

Reacties aan grenzen

Citation for published version (APA):

Marin, G. B. (1989). *Reacties aan grenzen*. Technische Universiteit Eindhoven.

Document status and date:

Gepubliceerd: 01/01/1989

Document Version:

Uitgevers PDF, ook bekend als Version of Record

Please check the document version of this publication:

- A submitted manuscript is the version of the article upon submission and before peer-review. There can be important differences between the submitted version and the official published version of record. People interested in the research are advised to contact the author for the final version of the publication, or visit the DOI to the publisher's website.
- The final author version and the galley proof are versions of the publication after peer review.
- The final published version features the final layout of the paper including the volume, issue and page numbers.

[Link to publication](#)

General rights

Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

- Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.
- You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain
- You may freely distribute the URL identifying the publication in the public portal.

If the publication is distributed under the terms of Article 25fa of the Dutch Copyright Act, indicated by the "Taverne" license above, please follow below link for the End User Agreement:

www.tue.nl/taverne

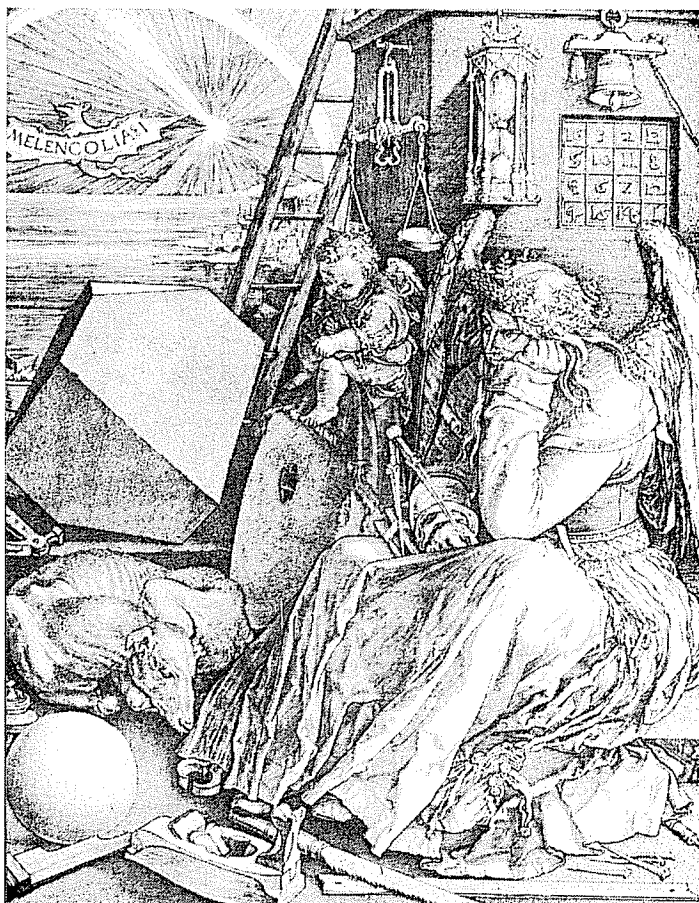
Take down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us at:

openaccess@tue.nl

providing details and we will investigate your claim.

Reacties aan grenzen



Guy B. Marin

Reacties aan grenzen

Dr.ir. G.B. Marin

Intreerede op 8 december 1989

Hoogleraar in de Chemische Technologie aan de Technische
Universiteit Eindhoven.

Magari potrai tornare a guardarla da vecchio, e ti sembra bella, e non importa poi tanto se sembra bella solo a te, e puoi dire a te stesso 'forse un altro non ci sarebbe riuscito'.

Wie weet zul je op oudere leeftijd erop kunnen terugkijken, en dan vind je het mooi; het kan je verder niet zoveel schelen of jij alleen het mooi vindt – je kunt in ieder geval tegen jezelf zeggen: 'misschien had iemand anders het niet voor elkaar gekregen'.

Primo Levi over het werk van chemicus, schrijver en monteur.

Mijne heren en dames leden van het College van Bestuur
en van de Universiteitsraad,
Mijnheer de Rector Magnificus,
Dames en heren hoogleraren en personeelsleden van de
Universiteit,
Dames en heren studenten,
en voorts u allen die met uw aanwezigheid van uw
belangstelling blijk geeft,

Velen onder u zullen de woordenvloed waarmee de rector magnificus van deze universiteit u uitnodigde, meer dan eens hebben moeten lezen om te begrijpen hoe de vork in de steel zat. Het ging om een rede gevolgd door een receptie.

Nu kan iedereen zich wel een receptie voorstellen, maar met een rede over 'Reacties aan grenzen' ligt dat iets anders. Toch ontbreekt het om ons heen niet aan grenzen. Immers onze ervaringswereld bestaat uit de meest verschillende objecten, en wie zegt verscheidenheid, zegt grens.

De Griekse natuurfilosofen hielden het in al hun wijsheid bij vier elementen: aarde, water, lucht en vuur. Ook waarnemingen van veranderingen trachtten zij terug te brengen tot wisselwerkingen tussen deze blijvende oerelementen. Vandaag spreken we van drie aggregatietoestanden van de materie, namelijk vast, vloeistof en gas en van temperatuur. Veranderingen die we waarnemen of teweegbrengen, noemen we processen. Het koken van water en het verbranden van steenkool: het zijn beide processen. Maar er is een essentieel verschil. Het koken van water verandert enkel de aggregatietoestand en laat de watermoleculen zelf intact: het is een fysisch proces. Het verbranden van kool daarentegen leidt niet alleen van vast naar gas, maar gaat ook gepaard met het omzetten van de ene molecule in de andere. Wanneer dit laatste gebeurt, spreken we van een chemisch proces, van een reactie.

Vele processen spelen zich in een heterogene omgeving af. Daarmee bedoel ik een omgeving met meerdere deelgebieden, meestal fasen genoemd, die elk op zich wel homogeen zijn. Wisselwerking tussen deze zogenaamde fasen treedt aan de fasegrenzen op, bijvoorbeeld aan het oppervlak van een vaste stof. Dicht bij de grens, in het grensgebied, veranderen de fysische en chemische eigenschappen van beide fasen op een bruuske wijze. Daarom wordt het grensgebied dikwijls herleid tot een vlak dat twee volumes scheidt

op een discontinue manier. Aan dit vlak worden dan de fysische en chemische eigenschappen van het grensgebied toegekend.

