



Molekulare Simulation und Optimierung

Martin Horsch

Kaiserslautern, 16. September 2013

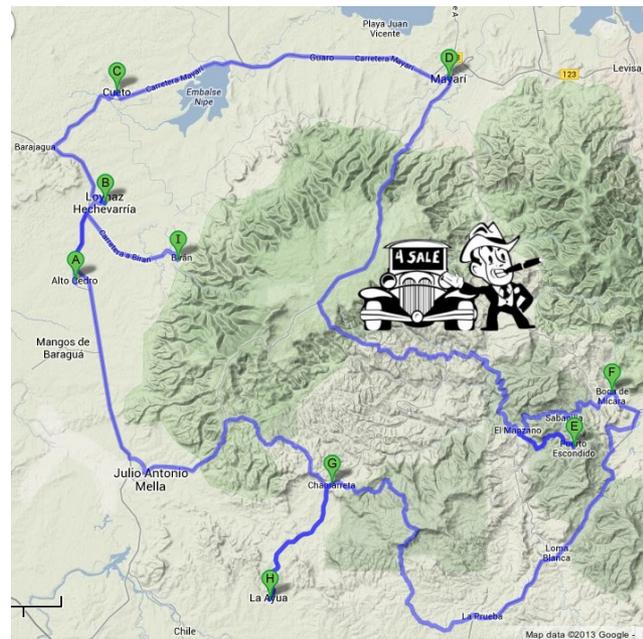
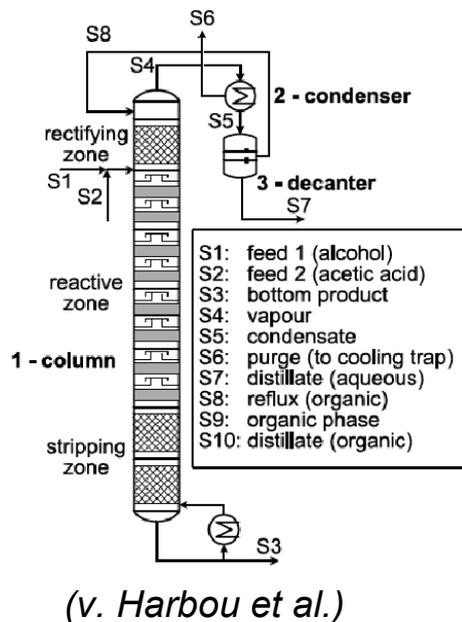
MSO-Workshop von ITWM und LTD



**Computational
Molecular Engineering**

Optimierung komplexer Systeme

Optimierung komplexer Systeme mit einer großen Zahl von Parametern:



- Hochdimensionaler, unüberschaubarer Raum wird aufgespannt
- Oft mehrere, miteinander zusammenhängende Zielgrößen



Statistische Mechanik und Optimierung

Optimierungsproblem:

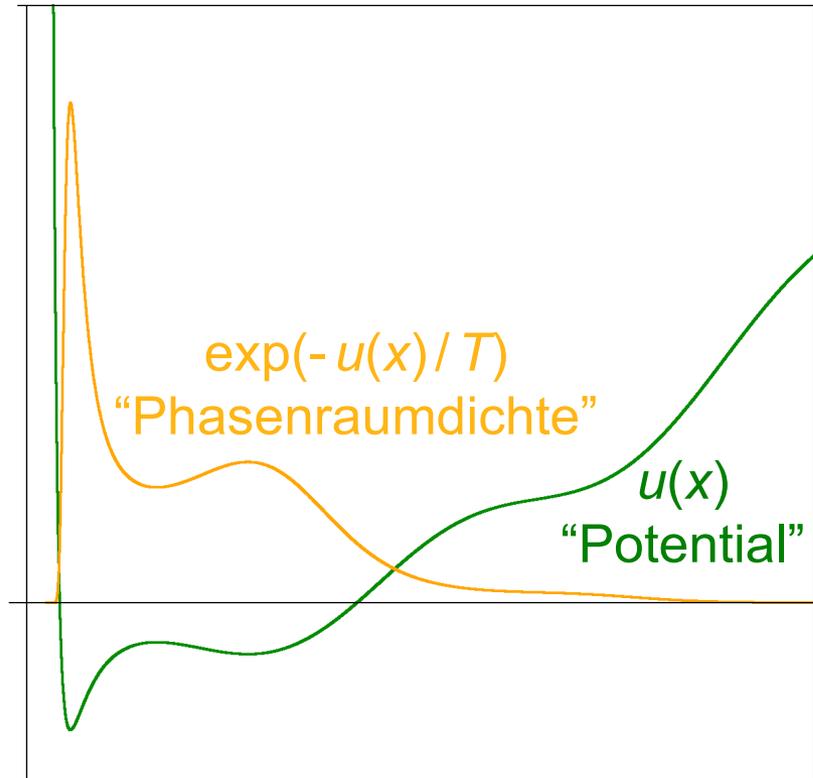
$$\text{suche } \min_{\gamma \in \Gamma} u(\gamma)$$

