Письма в ЖЭТФ, том 109, вып. 10, с. 694 – 698

Температурно-аномальная диффузия в периодических наклонных потенциалах

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

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

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

[×] *Национальный технический университет "Харьковский политехнический институт", 61022 Харьков, Украина*

Поступила в редакцию 7 марта 2019 г.
После переработки 7 марта 2019 г.
Принята к публикации 4 апреля 2019 г.

В работе изучена диффузия частиц в наклонных пространственно-периодических потенциалах в широком диапазоне температур. Исследованы системы с различным уровнем трения γ'. Показано, что в системах с $\gamma' < 1.1$ существует интервал сил, в котором наблюдается температурно-аномальная диффузия. При температурно-аномальной диффузии коэффициент диффузии D возрастает с понижением температуры. В то же время при больших значениях γ' температурно-аномальная диффузия отсутствует и диффузия всегда усиливается с ростом температуры. В работе исследовано, каким образом с ростом γ' осуществляется переход от аномальной температурной зависимости коэффициента диффузии к обычной. Установлено, что при определенных значениях коэффициента трения возникает "окно" температурно-аномальной диффузии. В некотором интервале сил коэффициент диффузии сначала возрастает с уменьшением температуры, а затем снова начинает падать. Построены диаграммы существования таких областей.

DOI: 10.1134/S0370274X19100126

Процессы диффузии играют важную роль в различных областях физики, химии и биологии. Интенсивность диффузии определяется величиной коэффициента диффузии D. Как правило, с увеличением температуры D возрастет. Это соответствует нашим интуитивным представлениям о процессах диффузионного переноса. Вместе с тем, в последнее время появились как экспериментальные, так и теоретические исследования, в которых коэффициент диффузии может возрастать с понижением температуры [1–3]. Одним из важных примеров систем, в которых возможна такая аномальная температурная зависимость, является движение броуновских частиц в пространственно-периодических структурах под воздействием внешней силы [4].

При рассмотрении задачи диффузии броуновских частиц в среде с безразмерным коэффициентом трения γ' обычно разделяют два предельных случая: случай недодемпфированого движения ($\gamma' \ll 1$) и передемпфированого движения ($\gamma' \gg 1$). Особенности движения ансамбля частиц в периодическом потенциале впервые систематически были исследованы Х. Рискеном [4] как для случая $\gamma' \gg 1$, так и для $\gamma' \ll 1$. Было показано, что для недодемпфированых систем в поведении ансамбля частиц важную роль играет существование двух различных решений. Если внешняя сила F превышает некоторое пороговое значение, то возникает бифуркация. Тогда вместо одного решения, возникает два: так называемые "локализованное" и "бегущее". Реализация того или иного решения зависит от начальных условий.

Диффузия в периодических наклонных потенциалах систематически исследовались Ф. Марчезони и др. методами компьютерного моделирования [5, 6]. Ими было установлено, что коэффициент диффузии частиц достигает максимального значения $D_{\max}$ при определенном значении внешней силы. Дальнейшее изучение процессов диффузии в недодемпфированых системах связано с работами группы К. Линденберг [7]. Было показано, что в наклонных периодических потенциалах коэффициент $D_{\max}$ ведет себя аномальным образом. При некотором значении силы он возрастал с понижением температуры. В работах И. Марченко и др. [8, 9] было установлено, что диффузия в таких системах возрастает экспоненциальным образом с обратной температурой: $D_{\max} \propto \exp(\epsilon/kT)$. Этот явление было названо температурно-аномальной диффузией (ТАД) [10].

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

С другой стороны, для систем с большим трением диффузия частиц в периодическом наклонном потенциале всегда возрастает с температурой. Для передемпфированого случая Риман и соавторы [11] установили, что максимальное усиление диффузии происходит при некоторой критической силе. Ими аналитически было показано, что с температурой максимальный коэффициент диффузии в косинусоидальном потенциале растет, как $D_{\max} \propto T^{1/3}$. То есть в системах с большим γ' наблюдается традиционное возрастание D с температурой. Однако неясно, каким образом функциональная зависимость $D_{\max}$ изменяется с аномальной на нормальную температурную зависимость с увеличением γ'.