Processen aan grenzen spelen zich dus essentieel af in vlakken, in twee dimensies. Dit kan makkelijk geïllustreerd worden voor het verdampen van water. Een gegeven hoeveelheid water wordt in een open pot op een tafel geplaatst. Daarnaast wordt dezelfde hoeveelheid over de tafel verspreid. Welk water zal het snelst verdampen? Iedereen kent het antwoord. Dat de plas veel sneller verdampt dan het water in de pot, toont aan dat het verdampen aan het contactvlak van het volume water met de lucht plaatsvindt. Hetzelfde geldt voor heterogene chemische reacties. Reeds in de 18de eeuw toonde Carl Wenzel¹ in zijn 'Lehre von der Verwandtschaft der Körper' aan dat de snelheid waarmee metalen oplossen in zuren, niet verandert zolang de zuurconcentratie en, dat is hier van belang, de contactoppervlakte tussen metaal en zure oplossing constant blijft. Waarom noem ik mijn verhaal dan niet 'Reacties in twee dimensies'? Eerst en vooral omdat ik dan te dicht kom bij de titel van een naslagwerk van Gabor Somorjai² over oppervlakchemie 'Chemistry in two dimensions: Surfaces', maar vooral: zó vlak zijn die oppervlakken bij nader toezien nu ook weer niet.

Neem een oppervlak van een kristallijne vaste stof, en meer in het bijzonder van een metaal. Reeds voor de eerste wereldoorlog toonden vader en zoon Bragg aan dat dergelijk kristal bestaat uit een dichte stapeling van atomen met een periodicititeit, een regelmatig terugkerend patroon, in drie dimensies. Een vlakke doorsnede van dit periodiek rooster levert dan een ideaal oppervlak op. Een atoom aan het oppervlak heeft minder naburen dan een atoom midden in het kristalrooster. De doorsneden waarbij de oppervlakatomen het minst naburen moeten ontberen, geven de stabielste oppervlakken: de zogenaamde vlakken met grote dichtheid. Dit ideaal wordt evenwel nooit bereikt.

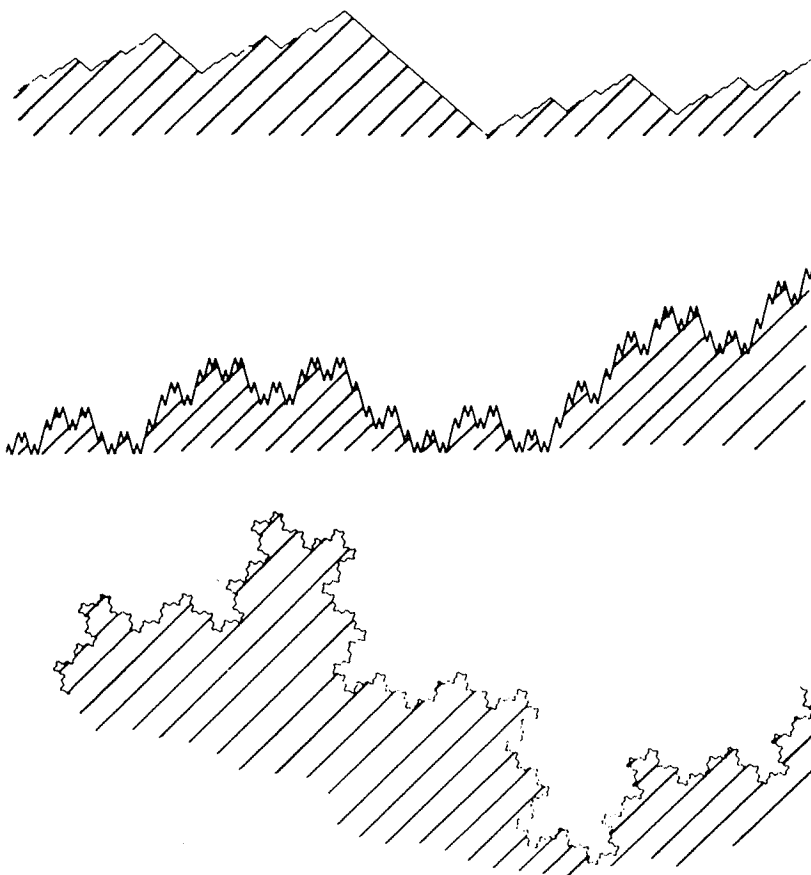
Een meer realistisch beeld werd door Ivan Stranski³ ingevoerd. Het oppervlak wordt voorgesteld als een opeenvolging van terrassen, d.w.z. vlakken met grote dichtheid, met tussenin monoatomaire treden. De treden kunnen knikken, en dus kromming vertonen. In wezen wordt hier het werkelijke, d.w.z. het met wanorde behepte, oppervlak beschreven door een storing, een afwijking van het ideale, d.w.z. het perfect geordende, oppervlak. Dergelijke aanpak wordt in de wetenschappen en ook daarbuiten dikwijls toegepast. Hierbij wordt er dan vanuitgegaan dat de essentiële kenmerken van de werkelijke wereld overeenstemmen met die van de ideale. Nu

zijn tal van oppervlakken zó sterk ongeordend dat de wanorde niet meer beschreven kan worden als perturbatie van een perfect geordende toestand. Hoe dan wel? Het antwoord luidt: door modellen, concepten die vertrekken vanuit de wanorde als intrinsieke eigenschap en niet als extrinsieke afwijking.

In de standaard tekstboeken wordt de gastoestand van de materie vanuit dit vertrekpunt beschreven door de kinetische gastheorie. Deze theorie slaagt er perfect in de belangrijke transporteigenschappen van een ideaal gas zoals diffusiviteit, viscositeit en geleidbaarheid te voorspellen als functie van druk en temperatuur. Hierbij wordt ervan uitgegaan dat in een ideaal gas de moleculen volledig onafhankelijk van elkaar op een chaotische wijze bewegen. Totale chaos vormt de grondslag van de kinetische gastheorie. Het woord gas is dan ook afkomstig van de term chaos. Dat staat in de betere tekstboeken over fysische chemie te lezen. Minder bekend is dat een Brabander, Johannes van Helmont, hiervoor in de 17de eeuw gezorgd heeft⁴. Deze schrijft in zijn werk *Ortus medicinae*, Oorsprong van de geneeskunde: 'Hunc spiritum, incognitum hactenus, novo nomine Gas voco . . .', en hij verduidelijkt: '. . . non longe a Chao veterum secretum'. In het Nederlands: 'Ik geef deze tot op heden onbekende geest de nieuwe naam Gas . . ., naar analogie met het Chaos van de antieken'.

Terug naar vandaag nu, of toch bijna.

Benoit Mandelbrot⁵ lanceerde nog niet zo lang geleden met zijn boek 'Les objets fractals: forme, hasard et dimension' het concept 'fractaal' om sterk ongeordende objecten te beschrijven, om een lijn in de chaos te krijgen. Hierbij slaat het adjectief 'sterk' op het feit dat de wanorde niet verdwijnt door de schaal, waarop het object bestudeerd wordt, te vergroten of te verkleinen. Merk op dat dit wel het geval is voor het kristaloppervlak van daarnet: bij vergroten van de schaal blijven alleen de 2-dimensionale terrassen en dus volledige orde over. Figuur 1 illustreert enkele gradaties in orde. De orde van de grens tussen het gearceerde en niet-gearceerde gedeelte van het vlak daalt van boven naar beneden, van een Euclidische rechte naar een zogenaamde Koch-curve. Vergroten van de schaal, m.a.w. van de vergroting, herleidt de tweede curve tot de eerste, tot een Euclidische rechte. Vergroten van de schaal waarmee naar de onderste curve, de Koch-curve, gekeken wordt, levert daarentegen steeds hetzelfde ruwe beeld op: de Koch-curve is gelijkvormig aan zichzelf, m.a.w. elk deel van de Koch-curve is gelijkvormig aan het geheel.