Das globale Minimum kann ein relativ kleines Einzugsgebiet haben.

Ensemblemittel:

$$\langle z \rangle_{NVT} = \int_{\Gamma} \exp\left(\frac{-H(\gamma)}{T}\right) z(\gamma) d\Gamma$$

Kleine Teilgebiete des Phasenraums leisten den entscheidenden Beitrag.



- Fragestellungen sind nicht ähnlich, aber verwandt.
- Statistisch-mechanische Ansätze können “fachfremd” eingesetzt werden.

Optimierung der Simulationsstrategie

Wie erfassen wir aktivierte Prozesse, komplex strukturierte Phasenräume?

**Transition path /
forward flux
sampling**

**Anwendung
externer Kräfte /
Jarzynski**



**Replica exchange /
Parallel tempering**

Umbrella sampling

Metadynamik

Brute-force NEMD

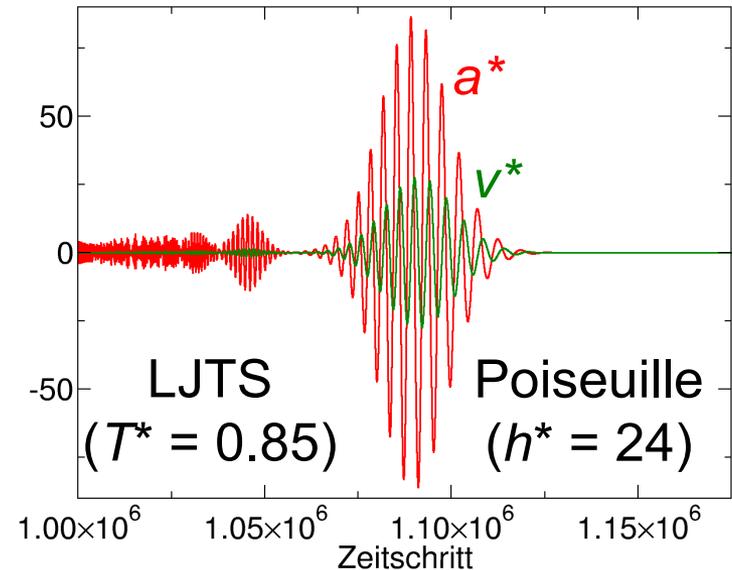
- Durchsuchen hochdimensionaler Räume ist nicht nur selbst Bestandteil der meisten Optimierungsprobleme, sondern auch selbst ein zu optimierender Vorgang.
- Das Sampling kann nur aufgrund einer tiefgehenden Analyse der speziellen Fragestellung optimiert werden (Wahl der Ordnungsparameter).



