Письма в ЖЭТФ, том 106, вып. 4, с. 222 – 226

Температурно-аномальная диффузия в недодемпфированных пространственно-периодических системах

И. Г. Марченко[+*1)], *И. И. Марченко*[#], *В. И. Ткаченко*[+*]

[+]*Национальний научный центр "Харьковский физико-технический институт", 61108 Харьков, Украина*

[*]*Харьковский национальный университет имени В.Н. Каразина, 61022 Харьков, Украина*

[#]*Национальный технический университет "Харьковский политехнический институт", 61002 Харьков, Украина*

Поступила в редакцию 22 мая 2017 г.
После переработки 6 июля 2017 г.

На основе данных компьютерных вычислений построена теоретическая модель температурно-аномальной диффузии. Показано, что в недодемпфированных пространственно-периодических системах всегда существует интервал сил, в котором диффузия ведет себя аномальным образом: неограниченно возрастает с понижением температуры. Найдены аналитические выражения для определения ширины и положения этого интервала в зависимости от значений коэффициента трения и других параметров системы. Получены скейлинговые зависимости диффузии и подвижности частиц от коэффициента трения.

DOI: 10.7868/S0370274X1716007X

Диффузия в периодических структурах играет ключевую роль во многих физических, химических и биологических системах [1, 2]. К ним относятся контакты Джозефсона, суперионные проводники, волны зарядовой плотности, системы фазовой автоподстройки частоты, магнитные рэчеты, гранулярный газ, джозефсоновские вихри, поверхностная диффузия, проницаемость биологических и искусственных мембран и многое другое [3–7].

В последние годы наблюдается возрастающий интерес к экспериментальным исследованиям ускорения диффузии частиц путем приложения внешнего поля [4–7]. Изменяя характеристики поля можно эффективно влиять на процессы диффузии, открывая новые технологические возможности управления диффузией.

Первые теоретические исследования движения броуновских частиц в наклонных периодических потенциалах были выполнены Х. Рискеном [3]. Было показано, что для недодемпфированного случая важным в поведении ансамбля частиц является возникновение "локализованных" и "бегущих" решений. Этим же автором были получены выражения для подвижности частиц. В то же время поведение коэффициента диффузии не было исследовано, что в известной мере связано с плохой применимостью используемых автором аналитических методов решения уравнения Фокера–Планка к системам с малой диссипацией из-за слабой сходимости решения. Альтернативным способом изучения процессов диффузии и транспорта частиц является прямое численное моделирования движения частиц с помощью стохастических уравнений Ланжевена. Фабио Марчезони [8] установил, что диффузия частиц в системах с малой диссипацией существенно возрастает вблизи некоторой критической силы. Дальнейшее изучение диффузии под воздействием постоянной силы было связано с работами группы К. Линденберг, в которых впервые было показано, что в наклонных периодических потенциалах коэффициент диффузии может вести себя аномальным образом [9]. При определенном значении силы этот коэффициент возрастал с понижением температуры T. Температурная зависимость максимального коэффициента диффузии аппроксимировалась степенной зависимостью: $D_{\max} \propto T^{-3.5}$. Дальнейшие исследования показали, что такая аппроксимация справедлива лишь в очень узком диапазоне температур. Нами было установлено [10], что в недодемпфированных системах существует ограниченный интервал действующих сил, в котором коэффициент диффузии возрастает с понижением температуры экспоненциальным образом ($D \propto \exp(|\varepsilon|/k_{\mathrm{B}}T)$, где k_{B} – постоянная Больцмана, ε – некая константа. Было показано, что физической причиной такого роста является экспоненциальное возрастание корреляционного времени

1)e-mail: march@kipt.kharkov.ua

$\tau_{\rm cor}$ с понижением температуры. В [11] была построена феноменологическая модель, объясняющая такую температурную зависимость $\tau_{\rm cor}$. Интервал сил, в котором диффузия растет с уменьшением температуры, был нами назван областью температурно-аномальной диффузии (областью ТАД) [12]. Ученые И. Соколов и Б. Линднер, проведя численное моделирование для ряда значений коэффициентов трения γ, подтвердили наши выводы [10, 11] о существовании ТАД в ограниченном интервале приложенных сил [13]. Однако, до настоящего времени отсутствует теория, позволяющая рассчитывать степень усиления коэффициентов диффузии и границы ТАД. Особенно это касается низких значений коэффициентов трения и температур, при которых численные методы мало эффективны [13]. Так же отсутствие теоретической модели не позволяет дать ответ на вопрос: восстанавливается ли обычное поведение диффузии в области ТАД под действием постоянной силы при достаточно низких температурах, как это происходит в случае периодического воздействия [12, 14]?

