

碳纳米管中水孤立子扩散现象的模拟研究

李阳 宋永顺 黎明 周昕

Simulation studies on the diffusion of water solitons in carbon nanotube

Li Yang Song Yong-Shun Li Ming Zhou Xin

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 140202 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.140202

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.140202>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I14>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

高应变率压缩下纳米孔洞对金属铝塑性变形的影响研究

Plastic deformation in nanoporous aluminum subjected to high-rate uniaxial compression

物理学报.2015, 64(17): 170201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.170201>

运动物体在颗粒物质中的动力学过程及最大穿透深度仿真研究

Simulation of the projectile dynamics in granular media

物理学报.2013, 62(13): 130204 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.130204>

Pb液滴在Ni基底润湿铺展行为的分子动力学模拟

Molecular dynamics simulation of the wetting behavior of Pb droplet on Ni substrate

物理学报.2013, 62(12): 120203 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.120203>

接触角与液固界面热阻关系的分子动力学模拟

A molecular dynamics simulation on the relationship between contact angle and solid-liquid interfacial thermal resistance

物理学报.2013, 62(11): 110204 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.110204>

不同温度条件下单层石墨烯纳米带弛豫性能的分子动力学研究

Relaxation properties of graphene nanoribbons at different ambient temperatures: a molecular dynamics study

物理学报.2012, 61(20): 200207 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.200207>

碳纳米管中水孤立子扩散现象的模拟研究*

李阳 宋永顺 黎明 周昕†

(中国科学院大学物理科学学院, 北京 100049)

(2016年4月15日收到; 2016年4月21日收到修改稿)

受限于人造或天然纳米通道的分子运动已成为纳米科学的研究热点, 对生物和化学也具有重要意义. 本文采用分子动力学模拟的方法研究了水分子在单壁扶手椅型碳纳米管内的运动. 针对基于水密度缺陷的孤立子运输机理, 我们发展了新的方法用以准确鉴别孤立子, 在此基础上细致研究了孤立子的运动行为, 发现其满足标准一维扩散运动的特征. 我们的模拟还表明, 温度越高, 孤立子扩散速度越大; 孤立子数密度越大, 其扩散速度越小. 这与前人提出的孤立子之间存在弱排斥的设想是一致的.

关键词: 碳纳米管, 分子动力学, 孤立子, 扩散系数

PACS: 02.70.Ns, 61.48.De, 89.40.Cc

DOI: 10.7498/aps.65.140202

1 引言

流体在微通道中的输运在生命系统以及日常生活中扮演着重要角色, 最典型的例子是细胞膜上的蛋白通道, 它们能够选择性地控制水分子和各种物质进出, 从而很好地维持了细胞的动态平衡^[1]. 尽管纳米尺度的流体输运现象受到了广泛的关注^[2-4], 如在药物输运、仿生离子通道选择性输运、海水脱盐等研究领域具有重要的应用价值^[5,6], 但是对于流体输运的微观机理人们还不甚了解. 在这方面, 分子动力学模拟是一个有力的研究工具. 模拟研究发现, 受限在非极性纳米通道(如碳纳米管)中的水分子表现出独特的性质^[7,8]. 在管径较细的碳纳米管内, 水分子会形成一维水链, 并具有很快的流速^[9,10]. 受到热涨落、压强、温度、电场以及碳管的长度、手性、几何形状等因素的影响, 水分子的排列、偶极取向、运动都会呈现出一定特点^[11-15].

早期的分子动力学模拟聚焦于均匀分布的单分子水链的整体运动^[16]. 标准大气压下, (6, 6)碳纳米管中平均每碳六角环长度对应0.93个水分

子^[17-19], 而(5, 5)管中对应0.86个水分子^[18,20,21]. 之后人们在连续时间随机行走的基础上提出跳变模型, 观察到单个水分子在短管内的离散跳变运动, 但对背后机理并没有给出合理解释^[22]. 最近Sisan等^[23]针对纳米通道中快速单链水流提出一种新的基于缺陷的运动机理, 与早期观察到的离散分子跳变运动一致. 此处的缺陷是因局部小范围内水分子分布不均匀而出现的一种密度缺陷. 它拥有Frenkel-Kontorova孤立子的所有特性^[24-27], 是由于体系中相互作用引起的分布距离的非公度而产生的^[23]. 在水分子间的氢键相互作用下, 水分子倾向于均匀分布, 长度由体系尺寸和水分子个数共同决定. 而碳管壁与水分子间相互作用使得水分子倾向于分布在碳管势能极小值位点. 这两种相互作用竞争导致水分子局部密度波动, 从而产生孤立子. 密度缺陷总是成对出现在构象中, 即, 缺一个水分子就会产生两个孤立子^[18,23], 两个孤立子形状不变, 随着时间的变化自由移动, 并且始终保持独立. 由于纳米通道中总是存在这两种相互作用的竞争, 所以这种基于缺陷的孤立子输运方式是普遍存在的. 缺陷的定向运动会引起水分子的快速流动, 因此研究孤立子的运动对深入了解通道中的水运输