Optimierung des Simulationsablaufs

Steuerung der Simulation

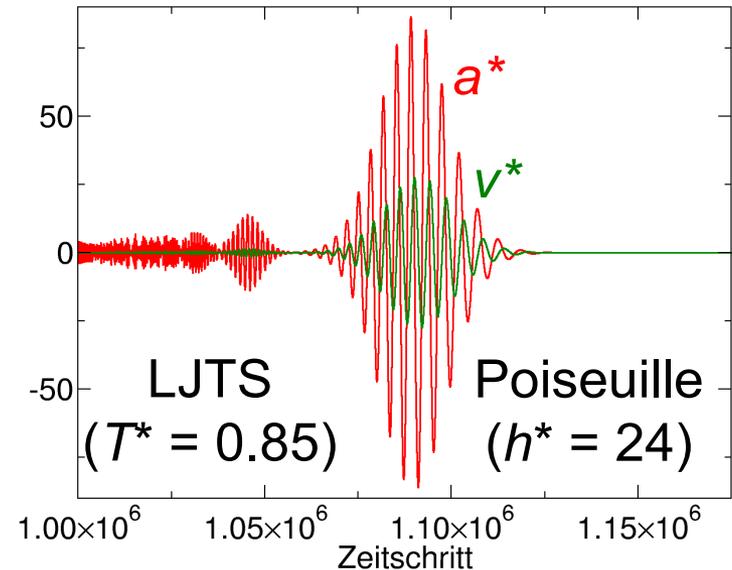
- Wann können wir mit dem echten Sampling beginnen?
- Ab wann ist das Ergebnis mit der gewünschten Genauigkeit bekannt?
- Nichtgleichgewicht (NEMD):
Regelung der auslenkenden Kraft



Optimierung des Simulationsablaufs

Steuerung der Simulation

- Wann können wir mit dem echten Sampling beginnen?
- Ab wann ist das Ergebnis mit der gewünschten Genauigkeit bekannt?
- Nichtgleichgewicht (NEMD):
Regelung der auslenkenden Kraft

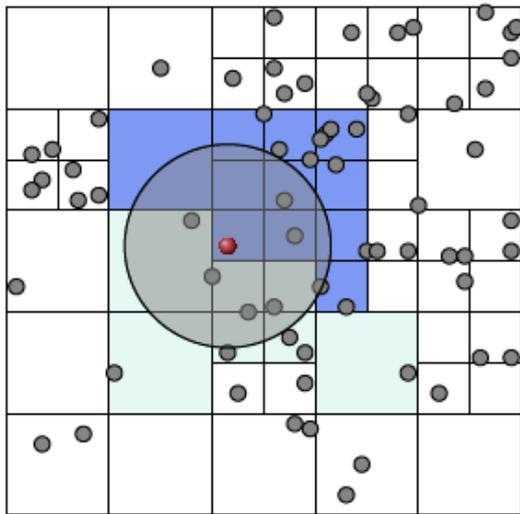


Integrator und Randbedingungen

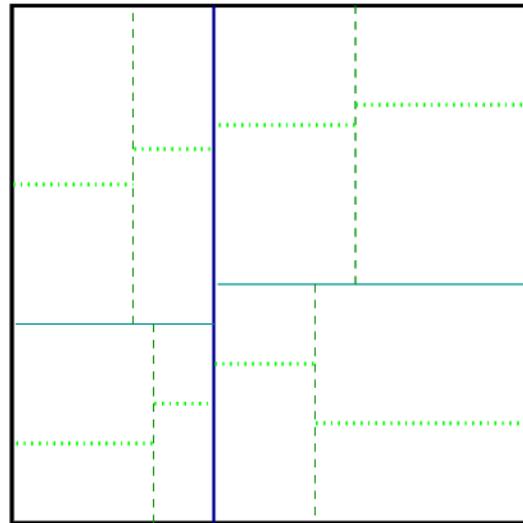
- Wie groß dürfen wir den Integrationszeitschritt wählen? (Adaptiv?)
- Welche Systemgröße genügt für das zu betrachtende Problem?
- Freier Parameter des Andersen- bzw. Nosé-Hoover-Thermostaten
- Regelung des Barostaten / “piston mass”

