

Diss. ETH No. 18040

Multiscale Modeling and Simulation of Fullerenes in Liquids

A dissertation submitted to the
SWISS FEDERAL INSTITUTE OF TECHNOLOGY
ZÜRICH

for the degree of
DOCTOR OF SCIENCES

presented by
Evangelos M. Kotsalis

Dipl. Mech. Ing., ETH Zürich
born on March 25th, 1981
citizen of Athens, Greece

Accepted on the recommendation of
Prof. Dr. P. Koumoutsakos, examiner
Prof. Dr. J. H. Walther, co-examiner
Prof. Dr. E. Kaxiras, co-examiner
2008

Abstract

Fullerenes are a family of carbon allotropes, molecules composed entirely of carbon, which form hollow spheres, ellipsoids, tubes, or planes. Their unique physical properties make them excellent candidates for applications ranging from their use as innovative materials to targeted drug design and delivery. Their use in these applications requires a rigorous understanding of the underlying physical mechanisms. Here we study the physics of interactions between fullerenes and (bio)molecular flows. We will particularly explore the property of their hydrophobicity and how it is affected from impurities on the surface depending on their manufacturing. We will additionally investigate the validity of the no-slip boundary condition, that is assumed in continuum fluid dynamics studies, at the nanoscale and determine the parameters that influence it.

Nanoscale flows are often embedded in larger scale systems, when for example nanofluidic channels are interfacing microfluidic domains. In computer simulations we are then confronted with an inherently multiscale problem. Despite the success of atomistic simulation models (like Molecular Dynamics (MD)), their limitations in accessible length and time scales are stringent and allow only the analysis of elementary systems and for short times. As fully atomistic simulations are prohibitively expensive, hybrid atomistic-continuum simulations are necessary to study large systems for reasonable times. Here we develop novel computational concepts based on dynamic control theory for the exchange of information between atomistic and continuum descriptions. We will first consider flows of monoatomic liquids, such as argon, past fullerenes to obtain insight into the problem. Finally we will extend the developed method to a liquid of immense importance for every living organism, namely water.

Zusammenfassung

Die Fullerene sind eine Familie von Kohlenstoff-Allotropen. Sie sind Moleküle, die ausschliesslich aus Kohlenstoff bestehen, in der Form von hohlen Kugeln, Ellipsoiden, Röhren oder Ebenen. Ihre einzigartigen physikalischen Eigenschaften zeichnen sie als Kandidaten für Anwendungen als innovative Materialien oder in Bereichen wie gezielter Medikament-Entwicklung aus. Ihre Benutzung in diesen Anwendungen benötigt ein tiefes Verständnis der unterliegenden physikalischen Mechanismen. In der vorliegenden Arbeit wird die Physik der Interaktionen zwischen Fullerenen und (bio)molekularen Strömungen untersucht. Insbesondere, ihre Hydrophobie wird analysiert und wie sie von Unreinheiten auf der Oberfläche, die vom Herstellungsprozess abhängig sind, beeinflusst wird. Zusätzlich untersuchen wir im Nanobereich die Gültigkeit der *no-slip* Randbedingung, die in Kontinuum Fluidodynamik-studien angenommen wird, und bestimmen die Parameter, die sie beeinflussen.

Strömungen im Nanobereich sind oft in grössere Systeme eingebettet, wenn zum Beispiel nanofluidische Kanäle mikrofluidische Domäne anschliessen. In Computer-Simulationen wir setzen uns eines Problems auseinander, das von Natur aus aus multiplen Skalen besteht. Trotz der Erfolgs von atomistischen Simulationen (wie Molekulardynamik), ihre Beschränkungen im Bereich der erreichbaren Dimension- und Zeit-Skalen sind streng und erlauben nur die Analyse von elementaren Systemen und für kurze Zeiten. Wegen der Aufwand von atomistischen Simulationen sind hybride Atomistisch-Kontinuum Simulationen notwendig, um grössere Systeme und für sinnvolle Zeiten zu untersuchen. Hier wir entwickeln neue rechnergestützte Konzepte, die auf Regelungstechnik basieren, um Information zwischen den beiden Beschreibungen auszutauschen. Zuerst ziehen wir Strömungen von monoa-

tomischen Flüssigkeiten, wie Argon, in Betracht, um Einsicht in das Problem zu bekommen. Letztendlich erweitern wir die entwickelte Methode auf eine Flüssigkeit, die für jedes Lebewesen immens wichtig ist, nämlich Wasser.