

分子串模型中空间弛豫模式的弛豫动力学的蒙特卡罗模拟*

樊小辉¹⁾ 赵兴宇¹⁾ 王丽娜¹⁾ 张丽丽¹⁾ 周恒为¹⁾²⁾ 张晋鲁¹⁾³⁾ 黄以能^{1)2)†}

1)(伊犁师范学院物理科学与技术学院,新疆凝聚态相变与微结构实验室,伊宁 835000)

2)(南京大学物理学院,固体微结构物理国家重点实验室,南京 210093)

3)(新疆教育学院科研处,乌鲁木齐 830043)

(2010年12月20日收到;2011年7月1日收到修改稿)

基于玻璃化转变的分子串模型的分子串弛豫方程,提出了更为精确的模拟分子串中所有空间弛豫模式(SRM)的蒙特卡罗模拟方案.模拟得出各个SRM的弛豫时间随温度和分子串长度的变化结果与分子串模型中分子串弛豫方程的预言完全一致,即理论预期和模拟结果相互印证.应当指出,分子串能否作为液态中集体单元的必要条件是在考虑到分子串之间的不均匀随机相互作用后,分子串的所有SRM的定性特征是不能改变的,这就需要对不同分子串的SRM之间的耦合进行研究.但是迄今为止,仍未发现相关的严格解,仅有近似的自洽弛豫平均场方法.由此可知,所提出的模拟方案为研究不同分子串的SRM之间的耦合(包括上述自洽场的可行性)提供了必要的基础.

关键词: 玻璃化转变, 弛豫动力学, 蒙特卡罗模拟, 分子串

PACS: 64.70.qd, 77.22.Gm, 76.20.+q, 64.60.De

1. 引言

对作为凝聚态物理的核心问题之一的玻璃化转变机制的探索,已经持续了半个多世纪^[1-20].但是迄今为止,虽然建立了相当数量的理论模型^[1-20],仍然没有一个被普遍接受的微观模型^[6,7,17-20].对玻璃化转变机制的研究,涉及到液态(包括过冷液态)的(动态)结构及动力学等问题,即液态物理学^[1-52].

液态是典型的强关联体系,即体系的动能与势能相当.对强关联系统,现有的知识表明探询体系的集体单元(collective unit)是解决问题的关键^[16-20,30].这是由于已知的集体单元的动力学行为都可以等效为一种粒子行为,因此也将集体单元称为准粒子(quasi-particle).在集体单元表象中,原来的强关联体系被转化为较容易求解的弱关联体系.

由于到目前为止,仍然没有发展出找寻强关联体系中集体运动单元的一般可行方法^[16-20,30].因此,探寻液态的集体单元是解决液态物理学包括玻璃化转变机制的关键.为此,黄以能等基于实验^[25]、类似物模拟^[26]和计算机模拟^[27]的结果,提出液态的集体单元是运动关联的动态分子串^[16-20],简称为分子串,相应的模型简称为分子串模型(molecular string model).由此可见,分子串的弛豫动力学是该模型描述液态弛豫动力学的关键.

近来,赵兴宇等^[20]通过一个近似方案,对分子串的第一和第二空间弛豫模式(SRM)进行了近似的模拟.然而,随着模式序号的增加,该近似方案的模拟误差越来越大,而且在存在分子串之间的相互作用时模拟误差更大,以致无法模拟不同分子串之间SRM的耦合行为.本文中,作者首先设计了更为精确的模拟方案,然后对分子串的所有SRM的弛豫动力学进行了模拟,并且与相应的理论结果进行了比较.

* 国家自然科学基金(批准号:10774064, 30860076)、新疆维吾尔自治区科技计划(批准号:200916126)和新疆维吾尔自治区自然科学基金(批准号:200821104, 200821184)资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: yn Huang@nju.edu.cn

