere Projekte

Wie bereits ersichtlich wurde, liegt unser Fokus auf der Beschreibung von komplexen Systemen der flüssigen Phase. Abseits der genannten Beispiele habe ich zu vielen weiteren Studien an Systemen dieser Kategorie beigetragen – darunter z. B. Membranen, Deep Eutectic Solvents (DES), mikroheterogene Mischungen, Interfaces, Droplets und Adsorptionsphänomene an Festkörperoberflächen. Ich bin davon überzeugt, dass besonderer wissenschaftlicher Wert in der Kooperation zwischen theoretisch und experimentell arbeitenden Kollegen liegt. Im Rahmen solcher Kooperationen haben meine Gruppe und ich bereits dazu beigetragen, experimentelle Ergebnisse aus den Gebieten der Infrarot-, Raman-, NMR-, EPR- und dielektrischen Spektroskopie sowie dynamischer Lichtstreuung (DLS) und Neutronenbeugung mit Simulationsdaten zu komplementieren oder zu erklären. Mehr Informationen dazu finden sich auf meiner Homepage: <https://brehm-research.de>

Was die Entwicklung weiterer Methoden betrifft, ist die Voronoi-basierte Domänen-Analyse erwähnenswert, die wir vor 6 Jahren publiziert haben (siehe Abb. 8).¹³ Sie ermöglicht bisher unerreichte Einblicke in die Mikroheterogenität und Mikrophasen-separation von flüssigen Mischungen. Abgesehen davon habe ich letztes Jahr zur Entwicklung eines Markov-Modells beigetragen, das die akkurate Beschreibung von Protonen- und Ionentransport in nicht-idealen Festkörpern bis hin zur Mikrosekunden- und Mikrometer-Skala ermöglicht.¹⁴ Solche Modelle haben große Relevanz für die Entwicklung neuer Festkörper-Elektrolyte für Hochtemperatur-Brennstoffzellen oder in der Batterieforschung.

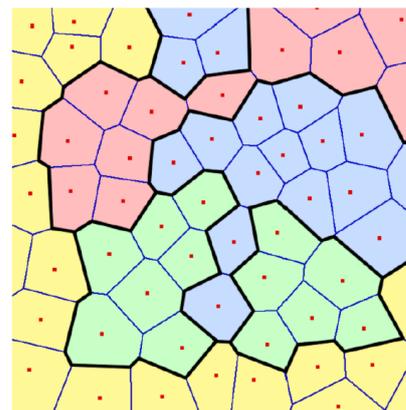
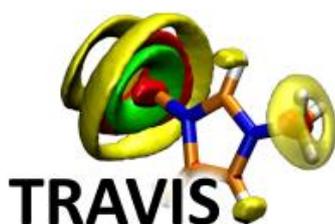


Abbildung 8: Voronoi-basierte Domänenanalyse (schematisch).¹³

Zuletzt möchte ich noch kurz meine Aktivitäten bei der Entwicklung von Software thematisieren. Ich bin Mit-Entwickler des bekannten Quantenchemie-Programmpaketes „ORCA“ und trage dort die Verantwortung für das Molekulardynamik-Modul, das seit 2017 enthalten ist und bereits rege genutzt wird. Mit dem Release von ORCA 5.0 bekommt auch das MD-Modul einige zusätzliche nützliche Funktionen wie z. B. wohltemperierte Metadynamik und Nosé–Hoover-Kettenthermostate.



Weiterhin bin ich der Hauptentwickler des freien Softwarepaketes „TRAVIS“ zur Auswertung von Simulationstrajektorien.^{4,15} TRAVIS war ursprünglich mein Promotionsprojekt, wird jedoch inzwischen weltweit von einigen Dutzend Arbeitsgruppen regelmäßig eingesetzt (bereits über 500 Zitate).¹⁵ Siehe auch <http://www.travis-analyzer.de>

Während meines aktuellen Aufenthaltes an der Universität Zürich implementiere ich einige neue Methoden in das Programmpaket „CP2k“. Bereits abgeschlossen sind die Arbeiten zur Integration der Voronoi-Integration² und des komprimierten BQB-Dateiformates,⁷ die beide bereits in CP2k 8.1 verfügbar sind.

