

Molekulare Simulationen ermöglichen es, den Einfluß mikroskopischer Prozesse auf makroskopische Phänomene zu studieren. Um Simulationen in den Naturwissenschaften bis hin zur Verfahrenstechnik erfolgreich anwenden zu können, müssen geeignete molekulare Modelle vorliegen. Das Fundament einer Simulation zur quantitativen Vorhersage von physikalischen Eigenschaften ist das sogenannte Kraftfeld. Letzteres beschreibt sowohl intra- als auch intermolekulare Wechselwirkungen. Die Hauptschwierigkeit liegt in der Parametrisierung eines Kraftfelds, insbesondere des intermolekularen Teils. Dies per Hand durchzuführen, ist äußerst zeitaufwendig, da für jeden Satz von Kraftfeldparametern eine rechenaufwendige Molekulare Simulation durchzuführen ist. Um ein sehr kleines System, bestehend aus beispielsweise 1000 kleinen Molekülen, eine Nanosekunde lang auf einem modernen Parallelrechner zu simulieren, sind bereits zwei bis vier Stunden notwendig. In dieser Arbeit wird ein neues automatisiertes Parametrisierungsschema vorgeschlagen, welches auf der Formulierung und Lösung eines mathematischen Optimierungsproblems basiert. Während intramolekulare Freiheitsgrade und atomare Partialladungen mithilfe der Quantenmechanik berechnet werden können, ist die Einstellung von Parametern zur Beschreibung intermolekulare Wechselwirkungen keineswegs trivial. Innerhalb des Optimierungsprozesses werden Eigenschaften, die aus einer Molekularen Simulation resultieren, wie Dichte, Verdampfungsenthalpie, Selbstdiffusionskoeffizient und Dampfdruck, an ihre entsprechenden experimentellen Referenzdaten angepaßt. Da Molekulare Simulationen eine hohe Komplexität aufweisen und die resultierenden Eigenschaften mit statistischem Rauschen behaftet sind, wird das Optimierungsproblem sowohl mit bereits vorhandenen als auch mit neuartigen, effizienten und robusten numerischen Algorithmen gelöst. Ein weiteres Ziel dieser Arbeit besteht darin, die optimierten Kraftfelder bezüglich ihrer physikalischen und chemischen Anwendbarkeit zu evaluieren.