2. 分子串模型简介

分子串模型在描述玻璃系统中分子取向运动时,将分子之间与取向自由度相关的相互作用分为三部分^[16-20]:第一部分为其他分子对参考分子取向运动的平均场,用单分子的双势阱描述^[21-23],而分子间相互作用与单分子平均场的偏离,用分子串内部的均匀相互作用以及较弱的分子串之间的不均匀(heterogeneous)的随机相互作用描述. 描述体系的动力学哈密顿量为

$$\begin{aligned}
 H &= H_{\text{intra}} + H_{\text{inter}}, \\
 H_{\text{intra}} &= -V_1 \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{i=1}^{n-1} \sigma_i^{mn} \sigma_{i+1}^{mn}, \\
 H_{\text{inter}} &= \frac{V_2}{2} \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{i=1}^n \sum_{m' \neq m, i'}^{nn(i)} \sigma_i^{mn} \sigma_{i'}^{m'n'} \Theta_{ii'}^{mm'}, \\
 v_{\sigma_i^{mn} \rightarrow -\sigma_i^{mn}}^{\text{SG}(1,n)} &= \tau_0^{-1} \frac{\exp\left(\frac{-E_{-\sigma_i^{mn}}^{(1)}}{k_B T}\right)}{\exp\left(\frac{-E_{-\sigma_i^{mn}}^{(1)}}{k_B T}\right) + \exp\left(\frac{-E_{\sigma_i^{mn}}^{(1)}}{k_B T}\right)}.
 \end{aligned} \tag{1}$$

这里 H_{intra} 为分子串内的均匀相互作用,用伊辛链模型(chain Ising model)描述; V_1 是与温度 T 无关的串内相互作用常数,且 $V_1 \ll V_0$; V_0 为单分子的双势阱平均场的势垒高度;符号 $\sigma_i^{mn} = \pm 1$ 表示体系中编号为 m 、拥有 n 个分子的分子串(n 分子串)中第 i 个分子在双势阱中的取向状态. H_{inter} 为分子串之间不均匀的随机相互作用,用随机相互作用伊辛模型(random interacting Ising model)描述; V_2 是与 T 无关的分子串之间相互作用常数,且 $V_2 \leq V_1$; $\Theta_{ii'}^{mm'}$ 是取值在 $[0, 1]$ 之间的随机函数,分子串之间比分子串内部的相互作用弱,正是来源于该随机性; $nn(i)$ 表示第 i 个分子的最近邻分子数. $v_{\sigma_i^{mn} \rightarrow -\sigma_i^{mn}}^{\text{SG}(1,n)}$ 为单位时间内系统中第 m 个分子串中第 i 个分子从初态 σ_i^{mn} 到末态 $-\sigma_i^{mn}$ 的单分子跃迁速率(特殊-Glauber 型)^[24]; $E_{\sigma_i^{mn}}^{(1)} = -V_1(\sigma_{i-1}^{mn} + \sigma_{i+1}^{mn})\sigma_i^{mn} + V_2 \sum_{m' \neq m, i'=1}^{nn(i)} \sigma_i^{mn} \sigma_{i'}^{m'n'} \Theta_{ii'}^{mm'}$ 为第 i 个分子与其近邻分子之间的相互作用能量,边界条件为 $\sigma_0^{mn} = \sigma_{n+1}^{mn} = 0$; k_B 为 Boltzmann 常数; $\tau_0 = \nu_0^{-1} \exp\left(\frac{V_0}{k_B T}\right)$, 其中 ν_0 是分子在势阱底部的振动频率.

分子串模型的集体单元——分子串的弛豫方程(SRE)为^[16-20]

$$\frac{d}{dt} \delta_i^{(n)}(t) = -\frac{1}{\tau_0} M_{ij}^{(n)} \delta_j^{(n)}(t), \tag{2}$$

其中 $M_{ij}^{(n)}$ 为 SRE 的弛豫矩阵, $\delta_i^{(n)}(t)$ 为 t 时刻、 n 分子串中第 i 个分子相对 $\sigma_i^{mn} = 1$ 状态的平衡概率的偏离量^[16-21].

SRE 求解的一般方法如下^[20]: 设存在 n 阶方阵 $[X_{ij}^{(n)}]$, 使得

$$[M_{ij}^{(n)}][X_{ji}^{(n)}] = [X_{ij}^{(n)}][D_{ji}^{(n)}],$$

其中 $[D_{ji}^{(n)}]$ 为对角方阵. 由于 $[M_{ij}^{(n)}]$ 已知, $[D_{ji}^{(n)}]$ 和 $[X_{ij}^{(n)}]$ 都是确定的. 定义

$$R_j^{(n)}(t) \equiv \sum_{i=1}^n [X_{ji}^{(n)}]^{-1} \delta_i^{(n)}(t),$$

其中 $[X_{ji}^{(n)}]^{-1}$ 为 $[X_{ij}^{(n)}]$ 的逆方阵的相应矩阵元, SRE 可以对角化为

$$\frac{d}{dt} R_j^{(n)}(t) = -\frac{D_{jj}^{(n)}}{\tau_0} R_j^{(n)}(t), \tag{3}$$