Целью данной работы является исследование изменения температурной зависимости коэффициента диффузии с изменением трения, а также определение области параметров, в которой существует ТАД в пространственно-периодических наклонных потенциалах.

Движение броуновских частиц в наклонном периодическом потенциале описывалось уравнением Ланжевена:

$$m\ddot{x} = -\frac{\partial}{\partial x}U(x) - \gamma\dot{x} + F + \sqrt{2\gamma Q}\xi(t), \qquad (1)$$

где x – координата частицы, t – время, m – ее масса, γ – коэффициент трения, F – действующая на частицу постоянная сила, задающая наклон потенциала, $\xi(t)$ – гауссов белый шум с интенсивностью, равной единице. Точка сверху означает дифференцирование по времени. Тепловая энергия $Q = kT$, где k – постоянная Больцмана, T – температура.

Периодический потенциал частицы в решетке был равен:

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

где a – период одномерной решетки, а U_0 – высота потенциального барьера. На частицу, помимо постоянной внешней силы, действовала сила со стороны решетки: $-\frac{dU}{dx} = F_0\sin\left(\frac{2\pi}{a}x\right)$, где $F_0 = \pi U_0/a$ [12]. Параметры используемого пространственно-периодического потенциала были теми же, что и в работах [8–10]: $U_0 = 0.08$ эВ, $a = 2.0$ Å. Масса частиц была равна 1 атомной единице массы.

Стохастическое уравнение (1) решалось численно. Методика расчетов описана в [8–10]. Коэффициент диффузии вычислялся по дисперсии σ^2 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.

При анализе результатов моделирования удобно перейти к безразмерным величинам. Наиболее часто используются безразмерные величины, введенные Х. Рискеном [4], при котором уравнение (1) принимает максимально простой вид:

$$\ddot{x}' = -\sin x' - \gamma'\dot{x}' + F' + \sqrt{2\gamma' Q'}\xi(t'). \qquad (4)$$

Безразмерные единицы связаны с силой, коэффициентом трения и температурой следующим образом:

$$\gamma' = \gamma\frac{\tau_0}{2\pi m},\ F' = \frac{F}{F_0},\ Q' = \frac{2kT}{U_0}, \qquad (5)$$

где $\tau_0 = a\,(2m/U_0)^{1/2}$ – период собственных малых колебаний частиц.

Для описания характера колебаний в различных системах обычно вводят коэффициент затухания [13]: $\Lambda = \frac{\gamma}{2m\omega_0}$, где ω_0 – частота собственных колебаний. При $0 < \Lambda < 1$ колебания называют недодемпфироваными, а при $\Lambda > 1$ – передемпфироваными. В случае $\Lambda = 1$ говорят о критическом демпфировании. Для уравнений (1) и (2) критическое демпфирование малых колебаний частиц около положения равновесия будет происходить при $\gamma' = 2$.

В работах [8–10] было показано, что в недодемпфированных системах с косинусоидальным потенциалом существует интервал значений сил (зона ТАД), зависящий от коэффициента трения, при котором коэффициент диффузии D бесконечно возрастает с понижением температуры. Вместе с тем для периодического воздействия [14, 15] было установлено, что такой рост D наблюдается только в ограниченном интервале температур. Поэтому в дальнейшем областью ТАД мы будем называть область параметров (T, F, γ), в которой частная производная $\frac{\partial D(T,F,\gamma)}{\partial T}$ меньше нуля.