Literatur

- [1] M. Thomas, M. Brehm, R. Fligg, P. Vöhringer, B. Kirchner, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **2013**, *15*, 6608–6622.
- [2] M. Thomas, M. Brehm, B. Kirchner, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **2015**, *17*, 3207–3213.
- [3] M. Thomas, B. Kirchner, *J. Phys. Chem. Lett.* **2016**, *7*, 509–513.
- [4] M. Brehm, M. Thomas, S. Gehrke, B. Kirchner, *J. Chem. Phys.* **2020**, *152* (16), 164105.
- [5] M. Brehm, M. Thomas, *J. Phys. Chem. Lett.* **2017**, *8* (14), 3409–3414.
- [6] M. Brehm, M. Thomas, *J. Chem. Theory Comput.* **2019**, *15* (7), 3901–3905.
- [7] M. Brehm, M. Thomas, *J. Chem. Inf. Model.* **2018**, *58* (10), 2092–2107.
- [8] R. Swatloski, S. Spear, J. Holbrey, R. Rogers, *J. Am. Chem. Soc.* **2002**, *124*, 4974–4975.
- [9] E. Roos, M. Brehm, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **2021**, *23*, 1242–1253.
- [10] M. Brehm, M. Pulst, J. Kressler, D. Sebastiani, *J. Phys. Chem. B* **2019**, *123* (18), 3994–4003.
- [11] M. Brehm, J. Radicke, M. Pulst, F. Shaabani, D. Sebastiani, J. Kressler, *Molecules* **2020**, *25* (15), 3539.
- [12] M. Weiß, M. Brehm, *Molecules* **2020**, *25* (24), 5861.
- [13] M. Brehm, H. Weber, M. Thomas, O. Hollóczki, B. Kirchner, *ChemPhysChem* **2015**, *16* (15), 3271–3277.
- [14] C. Dreßler, G. Kabbe, M. Brehm, D. Sebastiani, *J. Chem. Phys.* **2020**, *152* (16), 164110.
- [15] M. Brehm, B. Kirchner, *J. Chem. Inf. Model.* **2011**, *51* (8), 2007–2023.

Molekulare Elektronenstruktur in komplexen Umgebungen



PD Dr. Sebastian Höfener

Institut für Physikalische Chemie
Karlsruher Institut für Technologie (KIT), Campus Süd
Fritz-Haber-Weg 2, 76131 Karlsruhe

E-Mail: hoefener@kit.edu

Web: <https://www.ipc.kit.edu/theochem/841.php>

Für Moleküle im Vakuum müssen die dominierenden Effekte der Elektronenkorrelation genau erfasst werden, um molekulare Eigenschaften akkurat beschreiben zu können. In komplexen Umgebungen können sterische Effekte oder elektronische Wechselwirkungen jedoch die Größenordnung der Korrelationseffekte erreichen oder diese sogar überragen. Die genaue Beschreibung der Korrelation in Gegenwart von Umgebungseffekten ist in vielen Fällen daher unumgänglich, um experimentelle Beobachtungen verstehen zu können. Dieses Ziel kann durch Einbettung korrelierter Wellenfunktionen in explizite Umgebungen erreicht werden. Hierdurch wird nicht nur die Routineanwendung traditioneller quantenchemischer Methoden auf größere Systeme ermöglicht, sondern es wird außerdem ein konzeptuelles Verständnis gefördert, indem beispielsweise der Beitrag polarisierter molekularer Eigenschaften zum Verhalten des Supersystems quantifiziert werden kann. Mit den Arbeiten zur molekularen Elektronenstruktur in komplexen Umgebungen erfolgt aktuell eine Beteiligung als PI am [SFB 1249 "N-Heteropolyzyklen als Funktionsmaterialien"](#) sowie am [GRK 2450 "Tailored Scale-Bridging Approaches to Computational Nanoscience"](#).