其解为

$$\begin{aligned}
 R_j^{(n)}(t) &= R_j^{(n)}(0) \exp(-t/\tau_j^{(n)}), \\
 \tau_j^{(n)} &\equiv \tau_0 / D_{jj}^{(n)}.
 \end{aligned} \tag{4}$$

方程(4)表明 SRE 的物理图像是明确简单的, 即 n 分子串中 n 个分子的耦合弛豫, 等价于 n 个相互独立的、具有 $\tau_j^{(n)}$ 弛豫时间并且在分子串内分布 ($X_{ji}^{(n)}$) 的 SRM. $X_{ji}^{(n)}$ 表示对第 j 个 SRM, 第 i 个分子处于 σ_i^n 状态的相对于平衡值的概率偏离量. 对不同的 SRM, 其空间分布是不同的^[20].

3. 模拟方案

本文的模拟系综由 M 条、相互独立的 n 分子串构成.

如文献[20]所述, 选择不纯的 SRM 的初始条件会增加相应模式的模拟误差. 按照 SRM 的定义^[20], 本文严格地选择了纯的 SRM 的初始条件, 即第 j 个 SRM 中第 i 个分子的初始概率偏离量取为

$$\delta_{ji}^{(n)}(0) = c X_{ji}^{(n)}, \tag{5}$$

其中 c 为小的常数参量, 以保证 $\delta_{ji}^{(n)}(0)$ 的绝对值不大于 0.5.

依据方程(1), 本文中选取的蒙特卡罗模拟的时间步长为 τ_0 , 单分子跃迁概率为

$$\begin{aligned}
 q_i^{mn} &= \exp\left(\frac{-E_{-\sigma_i^{mn}}^{(1,0)}}{k_B T}\right) / \left[\exp\left(\frac{-E_{\sigma_i^{mn}}^{(1,0)}}{k_B T}\right) \right. \\
 &\quad \left. + \exp\left(\frac{-E_{-\sigma_i^{mn}}^{(1,0)}}{k_B T}\right) \right],
 \end{aligned}$$

其中

$$E_{\sigma_i^{mn}}^{(1,0)} = -V_1(\sigma_{i-1}^{mn} + \sigma_{i+1}^{mn})\sigma_i^{mn},$$

$$\sigma_0^{mn} = \sigma_{n+1}^{mn} = 0.$$

对编号为 m 的 n 分子串,首先产生 $[0, n]$ 之间的一个随机数 r ,然后选择串中第 $k = \text{int}(r) + 1$ 个分子($\text{int}(r)$ 表示对 r 取整运算). 然后产生 $[0, 1]$ 之间的一个随机数 q_r ,如果 $q_r < q_i^{mn}$,则状态 σ_i^{mn} 变为 $-\sigma_i^{mn}$;如果 $q_r \geq q_i^{mn}$,则状态 σ_i^{mn} 保持不变. 上述过程重复 n 次,即完成了对编号为 m 的 n 分子串的一个蒙特卡罗模拟步长 τ_0 的弛豫过程模拟. 对系综内 M 条 n 分子串都重回上述步骤,则完成了整个系综的一个蒙特卡罗模拟步长 τ_0 的弛豫过程模拟. 依次重复上述蒙特卡罗模拟步骤,就模拟了 SRM 的弛豫过程^[20].

本文中,我们选择的 SRM 的弛豫参量为

$$\Delta_j^{(n)}(t) = \sum_{m=1}^M \sum_{i=1}^n X_{ij}^{(n)}(t) \sigma_i^{mn}(t), \quad (6)$$

相应的弛豫函数为

$$\varphi_j^{(n)} \equiv \Delta_j^{(n)}(t) / \Delta_j^{(n)}(0). \quad (7)$$

SRM 的弛豫参量也可以为 n 分子串中某个分子或某些分子,所得的 $\varphi_j^{(n)}$ 是相同的,只是统计的分子数越少,模拟误差越大.

