

Т.Є. Корочкова

ПУЛЬСУЮЧИЙ БРОУНІВСЬКИЙ МОТОР З ПЛАВНИМИ МОДЕЛЬНИМИ ПОТЕНЦІАЛАМИ В НАБЛИЖЕННІ МАЛИХ ФЛУКТУАЦІЙ

Інститут хімії поверхні ім. О.О. Чуйка Національної академії наук України
вул. Генерала Наумова, 17, Київ 03164, Україна, E-mail: tais.crust@gmail.com

Броунівські мотори належать до класу нанорозмірних пристроїв, які використовують тепловий шум середовища як одну з необхідних складових у механізмі свого функціонування. На сьогодні існує велика кількість практичних реалізацій таких наномашин, як неорганічних, достатньо простих механізмів, сконструйованих штучно, так і більш складних, створених з окремих біологічних компонентів, що доступні на клітинному рівні. Один із варіантів реалізації механізму випрямлення хаотичного теплового шуму середовища в однонаправлений рух - перебування частинки-мотора в полі дії асиметричного періодичного стаціонарного потенціалу, який періодично з часом зазнає певні малі збурення (флуктуації). Для опису таких асиметричних одновимірних структур (наприклад, дипольних ланцюжків або волокон цитоскелета) в теорії броунівських моторів найчастіше застосовується два модельні потенціали: кусково-лінійний пилоподібний і подвійний синусоїдальний. В даній роботі в рамках наближення малих флуктуацій розглядається модель пульсуючого броунівського мотора зі стаціонарним подвійним синусоїдальним потенціалом і збурюючим малим гармонійним сигналом. Запропоновано новий спосіб параметризації такої задачі, що дозволяє розділити вклади від різних факторів, що впливають на роботу ретчета, та уточнено чисельну процедуру розрахунку середньої швидкості направленої руху наночастинок для обраного виду модельних потенціалів. Отримано ряд чисельних залежностей середньої швидкості від основних параметрів системи. Досліджено особливості поведінки мотора в залежності від параметра, що відповідає за асиметрію та кількість потенціальних ям на просторовому періоді стаціонарного потенціалу. Показано, що напрямок згенерованого потоку наночастинок залежить не тільки від фазового зсуву між стаціонарною та флуктуаційною складовими потенціалу, а також від температури системи та частоти флуктуацій, тобто встановлено можливість температурно-частотного керування напрямком руху в розглядуваній моделі. Побудовано діаграми, що дозволяють підібрати співвідношення між параметрами наномотора для створення потоку частинок у потрібному напрямку.

Ключові слова: броунівські мотори, нанорозмірні механізми, дифузійний транспорт, ретчет-ефект, направлений рух наночастинок, модельні потенціали теорії броунівських моторів, температурно-частотне керування

ВСТУП

Створення контрольованого транспорту на нанорівні на сьогодні – важлива і актуальна задача нерівноважної статистичної фізики [1–3]. Ідея конструювання керованих нанорозмірних механізмів, здатних виконувати найпростіші завдання, була висловлена Р. Фейнманом ще в 1960 р. [5], а сучасний розвиток системної біології дозволив вивчити роботу білкових внутрішньоклітинних механізмів і довів, що нанорозмірні пристрої можуть функціонувати з атомарною точністю [1, 5]. Для практичної реалізації ідеї створення контрольованих нанопристроїв зараз існує два основні підходи. Перший, біоміметичний, вперше був запропонований К. Дрекслером у 1992 р. у

роботі про білковий синтез [6]. Він полягає в тому, що, оскільки молекулярні механізми, що функціонують в живих організмах, все ще на багато порядків перевершують все, що може бути створено штучно, нанорозмірні пристрої логічно створити шляхом позиційної збірки або самозбірки біологічних компонентів, доступних на клітинному рівні. Як альтернатива біоміметичному, неорганічний підхід передбачає конструювання нанорозмірних моторів з твердих неорганічних матеріалів, наприклад, з використанням сучасних літографічних методів, тунельної скануючої мікроскопії і т.і. [1, 7–9]. Існуючі неорганічні нанопристрої відрізняються простотою і надійністю, до того ж, вони забезпечують додаткові експериментальні

можливості вивчення та імітації білкових молекулярних моторів [1, 3].

Серед величезної кількості нанорозмірних пристроїв, як неорганічної, так і білкової природи, виділяється клас броунівських моторів – двигунів, які використовують тепловий шум середовища як одну з необхідних складових у механізмі свого функціонування [1–3, 10–12]. Броунівський мотор – це нанорозмірний самохідний апарат, який випрямляє (виправляє) хаотичні впливи зовнішнього середовища і перетворює їх на рух у потрібному напрямку. На відміну від простого макроскопічного градієнта (наприклад, прикладеного електростатичного поля або різниці температур), який невибірковий і найчастіше руйнівний для досліджуваних конструкцій, принцип роботи броунівського мотора забезпечує значно менший вплив ззовні на розглядувану систему для генерації руху і більш легкий контроль над створюваними потоками [1].