Целью данного исследования является построение теоретической модели ТАД на основе данных компьютерных вычислений и установление функциональной зависимости коэффициентов диффузии от температуры и трения в области ТАД.

Движение частиц на одномерной решетке под действием внешней силы F описывается уравнением Ланжевена:

$$m\ddot{x} = -\frac{dU}{dx} - \gamma\dot{x} + F + \sqrt{2\gamma kT}\xi(t), \qquad (1)$$

где t – время, x – координата частицы в одномерной решетке, m – ее масса, $\xi(t)$ – белый гауссов шум с единичной интенсивностью. Точка сверху означает дифференцирование по времени.

Потенциальная энергия частицы U в одномерной периодической решетке равна

$$U(x) = -\frac{U_0}{2}\cos\left(\frac{2\pi}{a}x\right), \qquad (2)$$

где a – постоянная решетки, U_0 – высота потенциального барьера. Параметры используемого пространственно-периодического потенциала были теми же, что и в работах [10, 11]: $U_0 = 0.08$ эВ, $a = 2.0$ Å. Масса частиц соответствовала массе водорода и была равна одной атомной единице массы. На движущуюся частицу действует сила со стороны решетки: $-\frac{dU}{dx} = F_0\sin\left(\frac{2\pi}{a}x\right)$, где $F_0 = \pi U_0/a$.

Стохастические уравнения (1) для каждой частицы решались численно [10]. Методика расчетов описана в [10, 11]. Коэффициент диффузии вычисляли по дисперсии в распределении ансамбля движущихся частиц при стремлении времени к бесконечности:

$$D = \lim_{t\to\infty}\frac{\left\langle (x - \langle x\rangle)^2\right\rangle}{2t}, \qquad (3)$$

где скобки $\langle ...\rangle$ обозначают усреднение по ансамблю.

Для сопоставления данных, полученных в данной работе, с результатами других авторов, мы при представлении результатов моделирования использовали безразмерные температуры T' и коэффициент трения γ' [3, 13]:

$$T' = \frac{Tk}{U_0}; \quad \gamma' = \gamma\frac{a}{\pi\sqrt{2mU_0}}. \qquad (4)$$

Нами было проведено численное моделирование уравнения (1) для различных значений коэффициентов трения и температур. На рис. 1 представлены

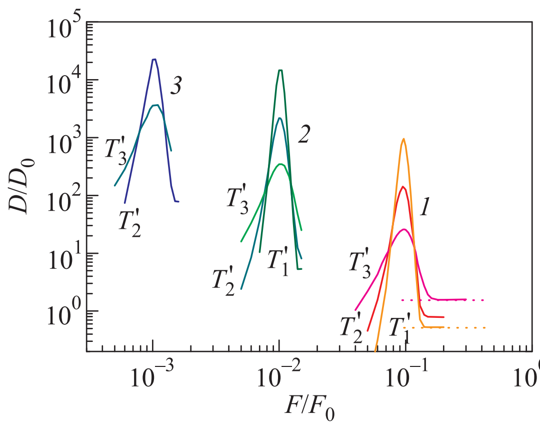

Рис. 1. (Цветной онлайн) Зависимости коэффициентов диффузии от силы для различных $\gamma' = 3\cdot10^{-2}$, $3\cdot10^{-3}$ и $3\cdot10^{-4}$ – соответственно группы кривых *1–3*. Температуры $T'_1 = 0.13$, $T'_2 = 0.19$, $T'_3 = 0.39$

зависимости коэффициентов диффузии от силы. Величина $D_0 = \pi^2/\tau_0$, где τ_0 – период малых собственных колебаний. Три группы графиков, обозначенные цифрами *1–3*, соответствуют различным коэффициентам трения. Из вида группы графиков следует, что положение и ширина области ТАД ($\Delta F_{\rm TAD}$) зависят от коэффициента γ': эти величины линейно уменьшаются с уменьшением γ'. Детальный анализ всех данных показывает, что при этом максимальное значение D линейно растет с уменьшением γ'.

