Письма в ЖЭТФ, том 80, вып. 6, с. 464 – 467

Перенос примеси в перколяционных средах

А. М. Дыхне, П. С. Кондратенко[1)], *Л. В. Матвеев*

Институт проблем безопасного развития атомной энергетики РАН, 113191 Москва, Россия

Поступила в редакцию 30 июля 2004 г.

Основываясь на концепции масштабной инвариантности, дан вывод и проанализированы следствия уравнения переноса примеси в перколяционных средах. Определяющую роль сыграл учет влияния стоков внутренне присущих указанным средам. На расстояниях меньше корреляционной длины перенос частиц происходит в режиме субдиффузии с характерной для него формой асимптотики ("хвоста") концентрации на далеких расстояниях. В среде, находящейся в состоянии выше порога протекания, на временах больше времени, связанного с корреляционной длиной, перенос описывается в основном классическим уравнением с перенормированным коэффициентом диффузии. При этом форма хвоста концентрации на умеренно далеких расстояниях является гауссовой, а на сверхдальних – субдиффузионной. Установлено равенство между двумя факторами – определяющими перенормировку коэффициента диффузии и уменьшение количества активных частиц примеси на больших временах.

PACS: 05.40.–a, 05.45.Df, 05.60.Cd

Значительное число практически важных задач о миграции примеси в сильно неупорядоченной среде сводится к проблеме переноса в перколяционных средах [1 – 3]. Установленные к настоящему времени результаты в основном относятся к оценкам среднеквадратичного смещения частиц примеси на больших временах $R(t)$. Вместе с тем, во многих случаях интерес представляют более детальные характеристики распределения концентрации примеси, в частности, на расстояниях $r \gg R(t)$ ("хвосты" концентрации). Для их получения требуется уравнение, пригодное для описания эволюции концентрации во времени. Предлагаемые в литературе уравнения, на наш взгляд, не являются удовлетворительными. Они либо основаны на формализме дробных производных и не подкреплены физическим содержанием [4], либо получены обобщением классического уравнения диффузии с введением зависимости от координат в коэффициенте диффузии [3]. Последнее обстоятельство находится в явном противоречии с тем фактом, что представляющая интерес концентрация примесей является характеристикой, усредненной по ансамблю реализаций сильно неупорядоченной среды.

Цель настоящего сообщения состоит в выводе не обладающего отмеченными выше недостатками уравнения переноса примеси в перколяционной среде и получении из него следствий. Сформулируем кратко существенные для нашего анализа свойства среды [1].

Главной особенностью перколяционных сред является то, что они состоят из не перекрывающихся областей (кластеров) – таких, что перенос внутри каждого из кластеров возможен, а переход частиц между кластерами, невозможен. В среде, находящейся до порога перколяции, существуют только конечные кластеры и перенос на большие расстояния затруднен. Конечные кластеры обладают фрактальными свойствами. Выше порога перколяции в среде имеется бесконечный кластер и перенос идет без ограничения по расстоянию. Ключевой характеристикой среды является корреляционная длина ξ. Ниже порога перколяции распределение кластеров по размерам l сосредоточено в области $l < \xi$ (количество кластеров с размерами $l \gg \xi$ экспоненциально мало). При подходе к порогу корреляционная длина неограниченно возрастает, $\xi \to \infty$. Выше порога перколяции она опять становится конечной. При этом распределение конечных кластеров обладает теми же свойствами, что и до порога. Что же касается бесконечного кластера, то на пространственных масштабах $L < \xi$ он (как и конечные кластеры) обладает фрактальными свойствами и является масштабно инвариантным, а на масштабах $L \gg \xi$, он становится статистически однородным. Важная топологическая особенность любого кластера состоит в том, что его можно разбить на две подобласти: "позвоночный хребет" ("backbone"-bb) и множество "мертвых концов" ("dead ends"-de), так что bb связывает удаленные друг от друга части кластера, а de соединяются с bb, каждый в одном месте, оставаясь изолированными между собой. Существенно, что фрактальная размерность подобласти de больше размерности bb. Далее частицы примеси, находящиеся в bb, мы бу-

[1)] e-mail: kondrat@ibrae.ac.ru

дем называть активными. Полное число активных частиц со временем убывает за счет ухода в de, а также локализации в кластерах малых размеров.