Як приклад найпростішого неорганічного броунівського мотора можна розглядати частинку, що знаходиться в рідкому або газоподібному середовищі поблизу структурованої поверхні твердого тіла, що створює періодичний і асиметричний потенціал, і яка додатково піддається впливу деяких збурень ззовні, наприклад, змінного поля невеликої амплітуди з середнім нульовим значенням [13]. Тоді частинка-мотор, перебуваючи в періодичній системі з порушеною просторовою симетрією, відчуватиме випадкові впливи (поштовхи) з боку частинок середовища та зовнішні випадкові або періодичні (стохастичні або детерміністичні) флуктуації, які виводять систему зі стану термодинамічної рівноваги та забезпечують надходження енергії. Поєднання цих трьох факторів і забезпечуватиме генерацію направленої руху.

На сьогоднішній день запропоновано, досліджено та систематизовано велику кількість різноманітних моделей наномоторів, і вони в сумі склали основу теорії броунівських моторів – набору аналітичних та чисельних підходів до математичного опису характеристик ретчет-ефекту, що виникає в різних умовах. Залежно від задачі дослідження, моделі броунівських моторів широко варіюються за складністю та

шириною застосування. Так, для моделювання конкретної реальної системи важлива деталізація і точність опису в заданих, зазвичай невеликих, діапазонах вхідних параметрів, в той час як прості моделі, що носять узагальнений характер, мають фундаментальне значення. Внаслідок їхньої простоти і малої кількості параметрів системи вони вимагають мінімум наближень, часто допускають аналітичні розв'язки і дозволяють отримати ключові закономірності базових характеристик виникаючого ретчет-ефекту у великих діапазонах вхідних параметрів і початкових умов [1, 2]. Сформулювавши простий модельний опис броунівського мотора, що коректно відображає механізм генерації руху в заданому випадку, можна розділити вклади від кожного вхідного параметра в результуючий ефект і розраховувати співвідношення параметрів, формулювати умови для виконання мотором потрібного завдання, наприклад, розвитку максимальної швидкості, послідовного руху в різних напрямках і т.д.

Клас броунівських моторів, в якому механізм випрямлення («зупинки» потоків, що виникають у непотрібних напрямках) реалізований за допомогою асиметричної форми стаціонарного потенціалу, в полі якого виникає направлений рух, називається ретчетами [1]. Для опису асиметричних підкладок або одновимірних структур (дипольних ланцюжків, волокон цитоскелета та т.д.) в теорії броунівських моторів найчастіше застосовуються два модельні потенціали: кусково-лінійний пилоподібний і подвійний синусоїдальний з різними періодами [1–3, 14]. Пилоподібний потенціал (sawtooth potential), відомий ще з теоретичної та експериментальної роботи А. Айдарі та співавторів [15], добре підходить для систем, для яких притаманні великі градієнти зміни потенціальних профілів. Він характеризується лише двома параметрами: амплітудою (розтягом по енергетичній осі) та співвідношенням довжин лінійних ділянок – безрозмірним коефіцієнтом асиметрії, що змінюється від 0 до 1. Безперечною перевагою пилоподібного потенціалу є незалежність його параметрів між собою та неперервність їхньої зміни, що дозволяє розглядати окремо вплив кожного з відповідних факторів на ретчет-ефект, що виникає. Подвійний

синусоїдальний потенціал (double-sine potential), вперше запропонований Р. Бартуссеком і співавторами в 1994 р. [16], хоча і має значно менший діапазон варіювання асиметрією потенціалу (для змінних амплітуд вкладів з різними періодами), застосовується для систем з плавною зміною потенціальних профілів та застосовується при описі реальних асиметричних субстратів. Особливою чутливістю до форми потенціальних профілів та наявності точок перегину відрізняються моделі моторів, працюючих в режимі швидких зовнішніх флуктуацій [14].

Для штучно створюваних неорганічних броунівських моторів характерним є такий режим роботи, в якому флуктуаційна складова мала порівняно з амплітудою стаціонарного потенціального рельєфу. Такий режим роботи добре відповідає наближенню малих флуктуацій, що розроблялось у попередніх роботах [14, 17–19]. Математичним апаратом цього наближення є метод функцій Гріна, розвинений у координатному представленні в роботах [14, 17, 18]: функція Гріна дифузії у стаціонарній складовій потенціалу є відгуком системи на точкове просторово-часове збурення, а ретчет-ефект розглядається безпосередньо як результат впливу цього малого збурення. У роботі [19], використовуючи Фур'є-представлення періодичних залежностей, досліджувався рух броунівського ретчета в потенціальному профілі, що виникає при дихотомному збуренні просторово періодичного пилоподібного потенціального рельєфу малим гармонійним сигналом зі змінним фазовим зсувом, і була показана можливість температурного та частотного керування. У зв'язку з цим актуальним є питання можливості управління напрямком руху в броунівських моторах з плавними модельними потенціалами. В даній статті метод обчислення середньої швидкості мотора, запропонований у роботі [19], буде адаптований для моделі ретчета з подвійним синусоїдальним стаціонарним потенціалом і малим гармонійним збурюючим сигналом.

В наступному розділі буде викладено загальну процедуру розрахунку середньої швидкості мотора у наближенні малих флуктуацій (розділ 2), конкретизовано вид модельних потенціалів, запропоновано новий метод параметризації та уточнено чисельну

процедуру для обраного виду потенціалів (розділ 3). Далі буде отримано основні чисельні залежності, що характеризують обрану модель (розділ 4). В кінці буде проведено обговорення та аналіз отриманих результатів (розділ 5).