Figuur 1. Grenzen

Natuurlijke grenzen, bijvoorbeeld de grens tussen het Scheldebekken en het Rijnbekken, zijn analoog aan de Koch-curve. De Koch-curve is deterministisch, terwijl natuurlijke grenzen stochastisch zijn.

Ik heb zoëven het adjectief 'ruw' gebruikt. Daarvoor had ik het over 'sterk ongeordend'. Ik had het ook nog kunnen hebben over 'kronkelig' of 'irregulier' en zelfs over 'ruimtevallend', want de Koch-grens neemt duidelijk meer ruimte in dan de rechte grens. Een ingenieur zou op die gradaties graag een cijfer plakken. Mandelbrot doet daarvoor een middel aan de hand. Hij verdeelt het vlak, waarin

zich de zonet getekende curven bevinden, in vierkantjes met een lineaire afmeting ε . Vervolgens telt hij het aantal vierkantjes die een deel van de curve bevatten: $N(\varepsilon)$. De lengte van een curve, of de oppervlakte van een oppervlak, wordt dan gegeven door het product van dit aantal vierkantjes met de zijde ε van een vierkantje of met de oppervlakte ε^2 ervan. Voor een recht Euclidisch lijnstuk is dit aantal vierkantjes nu exact omgekeerd evenredig met de zijde van één enkel vierkantje ε . Voor een Euclidisch vierkant is dit aantal exact omgekeerd evenredig met de oppervlakte van één enkel vierkantje ε^2 . De lengte L respectievelijk de oppervlakte A van deze Euclidische figuren is dus onafhankelijk van de zijde ε van de vierkantjes, van de maatstaf, waarmee geteld wordt en gelijk aan hun lineaire afmeting L respectievelijk het kwadraat ervan. De dimensies van deze figuren zijn 1 respectievelijk 2. Dat alles weten we sinds de Oudheid.

Voor de Koch-curve daarentegen gaat dit niet op. Het verkleinen van de maatstaf ε laat toe steeds meer de details van de curve te volgen. En deze details blijven steeds even ruw, aangezien de Koch-curve gelijkvormig is aan zichzelf. Het aantal vierkantjes dat nodig is om deze curve te bedekken, neemt dus sneller toe met kleiner wordende maatstaf dan het aantal nodig voor het bedekken van het Euclidisch recht lijnstuk. Het is omgekeerd evenredig met de lineaire afmeting van één enkel vierkantje maar nu niet verheven tot een gehele macht maar tot een gebroken macht groter dan 1. De gebroken, de fractale dimensie D van de Koch-curve is groter dan 1:

$$N \sim \varepsilon^{-D} \quad [1]$$

De Koch-curve is dermate ruw, en dat onafhankelijk van de schaal, dat ze een oppervlakte inneemt. Uiteraard niet zoveel als een Euclidisch vierkant. Haar fractale dimensie D is kleiner dan 2:

$$A \sim L^D \quad [2]$$

Wie dit alles te abstract vindt, kan misschien troost en inzicht zoeken in het werk van Maurits Escher en in het bijzonder in de ets 'Lucht en Water' ¹. Hierbij staan de vogels voor de lucht en de vissen voor het water. De grens tussen lucht en water is geen rechte lijn. De invloed van de lucht reikt enkele lagen vogels diep, pas dan voelt de vis zich echt als een vis in het water. Ook het thema van gelijkvormigheid onder het veranderen van schaal heeft Escher dikwijls uitgewerkt. Zie bijvoorbeeld 'Dauwdruppel' ² en 'Cirkellimiet III' ³ met nu eens nerven van een blad en dan weer vissen als terugkerend motief.

Vandaag kan iedereen aan de hand van eenvoudige algoritmen analoge plaatjes door een computer laten tekenen. Voor de wetenschappelijke onderzoeker zijn dergelijke figuren visuele voorstellingen van een fysisch fenomeen. De aard van de structuren en processen die met de fractale woordenschat kunnen beschreven worden, is zeer divers: van de kustlijn van Groot-Brittannië tot de prijzen van handelswaren. Voor de chemie alleen is dit jaar een boek van 441 pagina's verschenen met als titel: 'The fractal approach to heterogeneous chemistry: surfaces, colloids, polymers'⁶. Dit is nog geen tien jaar na het 'Chemistry in Two Dimensions: Surfaces' van Somorjai.

Neem als voorbeeld van een op zijn minst fractaalachtig chemisch proces de groei van een amorfe, letterlijk vormloze, laag op een grondlaag⁷. De groei van dergelijke lagen wordt gedacht te bestaan uit een stapsgewijs opbouwen vanuit nucleatiekiemen. Bij elke groeistap wordt een schil gelijkvormig aan de vorige toegevoegd. Dergelijk groeiproces moet leiden tot een laag waarvan het oppervlak fractale eigenschappen vertoont.

In het bijzonder moet de gelijkvormigheid van de groei zich weerspiegelen in gelijkvormigheid van delen van het oppervlak met het geheel. Depositie van lagen vanuit de dampfase leidt bij lage mobiliteit van de oppervlakatomen tot een bloemkoolachtige morfologie van het oppervlak. Elektronenmicroscopie laat zien dat deze morfologie over 6 grootte-orde in filmdikte bewaard blijft: van de nanometer-dunne lagen uit germanium via de micrometerlagen uit silicium tot de millimeter-dikke bloemkolenoppervlakken⁸. Uiteraard zijn de eerstgenoemde voorbeelden technologisch interessanter dan bloemkolen. Dit werd reeds een aantal decennia geleden door de betrokken producenten erkend. Er werd toen zelfs gesproken over dunne lagen als vierde aggregatietoestand van de materie⁹.

Dames en heren,

Daarmee ben ik beland bij een proces dat sinds kort bestudeerd wordt in mijn groep: de afzetting van dunne lagen door Chemische Vorming uit Damp (CVD). In feite staat CVD natuurlijk voor Chemical Vapour Deposition. Geïntegreerde microschemelingen bestaan uit een reeks elektrisch geïnterconnecteerde lagen waarvan de dikte kan variëren van een aantal nanometer tot een aantal micrometer. Het afzetten van elke laag gebeurt door een chemische reactie met

het substraat d.w.z. met de grondlaag. Voor elke laag dienen een optimale uitgangsstof en optimale reactievoorwaarden gekozen te worden. Binnen elke laag moet een patroon getekend worden. Dit patroon bestaat uit kanalen die tegenwoordig smaller dan 1 micrometer kunnen zijn. Hierdoor kan een geheugen van 1 miljoen bits in een chip van 1 cm² gestopt worden. Dergelijke chip bestaat uit meer dan 1 miljoen transistoren en capacitoren.

