

Kurzzusammenfassung

Diese Dissertation beschäftigt sich mit Themen aus den Gebieten der Quanten- und Computerchemie.

Die Berechnung von Elektronenabstoßungsintegralen ist eine wichtige Aufgabe in der quantenchemischen Behandlung von Mehrteilchensystemen, wobei der Aufwand zur Bestimmung der Integrale mit der vierten Potenz der Größe der Einteilchenbasis ansteigt. Bei der Berechnung von größeren molekularen Systemen wird dieser Schritt zu einem entscheidenden Faktor. Die "Quantum Objects Library" ist eine hauptsächlich in C++ geschriebene Sammlung von Klassen und Programmen aus dem Bereich der Quantenchemie. Das Fundament der entwicklerischen Arbeit dieser Dissertation stellt ein effizientes Teilprogramm der Quantum Objects Library dar, welches zur Berechnung der Elektronenabstoßungsintegrale verwendet wird. Dieses Programm ist ein code-generiertes Modul, welches auf einem optimierten Obara-Saika-Algorithmus basiert. Der erste Teil dieser Arbeit befasst sich mit der Implementierung einer Integraltransformation der berechneten aber noch unbearbeiteten Integrale aus dem Obara-Saika-Modul, welches einer Basistransformation vom kartesischen auf den kontrahierten und sphärisch-transformierten Raum entspricht. Dazu werden verschiedene Algorithmen und deren Vor- und Nachteile diskutiert. Die Analyse des Zeitaufwandes verschiedener Programmteile ergibt eine gemittelte Zeitersparnis von über 80 % (Faktor 6) bei Testrechnungen mit Basisätzen von quadrupel-zeta Qualität, die Funktionen für eine maximale Bahndrehimpulsquantenzahl von $l = 4$ enthalten. Des Weiteren konnte gezeigt werden, dass die Berechnung der unbearbeiteten Integrale weniger als 20 % der Gesamtzeit zur Erzeugung der fertigen Integrale verbraucht, was die Effizienz des code-generierten Programmteiles unterstreicht.

Der zweite Teil dieser Arbeit beschäftigt sich mit zwei Anwendungen aus dem Bereich der Computerchemie. Die betrachteten organometallischen molekularen Systeme beinhalten zwischen 45 und 110 leichte Atome inklusive eines Metallatoms. Die erste Anwendung ist die quantenchemische Untersuchung eines thermo-optischen molekularen Schalters, welcher auf einer haptotropen Umlagerung eines Chromkomplexes basiert. Die besondere Schwierigkeit stellte die Beschreibung von angeregten Zuständen dar, welche besonders wichtig sind, da im Experiment durch UV-Strahlung Photonabsorptionsprozesse auftreten. Die Rechnungen untermauern die Vermutung, dass die Photonabsorptionen sowohl die Decarbonylierung als auch die haptotrope Wanderung hin zum thermisch instabileren Isomer beeinflussen. Die zweite Anwendung ist die Untersuchung der Racematspaltung von chi-

ralen Titanocenkomplexen, wobei die Trennung der Enantiomere mit Hilfe von chiralen, zur Stoffklasse der Diole gehörenden Liganden durchgeführt wird. Die Rechnungen zeigen, dass im Fall der behandelten Titanocene BINOL ein geeignetes Agens zur Racematspaltung ist.