ЗАГАЛЬНА ПРОЦЕДУРА РОЗРАХУНКУ СЕРЕДНЬОЇ ШВИДКОСТІ МОТОРА В РАМКАХ НАБЛИЖЕННЯ МАЛИХ ФЛУКТУАЦІЙ

Динаміка руху броунівської частинки у полі дії потенціалу $U(x,t)$ описується рівнянням Смолуховського для функції розподілу $\rho(x,t)$ координати наночастинки [14, 17–19]:

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho(x,t) + \frac{\partial}{\partial x} J(x,t) = 0, \quad (1)$$

$$J(x,t) = -D e^{-\beta U(x,t)} \frac{\partial}{\partial x} e^{\beta U(x,t)} \rho(x,t). \quad (2)$$

Рівняння (2) задає потік ймовірності $J(x,t)$, де $\beta = (k_B T)^{-1}$, коефіцієнт дифузії $D \equiv (\beta \zeta)^{-1}$ і ζ – коефіцієнт тертя. У наближенні малих флуктуацій співвідношення $|u(x)|/k_B T$ вважається довільним, а перехід до нерівності $|u(x)|/k_B T \ll 1$ є рівнозначним переходу до високотемпературного наближення [19].

В наближенні малих флуктуацій потенціальний профіль $U(x,t)$ має адитивно-мультиплікативний вигляд [17–19]:

$$U(x,t) = u(x) + \sigma(t)w(x), \quad (3)$$

в якому перший доданок $u(x)$ описує стаціонарний (незбурений) профіль, а другий $\sigma(t)w(x)$ – флуктуаційну складову (збурення). При цьому припускають, що $|\sigma(t)w(x)|/k_B T \ll 1$, а значення функції $\sigma(t)$ порядку одиниці, щоб порядок поправки $\sigma(t)w(x)$ визначався порядком функції $w(x)$ [19].

Основний результат наближення малих флуктуацій полягає в інтегральному представленні середнього потоку частинок $J \equiv \langle J(x,t) \rangle$ в режимі руху, що встановився [14]:

$$J = -(BD)^2 \int_0^L dx q(x) w'(x) \int_0^L dx' w'(x') \rho^{(0)}(x') \frac{\partial}{\partial x'} S(x,x'). \quad (4)$$

Цей потік задає середню швидкість броунівського ретчету як $\langle v \rangle = LJ$, де L – просторовий період функції $U(x,t)$. У формулі (4) функція $\rho^{(0)}(x)$ описує рівноважний розподіл в стаціонарному потенціалі $u(x)$, $\rho^{(0)}(x) = e^{-\beta u(x)} / \int_0^L dx e^{-\beta u(x)}$, $q(x)$ збігається з $\rho^{(0)}(x)$ з точністю до заміни $u(x)$ на $-u(x)$ [19].

Якщо флуктуації потенціальної енергії наночастинки (3) являють собою стохастичний дихотомний процес, при якому $\sigma(t)$ набуває два значення $+1$ і -1 , із заданими швидкостями переходів γ_+ і γ_- між ними, а сума швидкостей переходів визначає обернений час кореляції $\Gamma = \gamma_+ + \gamma_-$, то функцію двох змінних $S(x, x')$ можна знайти з рівняння [19]:

$$\left[\frac{d}{dx} \hat{J}(x) + \Gamma \right] S(x, x') = -\delta(x - x'). \quad (5)$$

Періодичність функцій $u(x)$, $w(x)$, $q(x)$, $\rho^{(0)}(x)$ дозволяє записати їх у вигляді рядів Фур'є $f(x) = \sum_p f_p e^{ik_p x}$ (де $k_p = 2\pi p / L$, $p = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$; $f(x)$ – кожна з цих функцій). Аналогічно функцію двох просторових змінних $S(x, x')$ можна записати як $S(x, x') = \sum_{pp'} S_{pp'} e^{ik_p x - ik_{p'} x'}$. Тоді вираз (4) у Фур'є-компонентах набуває вигляду [19]:

$$J = -i(\beta DL)^2 \sum_{pp'p_2} k_p k_{-p-p_1} k_{-p_2+p'} q_{p_1} \rho_{p_2}^{(0)} S_{pp'} w_{-p-p_1} w_{-p_2+p'}, \quad (6)$$

а значення $S_{pp'}$ можна отримати при розв'язанні рівняння [19]:

$$\sum_{\bar{p}} \left[(Dk_p^2 + \Gamma) \delta_{\bar{p}\bar{p}} + \beta D k_p k_{p-\bar{p}} u_{p-\bar{p}} \right] S_{\bar{p}p'} = -\frac{1}{L} \delta_{pp'}. \quad (7)$$

Таким чином, знаходження шуканого потоку J звелось до чисельної процедури обернення матриці для знаходження Фур'є-компонент $S_{pp'}$ (при розв'язанні рівняння (7)) та наступного чотирикратного підсумовування (6), причому ця процедура є застосовною для розрахунку середньої швидкості руху наночастинок у моделі стохастичного броунівського ретчету з

довільними потенціальними профілями $u(x)$ та $w(x)$ з однаковим просторовим періодом L .

МОДЕЛЬ СТОХАСТИЧНОГО БРОУНІВСЬКОГО РЕТЧЕТУ З ПЛАВНИМИ ПОТЕНЦІАЛАМИ

Для подальшого розгляду необхідно конкретизувати вид модельних потенціалів $u(x)$ та $w(x)$. В якості стаціонарного потенціалу візьмемо суму двох синусоїд різних періодів:

$$u(x) = u_0 [\sin(2\pi x / L) + \alpha \sin(4\pi x / L)]. \quad (8)$$

Такого вигляду потенціал з фіксованим коефіцієнтом $\alpha = 1/4$ вперше був запропонований Р. Бартусеком та А. Хангі [16] для опису одновимірної періодичної асиметричної підкладки, і на даний момент широко представлений в теорії броунівських моторів разом з пилоподібним потенціалом [1–3].