* 国家自然科学基金(批准号: 11105218, 11347614)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xzhou@ucas.ac.cn

显得尤为必要。

尽管 Sisan 等明确提出了孤立子概念,但他们所采用的密度平均方法不易从水链构象中识别出孤立子(例如其位置、轮廓),尤其当温度较高时,平均后的密度涨落仍然较大,难以与热涨落区分。为避免这一问题,本文中我们对模拟所得构象进行能量最小化处理,使水分子落在最近邻的势阱中,通过切分窗口的方法识别孤立子。与密度平均方法相比,这一方法能够更简单明了地识别孤立子。在此基础上,我们利用全原子分子动力学模拟研究了孤立子在单壁扶手椅型碳纳米管内的运动行为。我们发现,孤立子的长时间运动呈现出一维扩散的特征,温度越高其扩散速度越快,并且孤立子数密度越大其扩散速度越慢。

2 模型和方法

刚性模型和柔性模型是单壁碳纳米管模拟中常采用的两类模型。本文选择刚性模型,将碳管完全固定不动,不考虑原子间键的伸缩、键角弯曲以及二面角的变化。这样可以有效地缩短计算时间。水分子间以及水分子和管壁碳原子之间的势能作用 U 均采用 Lennard-Jones (LJ) 势能函数,即

$$U(r_{ij}) = 4 \times \varepsilon_{ij} \left[\left(\frac{\sigma_{ij}}{r_{ij}} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma_{ij}}{r_{ij}} \right)^6 \right], \quad (1)$$

其中, r_{ij} 为 i 粒子和 j 粒子间距,超过截断半径的分子间相互作用力忽略不计; ε_{ij} 和 σ_{ij} 表示水分子和管壁碳原子间的作用势能量和距离参数,由 Lorentz-Berthlot 混合规则确定,在 OPLS 力场下如(2)式所示。本文采用的各个粒子的势能参数见表 1。

$$\sigma_{ij} = (\sigma_{ii}\sigma_{jj})^{\frac{1}{2}}, \quad \varepsilon_{ij} = (\varepsilon_{ii}\varepsilon_{jj})^{\frac{1}{2}}. \quad (2)$$

表 1 势能参数

Table 1. Parameters of the potential energy.

Atom symbol	$\varepsilon/\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$	σ/nm	Partial charge q/e
C	0.299	0.355	0.000
O	0.637	0.315	-0.834
H	0.000	0.000	0.417

模拟选取在 NVT 正则系综中进行。模拟体系由一个 50 nm 长的 (4, 4), (5, 5) 或 (6, 6) 单壁扶手

椅型碳纳米管和一定数目的 TIP3P 水分子组成,如图 1 所示。管中碳原子在整个模拟过程中固定不动,每个碳原子被排布在六角环中,六角环长度为 0.2456 nm。初始构象中水分子沿管轴线方向间隔半碳环长度排列,与该方向上的碳环个数相等装满碳管。一个关键的模拟参数是碳管中水分子的个数 (N) 与轴线方向碳环个数 (L) 的差值 S ,

$$S \equiv N - L. \quad (3)$$

S 可取, $\pm 1, \pm 2$ 等不同值,分别对应不同的孤立子数目。

所有分子动力学模拟都采用 GROMACS 4.6.3 通过全原子力场进行模拟。模拟体系采用周期性边界条件。用 Ewald 求和处理长程相互作用,计算库仑势和 LJ 相互作用的截断半径为 7.0 nm。在 6.5 nm 处采用过渡函数,使得在截止点处相互作用不会突然降低,而是平滑过渡至 0。近邻列表每十步更新一次,一方面减少频繁更新带来的较大计算量;另一方面避免低频率更新引起的体系固有错误。时间步长 2 fs,每 10 fs 完成一次采样。运用 Berendsen 算法将体系温度分别控制在 5, 20, 75, 150, 200 以及 300 K。初始速度从相应温度的 Boltzmann 随机分布中选取。对于每一个体系,我们都做了 5 ns 的分子动力学模拟。我们采用每条轨迹的最后 3 ns 数据做进一步的处理和分析。

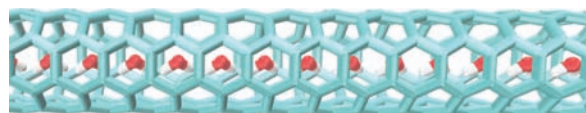


图 1 (网刊彩色) 模拟体系

Fig. 1. (color online) Snapshot of the simulation system.