Чтобы понять физические причины такого поведения, проанализируем изменение функции распределения частиц по скоростям $n(V)$ с изменением F и γ'. На рис. 2 в качестве примера приведены графики функций $n(V)$ для двух значений сил $F_1 = 0.01F_0$ и

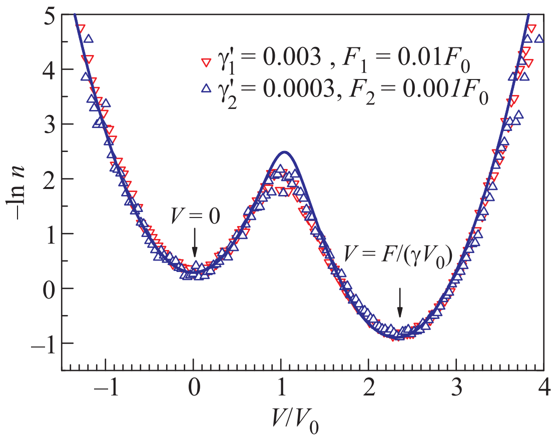

Рис. 2. (Цветной онлайн) Зависимости логарифма $n(V)$ для различных γ' и F. $T' = 0.19$. Сплошной линией нанесены значения полученные в модели двухъямного потенциала [11]. Стрелками отмечены минимумы кривых

$F_2 = 0.001F_0$ при различных γ', которые так же отличались на порядок ($\gamma'_1 = 3 \cdot 10^{-3}$ и $\gamma'_2 = 3 \cdot 10^{-4}$), $V_0 = \sqrt{U_0/m}$. Как следует из рис. 2, при использованных значениях F и γ функции $n\,(V;F,\gamma)$ совпадают.

Из анализа графиков (см. рис. 2) и других подобных ему зависимостей $n\,(V;F,\gamma')$ можно сделать вывод, что при малых γ функция распределения по скоростям зависит только от отношения F/γ. Впервые это было отмечено в монографии Х. Рискена (см. рис. 11.22-11.22а [3]). Из этого факта можно получить скэйлинговые зависимости как для подвижности, так и для коэффициентов диффузии. В стационарном случае, если известна функция $n\,(V)$, можно найти подвижность частиц: $\mu\,(F;\gamma) = \frac{\langle V\rangle(F;\gamma)}{F}$, где $\langle V\rangle\,(F;\gamma) = \int_{-\infty}^{\infty} V n\,(V;F,\gamma)\,dV$. Поскольку $n\,(V;F,\gamma) = n\,(V;F/\gamma)$, то для подвижностей должно выполняться соотношение:

$$\gamma_1\mu(F_1;\gamma_1) = \gamma_2\mu(F_1\gamma_2/\gamma_1;\gamma_2). \qquad (5)$$

На рис. 3а показаны зависимости $\gamma\mu$ от безразмерной величины $f_c = F/\,(\gamma V_c)$ для разных значений γ'. Величина $V_c = \sqrt{\Delta U(F)/m}$, где $\Delta U(F)$ – энергетический барьер, который должна преодолеть частица, при переходе из одного положения с минимальной потенциальной энергией в соседнее на одномерной решетке. При малых γ величина $V_c \approx V_0$. Совпадение графиков $\gamma\mu(\gamma, F/(\gamma V_c))$ для различных значений γ подтверждает то, что скейлинговое соотношение (5) выполняется для систем с низким трением. Аналогично с подвижностью, скейлинговые зависимости справедливы и для коэффициентов диффузии. В соответствии с соотношением Кубо коэффициент

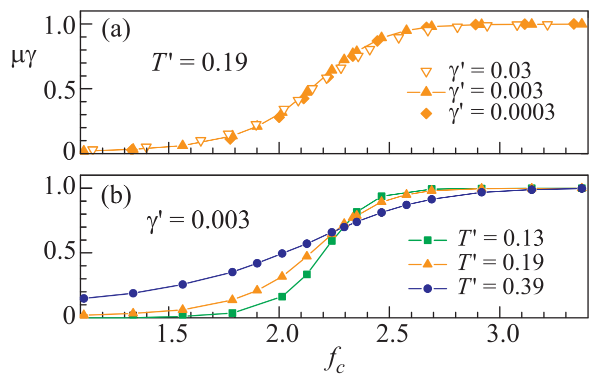

Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимости $\mu\gamma$ от $f_c = F/\,(\gamma V_c)$: (a) – разные γ', $T' = 0.19$, (b) – разные температуры, $\gamma' = 3 \cdot 10^{-3}$