С учетом сказанного уравнение для концентрации активных частиц усредненной по ансамблю реализаций среды запишем в следующем виде:

$$\frac{\partial c(\mathbf{r},t)}{\partial t} + Q + \operatorname{div}\mathbf{j} = 0. \tag{1}$$

Здесь $\mathbf{j}(\mathbf{r},t)$ – плотность потока частиц, связанного с переносом по bb. По сравнению с обычным уравнением переноса, выражающим закон сохранения полного числа частиц $N(t) = \int d^3 r c(\mathbf{r},t)$, в уравнении (1) содержится дополнительное слагаемое, описывающее сток частиц, состоящий в уходе их в de, и локализации в кластерах малых размеров:

$$Q = \int\limits_{-\infty}^{t} dt' \varphi(t-t') c(\mathbf{r},t'). \tag{2}$$

Плотность потока $\mathbf{j}(\mathbf{r},t)$ определяется физическим механизмом переноса частиц. Мы будем считать, что перенос происходит путем блуждания с ограниченным размером одного шага. Поэтому поток и концентрация частиц примеси связаны законом Фика $\mathbf{j} = -D\nabla c$. Соответственно, уравнение переноса (1) с учетом выражения (2) приобретает вид

$$\frac{\partial c(\mathbf{r},t)}{\partial t} + \int\limits_{-\infty}^{t} dt' \varphi(t-t') c(\mathbf{r},t') = D\Delta c. \tag{3}$$

Проанализируем структуру интегрального ядра $\varphi(t)$. Обладая фрактальными свойствами, перколяционная среда является масштабно инвариантной в пространственном интервале $\xi_0 \ll l \ll \xi$, где ξ_0 определяет ближний радиус корреляции. Отсюда следует существование временного интервала $\tau_0 \ll t \ll \tau$, в котором функция $\varphi(t)$ является самоподобной и может быть записана в виде

$$\varphi(t) \sim -\frac{1}{\tau_0^2}\left(\frac{\tau_0}{t}\right)^{1+\alpha}. \tag{4}$$

Знак минус здесь будет обоснован ниже. Показатель степени α заключен в интервале $0 < \alpha < 1$. Левая граница в нем вытекает из требования сходимости интеграла от функции $\varphi(t)$ на больших временах, а правая – из условия, чтобы вклад стока в (3) при $\tau_0 \ll t \ll \tau$ был доминирующим по сравнению с производной по времени. Из сравнения различных членов в (3) следует $\varphi(\tau_0)\tau_0 \sim D/\xi_0^2$ и $\varphi(\tau)\tau \sim D/\xi^2$. Отсюда имеем:

$$\tau_0 \sim \xi_0^2/D, \quad \tau \sim \tau_0(\xi/\xi_0)^{2/\alpha}.$$

За пределами интервала фрактальности на больших временах, $t \gg \tau$, функция $\varphi(t)$ (аналогично пространственным корреляциям при $r \gg \xi$) убывает достаточно быстро, так что существуют все ее степенные моменты по времени. На малых временах, $t < \tau_0$, вклад второго члена в (3) не превосходит вклада первого. Поэтому

$$\varphi(t) \sim 1/\tau_0^2, \quad t \lesssim \tau_0.$$

Подчеркнем, что поскольку уравнение (3) получено путем усреднения по ансамблю реализаций среды, оно справедливо на пространственных масштабах больше ξ_0.

Исходя из установленных свойств функции $\varphi(t)$, находим ее образ Лапласа φ_s. В диапазоне лапласовской переменной $\tau^{-1} \ll s \ll \tau_0^{-1}$ имеем

$$\varphi_s \cong \frac{1}{\tau_0}(s\tau_0)^{\alpha}. \tag{5}$$

При $s < \tau^{-1}$ функция φ_s разлагается в ряд по целым степеням величины $s\tau$. Это свойство φ_s совместно с (5) позволяет сделать вывод, что в комплексной плоскости переменной s функция φ_s имеет точку ветвления при $s_1 = -\tau^{-1}$ (это можно рассматривать как определение τ) и что значения φ_s при $s = 0$ и $s = s_1$, одного порядка (если нет специальных условий) и для них справедлива оценка:

$$\varphi_0, \varphi_{s_1} \sim \frac{1}{\tau_0}\left(\frac{\tau_0}{\tau}\right)^{\alpha}. \tag{6}$$