3 结果与讨论

上文中提到碳管壁和水分子之间 LJ 相互作用影响水分子在碳管中的分布。此处,我们首先给出在距离碳管中心 $r = 0.035 \text{ \AA}$ 处,水分子与碳管壁相互作用的势能面。沿管轴线方向剖开后,相互作用势 U 随 θ (角向位置) 和 z (轴向位置) 变化的函数关系如图 2 左图所示,其中角向位置 θ 表征碳管半径所在平面的位置(见图 2 右图)。碳管具有周期性晶格结构,沿碳管轴向 z 每碳六角环长度对应有两个势能极大值点和两个势能极小值点(两个位点间的能量差为 0.012 kcal/mol) [17]。

考虑到碳纳米管的周期性晶格结构, 我们绘出了不同管径中水分子的分布情况. 一方面沿碳管轴线方向统计单位长度内分布的水分子个数, 如图 3(a) 所示. 水分子周期性地排布在各个碳环的同一势能极小值位点. 插图中描述的就是一个碳环长度上的两个势能极大值点和两个势能极小值

点, 进一步说明了圆柱状单壁扶手椅型碳纳米管沿轴线方向具有周期性相互作用势. 另一方面, 径向方向由于具有几何对称性, 在轴线附近会出现势能极小位点^[11]. 水分子分布在轴线附近而非轴心处, 如图 3(b) 所示, 管径越大, 一维水链越偏离轴心位置.

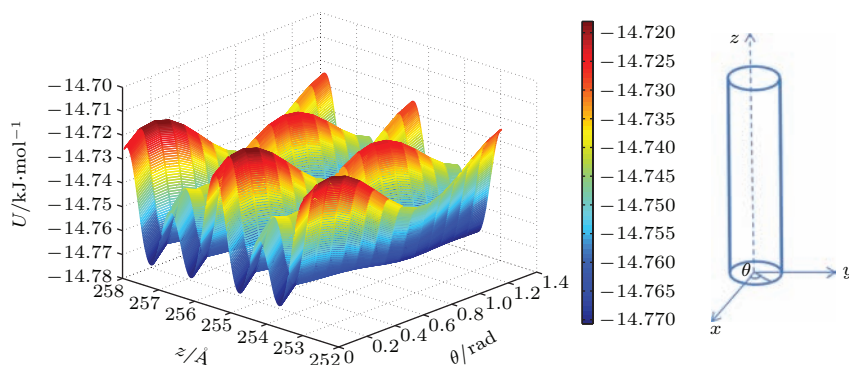


图 2 (网刊彩色) 单壁扶手椅型碳纳米管管壁与水分子相互作用势

Fig. 2. (color online) Potential energy landscapes of a water molecule as a function of z and θ in single-walled armchair CNT.