Forschung

Der Schwerpunkt der Forschung liegt auf der Entwicklung neuer Methoden und deren Anwendung auf Moleküle in komplexen Umgebungen. Hierbei stehen Wellenfunktionsansätze im Vordergrund, zu denen insbesondere effiziente Coupled-Cluster-Methoden zählen sowie Verfahren basierend auf Konfigurationswechselwirkung (CI). Die hierbei erhaltenen Elektronendichten werden schließlich mittels Frozen-Density-Embedding (FDE) in eine explizite chemische Umgebung eingebettet. Diese Wellenfunktions-Embedding-Kombination ermöglicht eine ausgewogene Behandlung der elektronischen Struktur in Anwesenheit von Umgebungseffekten. Praktisch alle Arbeiten erfolgen in dem eigenen Quantenchemie-Programm KOALA, das für diesen Zweck entwickelt wurde [1].

Für die Einbettung von Wellenfunktionen in eingefrorene Dichten der Umgebungsmoleküle wurde ein allgemeiner theoretischer Rahmen entwickelt [2]. Grundlegend ist hierbei die Aufteilung der supermoleku-

laren Dichte in Subsystemdichten, die in der Regel den im Supermolekül vorkommenden Moleküldichten entsprechen:

$$\rho_{\text{tot}}(\mathbf{r}) = \sum_i \rho_i(\mathbf{r}). \quad (1)$$

Diese Partitionierung der Dichte erlaubt ebenfalls die Partitionierung der Energie, welche exemplarisch für ein eingebettetes Chromophor wie folgt lautet:

$$E_{\text{tot}}[\rho_{\text{Chromophor}}, \rho_{\text{Umgebung}}] = E_{\text{Chromophor}}[\rho_{\text{Chromophor}}] + E_{\text{Umgebung}}[\rho_{\text{Umgebung}}] + E_{\text{WW}}[\rho_{\text{Chromophor}}, \rho_{\text{Umgebung}}], \quad (2)$$

wobei 'WW' die Intersubsystem-Wechselwirkung beschreibt. Die Wechselwirkungsenergie ist hierbei ausschließlich über die individuellen Subsystemdichten definiert und Supermolekül-Intermediate sind nicht notwendig. Wellenfunktionen und Orbitale verschiedener Subsysteme sind in diesem Ansatz immer unabhängig und somit untereinander nicht orthonormiert.

Das KOALA-Programm wurde unter anderem verwendet, um UV/vis-Absorptionsspektren von Bis-Triazin-Pyridin (BTP)-Liganden in Lösung zu untersuchen [3]. Die experimentellen Ergebnisse zeigen für diese Liganden eine solvatochrome Verschiebung von etwa 0.5 eV, welche abhängig von der Lösungsmittelzusammensetzung ist. Da diese Verschiebung mit einfachen Kontinuumsmodellen wie beispielsweise PCM quantitativ nicht erfasst werden kann, werden explizite Umgebungen benötigt, siehe Abb. 1. Während die berechneten und experimentellen Anregungsenergien für BTP-Liganden ohne Umgebung gut übereinstimmen, ist ein Vergleich in Lösung mit konventionellen theoretischen Methoden aufgrund der anwachsenden Rechenzeit für das BTP-Molekül mit 100 Wassermolekülen nicht unmittelbar möglich. Mithilfe der Einbettung konnte der BTP-Ligand in Lösung untersucht werden, wobei eine Reihe von Molekuldynamik-Snapshots (MD-Snapshots) verwendet wurden, für die jeweils die ersten 30 vertikalen Übergänge berechnet wurden. Dieses Verfahren reproduziert die experimentell gefundene solvatochrome Verschiebung und kann auf konventionellen Computer-Clustern durchgeführt werden.

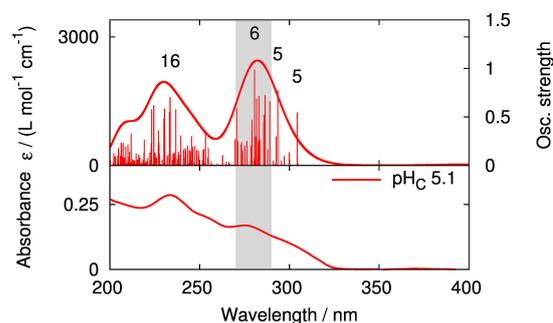
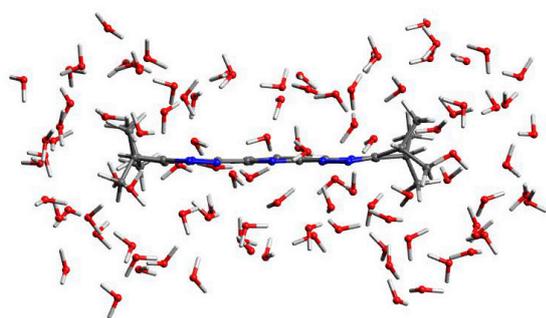