Для определения области ТАД были проведены вычисления зависимостей коэффициента диффузии от действующей силы для различных коэффициентов трения и температур. На рисунке 1 приведены примеры таких вычислений. Косой штриховкой отмечена область, в которой коэффициент диффузии монотонно возрастал с уменьшением температуры. Горизонтальной штриховкой выделен интервал сил, в котором коэффициент диффузии в низкотемпературной области сначала возрастал с уменьшением температуры, а затем начинал падать. На рисунке 2 приведены температурные зависимости коэффициента диффузии D' для различных действующих сил в этой области. Видно, что $\partial D'/\partial T' < 0$ лишь в

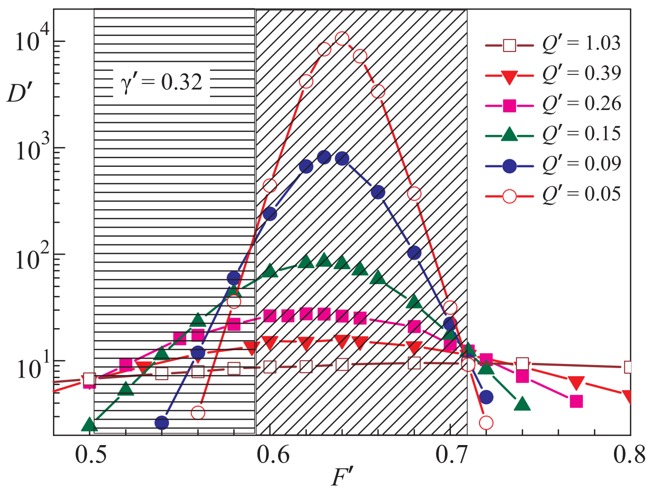

Рис. 1. (Цветной онлайн) Зависимость D' от силы для различных значений температуры при $\gamma' = 0.32$. Штриховкой выделена область ТАД. Область разделена на 2 подобласти

определенном интервале температур. То есть в области, выделенной горизонтальной штриховкой на рис. 1, существует температурное “окно” ТАД. Возможность такого рода зависимости обсуждалась в работе Б. Линднера и И. Соколова [17]. На основании аппроксимации зависимости скорости переходов между “бегущими” и “локализованными” состояниями они пришли к выводу о существовании ограниченного снизу по температуре интервала ТАД. Рисунки 1, 2 показывают, что такая зависимость действительно реализуется.

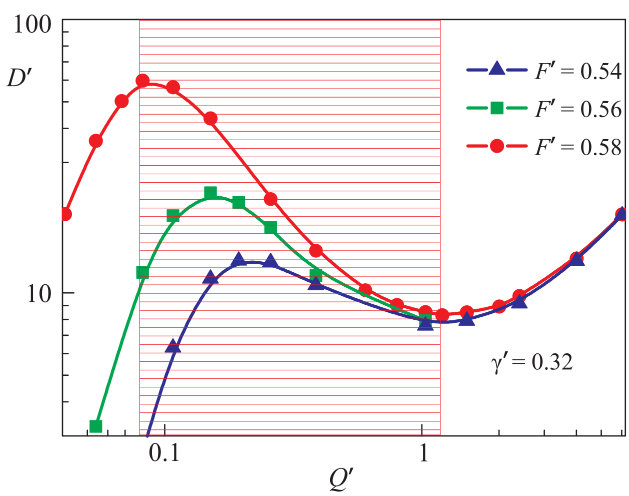

Рис. 2. (Цветной онлайн) Температурные зависимости коэффициента диффузии D' для различных действующих сил F' при $\gamma' = 0.32$. Горизонтальной штриховкой выделено температурное “окно” ТАД для $F' = 0.58$

В работах [8–10] было установлено, что в недодемпфированых системах в области ТАД коэффициент диффузии достигает максимального значения $D_{\max}$ при действующей силе F_{mx}. В низкотемпературной области значение F_{mx} постоянно и не зависит от температуры. Рассмотрим, как изменяется температурная зависимость $D_{\max}$ в зависимости от коэффициента трения. На рисунке 3 показаны темпера-