Het wetenschappelijk onderzoek van de vaste stof heeft aan de basis gelegen van deze ontwikkeling en is er nog steeds de motor van. In Nederland hebben een aantal groepen zich toegelegd op het fundamenteel begrijpen van de relatie tussen structuur en eigenschappen van multilaagmaterialen en dit onder de noemers: materiaalkunde in twee dimensies en grenslaagchemie. De chemische processen waardoor deze materialen tot stand komen, zijn daarentegen minder systematisch het voorwerp van wetenschappelijk onderzoek. Verder terugdringen van de ruimte die nodig is voor het opbergen en verwerken van informatie, kan slechts indien het inzicht in en het beheersen van de productieprocessen gelijke tred houdt met de kennis van de te produceren materialen zelf. In het productieproces van, zeg maar, chips kunnen drie niveaus onderscheiden worden.

Eerst en vooral dat van de reactie: de studie van de chemie die optreedt bij het afzetten van lagen of bij het etsen ervan. Deze chemie speelt zich deels af in de fluidumfase, deels aan en op het grensvlak tussen substraat en fluidum. Zelfs voor de meest eenvoudige gevallen, bijvoorbeeld de vorming van silicium uit silaan, staat onze huidige kennis ver achter ten opzichte van wat we weten over bijvoorbeeld reacties die gekatalyseerd worden door vaste stoffen. Via welke intermediären en elementaire reactiestappen vindt de ontbinding van silaan tot silicium plaats? Welke van die elementaire stappen zijn nagenoeg in evenwicht en welke niet? Op deze kwalitatieve vragen geeft de vakliteratuur geen bevredigend antwoord. En voor wat de kwantitatieve kennis betreft: veel meer dan een schijnbare activeringsenergie, die de temperatuurafhankelijkheid van de gemeten afzettingssnelheden weergeeft, is er niet te vinden. Wanneer de overeenkomst tussen gemeten snelheden aan de ene kant en op basis van een wiskundig model berekende snelheden aan de andere kant grafisch geïllustreerd wordt, gebeurt dat meestal op een logaritmische schaal. Ingewijden weten wat dit betekent. Voor de leken kan het uitzetten van punten op een logaritmische schaal vergeleken worden met het gebruik van een visoglens in de fotografie. Met zo een lens is desnoods een hele kamer op één foto

te krijgen⁴. Overigens toetsen heel wat vorsers hun modellen niet aan eigen metingen maar aan die van anderen. Het pionierswerk door van den Brekel en Bloem¹⁰, gepubliceerd aan het einde van de jaren zeventig, is in dat verband nog steeds zeer populair.

Daarmee ben ik op het niveau van het apparaat waarin deze materialen gemaakt worden, beland: de lineaire afmetingen ervan bedragen ongeveer 1 m. Er bestaan tal van uitvoeringen die van elkaar verschillen door de reactorgeometrie en de wijze waarop de reactiecondities ingesteld worden. Het ontbreekt dan ook niet aan acronyemen op dit gebied. Dergelijke reactoren verschillen zowel qua schaal als qua configuratie van het beeld dat het woord reactor oproept bij de doorsnee scheikundig ingenieur. Toch zijn de wiskundige modellen waarmee hij of zij zijn of haar 'klassieke' reactoren ontwerpt en optimaliseert, even goed toepasbaar op de reactoren die gebruikt worden voor de productie van dunne lagen. Deze modellen zijn immers niets anders dan een wiskundige uitdrukking van de wetten van behoud van massa, energie en impuls. Van alle termen die erin optreden, zijn slechts de termen die corresponderen met het reageren van een stof, specifiek d.w.z. voor elke reactie anders. Snelheidsvergelijkingen die accuraat en kwantitatief de manier weergeven waarop de reactiesnelheid afhangt van de reactiecondities, vormen het hart van de reactor-modellen die door de scheikundig ingenieur gehanteerd worden. Het gebrek hieraan is de voornaamste hinderpaal voor de toepassing van deze reactormodellen bij de productie van dunne lagen.

Het laatste niveau is dat van het volledige proces. De processtappen die nodig zijn om tot een multilaagmateriaal met de structuur van een microschateling te komen, behelzen veel meer dan het aanbrennen van de lagen zelf. Zo heb ik het tot hier toe niet gehad over de zogenaamde microlithografie. Het voor de schakeling in een bepaalde dunne laag vereiste patroon wordt via belichting, door een masker heen, in een polymeerfilm bovenop de laag in kwestie aangebracht. De verlichte film wordt vervolgens positief of negatief ontwikkeld, waarna het patroon in de laag geëtst wordt. Deze procedure moet voor elke laag herhaald worden. De kwaliteit van het uiteindelijke produkt wordt in belangrijke mate bepaald door een optimale interactie tussen al deze stappen.

De chemische processen in de olieraffinage, de petrochemie en de basischemie worden vele malen beter bedreven dan wat de norm is in de halfgeleidersindustrie. Met beter wordt bedoeld: zuiniger o.a. door een efficiënt gebruik van energie; schoner door een optimaal

gebruik van de grondstoffen, door het verhogen van de selectiviteit van de omzetting en het recirculeren van niet omgezette grondstoffen; en veiliger o.a. door het minimaliseren en beheersen van toxische stromen. Dit alles is het resultaat van een tot het uiterste doorgedreven procesintegratie, een sleutelwoord voor elke scheidkundige ingenieur¹¹.

Vanwaar die verschillen tussen deze twee sectoren van de verwerkende industrie; en zullen die blijven bestaan? Ik geloof van niet. 'Schoenmaker blijf bij uw leest', zegt de volksmond en ik ga me dan ook niet ver wagen bij een poging tot verklaring. Een voor de hand liggend verschil is de leeftijd van beide sectoren en daarvan afgeleid hun groei. Waar de chemische industrie een groeiritme heeft dat niet ver afwijkt van het gemiddelde van de totale industrie, wordt geschat dat de produktie voor halfgeleiders in 1995 zeven maal groter zal zijn dan in 1985. Deze sterkere groei gaat gepaard met een snellere technologische vernieuwing en als gevolg hiervan een hogere winstvoet. Ernest Mandel¹² spreekt van een technologische rente. Lange tijd werd, en misschien geldt dit nog voor sommigen, technologische vernieuwing gelijkgesteld met produkt-vernieuwing.