Abbildung 1: Links: Molekuldynamik-Snapshot von *iPr*-BTP mit einer Solvationshülle von 4.5 Å für das FDE-Verfahren im KOALA-Programm. **Rechts:** Simuliertes Absorptionsspektrum (oben) unter Verwendung der niedrigsten 30 Anregungsenergien von deprotoniertem *iPr*-BTP mit Lösungsmittel gemittelt über MD-Snapshots, verglichen mit dem experimentellen Spektrum (unten). [3]

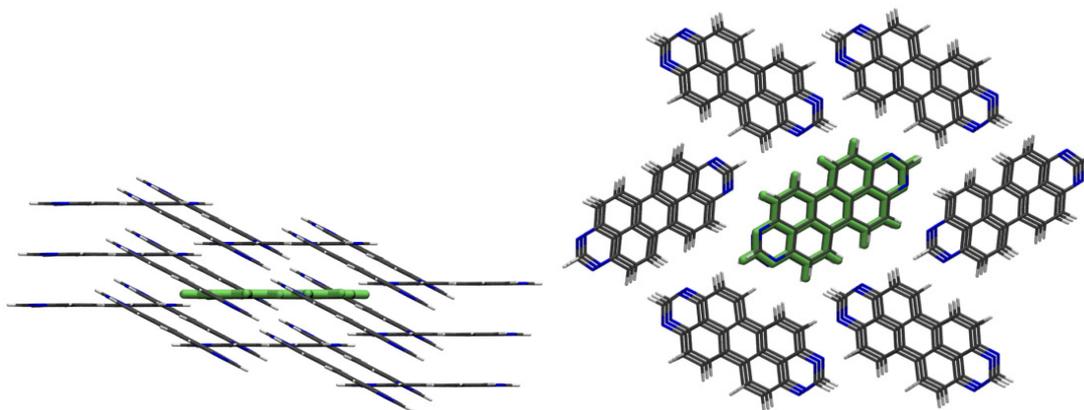


Abbildung 2: Seitenansicht (links) und Draufsicht (rechts) eines Clusters, bestehend aus 7 Reihen mit jeweils 3 Schichten, die insgesamt 21 H-TAPP-H-Moleküle (756 Atome) ergeben, der aus der experimentellen Kristallstruktur extrahiert wurde und einen $\pi - \pi$ -Abstand von 3.37 Å aufweist.

Das KOALA-Programm wurde in einer anderen Arbeit dazu eingesetzt, mithilfe von Wellenfunktionsmodellen den Einfluss der Molekülkristall-Umgebung auf Ionisierungsenergien (IP) und Elektronenaffinitäten (EA) zu untersuchen [4]. Diese können als molekulare Kenngrößen verwendet werden, um eine mögliche Leitfähigkeit organischer Halbleiter abzuschätzen. Ein Beispiel für n-Kanal-Halbleiter stellen Tetra-aza-peropyrene (TAPPs) dar, die als geordnete Molekülkristalle kondensieren, vgl. Abb. 2. Sowohl der gesamte Festkörper als auch das gezeigte Clustermodell, bestehend aus 756 Atomen, liegen hierbei deutlich jenseits der Anwendungsmöglichkeit von traditionellen Wellenfunktionsmethoden, während andererseits Dichtefunktionaltheorie (DFT) im Einteilchenbild weder qualitativ noch quantitativ das Verhalten von IP oder EA in solchen Clustern beschreibt. Die entwickelten Wellenfunktions-FDE-Methoden ermöglichen schließlich die Berechnung der gesuchten Eigenschaften für Monomere sowie Dimere in solchen oder größeren Clustern.