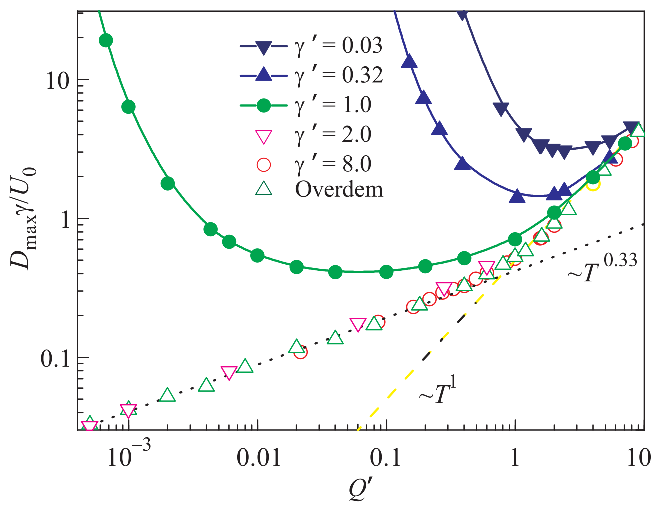

Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость $D\gamma/U_0$ от температуры для различных γ'. Δ – передемфированные системы, $\nabla - \gamma' = 2.0$ – решение уравнения (1). Штриховой линией нанесена зависимость T', пунктирной – зависимость $T^{0.33}$

турные зависимости $D_{\max}$ для различных коэффициентов трения. Видно, что при значениях $\gamma' \geq 2$ коэффициент диффузии всегда возрастает с температурой. При низких температурах $D_{\max} \propto T^{1/3}$, что совпадает с аналитическим результатом Рэймана и др. [11], полученного для косинусоидального потенциала. В области высоких температур $D_{\max} \propto T$, так как структура среды перестает оказывать влияние на движение броуновских частиц.

При уменьшении γ' ниже значения 1.1 коэффициент диффузии в области низких температур ведет себя аномальным образом: он возрастает с уменьшением температуры. На рисунке 4 приведены зависимости $D\gamma/U_0$ от обратной температуры для малых γ'. Видно, что в низкотемпературной области $D_{\max} \propto \exp(\varepsilon_{mx}/Q')$.

Как следует из рис. 4, с увеличением γ' значение ε_{mx} убывает. На рисунке 5 приведена зависимость ε_{mx} от коэффициента трения. Изменение значения ε_{mx} связано с изменением потенциального рельефа, в котором движется броуновская частица. Активационный барьер в X-пространстве с ростом

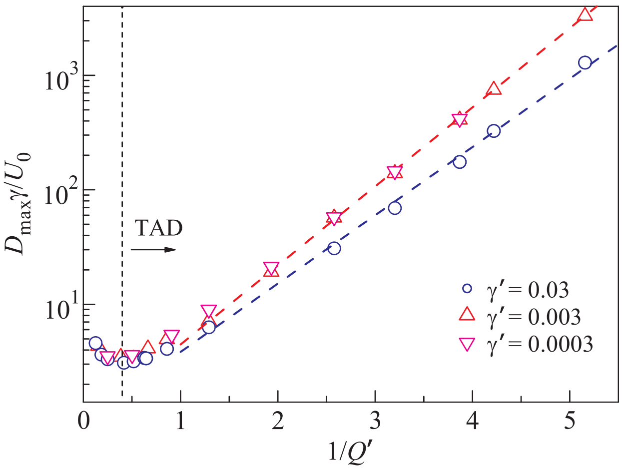

Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимость $D\gamma/U_0$ от обратной температуры для различных γ'. Пунктирной и штриховой линиями приведена аппроксимация зависимостью $D_{\max} \propto \exp(\varepsilon_{mx}/Q')$