Кількісно охарактеризувати асиметрію плавного потенціалу за аналогією з пилоподібним можна введенням безрозмірного параметра асиметрії – відношення відстані між сусідніми абсолютними максимумом і мінімумом до просторового періоду $\lambda = (x_{\max} - x_{\min}) / L$ [1].

Розглянемо основні властивості функції (8), що визначає стаціонарну компоненту потенціалу (див. рис. 1). Вона є періодичною з просторовим періодом L ($u(x + nL) = u(x)$, де n ціле), непарна, симетрична відносно точок $nL/2$; містить змінний коефіцієнт α , який, змінюючи співвідношення вкладів гармонік, впливає на асиметрію потенціалу, керує кількістю потенціальних ям на періоді (якщо $0 < \alpha \leq 0.5$, то просторовий період містить один максимум і один мінімум, якщо $\alpha > 0.5$, то додається ще один локальний максимум і мінімум (див. рис. 1 а)) і забезпечує додатковий внесок у амплітуду потенціалу. Таким чином, введення змінного коефіцієнта α дає можливість непрямої зміни асиметрії стаціонарного потенціалу, проте додає певні складності: асиметрія потенціалу та його амплітуда будуть пов'язані між собою. Для того, щоб їх розділити за аналогією з пилоподібним потенціалом, введемо додаткове нормування

$$\tilde{u}(x) = u_0 C_n(\alpha) [\sin(2\pi x / L) + \alpha \sin(4\pi x / L)], \quad (9)$$

де нормувальний коефіцієнт $C_n(\alpha)$ розраховується за формулами:

$$C_n(\alpha) = [2(\sin(2\pi x_{\max}/L) + \alpha \sin(4\pi x_{\max}/L))]^{-1},$$

$$x_{\max} = \arccos[(2\sqrt{8+(4\alpha^2)^{-1}} - \alpha^{-1})/8]/2\pi. \quad (10)$$

Використовуючи як стаціонарний потенціал функцію $\tilde{u}(x)$ виду (9), можна зберегти всі властивості функції (8), і при цьому забезпечити незалежність між собою параметрів амплітуди (розтягування по енергетичній осі потенціального профілю) та фактора форми потенціалу (кількість потенціальних ям на періоді та просторової асиметрії).

На рис. 1 а зображена частина стаціонарної компоненти $\tilde{u}(x)/u_0$, що визначає форму потенціального профілю, для трьох значень параметра $\alpha = 0.25$ (суцільна

крива), 0.50 (штрихова крива) та 0.75 (штрих-пунктир). У всіх кривих величина абсолютних екстремумів дорівнює 0.5 (що в сумі дає одиничну амплітуду компоненти $\tilde{u}(x)/u_0$), але різні положення бар'єрів та ям і різні коефіцієнти асиметрії ($\lambda = 0.38, 0.33, 0.31$ відповідають значенням $\alpha = 0.25, 0.50, 0.75$). До того ж, штрихова крива ($\alpha = 0.50$) містить додаткову точку перегину на половині періоду порівняно із суцільною кривою ($\alpha = 0.25$), а штрих-пунктирна крива ($\alpha = 0.75$) – додаткові локальні максимум і мінімум (див. рис. 1 а). Подальші обчислення характеристик мотора проводитимуться для цих трьох значень коефіцієнта α , що дозволить розглянути як вплив фактору різної асиметрії λ , так і появи додаткової потенціальної ями на просторовому періоді.