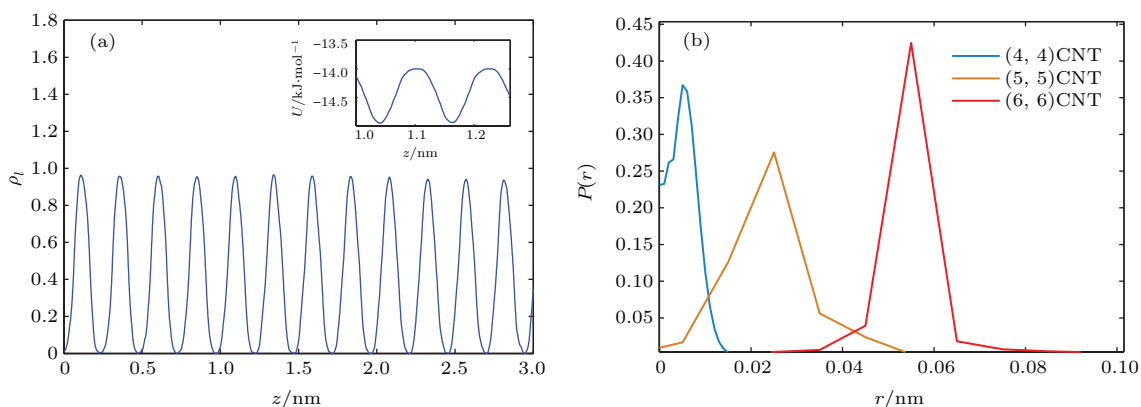


图 3 (网刊彩色) 水分子在 (4, 4) CNT 中的分布 (a) 水分子沿碳管轴向分布受到周期性相互作用势影响, z 为其在沿碳管轴向位置, ρ_l 表示单位长度水分子个数; 插图中是一个碳环长度 (0.25 nm) 上对应的四个势能极值点; (b) 水分子在 CNT 中的径向数密度分布, r 为碳管的径向位置, $P(r)$ 为统计时间内水分子出现在 r 处的概率

Fig. 3. (color online) Distribution of water molecules in CNT: (a) The density of water molecules along the axes of CNT, z ; the inset indicates two maxima and two minima of the potential energy inside a carbon ring; (b) the density of water molecules along the radius of CNT, r .

模拟中, 当水分子个数与碳纳米管轴向碳环个数相等时, 水分子只在平衡位置处做热振动, 如图 4(a) 所示. 而个数不相等时, 就会产生密度缺陷. 大部分水分子仍在原位做热振动, 而缺陷附近的水分子则做大幅度的往复运动, 如图 4(b) 所示. 每当有缺陷经过时, 水分子就会在间隔半碳环长度 (0.1228 nm) 的两个位置间发生一次跃迁, 也就是说水分子在相邻碳环的势能极小位点间运动.

在研究孤立子运动时, 由于缺陷移动的随机性

和热涨落的影响, 利用构象密度平均和轨迹时间平均的方法都难以识别孤立子. 我们采用能量极小化的方法对构象进行处理, 沿 CNT 轴向方向以半碳环长度为单位切分窗口, 通过判断每个时刻每个水分子是否落入对应的半碳环区间, 从而找到水分子所在的吸引阱的能量极小值点, 很好地消除了热涨落对孤立子识别的干扰. 由于水分子间有氢键相互作用, 碳环上的两个势能极小值位点不能被水分子占据. 缺失水分子数 $S = 0$ 时, 水分子在

碳管中有两套排列方式(1010101010101010)或者(0101010101010101),如图5(a)所示.当 $S = -1$ 时,初始构象可取为(1010100010101010),但这样的能量状态并不稳定(见图5(b)).经过一段时间平衡后,采样得到构象例如(1010010101001010),其中大部分水分子驻留在原位置处,而其间出现两个半缺陷0,分别对应单分子缺失的一半(见图5(c)).同样地, $S = -2$ 时体系的初始构象可取

为(1010100000101010)(见图5(d)).平衡一段时间后的水分子排列为(1001010010100100),大部分水分子保持(10)的方式排列,中间出现了四个半缺陷(见图5(e)).可以看出,平衡后构象中的孤立子是成对出现的,并且(00)处必然对应着半缺陷.我们只需在能量极小化的每一构象中,利用切分窗口的方法,将水分子坐标转变成1,0序列,找出(00)序列即可对孤立子进行精确定位.