Optimierung des Simulationscodes

Massiv-paralleles Höchstleistungsrechnen wirft zusätzliche Optimierungsprobleme auf. Dabei geht es um die **Fehlertoleranz** und die **Lastbalancierung** für heterogene Systeme.



adaptive Zellen



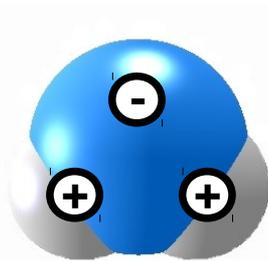
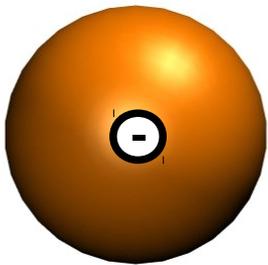
k-d-Dekomposition



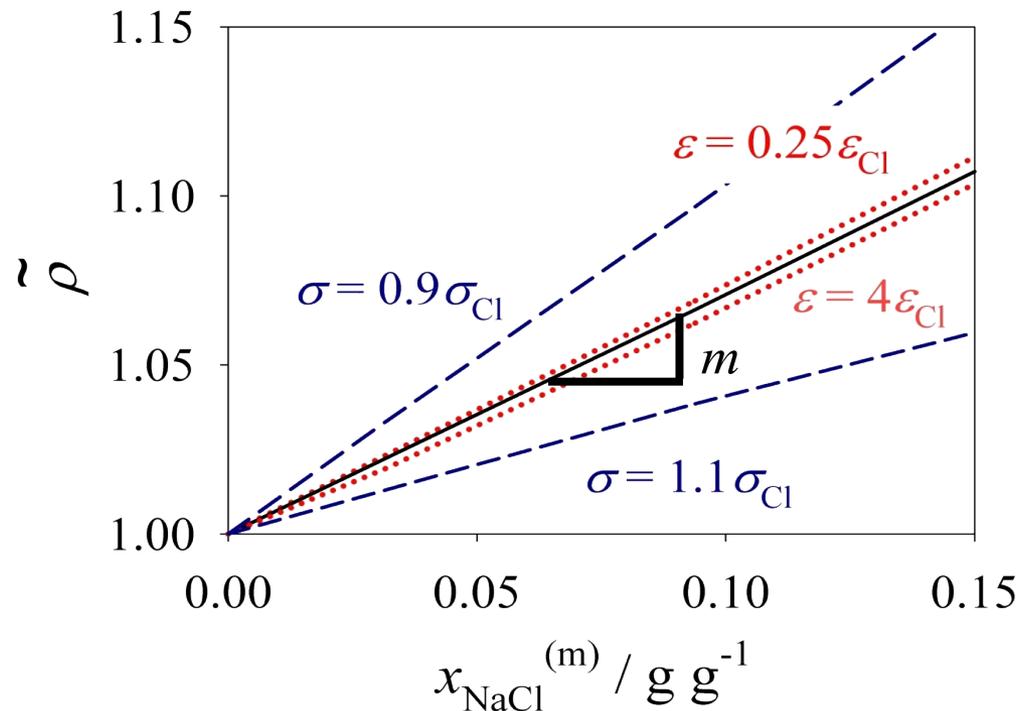


Optimierung molekularer Modelle

Beispiel: Elektrolytlösungen (Betrachtung der reduzierten Dichte)



(hier: SPC/E)