Het verkrijgen van een monopoliepositie in een marktsegment door het lanceren van een nieuw produkt had voorrang op het drukken van de produktiekosten. Vandaag gaat dit voor de halfgeleider-industrie minder en minder op. Echte monopolieposities kunnen steeds moeilijker verworven of behouden worden. Vele produkten zijn nauwelijks te beschermen door octrooien. De aandacht in de vernieuwing zal dan ook meer en meer in de richting van het produktieproces moeten gaan. In het Verre Oosten is dit reeds lang begrepen.

Dames en heren,

Chemische Vorming uit Damp (CVD) van dunne lagen is één van de processen die in het laboratorium voor Chemische Technologie bestudeerd worden. De overige processen waaraan de groep onderzoek verricht, zijn alle gebaseerd op katalysatoren. Dit zijn stoffen die een reactie versnellen zonder zelf verbruikt te worden. Ik som ze even op:

- de oxydatieve koppeling van methaan tot etheen;
- de produktie van koolwaterstoffen uit synthesegas;
- het vernietigen van toxische stoffen geproduceerd door benzine-motoren

en daarnaast een hele waaier reacties met koolhydraten, zeg maar suiker, als grondstof:

- de selectieve oxydatie van lactose;
- de selectieve oxydatie van α -methyl-D-glucoside, één van de stappen naar vitamine C;
- de dehydratatie van fructose tot hydroxymethylfurfural, een bouwsteen van de fijnchemie.

De meeste van deze reacties vinden letterlijk plaats aan grenzen, hetzij aan een substraatoppervlak hetzij aan een katalysatoroppervlak, vandaar de titel van deze rede: 'Reacties aan grenzen'. Maar die titel kan ook figuurlijk geïnterpreteerd worden. De zopas vermelde onderzoeken bestrijken een breed spectrum van industriële en maatschappelijke sectoren: de microëlektronica, de petrochemie, de fijnchemie, het milieu en de landbouw. Daarbij betreft de groep verschillende wetenschappelijke disciplines of deeldisciplines zoals: katalyse, reactiekinetiek en reactorkunde. 'Reacties aan grenzen' van sectoren en disciplines is dus een tweede lectuur van de titel van mijn rede. Sta me toe hier even op in te gaan, daarbij geleid door de analyse van Leo Apostel¹³.

Vooreerst wat is een wetenschappelijke discipline? Apostel noemt het een collectieve onderneming met het oog op kennisverwerving en -toepassing. Als dusdanig is het geen absoluut maar een relatief begrip. Het al dan niet ontstaan en verspreiden van een discipline wordt aan de ene kant bepaald door culturele, sociale en historische omstandigheden en aan de andere kant door de impuls van individuele wetenschappers. Sommige vakgebieden, zoals katalyse, zijn op zich interdisciplinair en interageren dus zeer sterk met aanverwante takken van de wetenschap. Bepaalde disciplines, zoals elektrochemie, ontwikkelen een heel specifieke terminologie en worden daardoor soms in de hoek geduwd. Andere zijn dan weer qua woordenschat en instrumentarium zeer universeel maar geografisch afgebakend: de biotoop van de fysische technologie concentreert zich rond de delta van de Rijn.

Er zijn twee hoofdredenen waarom interdisciplinariteit vandaag meer dan ooit op de voorgrond treedt.

Ten eerste het groeiend besef dat de natuur, die we als wetenschappers trachten te begrijpen en te beschrijven, intrinsiek complex is. Sinds de Verlichting werd een scherp onderscheid gemaakt tussen wat eenvoudig beschouwd werd en wat als complex werd ervaren. Het gedrag van een ideaal gas was een-

voudig en stond in tegenstelling tot de complexiteit van een levend wezen. De hamvraag was steeds: kan de complexiteit van een structuur gereduceerd worden tot een som van eenvoudige delen? Sinds de opkomst van de irreversibele thermodynamica wordt meer en meer beseft dat deze tegenstelling tussen eenvoud en complexiteit een valse is en overstegen moet worden. Ilya Prigogine¹⁴ spreekt in dit verband van een nieuwe dialoog met de natuur. Het macroscopisch gedrag van vele structuren, zogenaamde dissipatieve structuren, kan niet louter vanuit het microscopisch niveau beschreven worden. De moleculen in deze structuren bestaan niet alleen op zichzelf, maar coöpereren, en dat over een lange afstand, de zogenaamde correlatielengte.

Als de werkelijkheid zelf niet herleid kan worden tot moleculen, dan kan ze zeker niet onderverdeeld worden in faculteiten en vakgroepen. Communicatie en samenwerking over muren heen en liefst zonder muren dringt zich op. Op bescheiden schaal werken we daaraan in Eindhoven. Ik denk daarbij aan de oprichting van het Schuif-Katalyse-Instituut waaraan zes groepen met diverse achtergronden deelnemen en aan de nieuwe vakgroep Chemische Proceskunde die bestaat uit drie complementaire groepen, waaronder het laboratorium voor Chemische Technologie.

Niet alleen de natuur maar ook de maatschappij waarin wij leven, is complex. Dat is de tweede reden waarom interdisciplinariteit belangrijk is. Vele maatschappelijke problemen waarmee we geconfronteerd worden, zijn zo complex dat meer dan één enkele discipline vereist is om tot oplossingen te komen. Ook deze uitdaging vereist aangepaste organisatievormen voor de academische wereld. Een gezond evenwicht tussen de autonomie van het onderzoek aan de ene kant en de maatschappelijke dienstbaarheid aan de andere kant is hierbij belangrijk. De integratie van dergelijk maatschappelijk georiënteerd onderzoek in een interdisciplinair project of instituut kan dit evenwicht bevorderen. Ook hier draagt de faculteit Scheikundige Technologie haar steentje bij. Ik denk in het bijzonder aan het onlangs opgerichte milieu-instituut.

Dit klinkt allemaal wel mooi, maar de weg van theorie naar praktijk is lang. Contacten tussen wetenschappers uit verschillende disciplines verlopen niet steeds even vlot. Ik geef u een paar typische stadia bij dergelijke contacten:

- a. het herhalen van de eigen standpunten in de eigen taal, de zelfbevestiging;
- b. het idioot en naïef vinden van de ander, de zelfoverschatting;

- c. het afbakenen van de eigen identiteit door een grondige definitie van de gebruikte terminologie, de scholastiek;
- d. het afbreken van de contacten, de mislukking;
- e. het aanleren van elkaars taal, de verzoening;
- f. het introduceren binnen het eigen vakgebied, van begrippen uit de andere disciplines, de kruisbestuiving.

Ik laat het aan u over uit te maken in welk stadium mijn relatie met de halfgeleidertechnologie zich bevindt.

