ЖЭТФ, 2020, том 157, вып. 1, стр. 97–100

УНИВЕРСАЛЬНАЯ ВРЕМЕННАЯ ЗАВИСИМОСТЬ ВЕРОЯТНОСТИ ВЫЖИВАНИЯ ДИФФУНДИРУЮЩИХ ЧАСТИЦ В МНОГОМЕРНЫХ СРЕДАХ С ПОГЛОЩАЮЩИМИ ЛОВУШКАМИ В ЭЛЕКТРИЧЕСКОМ ПОЛЕ

В. Е. Архинчеев [*]

Laboratory of Applied Physics, Advanced Institute of Materials Science, Ton Duc Thang University 700000, Ho Chi Minh City, Vietnam

Faculty of Applied Sciences, Ton Duc Thang University 700000, Ho Chi Minh City, Vietnam

Поступила в редакцию 28 июля 2019 г.,
после переработки 2 августа 2019 г.
Принята к публикации 6 августа 2019 г.

Установлен эффект уменьшения «эффективной» размерности в многомерной задаче диффузии в среде с поглощающими ловушками за счет электрического поля. Эффективный переход к одномерному случаю происходит из-за направленного движения частицы, когда оно становится доминирующим по сравнению с диффузией. Была установлена универсальная «одномерная» зависимость вероятности выживания частиц в многомерной среде с поглощающими ловушками на больших временах.

DOI: 10.31857/S0044451020010113

1. ВВЕДЕНИЕ

Проблема диффузии частиц в средах с поглощающими ловушками изучалась во многих работах [1–3]. Как известно, вероятность выживания рассеивающихся частиц в многомерной среде с ловушками на малых временах описывается приближением эффективной среды:

$$W(t;c) \propto W_0 \exp\left(-\frac{\pi^2 c^2 Dt}{2}\right). \qquad (1)$$

На больших временах асимптотическое поведение вероятности выживания описывается другой формулой:

$$W(t;c) \propto W_0 \exp\left(-\frac{3\pi^{1/2}(Dtc^2)^{d/d+2}}{2}\right). \qquad (2)$$

Здесь t — время диффузии, D — коэффициент диффузии, c — концентрация поглощающих ловушек, $t_c = 1/Dc^{2/d}$ — время, за которое диффундирующая частица смещается на расстояние порядка среднего расстояния между ловушками, d — размерность задачи. Этот механизм захвата частиц на поглощающие ловушки, описывающийся формулой (2), впервые был подробно исследован в работе [4]. Физическая причина такого механизма заключается в появлении из-за флуктуаций редких больших областей без ловушек, в которых и выживают частицы на больших временах. Обобщение для многомерного случая и дальнейшее его развитие были получены в работах [5–7].

Появление электрического поля $\mathbf{E}$ в диффузионной задаче с ловушками приводит также и к новому параметру — «полевому времени» $t_E = D/v^2$, т. е. времени, при котором дрейфовое смещение сравнивается с диффузионным смещением [8, 9]. Здесь $\mathbf{v}(E) = \mu\mathbf{E}$ — скорость дрейфа частиц в электрическом поле $\mathbf{E}$, μ — подвижность частиц. Подвижность связана с коэффициентом диффузии D известным соотношением Эйнштейна:

$$\mu kT = qD, \qquad (3)$$

где k — коэффициент Больцмана, T — температура (использовалась классическая статистика Больцмана).