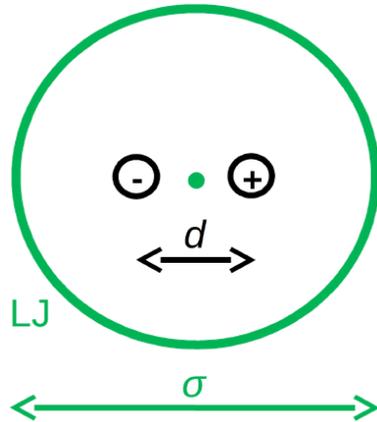


NaCl (aq)
 $T = 298 \text{ K}$
 $P = 100 \text{ kPa}$

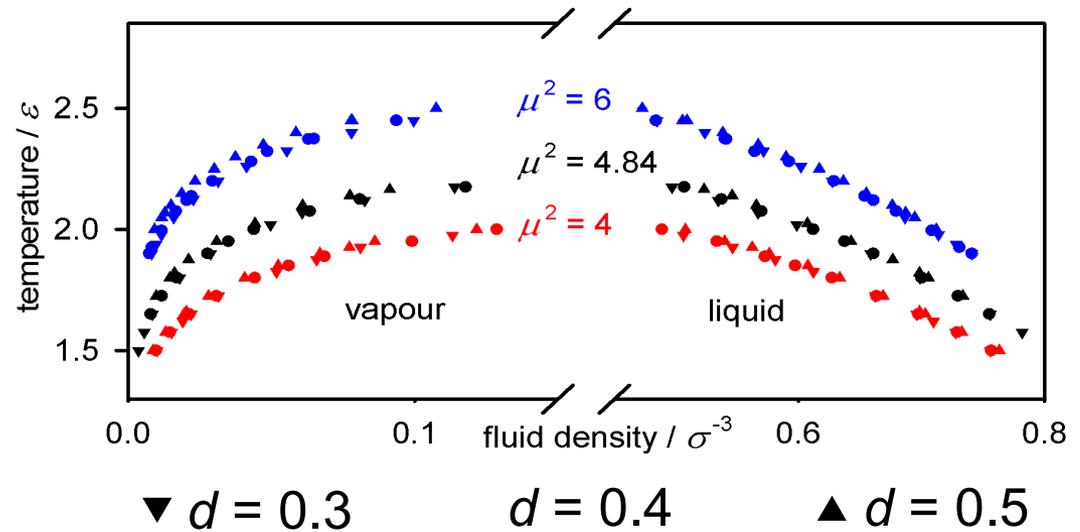
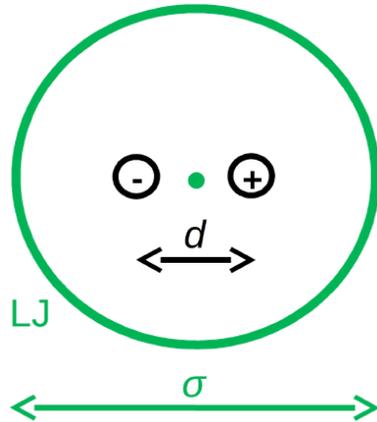
Die Sensitivitätsanalyse erzwingt hier einen multikriteriellen Ansatz.



