

## Kurzzusammenfassung

In dieser Arbeit wird die homogene Keimbildung des gas-flüssig Phasenübergangs von Argon mithilfe molekuldynamischer (MD) Simulationen untersucht. Zunächst wird eine neue Methode zur genauen Bestimmung von Keimbildungsraten aus MD-Simulationen anhand von *mean first-passage times* (MFPT) entwickelt. Diese Methode ist nahezu unabhängig von der Clusterdefinition in der Simulation und erlaubt darüber hinaus die Bestimmung der kritischen Keimgröße allein aus der kinetischen Betrachtung. Ein Vergleich verschiedener Thermostate zeigt, dass die Fehler eines einfachen isokinetischen Thermostats bei der Verwendung von Argon vernachlässigbar klein sind. Eine Studie von möglichen Größeneffekten, hervorgerufen durch die Verarmung der Dampfphase und kleiner System-Volumina, ermöglicht die Optimierung der Systemgröße. Basierend auf diesen Studien konnten zum ersten Mal sechs Ratenisothermen aus Simulationen gewonnen werden. Diese ermöglichen die Anwendung des Keimbildungstheorems zur Bestimmung der kritischen Keimgröße. Die Keimbildungsraten basieren auf mehr als 7500 Simulationen und umfassen 3 Größenordnungen von  $10^{23} \leq J / \text{cm}^{-3} \text{s}^{-1} \leq 10^{26}$  im Temperaturbereich  $45 \text{ K} \leq T / \text{K} \leq 70 \text{ K}$ . Die Simulationsergebnisse weichen um 2 – 7 Größenordnungen von der klassischen Keimbildungstheorie ab. Dies ist sehr viel kleiner als die Abweichungen von mehr als 26 Größenordnungen, welche in kürzlich durchgeführten Experimenten gefunden wurden. Die von Reguera und Reiss vorgestellte Theorie stimmt ausgezeichnet mit den Ergebnissen der Simulationen überein, wobei die Abweichungen stets innerhalb einer Größenordnung im untersuchten Temperaturbereich bleiben. Die verbleibenden Abweichungen von ungefähr 15 Größenordnungen zu den experimentellen Ergebnissen lassen sich jedoch auch mit dieser Theorie nicht aufklären. Die Vorhersage der kritischen Keimgröße nach der Gibbs-Thomson Gleichung stimmt gut mit den Ergebnissen überein, die mithilfe des Keimbildungstheorems gewonnen wurden. Dies zeigt, dass die klassische Keimbildungstheorie zwar den Ort, nicht aber die Höhe der Keimbildungsbarriere vorhersagen kann. Die mit der MFPT-Methode bestimmten kritischen Keimgrößen sind stets größer als die der Gibbs-Thomson Gleichung und des Keimbildungstheorems, was auf die verwendete Stillinger Definition des Clusters in der Simulation zurückzuführen ist.