Исследуем теперь свойства решений уравнения (3). Для определенности будем иметь в виду задачу с начальным условием, считая, что при $t = 0$ все частицы сосредоточены в начале координат, выбор которого, ввиду трансляционной инвариантности постановки задачи, произволен: $c(\mathbf{r},0) = N_0\delta(\mathbf{r})$. Решение уравнения (3) имеет вид

$$c(\mathbf{r},t) = \frac{N_0}{4\pi D r}\int\limits_{a-i\infty}^{a+i\infty}\frac{ds}{2\pi i}\exp\left(-\left(\frac{\varphi_s + s}{D}\right)^{1/2} r + st\right), \quad \operatorname{Im} a = 0, \quad a > 0. \tag{7}$$

Рассмотрим вытекающие отсюда следствия. На временах $t \ll \tau_0$ решение (3) сводится к решению классического уравнения диффузии, в котором $Q = 0$ и, соответственно, $\varphi = 0$.

Перейдем к интервалу $\tau_0 \ll t \ll \tau$. Интегрированием выражения (7) по всему пространству получаем полное число активных частиц в зависимости от времени

$$\frac{N(t)}{N(0)} = \Gamma^{-1}(\alpha)\left(\frac{\tau_0}{t}\right)^{1-\alpha}. \tag{8}$$

Здесь $\Gamma(x)$ – гамма-функция Эйлера. Отметим, что положительный знак справа в (8) обусловлен знаком минус в формуле (4), что и является доказательством правильности его выбора.

Из выражения (7) получаем концентрацию активных частиц примеси в начале координат в интервале времени $\tau_0 \ll t \ll \tau$:

$$c(0,t) \cong \frac{N_0}{(4\pi Dt)^{3/2}} \left(\frac{\tau_0}{t}\right)^{-(1-\alpha)/2} \frac{2}{\sqrt{\pi}} \Gamma\left(1+\frac{\alpha}{2}\right) \sin\frac{\alpha\pi}{2}. \tag{9}$$

Общее выражение для концентрации при $\tau_0 \ll t \ll \tau$ и $\xi_0 \ll r \ll \xi$, согласно (7), имеет структуру

$$c(\mathbf{r},t) = c(0,t)F(\eta), \quad \eta = \frac{r^2}{4Dt}\left(\frac{t}{\tau_0}\right)^{1-\alpha}. \tag{10}$$

Функция $F(\eta)$ быстро убывает при $\eta > 1$. Поэтому, согласно (10), размер основного облака концентрации в момент времени t имеет оценку

$$R(t) \sim \sqrt{4Dt}(t/\tau_0)^{(1-\alpha)/2}. \tag{11}$$

Она свидетельствует о том, что перенос примеси в рассматриваемой модели (ввиду неравенства $0 < \alpha < 1$) отвечает режиму субдиффузии[2)]. Отметим, что выражение (9) с учетом (8) и (11) удовлетворяет очевидному соотношению $c(0,t) \sim N(t)/R^3(t)$.

Концентрация на далеких расстояниях (в "хвосте") дается формулой

$$c(\mathbf{r},t) \cong \frac{N_0}{(4\pi Dt)^{3/2}}\left(\frac{\tau_0}{t}\right)^{-(1-\alpha)/2} \frac{\alpha^{1/(2-\alpha)}}{\sqrt{2-\alpha}} \eta^{-(1-\alpha)/2(2-\alpha)} \times \exp\left\{-\frac{2-\alpha}{\alpha}(\alpha^2\eta)^{1/(2-\alpha)}\right\}. \tag{12}$$

Она описывает поведение концентрации вплоть до расстояний $r \sim \xi_0 t/\tau_0$. Вычисление асимптотики концентрации при условии $r \gg \xi_0 t/\tau_0$ требует выхода за рамки применимости уравнения (3). На этих расстояниях, исходя из настоящей модели, можно указать лишь мажоранту:

$$c(\mathbf{r},t) < \frac{N_0}{(4\pi Dt)^{3/2}} \frac{\alpha}{\sqrt{2-\alpha}} \exp\left\{-\frac{2-\alpha}{\alpha}\frac{t}{\tau_0}\right\} \quad \text{при} \ \ r \gg \xi_0 t/\tau_0. \tag{13}$$

