



非球形胶体微粒揭示玻璃态转变的静态结构特征

2014-07-09 08:54

【放大 缩小】

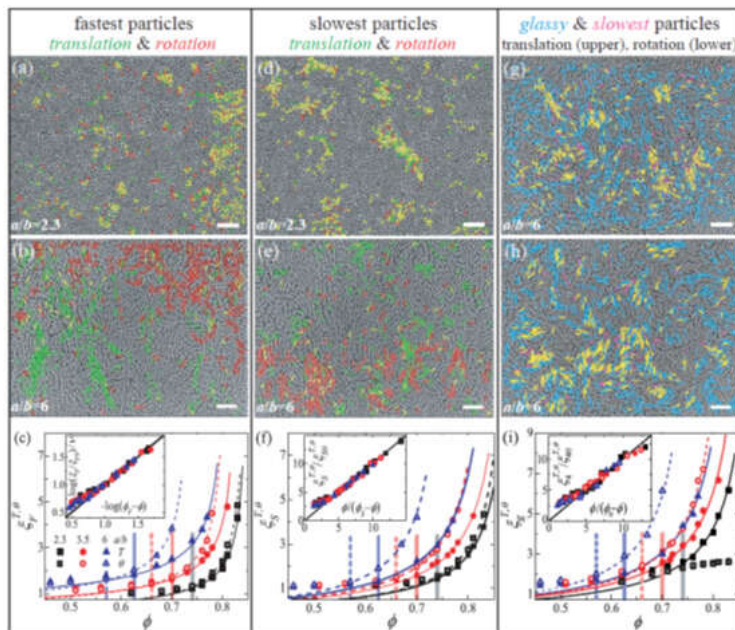
物质玻璃态转变的本质一直是凝聚态物理的未解难题。探索过冷液体动力学行为减缓与静态结构演化的关系是当今玻璃态转变研究的一大热点问题和重要挑战。力学研究所王育人课题组郑中玉博士与香港科技大学韩一龙博士合作,以二维胶体椭球系统为模型体系,研究了玻璃态转变的结构起源问题,揭示了过冷液体的运动减缓起源于静态构型熵的降低和亚稳态团簇尺度的增大。

玻璃态是具有固体的力学性质和类似液体的无序结构。玻璃态转变过程中,过冷液体的动力学行为急剧减缓,粘度和力学强度极具增大,而静态结构却没有明显变化。玻璃态转变源于热力学奇点还是纯运动学转变一直在理论上存在较大争议,动力学行为减缓与静态结构演化的关系是多种玻璃态转变理论的基础。针对目前广为研究的圆球体系,主要有非晶序和晶体序两种结构特征被提出,其中二十面体结构被认为对玻璃化非常重要。然而,实际过冷液体的结构往往难于观测和捕捉。胶体系统具有微量级和粒子尺度和秒量级运动时间尺度,其粒子运动轨迹和结构可通过显微观测和粒子追踪方法得到量化统计,被认为是研究物质相变的理想模型体系。相比于广泛研究的圆球系统,实际上大多数分子和粒子并非球形,然而人们对非球形颗粒系统的玻璃态转变却了解甚少。我们研究二维胶体椭球系统,它不仅更接近真实系统,且平动和转动的祛耦合可以揭示隐藏于圆球系统中的新现象和规律。