[*] E-mail: valeriy.arkhincheev@tdtu.edu.vn

Отметим, что проблема диффузии на поглощающих ловушках частиц в электрическом поле изучалась в работах [10, 11]. Было установлено экспоненциальное убывание со временем, которое соответствовало приближению эффективной среды в случае электрического поля:

$$\overline{W}(t;E) \propto \overline{W}(t;0)\exp\left(-\frac{v^2t}{4D}\right). \quad (4)$$

Многомерный случай был рассмотрен в работе [10]. Был сделан вывод, что «ненулевой постоянный дрейф приводит к экспоненциальному затуханию» на больших временах с линейным членом электрического поля в экспоненте:

$$\overline{W}(t;E) \propto \overline{W}(t;0)\exp\left(-\frac{v^2t}{4D}-\pi cvt\right). \quad (5)$$

В настоящей работе исследовано влияние электрического поля на вероятность выживания и получена универсальная временная зависимость, имеющая «квазиодномерный характер» для любой размерности [8]:

$$W(t;c) \propto W_0\exp\left(-\frac{3\pi^{1/2}(t/t_E)^{1/3}}{2}\right). \quad (6)$$

Первая особенность формулы (6) в том, что вместо диффузионного времени $t_c = 1/Dc^2$ в асимптотике появилось новое характерное «полевое время» $t_E = D/v^2$. Вторая особенность — «одномерная» временная зависимость является универсальной в d-мерном случае.

Полученные результаты могут быть использованы в различных областях. Во-первых, как известно, модель диффузии в среде с ловушками была введена в качестве классической модели Continuous Time Random Walks (CTRW) [12] для изучения таких процессов, как контролируемые диффузией химические реакции [13, 14]. Было показано, что захват на ловушки приводит к новому диффузионному поведению [15, 16]. Во-вторых, в наноразмерных системах проблема захвата диффундирующих частиц возникла при изучении транспорта активных частиц в нанопористых диэлектриках с низкой диэлектрической проницаемостью [17]. Материалы с низкой диэлектрической проницаемостью используются в современной электронике для изоляции элементов микросхем [18]. Соответственно, проникновение активных частиц в нанопоры диэлектриков приводит к временной деградации чипсов. В другой области аналогичная проблема возникает при изучении переноса (транслокации) полимеров через поры в клетках [19]. Исследование влияния электрического поля на диффузию в средах с ловушками может быть также использовано для разработки управления диффузионными процессами с помощью внешних электрических полей.

Цель данной статьи — доказать универсальность временной асимптотики (6) для многомерного случая. Статья построена следующим образом. В разд. 2 кратко описано введение электрического поля в исследуемую диффузионную задачу. В разд. 3 исследована асимптотика вероятности выживания на больших временах в многомерном случае.

2. ВВЕДЕНИЕ ЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ПОЛЯ В ДИФФУЗИОННУЮ ЗАДАЧУ С ПОГЛОЩАЮЩИМИ ЛОВУШКАМИ. ОДНОМЕРНЫЙ СЛУЧАЙ

Напомним коротко решение проблемы диффузии в одномерных средах с поглощающими ловушками, помещенными в электрическое поле. Как известно, уравнение диффузии в электрическом поле имеет вид

$$\frac{\partial W(x,t)}{\partial t} = D\frac{\partial^2 W(x,t)}{\partial x^2} + v\frac{\partial W(x,t)}{\partial x}. \quad (7)$$

Решим уравнение (7) для одномерного случая. Будем использовать следующие начальные и поглощающие граничные условия, которые аналогичны условиям в [20]:

$$W(x,0) = \frac{1-c}{L},\ W(x_i,t) = 0,\ W(x_{i+1},t) = 0. \quad (8)$$

Здесь x_i, x_{i+1} являются координатами соседних ловушек.

Ищем решение уравнения (7) в виде

$$W(x,t;E) = \sum_{n=0}^{\infty} a_n\varphi_n\exp(-E_nt), \quad (9)$$

где собственные функции равны

$$\varphi_n = \exp\left(\frac{v(x-x_i)}{2D}\right)\sin\left(k_n(x-x_i)\right). \quad (10)$$

Здесь $k_n = n\pi/l_i$, $n = 0,1,2,\ldots$ и $|l_i| = |x_{i+1}-x_i|$.