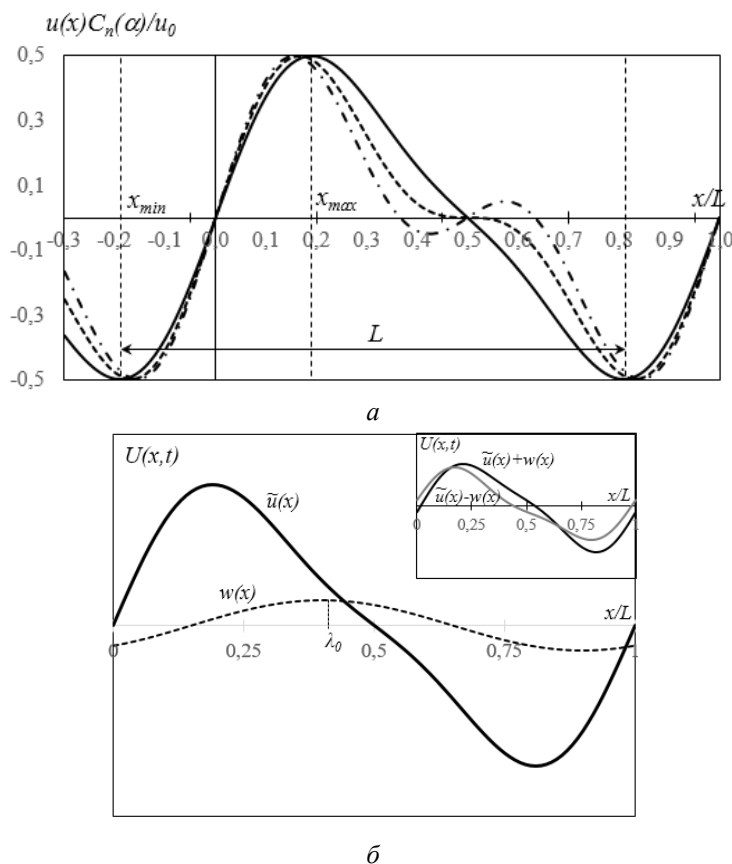


Рис. 1. а – нормована стаціонарна складова потенціального профілю (9), що визначає форму потенціального профілю, розрахована для трьох значень параметра $\alpha = 0.25$ (суцільні криві), 0.50 (штрихові криві) і 0.75 (штрих-пунктир); б – вклади модельних потенціалів $U(x,t)$, що включають стаціонарний рельєф $\tilde{u}(x)$ (суцільна крива) і флуктуючу малу складову $w(x)$ (штрихова крива), яка характеризується фазовим зсувом λ_0 (співвідношення (9) і (11)). На вкладці вгорі праворуч представлені результуючі потенціали двох станів $\tilde{u}(x) + w(x)$ та $\tilde{u}(x) - w(x)$ (чорна і сіра криві, відповідно)

Як малу флюктууючу складову потенціалу $U(x,t)$ будемо використовувати гармонійний сигнал $w(x)$ з амплітудою w і фазовим зсувом λ_0 [19]:

$$w(x) = w \cos[2\pi(x/L - \lambda_0)]; \quad (11)$$

такого виду збурення може створюватися штучно і використовуватися як зовнішній вплив на систему для штучно створюваних неорганічних ретчетів. Таким чином, рух броунівської частинки буде розглядатися в полі дії складного потенціалу $U(x,t)$, що представляє собою два стани $\tilde{w}(x) + w(x)$ і $\tilde{w}(x) - w(x)$, які стохастично (випадково) переключаються між собою з частотою γ (рис. 1 б).

Фур'є-компоненти функцій $\tilde{w}(x)$ (9) і $w(x)$ (11) задаються наступними виразами:

$$\tilde{w}_p = \frac{u_0 C_n(\alpha)}{2} [\mp i \delta_{p,\pm 1} \mp i \alpha \delta_{p,\pm 1}],$$

$$w_p = \frac{w}{2} [e^{2\pi i \lambda_0} \delta_{p,-1} + e^{-2\pi i \lambda_0} \delta_{p,1}]. \quad (12)$$

Оскільки Фур'є-компонента гармонійного сигналу $w(x)$ містить δ -символи Кронекера, формула (6) для шуканого потоку частинок J спрощується до подвійного підсумовування [19]:

$$J = -i(\pi \beta D w)^2 \sum_{pp'} k_{p'} S_{pp'} [q_{-p+1} Z_{p'}^{(+)} + q_{-p-1} Z_{p'}^{(-)}],$$

$$Z_{p'}^{(\pm)} = e^{\pm 4\pi i \lambda_0} \rho_{p'\pm 1}^{(0)} - \rho_{p'\mp 1}^{(0)}. \quad (13)$$

У цих виразах матричні елементи $S_{pp'}$ знаходяться розв'язком рівняння (7), а Фур'є-компоненти q_p і $\rho_p^{(0)}$ отримуються чисельним інтегруванням виразу $f_p = \frac{1}{L} \int_0^L f(x) e^{-ik_p x} dx$ (де $f(x)$ – будь-яка з цих функцій).

Наведена розрахункова процедура справедлива для довільних значень амплітуди стаціонарного потенціалу u_0 та малих значень амплітуди флюктууючої складової $w/u_0 \ll 1$. У випадку, коли виконується нерівність $u_0/(k_B T) \ll 1$, можна користуватися відомим аналітичним представленням для потоку частинок у високотемпературному наближенні [19, 20]:

$$J/J_0 = -4\pi^3 L \beta^2 u_0^2 \alpha \cos[4\pi \lambda_0] f_1(\gamma L^2/D),$$

$$J_0 = (\beta D w^2)/(u_0 L^2), \quad f_1(z) = \frac{z}{(4\pi^2 + z)^2}. \quad (14)$$

ОСНОВНІ РЕЗУЛЬТАТИ ЧИСЕЛЬНИХ РОЗРАХУНКІВ СЕРЕДНЬОЇ ШВИДКОСТІ МОТОРА

Як універсальні параметри, що визначають величину і напрямок ретчет-ефекту, можна виділити параметр βu_0 , що характеризує співвідношення між амплітудою стаціонарної складової потенціалу і тепловою енергією, і параметр $\gamma L^2/D$, що задає відношення частоти зміни станів потенціалу $U(x,t)$ до часу дифузії наночастинки $\tau_D = L^2/D$ на відстань просторового періоду. Після конкретизації виду модельних потенціалів в даній задачі до перерахованих універсальних додаються ще два параметри: коефіцієнт α , що відповідає за асиметрію і кількість потенціальних ям стаціонарної компоненти потенціалу, і параметр фазового зсуву між профілями $\tilde{w}(x)$ і $w(x)$ (див. рис. 1 б). Амплітуда флюктууючої складової w – мала величина (оскільки наближення малих флюктуацій справедливо лише за виконання $w/u_0 \ll 1$), і як співмножник входить лише в розмірний множник J_0 , тому як незалежний параметр у даній задачі не розглядається.