Ausgewählte Veröffentlichungen

- [1] *The KOALA program: wave-function frozen-density embedding*, S. Höfener, *Int. J. Quantum Chem.* e26351 (2020).
- [2] *Molecular properties via a subsystem density functional theory formulation: A common framework for electronic embedding*, S. Höfener, A. S. P. Gomes, L. Visscher, *J. Chem. Phys.* **136**, 044104 (2012).
- [3] *Computing UV/vis spectra using a combined molecular dynamics and quantum chemistry approach: bis-triazin-pyridine (BTP) ligands studied in solution*, S. Höfener, M. Trumm, C. Koke, J. Heuser, U. Ekström, A. Skerencak-Frech, B. Schimmelpfennig, P. J. Panak, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **18**, 7728 (2016).
- [4] *Analytical nuclear gradients for electron-attached and electron-detached states for the second-order algebraic diagrammatic construction scheme combined with frozen-density embedding*, J. Liu, C. Hättig, S. Höfener, *J. Chem. Phys.* **152**, 174109 (2020).

Quantenchemie biologischer Systeme

Dr. Jan Philipp Götze

Freie Universität Berlin

Institut für Chemie und Biochemie

Fachbereich Physikalische und Theoretische Chemie

Arnimallee 22, Room A.211

14195 Berlin, Germany

Tel.: +49 30 838 52645 (Corona crisis: send mails!)

E-Mail: jan.goetze@fu-berlin.de

Homepage: <https://jgoetze.userpage.fu-berlin.de>

ResearchGate profile: https://www.researchgate.net/profile/Jan_Philipp_Goetze



Since February 2018, the department Physical and Theoretical Chemistry at the Freie Universität Berlin hosts the DFG-funded group “Quantenchemie biologischer Systeme”, led by Jan Götze. The group additionally consists of a PhD student, M.Sc. Simon Petry, who has joined us in April 2019, as well as several master, bachelor and project students, currently totaling seven members. The group is hosted by Prof. Keller (Molecular Dynamics).

Our group focuses on processes in chromophores that are affected by the influx of high energy photons. These photons are a potentially untapped source of energy in several systems in which pre-conversion to lower wave lengths is observed (e.g., photosynthesis). Harnessing these processes and potentially accessing the corresponding energy resource would open a wide variety of applications in artificial and biological systems alike.

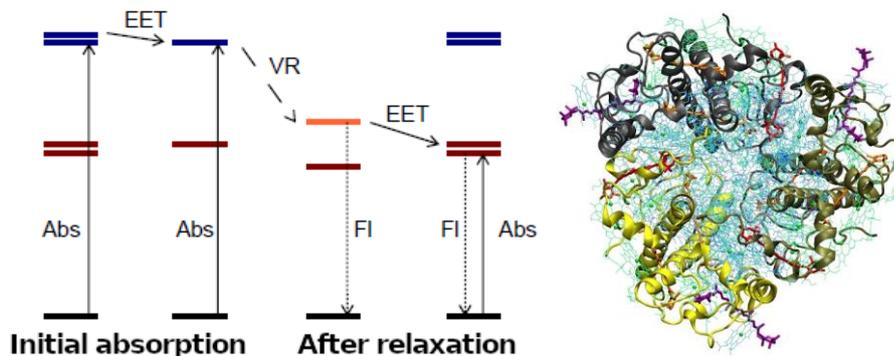


Figure 1: Non-Kasha energy transport schemes (left); structure of plant light harvesting complex II (right), PDB entry 2BHW

We are specifically interested in describing energy transport which is not covered by a simple Kasha's rule approach. Biological systems with tightly clustered chlorophylls may experience such effects, as chromophores are strongly coupled, spatially close and have multiple absorption bands (Figure 1, left). Our main research objects are therefore the plant photosynthetic antenna proteins (CP29; LHCII, Figure 1, right), but also a variety of similar complexes from other organisms. In cooperation with local

groups, we also explore the effects of high energy UV/visible light on small organic chromophores (Figure 2).