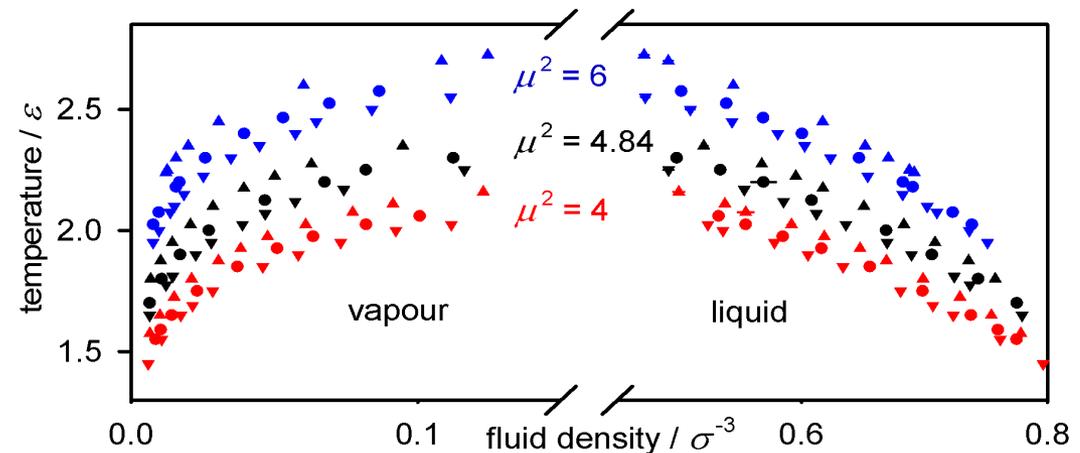
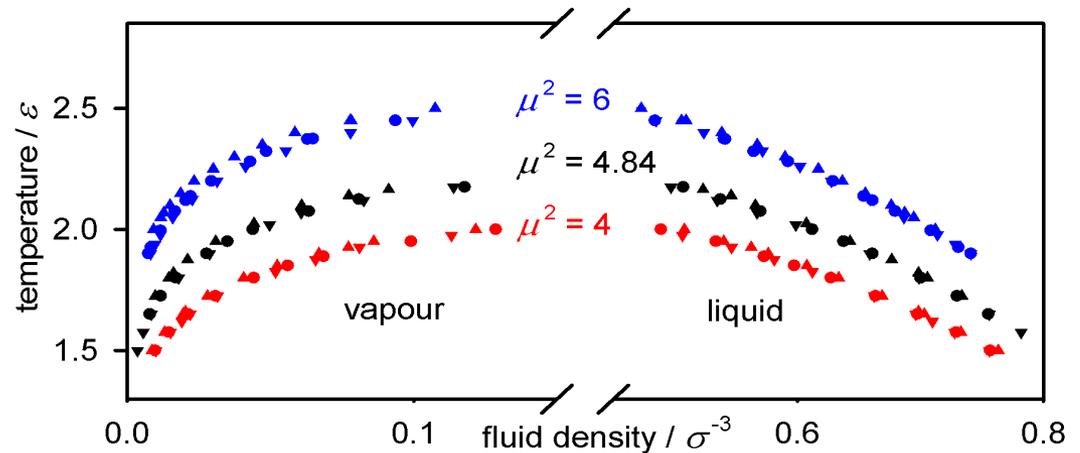
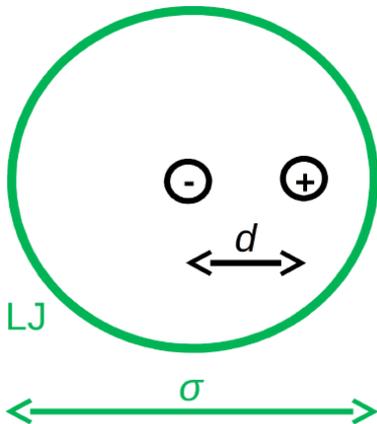
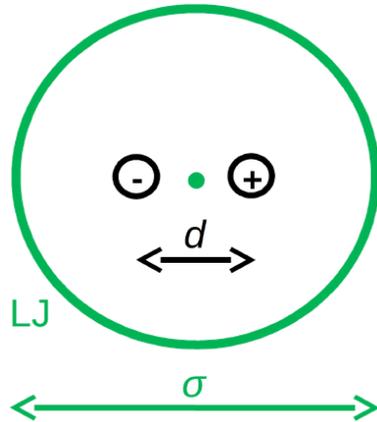
Optimierung der Modellstruktur