Рис. 2 демонструє загальні характеристичні залежності направленої потоку частинок, що виникає, від основних параметрів системи. Усі три графіки рис. 2 розраховувалися для трьох значень параметра $\alpha = 0.25$ (суцільні лінії), 0.50 (штрихові лінії) та 0.75 (штрих-пунктир) (відповідні їм потенціальні профілі показані на рис. 1 а). Рис. 2 а визначає залежності потоку від температурного параметра βu_0 при фіксованих значеннях $\gamma L^2/D = 39.81$ і $\lambda_0 = 0.133$. Область малих значень параметра βu_0 (область високих температур) з додатковими залежностями, що відповідають високотемпературному наближенню (14), у більшому масштабі подана на вкладці зверху праворуч, і демонструє відповідність розрахункових залежностей потоку (чорні криві) аналітичним співвідношенням (14) (сірі криві). На рис. 2 б показано залежності потоку від частотного параметра $\gamma L^2/D$ при фіксованих $\beta u_0 = 2$ та

$\lambda_0 = 0.127$. На обох рис. 2 *a, б* наявні області різного знаку потоку, що свідчать про зміну напрямку руху мотора, а нулі функцій, відповідно, задають координати точок зупинки мотора. На рис. 2 *в* зображено залежності потоку від фазового зсуву λ_0 при фіксованих значеннях $\beta u_0 = 5$ та $\gamma L^2/D = 39.81$. Очевидно, що криві періодичні та знакозмінні, можливість керування напрямком потоків шляхом зміни величини фазового зсуву була

показана ще в рамках високотемпературного наближення [20, 21]. Даний рисунок побудовано для достатньо великого значення температурного параметра $\beta u_0 = 5$, що відповідає низькій температурі, на ньому добре видно зсув кривих в від'ємну область значень потоку, що вказує на можливу температурно-частотну залежність точок зупинки мотора.

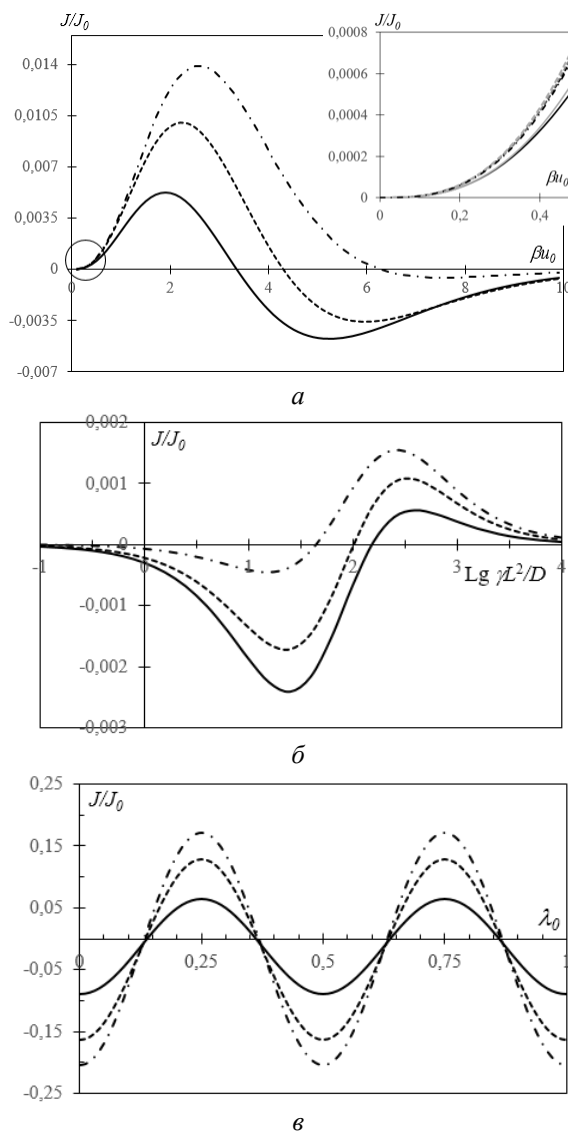


Рис. 2. Залежності потоку J/J_0 ($J_0 = (\beta D w^2)/(u_0 L^2)$) від основних параметрів моделі. Усі три графіки побудовано для фіксованих значень параметра $\alpha = 0.25$ (суцільні криві), 0.50 (штрихові криві) та 0.75 (штрих-пунктир). *a* – залежність потоку від безрозмірного температурного параметра βu_0 при фіксованих значеннях $\gamma L^2/D = 10^{1.6} = 39.81$ та $\lambda_0 = 0.133$. На вкладці вгорі праворуч у збільшеному масштабі показано високотемпературну область і додано аналітичні асимптотичні залежності (14) (сірі криві з тим же штрихуванням для різних значень α). *б* – залежність потоку від частотного параметра $\gamma L^2/D$ при фіксованих значеннях $\beta u_0 = 2$ та $\lambda_0 = 0.127$. *в* – залежність потоку від фазового зсуву λ_0 при фіксованих значеннях $\beta u_0 = 5$ та $\gamma L^2/D = 39.81$