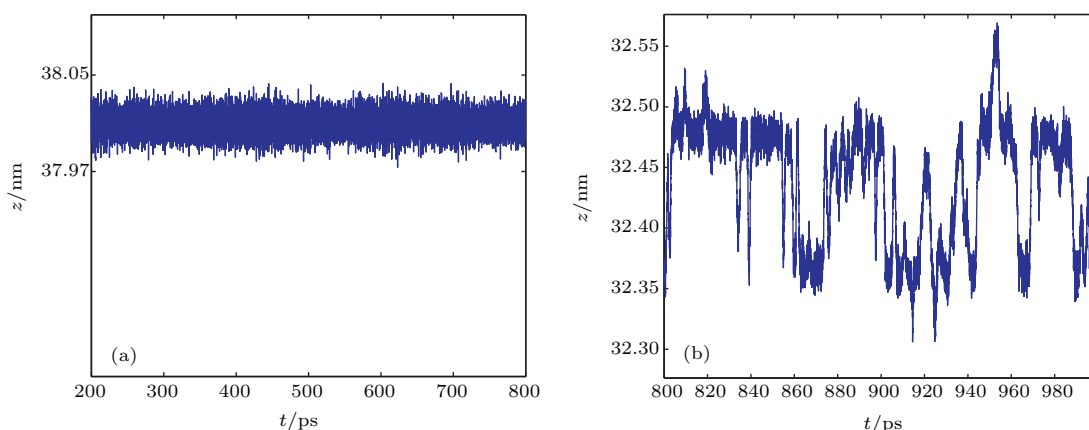


图4 单分子运动轨迹 (a) $S = 0$ 时,单个水分子在平衡位置处做热振动,其中 z 表示水分子在碳管轴向的位置;(b) $S = -1$ 时,缺陷附近单个水分子做大幅度的往复运动

Fig. 4. Trajectory of a single molecule: (a) $S = 0$, any single molecule undergoes thermal fluctuation around its equilibrium position; (b) $S = -1$, the water molecule near a defect undergoes large-scale translocation.

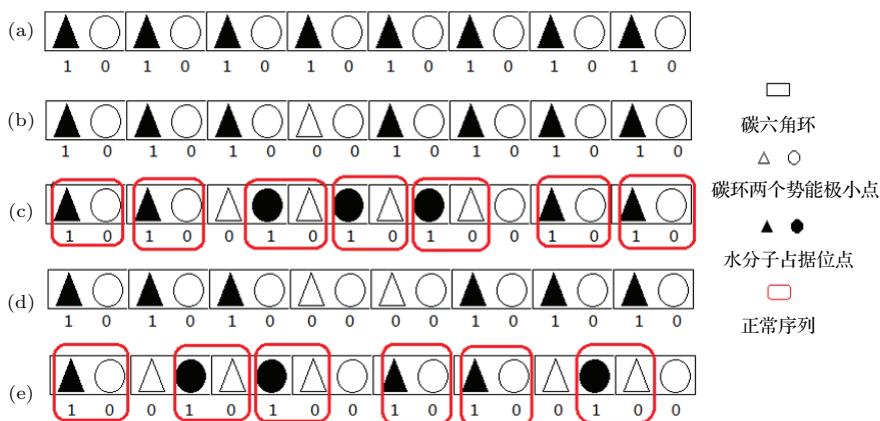


图5 (网刊彩色) 一维水链中孤立子的识别

Fig. 5. (color online) Method of soliton identification in the 1D water molecule chain.

图6给出了密度平均方法与能量最小化后窗口计数方法的比较.水分子填满碳管时($S = 0$),密度是均匀分布的.当 $S = -1$ 时,密度平均后得到的结果并不能很好地区分热涨落和孤立子(见图6(b)),但是采用后一种方法可以有效剔除热涨落带来的影响,准确追踪孤立子的位置(见图6(e)).同样,当 $S = -2$ 时,后一方法也明显优于密度平均

法(见图6(c)和图6(f)).

基于上述方法,我们进一步研究了孤立子的运动行为.通过计算孤立子对的均方位移随时间的变化,我们发现构象中成对出现的孤立子的运动基本上是一致的.在双对数坐标系中,孤立子长时间均方位移随时间变化的图像近似为一直线,与 $l^2 \propto t$ 相平行(见图7).这表明孤立子的运动符合简单的

一维扩散运动规律, 即均方位移正比于时间 $\langle(x_t)^2\rangle = 2Dt$, D 是扩散系数. 同时, 我们的模

拟还表明, 在不同温度和不同孤立子数目的情况下, 孤立子的扩散常数 D 是不同的.