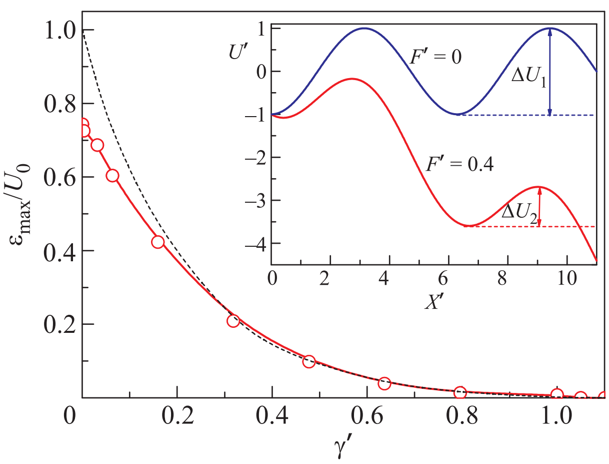

Рис. 5. (Цветной онлайн) Зависимости величины барьера ε_{mx} от величины γ'. Пунктирной линией показано изменение потенциального барьера $\Delta U(\gamma')/U_0$ в пространственном периодическом наклонном потенциале

силы уменьшается, как это схематично представлено на вставке к рис. 5. Это изменение под действием силы F описывается следующей зависимостью: $\Delta U(F)/\Delta U(0) = (1 - F^2)^{1/2} - F\arccos(F)$ [17].

Уменьшение барьера в X-пространстве приводит к убыванию величины барьера в пространстве скоростей и, соответственно, к уменьшению $\varepsilon_{mx}(\gamma')$. Величины ε_{mx}/U_0 представлены на рис. 5 полыми маркерами. Пунктирной линией показано изменение потенциального барьера $\Delta U\left(F_{mx}(\gamma')\right)$ в пространственной решетке. Видно, что зависимости $\Delta U(\gamma')$ и $\varepsilon_{mx}(\gamma')$ хорошо коррелируют между собой при $\gamma' > 0.3$. Из рисунка 5 видно, что величина ε_{mx} стремится к нулю при $\gamma' > 1$. Таким образом, с увеличением γ' ТАД исчезает, так как исчезает экспоненциальная зависимость ТАД от обратной температуры.

Теперь рассмотрим, каким образом с увеличением γ' изменяется интервал сил, в котором реализуется ТАД. На рисунке 6 приведена итоговая "диаграмма" существования ТАД. Заполненными маркерами приведены минимальные и максимальные значения сил, при котором наблюдалось ТАД с учетом температурного "окна". Незаштрихованная область в центре рис. 6 – это область ТАД, в которой диффу-

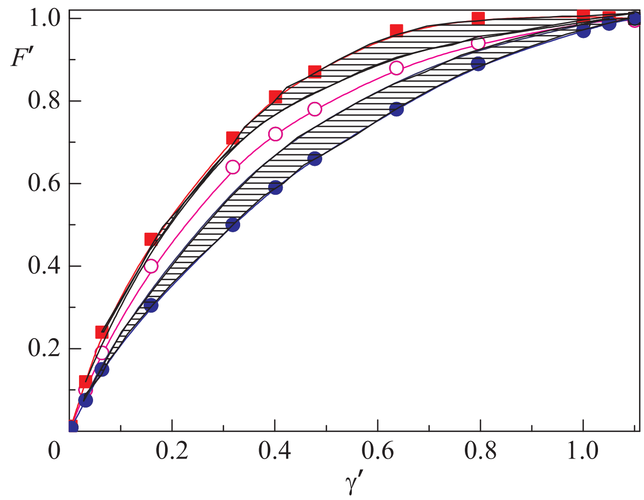

Рис. 6. (Цветной онлайн) Диаграмма существования области ТАД. Кружками обозначено нижнее значение области возникновения ТАД, квадратами – значения, при которых ТАД исчезает. Незаполненными кружками отмечены значения с максимальной диффузией. Заштрихована область "окна" ТАД

зия монотонно возрастала с уменьшением температуры (данные из работы [16]). Полыми маркерами в этой области приведены значения силы, при которой коэффициент диффузии максимален для данного коэффициента трения. Штриховкой выделены две области температурного "окна" ТАД. Как видно из рис. 6, эти области соразмерны по величине области абсолютной ТАД. Кроме того, верхняя и нижняя области различаются. При $\gamma' > 1.1$ ширина силового интервала, в котором наблюдается $\partial D/\partial T < 0$, стремится к нулю.