На рис. 3 наведено ряд графіків, що характеризують залежність роботи мотора від параметра α . Рис. 3 *а* демонструє поведінку потоку залежно від форми стаціонарного потенціалу при різних значеннях температурного параметра. Для цього для фіксованих значень βu_0 (ці значення вказані на кривих) було розраховано набір залежностей потоків J/J_{\max} , кожна з яких нормована на максимальне значення потоку при заданому βu_0 . Абсолютні значення потоку в залежності від температурного параметра наведено на рис. 3 *б* (що дозволяє оцінити діапазон температур, який визначає найбільш ефективну роботу мотора, що відповідає генерації найбільших швидкостей руху наночастинок), а положення максимумів α_{\max} та відповідні їм коефіцієнти асиметрії λ_{\max} подано на рис. 3 *в*. Виявляється, що для різних значень βu_0 максимальне значення потоку досягається при різних значеннях коефіцієнта

α : порядку $\alpha \approx 0.5$ для високих температур ($\beta u_0 = 0.1$) та порядку $\alpha \approx 1.4$ за низьких температур ($\beta u_0 = 15$). Значення $\alpha \approx 0.5$ позначено пунктиром на рис. 3 *а* і розділяє області, де стаціонарний профіль містить або одну потенціальну яму, або дві (ліворуч і праворуч щодо пунктирної лінії, відповідно). Відзначимо, що для високих температур (для малих значень βu_0) потік досягає максимального значення для одноямного потенціалу $\tilde{u}(x)$, а при виході з високо-температурної області та подальшому збільшенні βu_0 (зменшенні температури) максимум зсувається вправо і, відповідно, все більшого впливу набуває поява додаткової потенціальної ями. При цьому коефіцієнт асиметрії, при якому досягається максимальний потік, майже не змінюється (див. пунктирну криву на рис. 3 *в*).

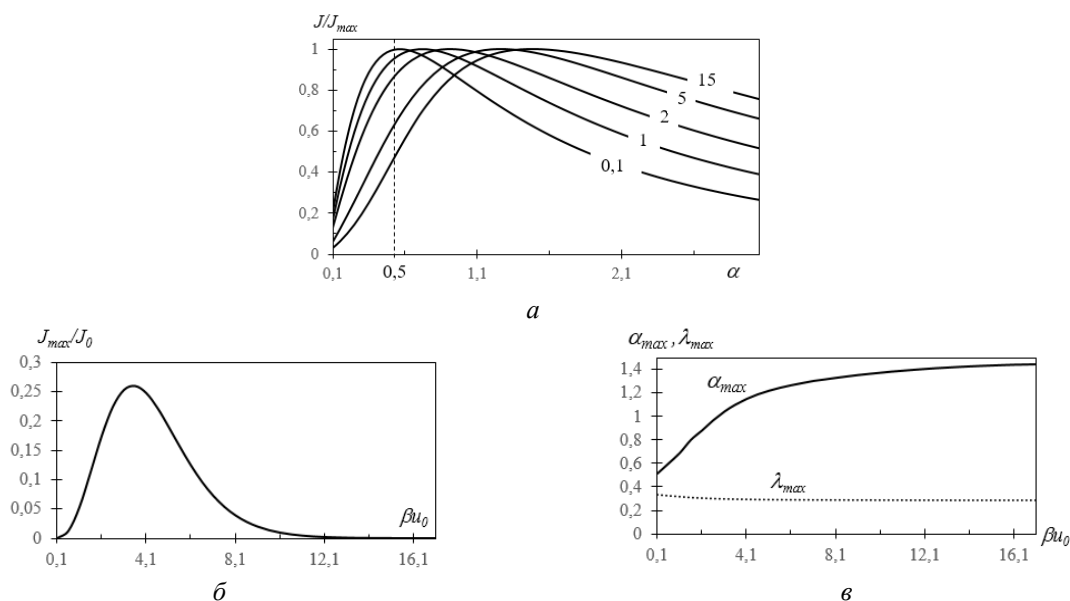


Рис. 3. *а* – Залежність нормованих потоків J/J_0 від коефіцієнта α для фіксованих значень βu_0 (вказані на кривих). Абсолютні значення потоку в залежності від βu_0 подані на рис. *б* – а положення максимумів α_{\max} та відповідні їм коефіцієнти асиметрії λ_{\max} наведені на рис. *в* – усі три графіки розраховані при фіксованих значеннях параметрів $\gamma L^2/D = 39.81$ та $\lambda_0 = 0.25$

Співвідношення параметрів, що забезпечують виникнення ретчет-ефекту у певному напрямку (тобто потоку певного знаку) можна визначити з діаграм точок зупинки мотора відносно змінних βu_0 та λ_0 (рис. 4). Рис. 4 *а*, *б* і *в* розраховані для трьох значень коефіцієнта $\alpha = 0.25$, 0.50 і 0.75 ,

відповідно; на всіх графіках суцільні лінії відповідають фіксованому значенню частотного параметра $\gamma L^2/D = 0.1$, дрібні штрихові – $\gamma L^2/D = 60$, і $\gamma L^2/D = 1000$ – великі штрихові. Для низьких та середніх частот переключення станів потенціалу (суцільні та дрібні штрихові лінії) із збільшенням

параметра βu_0 спостерігається поступове зменшення області додатніх потоків, що демонструє можливість температурно-частотного керування роботою броунівського мотора. Для високих частот (великі штрихові криві) положення точок зупинки не змінюються зі зміною βu_0 . Найбільшою

чутливістю до такого типу керування вирізняється мотор із меншим значенням коефіцієнта $\alpha = 0.25$ (рис. 4 а), при збільшенні α така чутливість зменшується (рис. 4 б), і для $\alpha = 0.75$ залежність розташування точок зупинки від частоти та температури практично зникає (рис. 4 в).