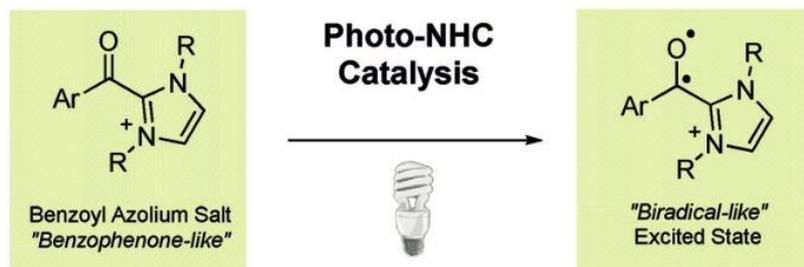


Figure 2: Photoactivation of organic catalyst by blue light (from *Angew. Chem. Int. Ed.* 59 (8) pp. 3190-3194)

To pursue our goals, we employ range-separated (TD-)DFT, as well as other, more expensive approaches. Most notably we seek to establish DFT/MRCI as our standard method when single reference approaches are insufficient; this requires extensive benchmarking to make sure that the computed answers are comparable to experiment. The great challenge that we face is that different chromophores will be described in different quality by different methods, but comparison between these systems requires similar quality for all components.

Obtaining results close to the experiment is additionally very demanding in the biological context. Proteins and solvent environments can be highly flexible, and to include the corresponding effects, we employ QM/MM approaches. We have also to this end developed our own Python software package, `gmx2qmmm`, which allows us to smoothly connect the versatile Gromacs software to a variety of QM programs.

Die Arbeitsgruppe Theoretische Chemie an der Universität Bremen stellt sich vor

Kontakt:

Prof. Dr. Tim Stauch
Universität Bremen
Institut für Physikalische und Theoretische Chemie
Leobener Str. NW2
28359 Bremen

Tel.: +49 (0)421/218-50280
Fax: +49 (0)421/218-63288

Email: tstauch@uni-bremen.de
Web: <https://www.uni-bremen.de/ag-stauch>



Die Arbeitsgruppe Theoretische Chemie an der Universität Bremen besteht seit Juli 2019 und wird geleitet von Tim Stauch, dessen Tenure-Track-Professur Teil des Bund-Länder-Programms zur Förderung des wissenschaftlichen Nachwuchses ist. Die Gruppe ist am Institut für Physikalische und Theoretische Chemie im Fachbereich Biologie/Chemie der Universität Bremen angesiedelt und an das Bremen Center for Computational Materials Science (BCCMS) sowie das MAPEX Center for Materials and Processes angebunden.

Ein Forschungsschwerpunkt der AG Stauch ist die Entwicklung quantenchemischer Methoden zur Simulation von Atomen und Molekülen unter hydrostatischem Druck.¹ Vor Kurzem hat die AG Stauch zusammen mit den Arbeitsgruppen von Martin Head-Gordon und Andreas Dreuw die GOSTSHYP (*Gaussians On Surface Tesserae Simulate HYdrostatic Pressure*) Methode vorgestellt,² in der hydrostatischer Druck durch ein homogenes Feld von Gauß-Potenzialen, welche die Elektronendichte komprimieren, simuliert wird. Die Gauß-Potenziale werden auf der diskretisierten van-der-Waals-Oberfläche eines Moleküls verteilt und haben die Form

$$G_j(\vec{r}) = p_j \exp(-w_j(\vec{r} - \vec{r}_j)^2) . \quad (1)$$

\vec{r}_j bezeichnet den Mittelpunkt des Gauß-Potenzials G_j . Durch gezieltes Einstellen der Parameter p_j und w_j gelingt es, einen benutzerdefinierten Druck auf ein Atom oder ein Molekül auszuüben. Der Energiebeitrag des Drucks in der GOSTSHYP-Methode ergibt sich durch Berechnung von Drei-Zentren-Überlapp-Integralen zwischen den Basisfunktionen ϕ und den Gauß-Potenzialen und anschließender Kontraktion mit der Elektronendichte gemäß

$$E_{\text{GOSTSHYP}} = \sum_j \sum_{pq} D_{pq} \langle \phi_p | G_j(\vec{r}) | \phi_q \rangle . \quad (2)$$

Da auch Kerngradienten implementiert sind, sind nicht nur SCF-Rechnungen, sondern auch Geometrieoptimierungen und *ab initio* Molekulardynamik-Simulationen von Molekülen unter Druck möglich. Die Kerne folgen hierbei der veränderten Elektronendichte und nehmen eine komprimierte Geometrie ein. Literaturwerte für Energien, strukturelle Parameter und Dipolmomente unter Druck konnten mit GOSTSHYP reproduziert werden.² Des Weiteren wurden druckinduzierte chemische Reaktionen untersucht.

