

计算物理第14题

PB18000039 徐祺云

一 作业题目

一篇应用MCMC方法研究聚乙烯小球自组装结构的研究论文“Formation of wafer- scale monolayer close packed polystyrene spheres template by thermally assisted selfassembly”在投稿某刊物后被审稿人拒稿，现作者欲以向刊物编辑申诉。请根据文章内容和审稿人评审意见，撰写申诉理由（你认为，作者在文中阐述的方法和概念以及审稿人的评论意见有哪些是合理的，哪些是需要修正的，或者哪些是需要进一步阐明的）。进一步，如果你是作者的话，你将如何进行该工作以及建立模型？

二 分析

原论文中阐述的方法与概念

本文展示了一种结合自旋涂层和热处理的微米(纳米)制造技术，可以使得晶片表面与单一六边形紧密堆积的PS球体相结合。随后的实验部分详细地描述了该热处理过程，可以得到晶圆尺寸高有序、缺陷少的单层晶体。

文章改进了基于热处理的PS球自组装理论，并用改进的蒙特卡罗方法模拟了PS球的自组装过程，能够预测优化后的自组装温度。即：引入了在自组装过程中占主导地位的外力势能，用能量法处理描述包含布朗运动的自组装过程的动力学多体系统。

文章把整个区域划分为几个有核区域，每个区域有一个核，假设每

个粒子只与它最近的原子核相互作用，所以该二维网络的能量为:

$$U_{sum} = \sum_i U_i = \sum_i U_0 \ln(r_i)$$

将节点可以分为三种不同的类别:所有的邻居都被占用、一些邻居被占用、没有邻居被占用。给出节点s上的粒子进入第j个未被占用邻居的概率(并归一化):

$$P_j \propto \exp[-(U_j - U_s)/k_B T]$$
$$P'_k = \frac{P_k}{\sum_j P_j}$$

抽样方法: 生成一个均匀分布的随机数 $r \in [0, 1]$ 。如果 $0 < r < P'_k$, 则选择节点k; 如果 $P'_k < r < P'_{k+1}$ 则选择节点k+1。

粒子从节点s移动到节点n的概率为

$$P(n \rightarrow s) = \min[1, P_n]$$

如上多次重复蒙特卡洛循环模拟自组装过程, 当系统能量 U_{sum} 的波动小于一个界限(如 $\delta U_{sum}/\Delta U \leq 1\%$) 时停止模拟。

审稿人的评审意见的分析

Referee 1

意见: 不信服作者的回应, 认为Monte Carlo模拟没有正确实施; 认为图S5所示的仿真与实验之间的相似性无法得到证实; 不认为作者实现的MC模拟有任何预测能力; 并建议作者通读Geissler等人的论文。

我的分析: Referee提及到的图S5如下。文章对低温、中温、高温分别做了 Monte Carlo 模拟, 得到了模拟结果, 同时做出了一定的对比。但是原投稿文章中没有清晰地指出这三个不同温度下的模拟结果和实验结果之间的相似性, 从图片上来看三种结果区别不大, 的确如审稿人所说, 仿真与实验之间的相似性无法证实。这条建议比较中肯, 并且作者在回信中也详细表达了工作上的细节, 应当改进相关方法使得结果更加有说服力。