диффузии может быть получен из автокорреляционной функции [3]. В стационарном случае коэффициент диффузии может быть рассчитан следующим образом [15]:

$$D = \frac{1}{Q}\int_{-\infty}^{\infty}\left[\int_{-\infty}^{V}\left(u - \langle u\rangle\right) n\,(u)\,du\right]^2 /n\,(V)\,dV, \quad (6)$$

где Q – интенсивность теплового шума в пространстве скоростей. Аналогично с подвижностью, исходя из вида зависимости $n\,(V;F,\gamma) = n(V;F/\gamma)$, легко показать, что для коэффициентов диффузии в случае малого трения выполняется следующее соотношение:

$$D_1(F_1;\gamma_1)/\gamma_1 = D_2(F_1\gamma_2/\gamma_1;\gamma_2)/\gamma_2. \qquad (7)$$

На рис. 4 приведены графики зависимости коэффициентов диффузии от действующей силы для различных коэффициентов трения. Моделирование проводили при трех различных температурах. Под действием силы изменяется величина барьера $U_b(F)$. Однако, с уменьшением γ, силы, ограничивающие область ТАД, так же уменьшаются и, соответственно, при стремлении коэффициента трения к нулю $U_b(F) \to U_0$.

На рис. 4 область ТАД, в которой коэффициент диффузии растет с понижением температуры, выделен штриховкой. Из представленных графиков следует, что скейлинговое соотношение (7) выполняется с хорошей точностью. Небольшое различие в данных для $\gamma' = 3 \cdot 10^{-2}$ и $\gamma' = 3 \cdot 10^{-3}$ связано с упоминавшимся выше изменением $U_b(F)$. Поэтому различия в графиках нивелируется с уменьшением γ'. Как видно на рисунке, кривые, соответствующие $\gamma' = 3 \cdot 10^{-3}$ и $\gamma' = 3 \cdot 10^{-4}$ действительно практически совпадают. Таким образом, из анализа данных компьютер-

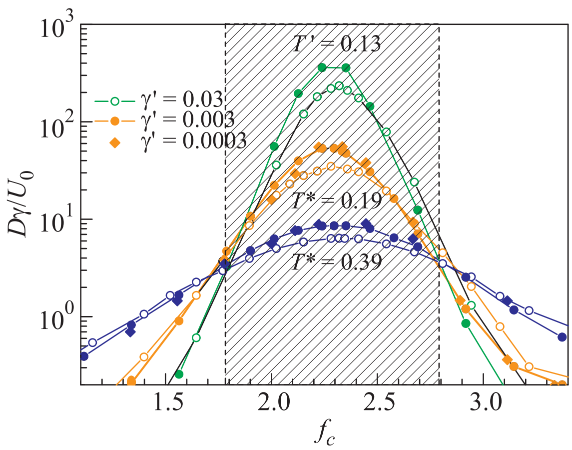

Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимость $D\gamma/U_0$ от f_c для различных γ' и T'. Заштрихована область ТАД

ного моделирования следует, что при малых γ ширина области ТАД линейно уменьшается с коэффициентом трения: $\Delta F_{\rm TAD}(\gamma) \approx \gamma V_F$. Однако, максимальное значение D в этой области линейно растет с уменьшением γ. Центр ТАД расположен вблизи силы $F \approx 2\gamma V_F$.

Полученные данные компьютерных вычислений свидетельствуют о том, что существуют скейлинговые зависимости для $\Delta F_{\rm TAD}(\gamma)$ и $D(\gamma)$. Для подтверждения этого вывода найдем аналитический вид зависимости $D(\gamma)$ от температуры в области ТАД. Для этого обратимся к ранее используемой двухъямной модели эффективного потенциала частиц в пространстве скоростей [11]. Согласно ей, движение ансамбля частиц можно описать следующими выражениями:

$$\begin{cases} \dot{x} = V, \\ \dot{V} = -\frac{\partial W(V,F)}{\partial V} + \zeta(t), \end{cases} \tag{8}$$

где белый шум в пространстве скоростей удовлетворяет уравнению:

$$\langle\zeta(t)\zeta(t')\rangle = 2\gamma kT/m^2\delta(t-t') = 2Q\delta(t-t'). \tag{9}$$

Если известен эффективный потенциал $W(V,F)$, то функция распределения по скоростям находится как $n(V) = e^{-W/Q}$. Типичный вид функции $n(V)$ в зоне ТАД приведен на рис. 2. Здесь же сплошной линией показана функция распределения, полученная в соответствии с моделью эффективного потенциала предложенного в [11]. Как следует из рисунка, эта модель хорошо описывает данные компьютерного моделирования. В [11] при низких температурах $n(V,F)$ полагалась равной:

$$n(V) = A(F)\,e^{-\beta^2V^2} + B(F)\,e^{-\beta^2(V-F/\gamma)^2}, \tag{10}$$

где $\beta^2 = \frac{m}{2kT}$, A и B – константы, определяемые из условий нормировки и поведения W при критическом значении скорости $V = V_{\rm cr}$ [11].