4. 模拟结果及讨论

当 $n = 150$ 和 $V_1/(k_B T) = 3.0$ 时,模拟所得的第 2 个、第 3 个和第 90 个 SRM 的 $\varphi_j^{(150)}(t)$ 随时间 t 的变化结果如图 1 所示. 从图 1 可以看出,在模拟误差范围内, $\varphi_2^{(150)}(t)$, $\varphi_3^{(150)}(t)$ 和 $\varphi_{90}^{(150)}(t)$ 随 t 的变化精确地满足指数衰减关系,与方程(4)是严格一致的. 对于所模拟的其他 n 和 $V_1/(k_B T)$ 值,各 SRM 的弛豫函数同样满足方程(4)的形式.

对一系列的 $V_1/(k_B T)$ 和分子串长 n 值条件下,由模拟所得 SRM 的弛豫函数 $\varphi_j^{(n)}(t)$ 利用方程(4)进行拟合,可以得到相应的弛豫时间 $\tau_j^{(n)}$. 图 2 所示为当 $n = 100$ 时第 1 个、第 2 个、第 3 个、第 5 个、第 10 个、第 20 个、第 40 个和第 100 个 SRM 的 $\tau_j^{(100)}$ 随 $V_1/(k_B T)$ 的变化情况以及方程(2)的理论结果^[20]. 图 3 所示为当 $V_1/(k_B T) = 3.0$ 时第 1 个、第 2 个、第 3 个、第 5 个、第 10 个、第 20 个、第 40 个和第 100 个 SRM 的 $\tau_j^{(n)}$ 随 n 的变化情况以及相应的方程(2)的理论结果. 由此可见,模拟所得的各个 SRM 的弛豫时间与 SRE 理论预言符合得非常好.

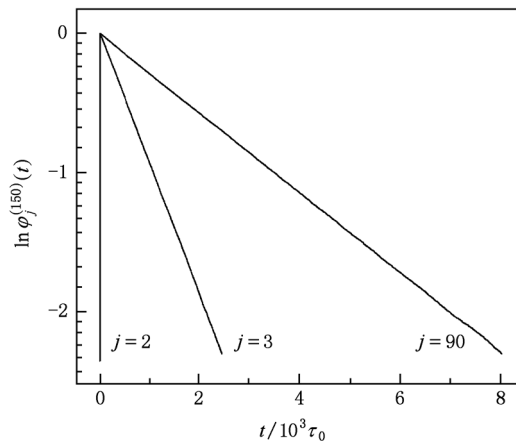


图 1 当 $V_1/(k_B T) = 3.0$ 和 $n = 150$ 时,模拟所得第 2 个、第 3 个和第 90 个 SRM 的弛豫函数 $\varphi_j^{(150)}(t)$ 随时间 t 的变化

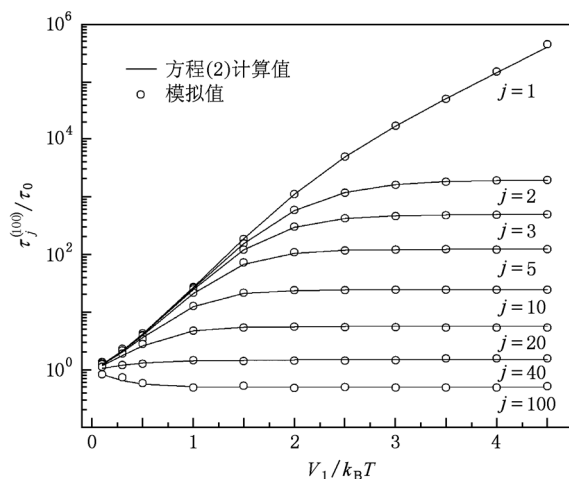


图 2 当 $n = 100$ 时,模拟所得第 1 个、第 2 个、第 3 个、第 5 个、第 10 个、第 20 个、第 40 个和第 100 个 SRM 的弛豫时间 $\tau_j^{(100)}$ 随 $V_1/(k_B T)$ 的变化及与方程(2)计算结果的比较

上述结果表明,本文提出的模拟方案能够精确地模拟分子串的所有空间 SRM,并且与 SRE(方程(2))的理论预期相互印证. 应当指出,分子串作为液态中集体单元的必要条件是在考虑到分子串之间的不均匀随机相互作用后(方程(1)),分子串的所有 SRM 的定性特征是不能改变的. 这就需要针对不同分子串中 SRM 之间的耦合进行研究,但是迄今为止仍未发现分子串之间的不均匀随机相互作用的严格解,仅有近似的自洽弛豫平均场方法^[16-18]. 由此可见,本文的模拟方案为研究不同分子串中 SRM 之间的耦合提供了必要的基础.