Geen interdisciplinariteit zonder discipline! Vooraleer te besluiten wil ik toch nog even verwijlen bij de kern van het onderzoek dat ik aan deze TU wil verrichten. Daartoe volstaat het de pen in de andere hand te nemen⁵. 'Grenzen aan reacties', is daar het resultaat van. Chemische reacties verlopen binnen thermodynamische en kinetische grenzen. De thermodynamica leert eerst en vooral of een reactie kan plaatsvinden. Indien dit het geval is, zal reactie niet ogenblikkelijk optreden maar met een eindige snelheid. De kinetiek leert hoe snel. De huidige snelheidstheorieën laten echter niet toe deze snelheid zonder het verrichten van experimenten te berekenen. Er wordt dan ook gesproken van snelheidsvergelijkingen en niet van snelheidswetten. Dit is zeker het geval voor katalytische reacties. Het opstellen van betrouwbare snelheidsvergelijkingen die gebaseerd zijn op de elementaire stappen waaruit een reactie bestaat, zal de rode draad zijn die door mijn onderzoek loopt. Dergelijke snelheidsvergelijkingen, moeten door terugkoppeling het inzicht in het functioneren van de katalysator verhogen. Stroomafwaarts vormt de reactiekinetiek de basis voor een accurater reactorontwerp en een optimaal bedienen van bestaande reactoren.

Zeker voor de kinetiek van heterogeen gekatalyseerde reacties is deze laatste toepassing lang als de enig zinvolle beschouwd. Scherp gesteld: alleen de ingenieur had iets aan kinetiek, de chemicus in het laboratorium moest beroep doen op andere experimenten om antwoord te krijgen op zijn vragen in verband met reactiemechanismen. Dit verschil in houding tussen ingenieur en wetenschapper ten opzichte van kinetiek was het gevolg van een taakverdeling tussen beiden. De ingenieur loste de problemen op naarmate die zich voordeden. De wetenschapper stelde zichzelf de vragen en liefst zó dat hij er mooie antwoorden op kon geven. Het kwantitatief beschrijven van een proces was voor de ingenieur meestal voldoende, aan een verklaring had hij geen boodschap. Voor de wetenschapper daarentegen was het verklaren van een waarneming het nec plus ultra.

Vandaag, meer dan ooit, is deze tegenstelling voorbijgestreefd en dat geldt ook voor heterogene katalytische reacties. Zeker, een chemische reactie is net zoals stof- en warmtetransport een irreversibel proces waarvan de snelheid opgevat kan worden als een thermodynamische flux. Nu is elke thermodynamische grootheid een fenomenologische in de zin dat ze niet kan voorspeld worden uit een algemene theorie maar slechts uit een experimentele studie verkregen wordt: in dit geval de studie van de snelheid van een specifieke reactie gekatalyseerd door een specifieke katalysator. Dergelijke studie leidt dan tot een fenomenologische snelheidsvergelijking die een kwantitatief verband geeft tussen de reactiesnelheid en de relevante toestandsveranderlijken: temperatuur, druk en samenstelling van het reactiemengsel. Maar reactiekinetiek is veel meer dan dat.

De geweldige vooruitgang van de oppervlakkunde, de discipline die zich bezighoudt met de fysica en de chemie van oppervlakken, laat toe meer en meer rekening te houden met het specifieke van elke heteroog gekatalyseerde reactie. De kennis van de kinetiek van de elementaire adsorptie- oppervlak- en desorptiestappen waaruit een globale reactie bestaat, is met reuzeschreden vooruitgegaan. De tijd dat een scheikundig ingenieur een heteroog gekatalyseerde reactie kon wegmoffelen in een 'black box' is voorbij. Het omgekeerde geldt voor de chemicus en in het bijzonder de katalyticus. Door de steeds grotere reproduceerbaarheid van het bereiden en voorbehandelen van katalysatoren aan de ene kant en van het meten van globale reactiesnelheden aan de andere kant, is het steeds minder verantwoord aan dit meten voorbij te gaan. Want om het met de woorden van Michel Boudart¹⁵ te zeggen: 'Reactiemechanismen komen en gaan, maar de resultaten van een goede chemische kinetiek zijn blijvend'. Boudart voegt er in zijn moedertaal aan toe: 'Faire oeuvre durable est une ambition bien humaine'. Dit klinkt te mooi in het Frans om te vertalen.

Ten overvloede wil ik nog verwijzen naar het oeuvre van Antoine Lavoisier (1743-1794), de grondlegger van de hedendaagse chemie. (Waarbij ik even Michaël Lomonossow (1711-1765) buiten beschouwing laat). In 1789, de man had een uitgever met zin voor 'timing', publiceerde hij zijn *Traité de Chimie Elementaire*.

Drie stellingen die hij daarin verdedigt, zijn blijvend gebleken:

1. bij chemische processen blijft de hoeveelheid materie constant, enkel de vorm van de materie verandert. Dit is de wet van Lavoisier;
2. bij verbranding verbindt het verbrandend lichaam zich met zuurstof;

3. de ademhaling is een proces dat volledig analoog is aan een verbranding en heeft als producten koolstofdioxide en water.

Bovendien stond Lavoisier op het standpunt dat chemische verbindingen slechts mogelijk waren voor zeer bepaalde gewichtsverhoudingen tussen de betrokken elementen. Daarmee gaf hij aan het elementenbegrip zijn moderne inhoud.

Dit alles kan vandaag overkomen als platitudes, maar twee eeuwen geleden gingen deze stellingen in tegen de heersende phlogistontheorie, zoals ontwikkeld door George Stahl (1660-1734). Laat mij u details over die theorie besparen. Waar het mij om gaat is dit: ze was essentieel gebaseerd op waarnemingen van *kwantitatieve* veranderingen. Lavoisier legde de tegenstrijdigheden van de phlogistontheorie bloot door het uitvoeren van *kwantitatieve* metingen. Door het nauwkeurig meten van gewichtsveranderingen tijdens chemische reacties kon hij namelijk aantonen dat het element phlogiston, als het bestond, een negatief gewicht moest hebben. Een argument dat inderdaad door aanhangers van Stahl werd gebruikt. Achteraf klinkt dit absurd, maar hoe moeten we vandaag de zogenaamde koude kernfusie¹⁶ bekijken? In welk kamp horen Fleischmann en Pons? Ik laat het antwoord in het midden.

Ook de spiegeltitel 'Grenzen aan reacties' kan figuurlijk gelezen worden. De Europese universiteiten stammen uit de Middeleeuwen. Dat is duidelijk te merken aan de manier waarop ik vandaag uitgedost ben. Tot in het recente verleden bleef deze oorsprong wege op de positie van de hoogleraar. Tegenover het 'L'Etat c'est moi' van de absolute vorst Lodewijk de Veertiende kon de hoogleraar rustig stellen: 'L'Université c'est moi'⁶. De Zonnekoning had de gewoonte zijn besluiten te beëindigen met: 'Tel est mon bon plaisir'. In het Nederlands van de twintigste eeuw kan dit het best benaderd worden door: 'Omdat ik het leuk vind'. 'Omdat ik het leuk vind', maar dan in meer academische termen, was tot voor kort ook een flink stuk van de argumenten die een hoogleraar formuleerde wanneer hij een idee wou uitwerken en daarvoor geld vroeg.