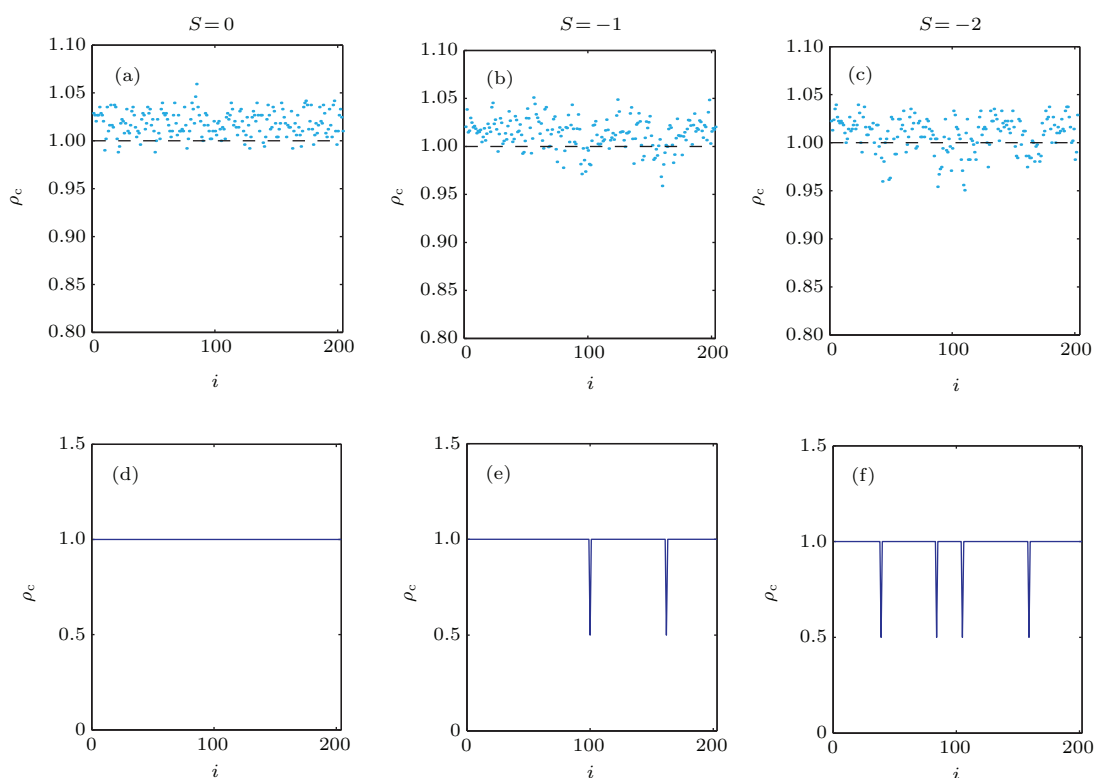


图6 两种识别孤立子的方法 (a), (b) 和 (c) 分别为 $S = 0, S = -1$ 和 $S = -2$ 时密度平均方法处理后得到的碳管中水分子密度分布, i 为轴线方向水分子的序号, 表示单位碳环长度中水分子的个数; (d), (e) 和 (f) 分别为 $S = 0, S = -1$ 和 $S = -2$ 时能量极小化后分窗口计数处理得到的结果

Fig. 6. Two methods of soliton identification: (a), (b) and (c) describe the density of water molecules calculated by the mean density of a few neighboring conformations, for $S = 0, -1, -2$, respectively; in (d), (e) and (f), the sampled conformation is processed first by energy minimization and then counting the number of water in each bin.

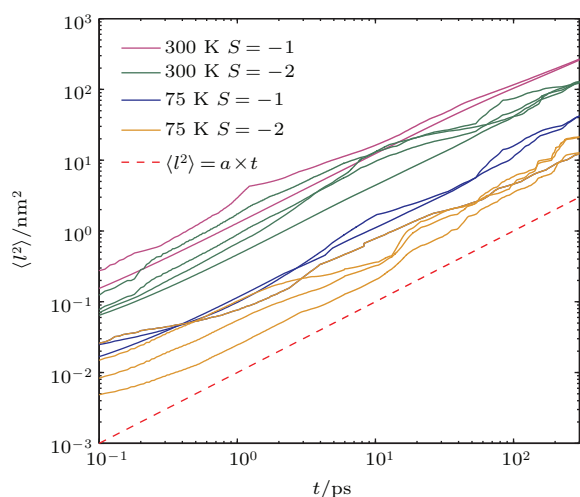


图7 (网刊彩色) (4, 4) CNT 不同 T, S 时孤立子的均方位移 $\langle l^2 \rangle$ 随时间 t 的变化, 红色虚线为参考线

Fig. 7. (color online) In (4, 4) CNT, the mean squared displacement $\langle l^2 \rangle$ of solitons as a function of time t under different T and S . The red dashed line is shown as a reference.