Поведение концентрации на временах $t \gg \tau$ зависит от того, находится ли среда ниже или выше порога перколяции. Ниже порога имеет место оценка

$$c(\mathbf{r},t) \sim \frac{N_0}{\xi_0^3}\left(\frac{\xi_0}{\xi}\right)^{(2+\alpha)/\alpha}\left(\frac{\tau}{t}\right)^{1+\alpha} \exp\left(-\frac{r}{\xi}-\frac{t}{\tau}\right).$$

Для описания переноса выше порога перколяции, концентрация активных частиц разбивается на две части: $c(\mathbf{r},t) = c_f(\mathbf{r},t) + c_\infty(\mathbf{r},t)$. Первая из них отвечает частицам примеси, принадлежащим системе конечных кластеров, вторая – бесконечному кластеру. Начальные условия даются равенствами $c_f(\mathbf{r},0) = c(\mathbf{r},0)(1-P_\infty)$ и $c_\infty(r,0) = c(r,0)P_\infty$, в которых P_∞ – вероятность попадания частицы в бесконечный кластер. Поведение концентрации $c_f(\mathbf{r},t)$ совпадает с уже рассмотренным для допороговых состояний. К этим же закономерностям сводится и поведение $c_\infty(\mathbf{r},t)$ при $t < \tau$, с той лишь разницей, что индекс α в (6), хотя и удовлетворяет неравенству $0 < \alpha < 1$, не совпадает с прежним значением [6, 7].

Кардинальное отличие переноса на временах $t > \tau$ возникает в связи с тем, что для бесконечного кластера имеет место равенство $\varphi_0 = 0$. Оно вытекает из свойства статистической однородности при $r \gg \xi$, благодаря которому количество активных частиц на бесконечном кластере при $t \to \infty$ стремится к конечному пределу. В самом деле, из уравнения (3) имеем

$$\frac{\partial N_\infty}{\partial t} + \int_0^t dt\varphi(t-t')N_\infty(t') = 0.$$

Отсюда, поскольку $N_\infty(\infty) \neq 0$ и $\partial N_\infty(\infty)/\partial t = 0$, получаем $\int_0^\infty dt\varphi(t) \equiv \varphi_0 = 0$. Поэтому при $s \ll \tau^{-1}$ функция φ_s имеет вид $\varphi_s \cong As$, где $A \sim (\tau/\tau_0)^{1-\alpha} \gg 1$. Отсюда следует, что при $t \gg \tau$ концентрация частиц $c(\mathbf{r},t) \cong c_\infty(\mathbf{r},t)$ удовлетворяет классическому уравнению диффузии с перенормированным коэффициентом $\widetilde{D}$. Факторы перенормировок для коэффициента диффузии и полного числа частиц удовлетворяют равенству

$$\frac{\widetilde{D}}{D} = \frac{N_\infty(\infty)}{N_\infty(0)} = A^{-1}. \tag{14}$$

Поведение концентрации в хвосте распределения на временах $t \gg \tau$ имеет следующий характер. Сначала на расстояниях $\sqrt{4\widetilde{D}t} \ll r \ll \xi(t/\tau)$ идет гауссова асимптотика, соответствующая перенормированному коэффициенту диффузии $\widetilde{D}$ и полному числу частиц $N_\infty(\infty)$. За ней при $r \gg \xi(t/\tau)$ следует субдиффузионная асимптотика типа (12) с указанным по отношению к ней ограничением.

2) Отметим, что и физическая постановка задачи и полученные нами результаты в целом существенно отличаются от модели переноса [5], основанной на уравнении с дробной производной по времени.

Авторы выражают глубокую благодарность С. А. Рыбаку за интересное обсуждение.

1. M. B. Isichenko, Rev. Mod. Phys. **64**, 961 (1992).
2. M. Sahimi, Rev. Mod. Phys. **65**, 1393 (1993).
3. V. Mendez, D. Campos, and J. Fort, Phys. Rev. **E69**, 016613 (2004).
4. A. Compte, Phys Rev. **E53**, 4191 (1996).
5. K. B. Чукбар, ЖЭТФ **108**, 1875 (1995).
6. Y. Gefen and A. Aharony, Phys. Rev. Lett. **50**, 77 (1983).
7. A. Harris, Y. Meir, and A. Aharony, Phys. Rev. **B36**, 8752 (1987).