Таким образом, в работе изучена диффузия частиц в наклонных пространственно-периодических потенциалах в широком диапазоне температур и с различным коэффициентом трения γ'. Исследовано, каким образом осуществляется переход от экспоненциальной зависимости ТАД от обратной температуры к обычной степенной температурной зависимости с ростом γ'. Показано, что с увеличением коэффициента трения энергетический барьер ε, разделяющий “бегущие” и “локализованные” решения, уменьшается. При $\gamma' > 1.1$ величина ε близка к нулю.

Установлено, что в области промежуточных значений коэффициента трения $0.1 < \gamma' < 1.1$ возникает температурное “окно” ТАД. В некотором интервале сил коэффициент диффузии сначала возрастает с уменьшением температуры, а затем снова начинает падать. Построены диаграммы существования таких областей.

Полученные результаты открывают перспективы создания новых технологий управления процессами диффузии, что имеет большое значение для различных областей физики, химии и биологии.

---

1. A. N. Gan’shin, V. N. Grigor’ev, V. A. Maidanov, N. F. Omelaenko, A. A. Penzev, E. Ya. Rudavskii, and A. S. Rybalko, Low Temp. Phys. **25**, 259 (1999).
2. M. Guo, H. Gelman, and M. Gruebele, PLoS ONE **9**, e113040 (2014).
3. W. S. Tung, P. J. Griffin, J. S. Meth, N. Clarke, R. J. Composto, and K. Winey, ACS Macro Lett. **5**, 735 (2016).
4. H. Risken, *The Fokker-Planck Equation and Methods of Solution and Applications*, Springer (1989), 485 p.
5. G. Costantini and F. Marchesoni, Europhys. Lett. **48**, 491 (1999).
6. M. Borromeo, G. Costantini, and F. Marchesoni, Phys. Rev. Lett. **82**, 2820 (1999).
7. K. Lindenberg, A. M. Lacasta, J. M. Sancho, and A. H. Romero, New J. Phys. **7**, 29 (2005).
8. I. G. Marchenko and I. I. Marchenko, Europhisics Letters **100**, 5005 (2012).
9. I. G. Marchenko, I. I. Marchenko, and A. V. Zhiglo, Eur. Phys. J. B **87**, 10 (2014).
10. I. G. Marchenko, I. I. Marchenko, and V. I. Tkachenko, JETP Lett. **106**, 242 (2017).
11. P. Reimann, C. Van den Broeck, H. Linke, P. Hänggi, J. M. Rubi, and A. Pérez-Madrid, Phys. Rev. E **65**, 031104 (2002).
12. K. Lindenberg, J. M. Sancho, A. M. Lacasta, and I. M. Sokolov, Phys. Rev. Lett. **98**, 020602 (2007).
13. D. G. Alciatore and M. B. Histand, *Introduction to Mechatronics and Measurement Systems*, McGraw Hill, N.Y. (2007), 553 p.
14. I. G. Marchenko, I. I. Marchenko, and A. V. Zhiglo, Phys. Rev. E **97**, 012121 (2018).
15. I. G. Marchenko and I. I. Marchenko, JETP Lett. **95**(3), 137 (2012).
16. B. Lindner and I. M. Sokolov, Phys. Rev. E **93**, 042106 (2016).
17. M. Buttiker, E. P. Harris, and R. Landauer, Phys. Rev. B **28**, 1268 (1983).