Собственные значения определялись выражением

$$E_n = Dk_n^2 + \frac{v^2}{4D}. \quad (11)$$

Коэффициенты a_n являются коэффициентами разложения по собственным функциям. Неизвестная искомая величина — вероятность выживания диффундирующих частиц равна среднему значению:

$$\overline{W}(t) = \sum_i \overline{W}_i = \int_0^\infty \left(\sum_i \int_{x_i}^{x_{i+1}} W(x,t,v(E))\,dx \right) \times \\ \times f(l)\,dl = \int_0^\infty \overline{W}\,(l, v(E)) \exp(-E_n t) f(l)\,dl. \quad (12)$$

Для пуассоновского распределения ловушек $f(l) = c\exp(-cl)$, где $c = N/l$ — концентрация ловушек, l — среднее расстояние между ловушками. Для нулевого электрического поля указанные выше асимптотики (1) и (2) были получены в работе [8]. Отметим также, что

$$\overline{W}(l, v(E)) = \sum_i \int_{x_i}^{x_{i+1}} W\,(x, v(E))\;dx = \\ = \sum_i \sum_{n=0}^{\infty} A \int_{x_i}^{x_{i+1}} \exp\left(-\frac{v(x-x_i)}{2D}\right) \times \\ \times \sin\left(k_n(x-x_i)\right)\,dx. \quad (13)$$

Для проведения необходимых расчетов нам нужно найти нормировочный коэффициент в формуле (13), подробнее см. [21].

3. ВРЕМЕННАЯ АСИМПТОТИКА ВЕРОЯТНОСТИ ВЫЖИВАНИЯ ЧАСТИЦ В ЭЛЕКТРИЧЕСКОМ ПОЛЕ В МНОГОМЕРНОМ СЛУЧАЕ

Изучим влияние электрического поля на многомерную задачу. Согласно формулам (12), (13) получаем экспоненциальную зависимость вероятности выживания частиц, которые поглощаются ловушками под действием электрического поля:

$$\overline{W}(t) \propto \overline{W}(t;0) \exp\left(-\frac{v^2 t}{4D}\right). \quad (14)$$

Подчеркнем, что этот результат соответствует приближению среднего поля. В общем случае из выражения, аналогичного (12), для многомерного случая и после выполнения необходимых вычислений с многомерным распределением Пуассона $f(l) = c\exp(-cl^d)$, где $c = N/l^d$, получаем следующий асимптотический вид:

$$W(t;v(E)) = \int_0^\infty \overline{W}(l, v(E)) f(l)\,dl \approx \\ \approx \exp\left(-\frac{v^2}{4D}\,t\right) \times \\ \times \sum_{n=0}^{\infty} \int_0^\infty \exp\left(-D\frac{\pi^2 n^2}{l^2}\,t - \frac{vl}{4D} - cl^d\right) dl. \quad (15)$$

Далее поиск асимптотики экспоненциального решения (15) осуществлялся стандартным методом перевала. Общее уравнение для определения перевальных точек имеет вид

$$D\frac{\pi^2}{l^2}\,t + \frac{vl}{4D} + cl^d = 0. \quad (16)$$

В случае слабых полей, $vl/D \ll cl^d$, получаем известный результат: вероятность выживания определяется флуктуациями концентрации поглощающих ловушек, другими словами, наличием больших областей, свободных от ловушек:

$$\frac{Dt\pi^2}{l^2} + cl^d \approx 0. \quad (17)$$

Таким образом, мы получаем выражение (2) для многомерного случая, как и ожидалось.

В противоположном предельном случае сильных электрических полей, $vl/D \gg cl^d$, седловая точка в методе перевала определяется другим уравнением:

$$D\frac{\pi^2}{l^2}\,t + \frac{vl}{4D} \approx 0. \quad (18)$$

Это выражение (18) получается из уравнения (16), когда можно пренебречь cl^d. Подчеркнем, что уравнение (18) соответствует одномерному случаю. Таким образом, можно сказать, что в сильных электрических полях имеем переход от общей d-мерной ситуации к эффективно одномерному случаю.