Precies tweehonderd jaar geleden bleek reeds dat het Ancien Régime niet meer beantwoordde aan de economische ontwikkeling van de maatschappij en maakte de Franse Revolutie schoon schip met de absolute monarchie⁷. Blijkbaar lag dat anders voor de wetenschappelijke vooruitgang. Het is pas na de tweede wereldoorlog dat deze laatste op systematische wijze werd betrokken bij en dikwijls zelfs aan de basis lag van industriële activiteiten. In de

jaren zestig werd hierop gereageerd door een grondig herdefiniëren van de rol van de universiteiten met daaraan gekoppeld een geweldige expansie en herstructurering, kortom: het democratiseringsproces. Deze reactie heeft haar grenzen bereikt na, zoals dikwijls bij het regelen van processen met grote inertie, een paar uitschieters. Zonder er letterlijk hun hoofd bij te verliezen, wat Lavoisier in het jaar II van de Franse Revolutie overkwam, hebben vele universitaire er het bijltje bij neergelegd of hun toevlucht gezocht in de bedrijfsweld. Maar na de Terreur komt Thermidor en het Directoire en hier en daar verschijnt reeds een Bonaparte op het universitaire toneel⁸.

Het verlaten van de ivoren toren door de leden van de universitaire gemeenschap is als een 'pas de deux' samengegaan met het beheersen van de overheidsinspanningen voor de universiteiten, met name van de eerste en tweede geldstroom. Daardoor, en dit geldt zeker voor de Technische Universiteiten, is het contractonderzoek sterk op de voorgrond getreden. In ruil voor deze derde geldstroom verbindt de universiteit zich tot concrete resultaten binnen een termijn die schommelt tussen twee en vier jaar. Ongetwijfeld biedt een zekere mate van contractonderzoek vele voordelen die verder reiken dan louter financiële aspecten. Ook hier zijn er echter grenzen. Het voornaamste produkt dat uit een universiteit komt, bestaat uit mensen. Mensen met een intellectuele bagage die essentieel bestaat uit denkmethoden. Met deze bagage moeten zij, en niet de universiteiten, concrete oplossingen voor concrete problemen aanbrengen en dat binnen de daartoe opgerichte ondernemingen en instellingen. Overigens: wie de industriële chemische processen telt die deze eeuw in een universitair laboratorium werden uitgevonden, is snel rond. Het vervangen van degelijk onderbouwde publikaties in vaktijdschriften door in de haast georganiseerde persconferenties zal daar niet veel aan veranderen, integendeel. Het verhaal gaat dat Bednorz en Müller¹⁷, de uitvinders van de supergeleidbaarheid bij hogere temperatuur, hun resultaten eerst gepubliceerd hebben in een minder verspreid tijdschrift om de concurrentie niet te snel wakker te maken. Uiteraard werken Bednorz en Müller voor een grote onderneming, niet toevallig dezelfde die ook Mandelbrot tewerkstelt.

Zeer gewaardeerde toehoorders,

Een intreerede is een symbool voor het aanvaarden van het ambt van hoogleraar, een vrije oefening. Ik heb u proberen mee te nemen

op een schip en u door een verrekijker mee te laten kijken naar de horizon, mijn horizon. Het binnenvaren van de haven is niet voor morgen, maar ik heb de tijd en het varen zelf is wat telt voor een zeeman. Ik heb gepoogd het geluid van de machinekamer zoveel mogelijk te dempen en u te vrijwaren van de ontmoediging die elk van ons wel eens overvalt bij het besef van de moeilijkheden waarmee we geconfronteerd worden. Bij Albrecht Dürer (1471-1528) leidde dit tot Melancholie⁹. Dat hoort er echter bij. De hemel is niet altijd blauw. 'Tot de wetenschap leidt geen koninklijke weg' was het antwoord van Euclides aan koning Ptolemaeus van Egypte. Deze had gevraagd of er geen kortere weg was om de wiskunde te leren dan het boek van Euclides hierover te lezen.

Een koninklijke weg naar de wetenschap ben ik inderdaad nog niet tegengekomen. Wel heb ik het geluk gehad een jaar op de El Camino Real tussen Stanford University en het bedrijf Catalytica te pendelen. Ik ben ervan overtuigd dat deze koninklijke weg uiteindelijk naar dit auditorium geleid heeft. In Californië heb ik school gelopen bij vele goede wetenschappers. Ik zal er maar twee noemen: Michel Boudart in Stanford en Bob Garten bij Catalytica. En als je dan nog een café genaamd The Catalyst aantreft, dan kan je toch van een heel beschaafd land spreken. Maar goed, uiteindelijk ben ik terug hier terechtgekomen. Dat is misschien maar best zo, want The Catalyst staat, of waarschijnlijk moet ik zeggen stond, in Santa Cruz, het epicentrum van de voorbije aardbeving in die streek.

Daarmee nadert mijn voordracht haar einde.

Mijnheer de Rector Magnificus, beste Tinus,

Vandaag heb je me in deze zaal binnengeleid. Twee jaar geleden ontving je me nog als decaan van de faculteit Scheikundige Technologie. Al verstond ik je niet steeds, toch heb ik de indruk dat we vanaf het begin op dezelfde golflengte zaten. Ik dank het College van Bestuur, de leden van de benoemingscommissie en jou in het bijzonder voor het in mij gestelde vertrouwen.

Hooggeleerde Froment, beste Gilbert,

Meer dan tien jaar heb ik onder Uw vleugels kunnen groeien. Gemakkelijk is het doorhakken van de knoop die me met U – mijn leermeester – verbond, niet geweest. Daarvoor besepte ik maar al te

goed de waarde van de mogelijkheden in Uw laboratorium. Het begrip dat U voor mijn vertrek hebt opgebracht heeft een diepe indruk op mij gemaakt. Ik ben U dankbaar voor het vele dat ik van U geleerd heb, en dat is meer dan wetenschap alleen.

Oud-collega's van de Rijksuniversiteit te Gent,

Ik heb lang genoeg met velen van u kunnen samenwerken om u zowel wetenschappelijk als persoonlijk te leren waarderen, en dat geldt in het bijzonder voor jou, waarde Hosten, beste Lucien. De RUG heeft moeilijke tijden achter zich. Dit belet me echter niet met enige weemoed terug te blikken op mijn Gentse periode. Het voorbije jaar heb ik hard gewerkt aan mijn verankering in deze nieuwe omgeving zodat we van elkaar niet veel gezien of gehoord hebben. In de toekomst zullen er echter nog vele gelegenheden zijn.

Waarde Van der Wiele, beste Kees,

Ik heb het geluk gehad mijn voorganger naast mij te hebben tijdens mijn start hier. Jouw noordelijk flegma vulde uitstekend mijn zuidelijke onstuimigheid aan. Jij hebt ervoor gezorgd dat ik niet in een woestijn terechtgekomen ben, integendeel. Ik schat dat op zijn volle waarde en ben jou daar dankbaar voor.