При температурах $T' \ll 1$ эффективный потенциал W имеет минимумы при $V = 0$ и $V = F/\gamma$ (см. рис. 2). Вблизи минимумов W имеет параболическую зависимость: $W(V) \propto \gamma V^2/2$. Для однозначности задания потенциала необходимо также задать условие при критическом значении скорости $V = V_{\rm cr}$ [11]. В качестве такового выберем: $A(F)\,e^{-\beta^2V_{\rm cr}^2} = \alpha B(F)\,e^{-\beta^2(V_{\rm cr}-F/\gamma)^2}$. При низких температурах это условие эквивалентно условию, введенному в [11]. Величина α может быть получена из данных компьютерного моделирования зависимостей $\gamma\mu(F,T)$.

Для малых температур воспользуемся упрощенной 2-скоростной моделью Броека [16]. Будем считать, что ансамбль состоит из частиц, которые движутся только с двумя скоростями: $V = 0$ (V_-) и $V = F/\gamma$ (V_+). Для перехода из одного состояния в другое частицам необходимо преодолеть барьеры W_- (из V_- в V_+) и обратно – W_+. При низких температурах в точке перевала эффективный потенциал имеет форму пика. В этом случае скорости переходов записываются как [1]:

$$k_\pm = \frac{\omega_\pm^2}{2\pi}\left(\frac{\pi\Delta W_\pm}{Q}\right)^{1/2}\exp\left(-\frac{\Delta W_\pm}{Q}\right), \tag{11}$$

где ω_-^2, ω_+^2 – абсолютные значения кривизны потенциала в точках минимума.

Для простоты выкладок введем безразмерную величину $f = \frac{F}{\gamma V_{\rm cr}}$. Приведенное выше рассмотрение справедливо, если одновременно существуют "бегущее" и "локализованное" решения $(f > 1)$. Как следует из работы [11], $\omega_-^2 = \omega_+^2 = \frac{\gamma}{m}$. Тогда, в соответствии с предложенной моделью, скорости переходов равны:

$$\begin{gathered} k_- = \frac{\gamma\beta V_{\rm cr}}{2m\pi^{1/2}}\exp\left(-\beta^2V_{\rm cr}^2\right), \\ k_+ = \alpha\frac{\gamma\beta V_{\rm cr}(f-1)}{2m\pi^{1/2}}\exp\left(-\beta^2V_{\rm cr}^2(f-1)^2\right), \end{gathered} \tag{12}$$

где α будем считать постоянной величиной. Согласно [16] средняя скорость $\langle V\rangle = \frac{k_-V_+ + k_+V_-}{k_- + k_+}$.

Подставляя выражения и приводя подобные, получим

$$\mu\gamma = \frac{\alpha}{1+\alpha(f-1)\exp\left[-\beta^2V_{\rm cr}^2\left((f-1)^2-1\right)\right]}. \tag{13}$$

В точке $f = 2$ зависимость от температуры исчезает и $\mu\gamma = \frac{\alpha}{\alpha+1}$. На рис. 3b приведены температурные зависимости величины $\mu\gamma$ от $f_c = F/(\gamma V_c)$, из которых следует, что на графиках существует одна неподвижная точка при $f_c \approx 2.3$. Значение $\mu\gamma$ в этой точке приблизительно равно $\mu\gamma = 2/3$. Небольшое различие между значениями f_c и f в этой точке связано с тем, что двухямная модель [11] несколько завышает величину энергетического барьера в пространстве скоростей. Это видно из рис. 2. Поэтому в дальнейшем, исходя из данных моделирования, будем считать, что $\alpha = 2$.