我们发现孤立子的扩散系数随温度升高而变大, 如图8所示. 温度为5 K时, 分子热运动非常缓慢, 孤立子的扩散系数 $D_{S=-1} = 2.83 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$, $D_{S=-2} = 1.01 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$; 而 $T = 150 \text{ K}$ 时, $D_{S=-1} = 1.19 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$, $D_{S=-2} = 5.95 \times 10^{-8} \text{ m}^2/\text{s}$; 温度增加到300 K时, $D_{S=-1} = 4.18 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$, $D_{S=-2} = 2.12 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$. 可见, 随着温度升高, 热运动加剧, 碳管中水分子的扩散系数也显著增加. 作为对比, 体相水温度为297 K时的扩散系数仅为 $2.7 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$, 与我们模拟的受限水5 K时的结果 $D_{S=-1}$ 相接近^[28], 与300 K时的结果相比低了两个量级. 可以看出受限在碳纳米管中孤立子的扩散运动比自由水的运动更快一些. 同时, 我们也发现 $D_{S=-1}$ 随 T 的变化曲线总是高于 $D_{S=-2}$. 也就是说, 在任何温度下, $D_{S=-1}$ 总是高于 $D_{S=-2}$, 并且温度越高, 孤立子数目对于扩散系

数的影响越明显. 我们认为这与 Sisan 文中提到的孤立子间存在弱排斥作用有关^[18]. 因为存在排斥作用, 孤立子总要保持一定间距不能靠近, 所以在有限长度的碳管中, 孤立子数目越多, 间距越小, 其运动受到的排斥作用加强, 相应的扩散系数就会减小, 这与我们得到的模拟结果一致.

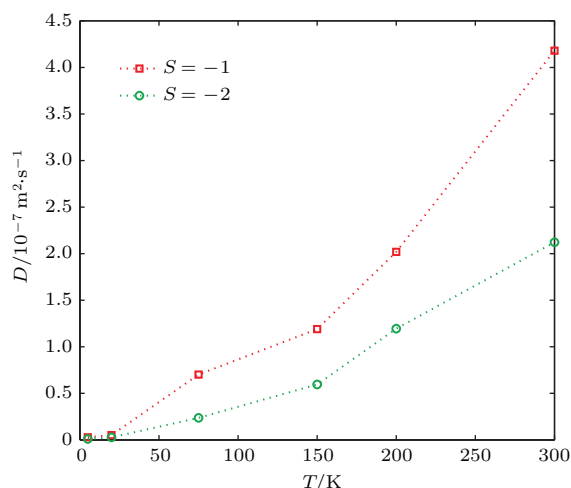


图8 (4, 4) CNT 孤立子扩散系数 D 随温度 T 的变化
Fig. 8. Soliton diffusion coefficient in (4, 4) CNT as a function of temperature.

4 结 论

本文运用分子动力学方法模拟了不同温度下受限于单壁扶手椅型碳纳米管中水分子的扩散运动, 在缺陷运输机理的基础上, 给出了水分子与碳管壁相互作用的势能分布和水分子在碳管中的结构分布. 我们改进了识别孤立子的方法, 用能量极小化后切分窗口的方法排除热涨落对体系的影响, 准确地识别了一维水分子链中的孤立子, 并研究了其运动行为. 模拟表明, 孤立子的长时间运动呈现出扩散运动的特征. 我们发现温度 T 和水分子缺失数目 S 对孤立子扩散系数都有影响. 高温会加剧孤立子的扩散运动, 而较大的水分子缺失数 (即较大的孤立子数密度) 会抑制孤立子的扩散, 这可能是由于有限管长内孤立子间的排斥效应所导致的.

本文中我们只研究了扶手椅型碳纳米管. 手征碳纳米管中受限水也会单链排列, 同时也存在缺陷运输模式. 由于手征碳纳米管具有螺旋性, 水分子的排列更为复杂, 对其进行系统研究有望给出更加丰富的结果, 我们将在以后的工作中对此进行详细讨论.

感谢中国科学院大学物理学院袁飞同学的帮助和讨论.