Optimierung der Modellstruktur



Optimierung der Modellstruktur



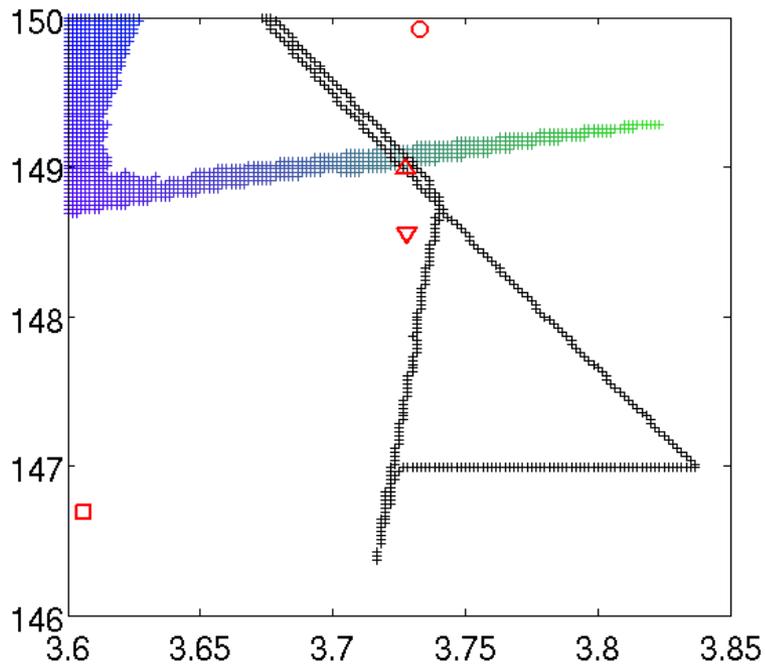
▼ $d = 0.3$

$d = 0.4$

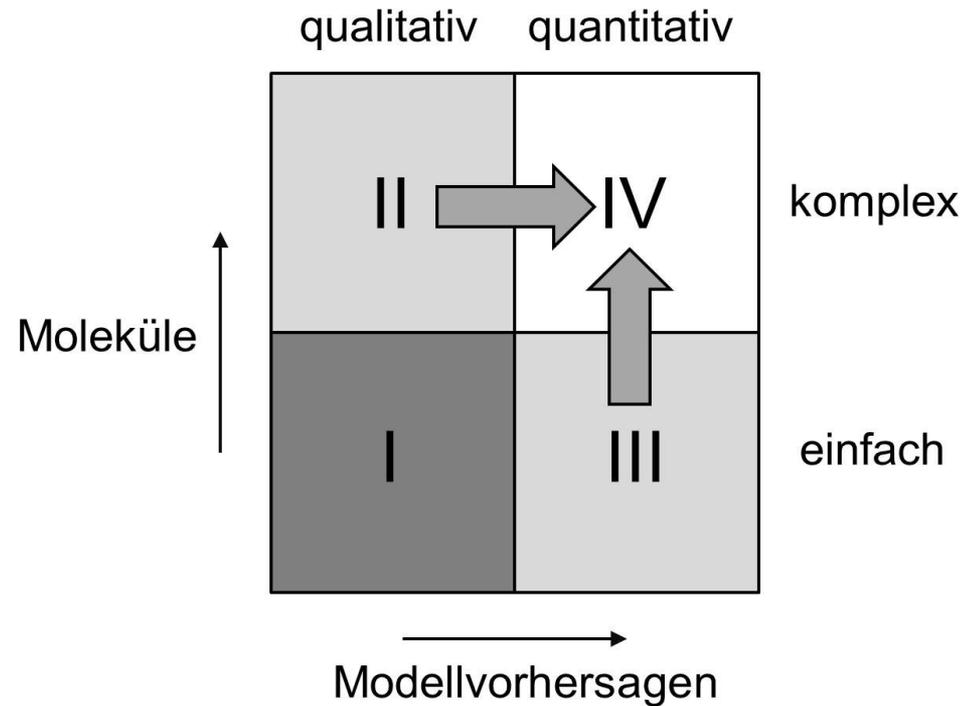
▲ $d = 0.5$



Projekte zur Modelloptimierung



PARETO FM



Reinhart-Koselleck-Projekt



Zusammenfassung

Statistische Mechanik und Optimierung

- ... sind miteinander zusammenhängende Anwendungsgebiete.
- Hochdimensionale Räume müssen durchsucht werden.

Optimierung der molekularen Simulation

- Methoden der molekularen Simulation haben viele freie Parameter, die selbst Gegenstand eines Optimierungsproblems sein können.

Optimierung der molekularen Modelle

- Projekt “PARETO FM” und Koselleck-Projekt des LTD
- Neben der Sensitivitätsanalyse müssen wir an der Fehlerrechnung arbeiten (dem Anwender keine falsche Genauigkeit vorspiegeln)