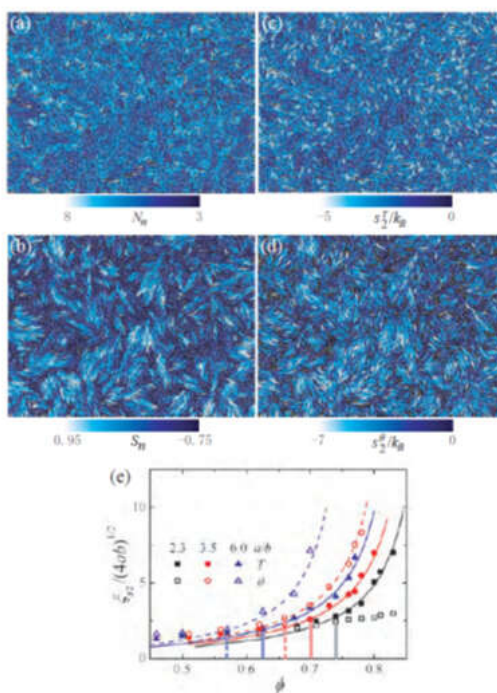
研究人员利用显微观测实验和蒙特卡洛模拟相结合的方法,发现胶体椭球系统中并没有类似圆球系统中二十面体的明显局域结构。通过统计分析粒子运动时空关联性和集体运动行为,我们对过冷液体中粒子平动和转动的结构弛豫过程和动态非均匀时空尺度进行定量表征;通过鉴定粒子局域亚稳结构和构型熵,对粒子局域结构空间尺度演变进行定量表征。研究发现系统平动和转动的玻璃态转变过程中,过冷液体慢速粒子团簇和运动不均匀性的动态关联空间尺度,以及局域非晶亚稳结构和局域构型熵的静态关联空间尺度均呈现相同的幂指数发散行为(图一、图二)。这揭示了过冷液体的运动减缓起源于静态构型熵的降低和亚稳态团簇尺度的增大,并非源于某种局域非晶结构或晶体结构;并揭示玻璃体转变很可能是一种Ising-type临界现象而非随机一阶相变。此外,他们还研究了不同长径比的椭球体系,发现随长径比增大,系统平动和转动呈现同步和两步玻璃态转变行为(图二),并且具有截然不同的结构弛豫行为、动态不均匀性以及局域结构特性(图一)。此发现表明粒子形状的各向异性对系统玻璃态转变的结构和动力学行为具有重要影响。

该工作在线发表于5月8日的《自然通讯》杂志上(郑中玉, 倪然, 王峰, Dijkstra Marjolein, 王育人, 韩一龙. Structural signatures of dynamic heterogeneities in monolayers of colloidal ellipsoids, Nature Communications, DOI: 0.1038/ncomms4829)。

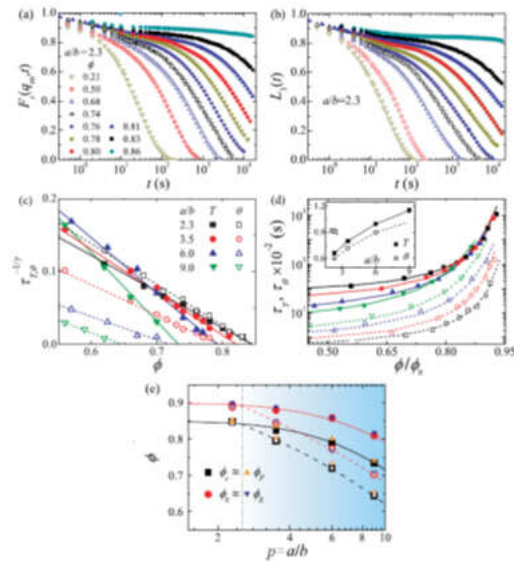
该研究工作得到了科技部973计划和国家自然科学基金的资助。



图一：不同长径比胶体椭球系统中快速（左）、慢速（中）粒子团簇和局域玻璃态结构（右）团簇的空间分别（上、中），以及相应团簇关联尺度随粒子密度的幂指数增大（下）。图（a,d）和（b,e,g,h）中椭球长径比分别为 2.3 和 6.0。



图二：胶体椭球系统中粒子的局域空间平移序分布（a）、角度序分布（b）、平移构型熵分布（c）和角度构型熵分布（d），以及各自空间关联尺度随密度的幂指数增大（e）。



图三：不同长径比胶体椭球系统的一步和两步玻璃态转变。(a,b) 粒子平动和转动关联函数随时间衰减，(c,d) 平动和结构弛豫时间的模耦合理论和 VFT 理论拟合，(e) 二维胶体椭球系统玻璃态转变实验相图。



中国科学院 (http://www.cas.cn)
CHINESE ACADEMY OF SCIENCES

中国科学院力学研究所 版权所有 京ICP备05002803号 京公网安备110402500049

地址：北京市北四环西路15号 邮编：100190

(http://bszs.conac.cn/siteName?method=show&id=081D2D6355AD574EE053022819ACCBA7)