Коэффициент диффузии в 2-уровневой модели [16] равен: $D = \frac{k_- k_+}{(k_- + k_+)^3}\left(V_+ - V_-\right)^2$. Полагая при малом трении, что $mV_{\mathrm{cr}}^2 = U_0$ и переходя к безразмерной температуре T' получаем:

$$D = 2\frac{U_0}{\gamma}\left(2\pi T^{'}\right)^{1/2} \times$$
$$\times \frac{\alpha f^2 (f-1) \exp\left(\left[2-(f-1)^2\right]/(2T^{'})\right)}{\left[1+\alpha(f-1)\exp\left(-\left[(f-1)^2-1\right]/(2T')\right)\right]^3}. \quad (14)$$

Таким образом, при малом трении величина $D\gamma/U_0$ является только функцией безразмерных величин $T^{'}$ и f, что согласуется с данными приведенными на рис. 4.

Рассмотрим низкотемпературный предел ($T^{'} \to \to 0$). Для зависимостей $D(f)$ существует область, в которых коэффициент диффузии возрастает с температурой. При $f < 2$ второе слагаемое в знаменателе значительно больше единицы, а при $f > 2$ оно стремится к нулю. Проведя простейший анализ поведения коэффициента диффузии получим, что зона ТАД заключена между двумя значениями безразмерной величины: $f_l = 1 + 1/\sqrt{2}$ и $f_r = 1 + \sqrt{2}$. Соответственно этому ширина зоны $\Delta f_{\mathrm{TAD}} = \sqrt{2}/2$. Во всей этой области при низких температурах ($T^{'} \ll 1$) коэффициент диффузии растет с понижением температуры. Для него в максимуме справедливо соотношение: $D \propto (T')^{1/2}\exp\left(1/(2T')\right)$. Ширина области ТАД уменьшается линейно с γ. Как следует из приведенных выше рассуждений, должен наблюдаться скейлинг по γ: $\Delta F_{\mathrm{TAD}}(\gamma_2) = \Delta F_{\mathrm{TAD}}(\gamma_1)\,\gamma_2/\gamma_1$. Этот вывод подтверждается данными компьютерного моделирования.

Таким образом, в работе исследована диффузия частиц под действием внешних сил в пространственно-периодических системах, характеризующихся малыми значениями коэффициента трения γ. Установлено, что в таких системах всегда существует интервал сил, в котором диффузия ведет себя аномальным образом: возрастает с понижением температуры. Показано, что ширина интервала уменьшается пропорционально γ, а значения коэффициентов диффузии в этом интервале, наоборот, возрастают $\propto \gamma$. Найдены аналитические выражения для коэффициентов диффузии частиц в области ТАД в пределе низких температур. Полученные результаты важны для экспериментального обнаружения явления температурно-аномальной диффузии и дальнейшего его использования в различных областях физики, химии и биологии.

1. P. Hanggi, P. Talkner, and M. Borkovec, Rev. Mod. Phys. **62**, 251 (1990).
2. P. Hanggi and F. Marchesoni, Rev. Mod. Phys. **81**, 337 (2009).
3. H. Risken, *The Fokker-Planck Equation and Methods of Solution and Applications*, Springer (1989), 485 p.
4. S. H. Lee and D. G. Grier, Phys. Rev. Let. **96**, 190601 (2006).
5. P. Tierno, P. Reimann, T. H. Johansen, and F. Sagures, Phys. Rev. Lett. **105**, 230602 (2010).
6. P. Eshuis, K. van der Weele, D. Lohse, and D. van der Meer, Phys. Rev. Lett. **104**, 248001 (2010).
7. S. Pagliara, C. Schwall, and U. F. Keyser, Advanc. Mat. **25**, 844 (2013).
8. G. Costantini and F. Marchesoni, Europhys. Lett. **48**, 491 (1999).
9. K. Lindenberg, A. M. Lacasta, J. M. Sancho, and A. H. Romero, New J. Phys. **7**, 29 (2005).
10. I. G. Marchenko and I. I. Marchenko, Europhys. Lett. **100**, 5005 (2012).
11. I. G. Marchenko, I. I. Marchenko, and A. V. Zhiglo, Europ. Phys. J. B **87**, 10 (2014).
12. I. G. Marchenko, I. I. Marchenko, and A. V. Zhiglo, arXiv:1701.01424v1 (2017).
13. B. Lindner and I. M. Sokolov, Phys. Rev. E **93**, 042106 (2016).
14. I. G. Marchenko and I. I. Marchenko, JETP Lett. **95**(3), 137 (2012).
15. B. Lindner and E. M. Nicola, Phys. Rev. Lett. **101**, 190603 (2008).
16. C. van den Broeck, Physica A **168**, 677 (1990).