Eine weitere, konzeptionell einfachere Methode zur Simulation von Molekülen unter Druck wurde von der AG Stauch kürzlich eingeführt. In der X-HCFF (*eXtended Hydrostatic Compression Force Field*) Methode wird hydrostatischer Druck durch Kerngradientenbeiträge, die orthogonal zur van-der-Waals-Oberfläche eines Moleküls wirken, simuliert (Abbildung 1).³ Trotz der konzeptionellen Einfachheit und der Vernachlässigung des direkten Einflusses des externen Drucks auf die Elektronendichte konnten berechnete und experimentelle Literaturdaten zu strukturellen Parametern und Raman-Spektren unter Druck reproduziert und druckinduzierte chemische Reaktionen simuliert werden.

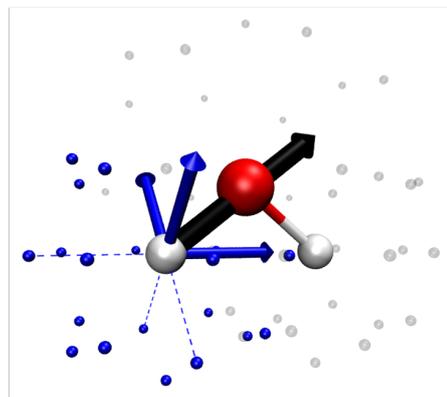


Abbildung 1: Schematische Darstellung ausgewählter Gradientenbeiträge in X-HCFF im Wassermolekül.³ Blaue Pfeile repräsentieren Kräfte, die auf eines der Wasserstoffatome orthogonal zur molekularen Oberfläche wirken. Der resultierende Kraftvektor ist in schwarz dargestellt.

Zukünftig sollen bei den vorgestellten Modellen Umgebungseffekte wie benachbarte Lösemittelmoleküle berücksichtigt werden, um die Vergleichbarkeit mit Experimenten zu verbessern. Ziel dieser Arbeiten ist die Etablierung neuer, unkonventioneller Syntheserouten in der Chemie durch hohen Druck sowie die Entwicklung von Materialien, die durch Druck einen gewünschten Schaltvorgang ausführen. Solche Materialien eignen sich potenziell für neuartige Speichermedien sowie für die Trennung und Aktivierung von Gasen.

Neben der Simulation von Molekülen unter Druck werden in der AG Stauch die mechanischen Eigenschaften von Materialien mithilfe von quanten-mechanochemischen Methoden untersucht.⁴ Neben dem Studium intrinsisch gespannter Moleküle⁵ steht vor allem die Entwicklung mechanochromer Materialien im Mittelpunkt. Kernstück solcher Materialien sind meist Mechanophore, also kleine molekulare Einheiten, in denen durch mechanische Kraft strukturelle Veränderungen wie etwa ein Bindungsbruch ausgelöst werden, was oft mit einer Farbänderung einhergeht. Dies wurde z.B. durch die mechanisch induzierte, diskrete Schaltung von Aromatizität im Zuge der Isomerisierung von Dewar-Benzol sowie durch die kontinuierliche Veränderung des Grades an Elektronendelokalisation in einem homoaromatischen Molekül realisiert.⁶