В результате мы получаем новое асимптотическое поведение, вызванное механизмом дрейфа, для многомерного случая:

$$W(t;E) \propto \\ \propto W_0 \exp\left\{-\frac{3\pi^{1/2}}{2}\left(Dt\left[\frac{qE}{4kT}\right]^2\right)^{1/3}\right\}. \quad (19)$$

Как следует из выражения (19), вероятность выживания частиц в среде с поглощающими ловушками в сильном электрическом поле и на больших временах в многомерном случае имеет эффективно «одномерную» временную зависимость с новым «полевым»

Переход от изотропной диффузии к направленному дрейфовому движению вдоль электрического поля

временем, которое определяется дрейфом частиц в электрическом поле.

Главной особенностью этого нового асимптотического поведения вероятности выживания частиц в многомерных средах с поглощающими ловушками является полученная универсальная «одномерная» временная зависимость, см. (19). Уменьшение «эффективной размерности» исследуемой d-мерной задачи до одномерного случая происходит за счет сильных электрических полей. В случае сильных электрических полей частица движется в основном вдоль направления электрического поля (см. рисунок).

Соответственно, седловая точка определяется уравнением (18), аналогичным уравнению для одномерного случая. Поэтому для асимптотического решения, обусловленного механизмом дрейфа, получаем выражение, как для одномерного случая, — формулу (6). Таким образом, мы можем сказать, что электрическое поле сводит «эффективную размерность» многомерной задачи к квазиодномерному случаю.

ЛИТЕРАТУРА

1. E. W. Montroll and G. H. Weiss, J. Math. Phys. **6**, 167 (1965).

2. А. А. Овчинников, А. А. Белый, Теор. и эксп. химия **2**, 405 (1966).

3. Г. В. Рязанов, ТМФ **10**, 271 (1972).

4. Б. Я. Балагуров, В. Г. Вакс, ЖЭТФ **38**, 799 (1974).

5. M. D. Donsker and S. R. S. Varadhan, Comm. Pure Appl. Math. **28**, 525 (1975).

6. M. D. Donsker and S. R. S. Varadhan, Comm. Pure Appl. Math. **32**, 721 (1979).

7. P. Grassberger and I. Procaccia, J. Chem. Phys. **77**, 6281 (1982).

8. V. E. Arkhincheev, Chaos **27**, 033117 (2017), http://dx.doi.org/10.1063/1.4979349.

9. V. E. Arkhincheev, AIP Conf. Proc. **553**, 231 (2001), http://dx.doi.org/10.1063/1.1358189.

10. P. Grassberger and I. Procaccia, Phys. Rev. A **26**, 3686 (1982).

11. B. Movaghar, B. Pohlmann, and D. Würtz, Phys. Rev. A **29**, 1568 (1984).

12. E. W. Montroll and G. H. Weiss, J. Math. Phys. **6**, 167 (1965).

13. Sang Bub Lee, In Chan Kim, C. A. Miller, and S. Torquato, Phys. Rev. B **39**, 11833 (1989).

14. I. Fouxon and M. Holzner, Phys. Rev. E **94**, 022132 (2016).

15. R. Metzler and J. Klafter, Phys. Rep. **339**, 1 (2000).

16. S. G. Samko, A. A. Kilbas, and O. I. Marichev, *Fractional Integrals and Derivatives*: *Theory and Applications*, Gordon and Breach, Amsterdam (1993).

17. V. E. Arkhincheev, E. Kunnen, and M. R. Baklanov, J. Microelectronics **88**, 686 (2011).

18. M. Baklanov, K. Maex, and M. Green (Eds.), *Dielectric Films for Advanced Microelectronics*, Wiley & Sons (2007).

19. J. L. A. Dubbeldam, A. Milchev, V. G. Rostiashvili, and T. A. Vilgis, Phys. Rev. E **76**, 010801 (2007).

20. V. Mehra and P. Grassberger, Physica D **168**, 244 (2002).

21. В. Е. Архинчеев, ЖЭТФ **128**, 166 (2019).