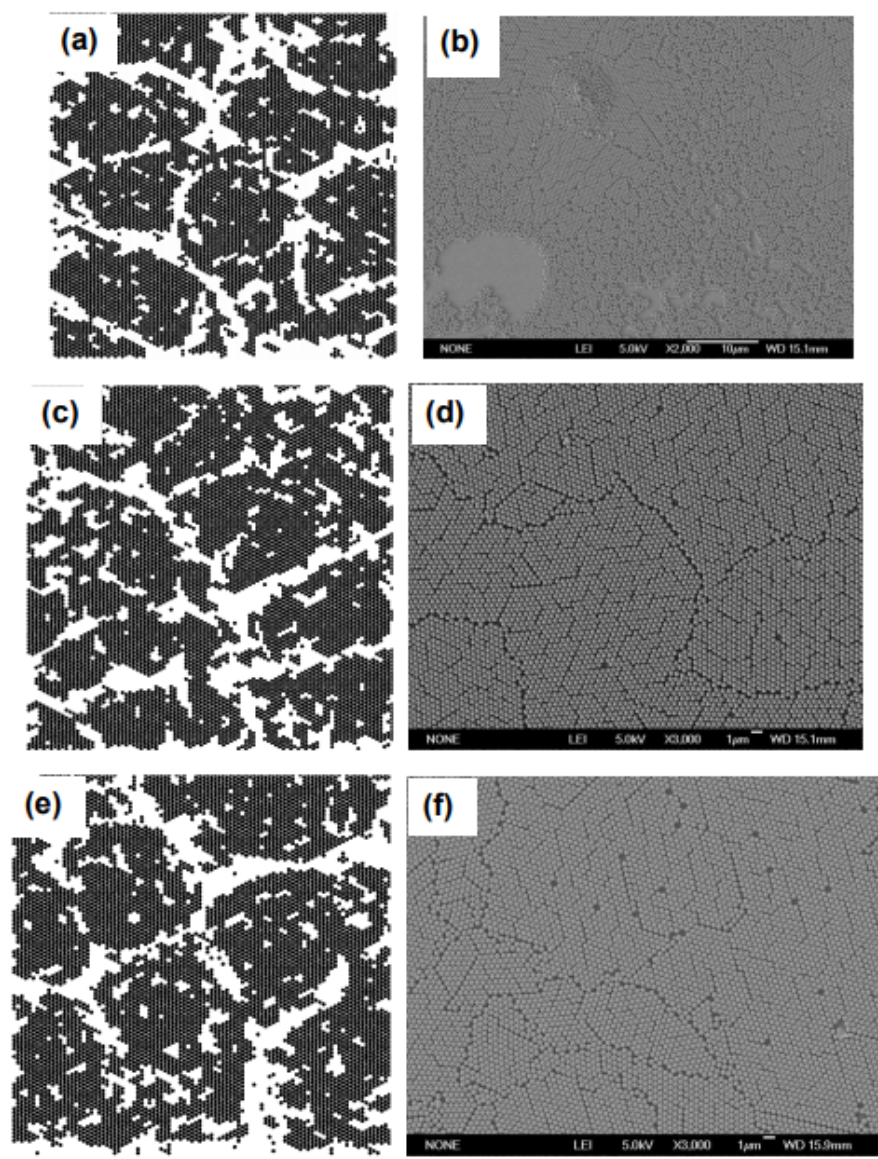


图 1: S5图

对于Referee中提到的“模拟结果并不具有任何预测能力”我认为太武断。文章避免了耗费繁琐的过程来寻找最优温度，通过简化模型可以预测自组装温度，从上面的图片可以看出工作结果的合理性，所提及的“预测能力”是由一定价值意义的。虽然相似性并不十分明显，但可以继续改进相关模型与观察设备，该Referee只是做出了他自己的判断而没有具体说明理由，这样使得作者与审稿人之间交流侧重点可能会有所偏差，交流效率收到影响，所以在描述问题时应该详实一些会更好。

Referee 2

意见：Referee 2 认为CA退火模型缺乏预测能力，在25-75度的温度范围内，乳胶球的包装质量没有很大的变化，但这就是Monte Carlo模型的预计结果。

我的分析：这是比较合理的，由不同温度下的乳胶球的包装质量对比可知变化幅度较小，25-75度的温度范围内没有很大变化，但在SEM图像中缺陷和多层比较明显，所以认为是由图形的背景噪音等(亮度、对比度)引起的。

Referee 3

意见：

1. 除了合成技术没有什么新奇之处。
2. 在第一个邻居就截断小球相互作用的方法没有道理，这种近似与实际系统的每一个联系都受到严重的质疑。
3. 蒙特卡罗步数 s 怎么可能进入预因子 Q ?
4. 对系统MC模拟结束条件表示质疑，因为其是完全非物质的。
5. 认为 $2c$ 在模拟中不存在自组装，粒子是被预安排在一个有空洞的三角形晶格上的。
6. 认为改进的蒙特卡罗技术是完全错误的，违反了细致平衡。

我的分析：

1. 对于缺乏创新这一点，我认为审稿人的评价是合理的。文章中的MC模拟方法虽然耗了一些篇幅去描述，但并不是什么新的技术方法，没有什么特色，在文献中确实有大量的自组装二维胶体，三角形晶格为标准晶格。作者给出的结果只是调整一些参数来实现一些重复的操作，并没有较大的革新。

2. 对于PS球只第一个最近的球有相互作用的模型假设，我认为其可靠性值得质疑。若PS球的分布足够紧密，如一个PS球周围被几个等距的球围住，此时他们两两之间的相互作用几乎相等，但作者的模型认为只有一个球和我们考察的PS球有相互作用，这种假设显然误差较大，难以

令人信服，应当有更细致详尽的实验或模拟来证明其可信度。

3.对于这种操作，作者回应是为了简化仿真过程，并回复了相关的文献来证明这样做的可行性。这说明对于实际复杂问题，对其进行简化时要注意简化的依据与相关参数设定的说明，如不加引用地直接使用会认为没有合理的依据，作者应该附上引用模型的参考来源，更好地，可以进一步解决更复杂的模型系统。

4.作者重复了一下对截止条件的说明，即当系统的能量涨落到 U_{sum} 时，能量的相对变化量小于预定值就截止，而在此过程中，随着距离的变化，蒙特卡罗步骤和交互是自动适应的。这一回复是合理的，解决了审稿人的质疑，结合模型假定得到的预定值虽是主观的，但步进和交互的自适应可以保证其合理性。

5.Referee 认为这不是自组装，作者回复说粒子被预先安排在一些特殊的晶格上是一种常见的简单方法仿真，这仍然是一个自组装过程，可以参考其他文献。在作者的模型中，粒子在模拟前受到均匀扰动，空洞也受到均匀扰动。尽管粒子被预先安排在一个三角形晶格上(晶格的边长等于PS球体的直径)，粒子依然可以移动到二维平面的任何地方。这是合理的，可以进一步阐明图片中的特征，来说明其是自组装的。

6.这一点是作者需要修正或进一步阐明的，作者认为实际情况下PS球脱离“中心”的概率非常低，故在模拟中粒子位于填料区域“中心”的概率非常低。我认为这一MC模拟存在的问题，应当进行进一步方法上的改进，使得模拟更接近与实际。

如何进行进一步工作与建模

1.对于提出的粒子只和最近的核作用的模型，可以继续进行更多实验说明该模型的可靠性，或者提出其他更合理的理论模型；

2.寻找更多的技术或方法上的创新点；

3.现实中材料是三维的，不同层之间的PS球可能会有相互作用，因此二维网格的模型可能会有一定的局限性，可以考虑拓展到空间三维维度上建立模型进行数值模拟；