如图 2 所示,按照低温下弛豫时间 $\tau_j^{(n)}$ 随温度

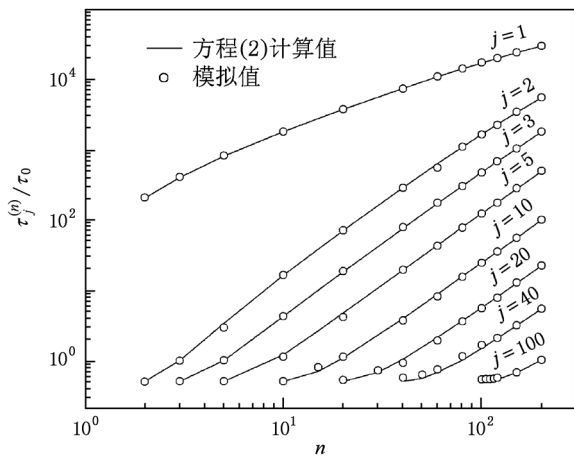


图3 当 $V_1/(k_B T) = 3.0$ 时, 模拟所得的第 1 个、第 2 个、第 3 个、第 5 个、第 10 个、第 20 个、第 40 个和第 100 个 SRM 的弛豫时间 $\tau_j^{(n)}$ 随 n 的变化以及与方程(2)计算结果的比较

T 的变化趋势, 一个分子串的所有 SRM 可以分为两种. 第一种仅包含第一个 SRM, 是弛豫时间最长, 也是激活能最大的一种; 第二种包含所有剩余的 SRM, 它们具有相同的激活能, 且激活能较小. 考虑到第二种各 SRM 的弛豫时间分布, 即使对长

度相同的分子串的独立体系, 相应的频域损耗峰也要比 Debye 弛豫损耗峰宽, 当然也比第一种 SRM 宽. 考虑到液体中分子串长度的分布, 可以想象第一种 SRM 和第二种 SRM 对应的频域损耗峰将会进一步展宽^[16-18]; 另外, 在高温时它们将合成一个频域损耗峰(图 2). 这种频域损耗峰特征以及随温度的变化特征与液态(包括过冷液态)中 α 弛豫和 β 弛豫完全一致, 表明分子串模型可能提供了一个液态中 α 弛豫和 β 弛豫^[50-52] 的统一物理图像.

5. 结 论

本文提出了一个能够精确地模拟分子串所有 SRM 的模拟方案. 利用该方案对各个 SRM 的弛豫时间随温度和分子串长度的变化进行了模拟. 研究表明, 模拟所得结果与分子串模型中 SRE 的理论结果完全一致, 即理论预期与模拟结果得到了相互印证. 本文提出的方案为研究不同分子串中 SRM 之间的耦合提供了必要的基础.

[1] Anderson P W 1995 *Science* **267** 1615
 [2] Angell C A 1995 *Science* **267** 1924
 [3] Stillinger F H 1995 *Science* **267** 1935
 [4] Liu Y H, Wang G, Wang R J, Zhao D Q, Pan M X, Wang W H 2007 *Science* **315** 1385
 [5] Zhao Z F, Wen P, Sheck C H, Wang W H 2007 *Phys. Rev. B* **75** 174201
 [6] Ediger M D, Angell C A, Nagel S R 1996 *J. Phys. Chem.* **100** 13200
 [7] Donth E 2001 *The Glass Transition* (Berlin: Springer)
 [8] Turnbull D 1949 *Contemp. Phys.* **10** 473
 [9] Cohen M H, Grest G S 1979 *Phys. Rev. B* **20** 1077
 [10] Adam G, Gibbs J H 1965 *J. Chem. Phys.* **43** 139
 [11] Ngai K L 1979 *Commun. Sol. Stat. Phys.* **9** 127
 [12] Das S P 2004 *Rev. Mod. Phys.* **76** 785
 [13] Ritort F, Sollich P 2003 *Adv. Phys.* **52** 219
 [14] Kivelson D, Zhao X, Nussinov Z, Tarjus G 1995 *Physica A* **219** 27
 [15] Chamberlin R V 1995 *Phys. Rev. Lett.* **82** 2520
 [16] Huang Y N, Wang C J, Riande E 2005 *J. Chem. Phys.* **122** 144502
 [17] Huang Y N, Zhang J L, Ying X N 2006 *Prog. Phys.* **26** 359 (in Chinese) [黄以能、张晋鲁、应学农 2006 物理学进展 **26** 359]