Beim Studium mechanisch induzierter Prozesse findet oft die JEDI (*Judgement of Energy Distribution*) Analyse Anwendung, mit der es möglich ist, die mechanisch am stärksten beanspruchten Bereiche eines deformierten Moleküls zu identifizieren.⁸ Neben dem Studium der mechanisch induzierten Entfaltung eines Proteins⁹ wurde die JEDI Analyse auch bei der Untersuchung der vorgeschlagenen Retro-Diels-Alder-Reaktion in beugungsaktivierten Mechanophoren eingesetzt. Mittels quanten-mechanochemischer Methoden wurde gezeigt, dass, entgegen einer weit verbreiteten Meinung, das einfache Strecken einer Polymerkette nicht ausreicht, um einen Bindungsbruch orthogonal zu dieser auszulösen (Abbildung 2).⁷ Dies liefert wichtige Impulse für das Design funktioneller Materialien, die

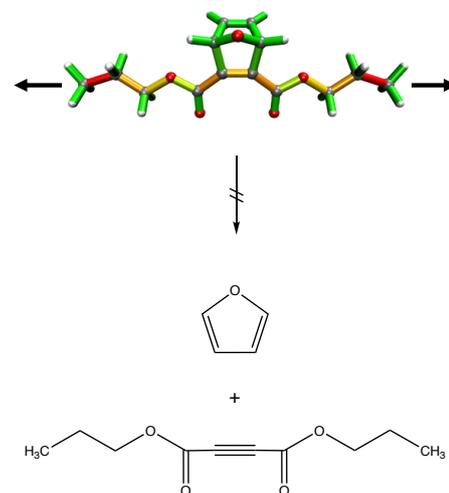


Abbildung 2: Mittels Quanten-Mechanochemie wurde gezeigt, dass eine einfache Streckung der Polymerkette im Falle spezieller beugungsaktivierter Mechanophore nicht dazu geeignet ist, in Polymeren eine kraftinduzierte Retro-Diels-Alder-Reaktion auszulösen.⁷

z.B. unter Krafteinwirkung kleine Moleküle freisetzen oder eine Selbstheilungsfunktion aufweisen.

In Zukunft sollen die entwickelten quanten-mechanochemischen Methoden in einem Multiskalen-Modell zur Aktivierung von Mechanophoren in einer realistischen Polymerumgebung eingesetzt werden. Ein solches Modell würde dazu beitragen, die Effizienz der Aktivierung von Mechanophoren in Polymeren und damit den Wirkungsgrad solcher funktioneller Materialien zu steigern.

Die quantenchemischen Methoden zur Simulation von Molekülen unter hohem Druck und mechanischen Kräften werden in der AG Stauch zur Entwicklung von Materialien für den Einsatz unter extremen Bedingungen verwendet. Durch die prominente Rolle der Raumfahrt in Bremen, der *City of Space*, ist eine Anwendung dieser quantenchemischen Methoden in der Erforschung des Weltraums naheliegend. In einem vor Kurzem gestarteten, interdisziplinären Projekt unter Beteiligung der AG Stauch, das an das Bremer MAPEX Center for Materials and Processes angebunden ist, werden neuartige Polymer-Keramik-Kompositmaterialien für den Schutz vor ionisierender Weltraumstrahlung und der gleichzeitigen Energiegewinnung aus selbiger entwickelt.

Referenzen:

- [1] T. Stauch, *Int. J. Quantum Chem.*, 2021, **121**, e26208.
- [2] M. Scheurer, A. Dreuw, E. Epifanovsky, M. Head-Gordon and T. Stauch, *J. Chem. Theory Comput.*, 2021, **17**, 583–597.
- [3] T. Stauch, *J. Chem. Phys.*, 2020, **153**, 134503.
- [4] T. Stauch and A. Dreuw, *Chem. Rev.*, 2016, **116**, 14137–14180.
- [5] C. E. Colwell, T. W. Price, T. Stauch and R. Jasti, *Chem. Sci.*, 2020, **11**, 3923–3930.
- [6] T. Stauch, *Chem. Eur. J.*, 2018, **24**, 7340–7344.
- [7] L. J. Mier, G. Adam, S. Kumar and T. Stauch, *ChemPhysChem*, 2020, **21**, 2402–2406.
- [8] T. Stauch and A. Dreuw, *Acc. Chem. Res.*, 2017, **50**, 1041–1048.
- [9] M. Scheurer, A. Dreuw, M. Head-Gordon and T. Stauch, *Chem. Sci.*, 2020, **11**, 6036–6044.