Waarde leden van de faculteit Scheikundige Technologie,

In het ruime jaar dat ik hier werkzaam ben, heb ik veel bijgeleerd uit de talrijke gedachtenwisselingen met velen van jullie. Waarde Buck, beste Henk, ondanks jouw drukke bezigheden als decaan heb je steeds tijd gevonden voor de jongste van jouw telgen en heb je me daadwerkelijk geholpen bij het leggen van contacten naar de bedrijfswereld toe. Dit geldt ook voor jou, waarde Van Santen, beste Rutger. Ik ben ervan overtuigd dat we binnen het Schuit-Katalyse-Instituut nog veel zullen samenwerken. Waarde Thoenes en Kerkhof, beste Dick en Piet, samen zitten we sinds september in de nieuwe vakgroep Chemische Proceskunde. Dit is te kort om er veel over te zeggen. Maar de openheid en de collegialiteit die jullie kenmerkt, laat het beste hopen.

Dames en heren van het laboratorium voor Chemische Technologie,

Ik heb met veel genoegen met jullie samengewerkt tijdens het voorbije jaar. Ik heb in het bijzonder veel achting voor de manier waarop de vaste medewerkers de branding, veroorzaakt door het komen en gaan van drie hoogleraren op nog geen tien jaar, hebben doorstaan. De omvang van de groep en het inwerken hebben me niet steeds toegelaten zo diep van gedachten te wisselen als ik zou wensen. Maar de tijd speelt in ons voordeel.

Dames en heren studenten,

'Point n'est besoin d'espérer pour entreprendre, ni de réussir pour persévérer'. Dit devies wordt ten oprechte toegeschreven aan de Vader des Vaderlands, Willem de Zwijger. De man die de poorten van de Gouden Eeuw voor Nederland heeft geopend. Een eeuw waarin viervijfde van de wereldvloot onder Hollandse vlag voer. Ik heb gezocht naar een Rembrandt om dit te illustreren met een portret van stoere zeebonken. Misschien heb ik niet genoeg gezocht. Te veel tijd steken in een vrije oefening is vandaag niet meer voor een hoogleraar weggelegd. In elk geval heb ik enkel portretten van de beste stuurliu gevonden, die aan de wal staan, met geen roer maar papier in de hand¹⁰. Ik vermoed dat Rembrandt bij hen het meest in het krijt stond en dat zij bovendien het meest tijd hadden om te poseren. Ook vandaag zijn de beste stuurliu nog aan de wal te vinden, maar dan meer landinwaarts aan zoetere meren. Leefden we nog in het Ancien Régime, dan had ik graag van het devies van Willem de Zwijger dat van mijn hoogleraarschap gemaakt. De Van Dale vertaalt het als: 'Het is niet nodig te hopen om te ondernemen, noch te slagen om te volharden'. Maar op jullie, studenten van vandaag, komt het aan uit te maken hoe deze leuze zal klinken in het Nederlands van de éénnentwintigste eeuw.

Gij allen die met uw aanwezigheid van uw belangstelling blijk hebt gegeven, ik dank u voor uw komst. Ik heb gezegd.

Referenties

1. C.F. Wenzel, *Lehre von der Verwandtschaft der Körper*, 7, 1777, Dresden; E.K. Rideal, *An introduction to surface chemistry*, p. 283, 1930, Cambridge University Press, Cambridge.
2. G.A. Somorjai, *Chemistry in two dimensions: surfaces*, 1981, Cornell University Press, Ithaca.
3. I.N. Stranski, *The theory of crystal growth*, *Z. Phys. Chem.*, 136, 259-278, 1928.
4. J. van Helmont, *Ortus medicinae*; F.M. Jaeger, *Elementen en atomen eens en thans*, p. 137, 1920, J.B. Wolters, Groningen.
5. B.B. Mandelbrot, *Les objets fractals: forme, hasard et dimension*, 1975, Flammarion, Paris.
6. *The fractal approach to heterogeneous chemistry: surfaces, colloids, polymers*, D. Avnir (Ed.), 1989, John Wiley & Sons, Chichester.
7. X.-d Pan, A. Szasz en D.J. Fabian, *Fractal models for the auto-catalytic growth of amorphous thin films*, *J. Appl. Phys.*, 66 (1), 146-151, 1989.
8. J.E. Yehoda en R. Messier, *Are thin film physical structures fractals?*, *Appl. Surf. Sc.*, 22/23, 590-595, 1985.
9. J.M. Nieuwenhuysen en H.G. Haanstra, *Microfractography of thin films*, *Philips Technical Review*, 27, 87-91, 1966.
10. C.H.J. van den Brekel, *Mass transport and morphology in Chemical Vapour Deposition processes*, Ph.D. Thesis, 1978, Katholieke Universiteit te Nijmegen.
11. *Frontiers in chemical engineering: research needs and opportunities*, N.R. Amundson (chairman), 1988, National Academy Press, Washington D.C.
12. E. Mandel, *Der Spätkapitalismus*, 1972, Suhrkamp Verlag, Frankfurt am Main.
13. L. Apostel en J. Vanlandschoot, *Interdisciplinariteit, wereld-beeldenkonstruktie en diepe verspreiding als tegengetzten in een cultuurcrisis*, 1988, Vrije Universiteit Brussel, Brussel.
14. I. Prigogine en I. Stengers, *La nouvelle alliance*, 1979, Gallimard, Paris.
15. M. Boudart en G. Djéga-Mariadassou, *Cinétique des réactions en catalyse hétérogène*, 1982, Masson, Paris.
16. M. Fleischmann en S. Pons, *Electrochemically induced nuclear fusion of deuterium*, *J. Electroanal. Chem.*, 261, 301-308, 1989.
17. J.G. Bednorz en K.A. Müller, *Possible high T_c superconductivity in the Ba-La-Cu-O system*, *Z. Phys. B.- Condensed Matter*, 64, 189-193, 1986.

Afbeeldingen

1. M.C. Escher, Lucht en Water I, 1938, houtsnede.
2. M.C. Escher, Dauwdruppel, 1948, mezzotint.
3. M.C. Escher, Cirkellimiet III, 1959, houtsnede in 5 kleuren.
4. M.C. Escher, Hand met spiegelende bol, 1935, litho.
5. M.C. Escher, Tekenen, 1948, litho.
6. Hyacinthe Rigaud, Portrait de Louis XIV, 1701, olieverf op doek.
7. Eugène Delacroix, La Liberté guidant le peuple, 1830, olieverf op doek.
8. Jacques-Louis David, Le sacre de Napoléon, 1805-1807, olieverf op doek.
9. Albrecht Dürer, Melencolia I, 1514, kopergravure.
10. Rembrandt van Rijn, De Staalmeesters, 1662, olieverf op doek.

Vormgeving en druk:
Reproductie en Fotografie van de CTD
Technische Universiteit Eindhoven