[18] Huang Y N 2006 *J. Yili Normal Univ.* **3** 39 (in Chinese) [黄以能 2006 伊犁师范学院学报 **3** 39]
 [19] Zhang J L, Wang L N, Zhou H W, Zhang L L, Zhao X Y, Huang Y N 2010 *Chin. Phys. B* **19** 056403
 [20] Zhao X Y, Wang L N, Fan X H, Zhang L L, Wei L, Zhang J L, Huang Y N 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 036403 (in Chinese) [赵兴宇、王丽娜、樊小辉、张丽丽、卫来、张晋鲁、黄以能 2011 物理学报 **60** 036403]
 [21] Böttcher C F J, Bordewijk P 1978 *Theory of Electric Polarization* (Amsterdam: Elsevier) Vol II
 [22] Fang J X, Yin Z W 2003 *Dielectrics Physics* (2nd ed) (Beijing: Science Press) p50 (in Chinese) [方俊鑫、殷之文 2003 电介质物理学(第二版)(北京: 科学出版社) 第 50 页]
 [23] Combs A J, Yip S 1983 *Phys. Rev. B* **28** 6873
 [24] Glauber R G 1963 *J. Math. Phys.* **4** 294
 [25] Weeks E R, Crocker J C, Levitt A C, Schofield A, Weitz D A 2000 *Science* **287** 627
 [26] Pouligny B, Malzbender R, Ryan P, Clark N A 1990 *Phys. Rev. B* **42** 988
 [27] Glotzer S C 2000 *J. Non-Cryst. Solids* **274** 342
 [28] Wu W H, Zhang J L, Zhou H W, Huang Y N, Zhang L, Ying X N 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 011918
 [29] Zhang J L, Zhou H W, Wu W H, Huang Y N 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 131906

- [30] Zhang L L, Zhang J L, Jiang J G, Zhou H W, Huang Y N 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 5817 (in Chinese) [张丽丽、张晋鲁、蒋建国、周恒为、黄以能 2008 物理学报 **57** 5817]
- [31] Jiang J G, Huang Y N 2009 *Comput. Phys. Commun.* **180** 177
- [32] Jiang J G, Huang Y N, Wu J C 2009 *J. Stat. Phys.* **136** 984
- [33] Guo X Z, Zhou H W, Zhang L L, Wu W H, Zhang J L, Huang Y N 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 417 (in Chinese) [郭秀珍、周恒为、张丽丽、吴文慧、张晋鲁、黄以能 2010 物理学报 **59** 417]
- [34] Chen Z H, Liu L J, Zhang B, Xi Y, Wang Q, Zu F Q 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 3839 (in Chinese) [陈志浩、刘兰俊、张博、席赞、王强、祖方道 2004 物理学报 **53** 3839]
- [35] Dong Z G, Shen M R, Xu R, Gan Z Q, Ge S B 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2896 (in Chinese) [董正高、沈明荣、徐闰、甘肇强、葛水兵 2002 物理学报 **51** 2896]
- [36] Shao S F, Zheng P, Zhang J L, Niu X K, Wang C L, Zhong W L 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 6661 (in Chinese) [邵守福、郑鹏、张家良、钮效鹏、王春雷、钟维烈 2006 物理学报 **55** 6661]
- [37] Liu P, He Y, Li J, Zhu G Q, Bian X B 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 5489 (in Chinese) [刘鹏、贺颖、李俊、朱刚强、边小兵 2007 物理学报 **56** 5489]
- [38] Zhao M L, Zhong W L, Wang C L, Wang J F, Zhang P L 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 1856 (in Chinese) [赵明磊、钟维烈、王春雷、王矜奉、张沛霖 2002 物理学报 **51** 1856]
- [39] Li S T, Cheng P F, Zhao L, Li J Y 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 523 (in Chinese) [李盛涛、成鹏飞、赵雷、李建英 2009 物理学报 **58** 523]
- [40] Zhao S C, Li G R, Zhang L N, Wang T B, Ding A L 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 3711 (in Chinese) [赵苏串、李国荣、张丽娜、王天宝、丁爱丽 2006 物理学报 **55** 3711]
- [41] Jiang X P, Fang J W, Zeng H R, Pan X M, Chen D R, Yin Q R 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 802 (in Chinese) [江向平、方健文、曾华荣、潘晓明、陈大任、殷庆瑞 2000 物理学报 **49** 802]
- [42] Zhao M L, Wang C L, Zhong W L, Zhang P L, Wang J F 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 420 (in Chinese) [赵明磊、王春雷、钟维烈、张沛霖、王矜奉 2002 物理学报 **51** 420]
- [43] Zhao M L, Yi X J, Wang C L, Wang J F, Zhang J L 2006 *Chin. Phys. B* **15** 1611
- [44] Wen C 1995 *Chin. Phys. B* **4** 54
- [45] Zhao H P, Liu Z Y, Liu Y Y 2001 *Chin. Phys. B* **10** 35
- [46] Wang X J, Gong Z Q, Qian Y F, Zhu J, Chen X B 2007 *Chin. Phys. B* **16** 2131
- [47] Wang Q, Qiang J B, Wang Y M, Xia J H, Lin Z, Zhang X F, Dong C 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 378 (in Chinese) [王清、羌建兵、王英敏、夏俊海、林哲、张新房、董闯 2006 物理学报 **55** 378]
- [48] Zhang H T, Liu R S, Hou Z Y, Zhang A L, Chen X Y, Du S H 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 2409 (in Chinese) [张海涛、刘让苏、侯兆阳、张爱龙、陈晓莹、杜生海 2006 物理学报 **55** 2409]
- [49] Zhou H W, Zhang J L, Huang Y N, Ying X N, Zhang L, Wu W H, Shen Y F 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 6547 (in Chinese) [周恒为、张晋鲁、黄以能、应学农、张亮、吴文惠、沈异凡 2007 物理学报 **56** 6547]
- [50] Lunkenheimer P, Schneider U, Brand R, Loidl A 2000 *Contemp. Phys.* **41** 15
- [51] Brand R, Lunkenheimer P, Loidl A 2002 *J. Chem. Phys.* **116** 10386
- [52] Lunkenheimer P, Loidl A 2006 *J. Non-Cryst. Sol.* **352** 4556