参考文献

- [1] de Groot B L, Grubmuller H 2001 *Science* **294** 2353
- [2] Bai J, Zeng X C 2012 *Proc. Natl. Acad. Sci.* **109** 21240
- [3] Sparreboom W, Van Den Berg A, Eijkel J C T 2010 *New J. Phys.* **12** 015004
- [4] Su J Y, Guo H X 2013 *J. Phys. Chem. B* **117** 11772
- [5] Liu J, Shi G S, Guo P, Yang J R, Fang H P 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 164502
- [6] Bianco A, Kostarelos K, Prato M 2005 *Curr. Opin. Chem. Biol.* **9** 674
- [7] Hernández-Rojas J, Calvo F, Bretón J, Gomez Llorente J M 2012 *J. Phys. Chem. C* **116** 17019
- [8] Rasaiah J C, Garde S, Hummer G 2008 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **59** 713
- [9] Majumder M, Chopra N, Andrews R, Hinds B J 2005 *Nature* **438** 44
- [10] Holt J K, Park H G, Wang Y, Stadermann M, Artyukhin A B, Grigoropoulos C P, Noy A, Bakajin O 2006 *Science* **312** 1034
- [11] Feng J W, Ding H M, Ren C L, Ma Y Q 2014 *Nanoscale* **6** 13606
- [12] Qian Z, Fu Z, Wei G 2014 *J. Chem. Phys.* **140** 154508
- [13] Vaitheeswaran S, Rasaiah J C, Hummer G 2004 *J. Chem. Phys.* **121** 7955
- [14] Zhou X, Li C Q, Iwamoto M 2004 *J. Chem. Phys.* **121** 7996
- [15] Kofinger J, Hummer G, Dellago C 2011 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **13** 15403
- [16] Zhu F Q, Tajkhorshid E, Schulten K 2004 *Biophys. J.* **86** 50
- [17] Hummer G, Rasaiah J C, Noworyta J P 2001 *Nature* **414** 188
- [18] <http://link.aps.org/supplemental/10.1103/PhysRevLett.112.044501>[2016.4.1]
- [19] Mukherjee B, Maiti P K, Dasgupta C, Sood A K 2007 *J. Chem. Phys.* **126** 124704
- [20] Corry B 2008 *J. Phys. Chem. B* **112** 1427
- [21] Alexiadis A, Kassinos S 2008 *Chem. Eng. Sci.* **63** 2047
- [22] Berezhkovskii A, Hummer G 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 064503
- [23] Sisan T B, Lichter S 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 044501
- [24] Braun O M, Kivshar Y S 1998 *Phys. Rep.* **306** 1
- [25] Coppersmith S N, Fisher D S 1988 *Phys. Rev. A* **38** 6338
- [26] McLaughlin D W, Scott A C 1978 *Phys. Rev. A* **18** 1652
- [27] Strunz T, Elmer F J 1998 *Phys. Rev. E* **58** 1612
- [28] Lou Y M, Liu J H, Zhou X P, Liu J C 2009 *Journal of Southwest China Normal University (Natural Science Edition)* **34** 34 (in Chinese) [娄彦敏, 刘娟红, 周晓平, 刘锦超 2009 西南师范大学学报 (自然科学版) **34** 34]

Simulation studies on the diffusion of water solitons in carbon nanotube*

Li Yang Song Yong-Shun Li Ming Zhou Xin[†]

(School of Physical Sciences, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

(Received 15 April 2016; revised manuscript received 21 April 2016)

Abstract

Fluid transport is a very common phenomenon. Recently flow process in nanochannels has drawn much attention, since it differs quite much from that in macroscopic pipes. In particular, the motion of confined water molecules in nonpolar nanochannels has become a hotspot in nanotechnology, and also an important issue in biology and chemistry. Besides the experimental studies, computer simulations (e.g., molecular dynamics simulation) have also been proven to be a powerful tool to investigate such issues. Early simulations focused on the concurrent motion of all water molecules inside nanochannels such as carbon nanotubes (CNTs), where water molecules are evenly spaced in a single file and occasionally but collectively transport through CNTs. Recently, a new model of water transport in CNTs was presented, which indicates that water-density defects in the one-dimensional (1D) chain of water molecules can move as solitons. This is explained as a natural consequence of competition between water-water interactions and water-CNT interactions. While this new model is very appealing, the identification of soliton is not a trivial work (especially at not very low temperatures), since the density defects of water molecules might not be easily recognized from their thermal fluctuation. In this paper, a new method is developed to precisely identify the soliton by quenching the simulation conformations to their nearest neighboring local minima. Based on the new soliton identification method, we study the motion of water in single-walled armchair CNTs by all-atom molecular dynamics simulations. We investigate the motion of solitons in detail, which is observed as a standard 1D diffusion on a picosecond time scale. The simulations also show that the diffusion coefficient of solitons increases with temperature rising, and decreases with the number density of solitons increasing. These results are consistent with the postulation that there exists a weak repulsion between solitons.

Keywords: carbon nanotubes, molecular dynamics, soliton, diffusion coefficient

PACS: 02.70.Ns, 61.48.De, 89.40.Cc

DOI: [10.7498/aps.65.140202](https://doi.org/10.7498/aps.65.140202)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11105218, 11347614).

[†] Corresponding author. E-mail: xzhou@ucas.ac.cn