Monte Carlo simulations of the relaxation dynamics of the spatial relaxation modes in the molecule-string model*

Fan Xiao-Hui¹⁾ Zhao Xing-Yu¹⁾ Wang Li-Na¹⁾ Zhang Li-Li¹⁾
Zhou Heng-Wei¹⁾²⁾ Zhang Jin-Lu¹⁾³⁾ Huang Yi-Neng^{1)2)†}

1) (*Laboratory of Phase Transitions and Microstructures in Condensed Matter Physics of Xinjiang, College of Physical Science and Technology, Yili Normal University, Yining 835000, China*)

2) (*National Laboratory of Solid State Microstructures, College of Physics, Nanjing University, Nanjing 210093, China*)

3) (*Research Department, Xinjiang Educational University, Urumqi 830043, China*)

(Received 20 December 2010; revised manuscript received 1 July 2011)

Abstract

According to the molecule-string model for glass transition, a more exact Monte Carlo protocol to simulate all the spatial relaxation modes (SRMs) of the string are proposed. The variations of the simulated relaxation times of the SRMs with temperature and string length are consistent with the predictions of the string relaxation equation of the model, i. e. the theoretical predictions and the simulation results verify each other. It should be pointed out that the necessary condition of molecule string used as a collective unit in liquid is that the qualitative characteristics of the SRMs cannot be changed when the inter-string interactions are taken into account. This needs to study the coupling between the SRMs, but till now, the corresponding exact solutions have not been achieved, and only the self-consistent relaxation mean-field method is available. Therefore, the present simulation protocol will provide a necessary basis to study the coupling between the SRMs of neighboring strings, including the feasibility of the mean-field method.

Keywords: glass transition, relaxation dynamics, Monte Carlo simulation, molecule string

PACS: 64.70.qd, 77.22.Gm, 76.20.+q, 64.60.De

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10774064, 30860076), the Science and Technology Program of Xinjiang Uygur Autonomous Region, China (Grant No. 200916126), and the Natural Science Foundation of Xinjiang Uygur Autonomous Region, China (Grant Nos. 200821104, 200821184).

† Corresponding author. E-mail: ynhuang@nju.edu.cn