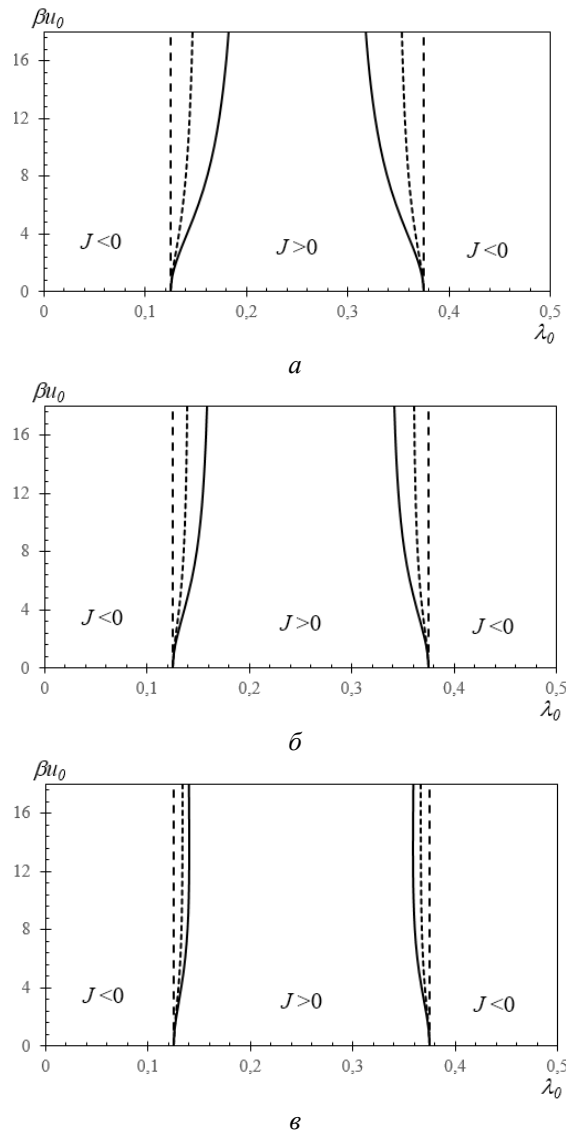


Рис. 4. Діаграми розташування точок зупинки мотора відносно параметрів βu_0 і λ_0 для трьох значень коефіцієнта $\alpha = 0.25, 0.50$ і 0.75 (а, б і в відповідно). На всіх трьох графіках суцільні лінії відповідають значенню частотного параметра $\gamma L^2/D = 0.1$, дрібні штрихові – $\gamma L^2/D = 60$, і великі штрихові – $\gamma L^2/D = 1000$

АНАЛІЗ ТА ОБГОВОРЕННЯ РЕЗУЛЬТАТІВ

У даній роботі в рамках наближення малих флуктуацій [14, 17] досліджується модель броунівського ретчета, в якій рух частинок відбувається в полі дії стаціонарного

подвійного синусоїдального потенціалу та малої гармонійної збурюючої складової. Подібна задача розглядалася раніше [19] для моделі пульсуючого мотора зі стаціонарним пилоподібним потенціалом, де була показана можливість керування мотором шляхом зміни

співвідношення величини потенціального бар'єру та теплової енергії, а також частоти флуктуацій. Основне питання, яке розглядалося в даній роботі, – чи буде зберігатися можливість температурно-частотного керування мотором при переході від кусково-лінійних потенціалів до плавних, більш характерних для реальних асиметричних субстратів, але які мають менш виражену просторову асиметрію і більше варіювання форми. Додатковою складністю даної задачі став зв'язок між коефіцієнтом асиметрії стаціонарного потенціалу, кількістю ям на просторовому періоді та висотою потенціального бар'єру (що еквівалентно температурному параметру). Для розділення цих факторів було застосовано новий метод параметризації подвійного синусоїдального потенціалу, який дозволив виділити фактор форми потенціалу та зробити його незалежним від амплітуди.

Чисельна процедура розрахунку середньої швидкості направленої руху частинок, розроблена в попередніх роботах [14, 17, 19], була адаптована для обраних модельних потенціалів. Дослідження згенерованого ретчет-ефекту проводилося декількома етапами. Було виділено чотири незалежні параметри, що відповідають за основні фактори, які впливають на виникнення направлених потоків. Для кожного ізольованого фактору при фіксованих інших були отримані чисельні залежності, що дають загальне розуміння про закономірності руху, що генерується (рис. 2). Далі досліджувався комплексний вплив параметра, що відповідає за фактор форми стаціонарного потенціалу – просторову асиметрію та кількість потенціальних ям (рис. 3). Було показано, що

в області високих температур потік досягає максимальних значень у тому випадку, коли стаціонарний потенціал містить тільки одну потенціальну яму і з достатньою точністю може бути апроксимованим пилоподібним потенціалом [13], а при зменшенні температур положення максимумів потоків зміщуються, і для генерації максимальних потоків необхідною є поява додаткової потенціальної ями, причому чим нижча температура, тим більш вираженою є дана тенденція.

На заключному етапі розглядалась можливість керування ретчет-ефектом і було показано, що напрямок згенерованого потоку наночастинок залежить не тільки від фазового зсуву між стаціонарною і флуктуаційною складовими потенціалу, але і від температури системи і частоти флуктуацій. Таким чином, як і у випадку моделі з пилоподібним потенціалом [19], для подвійного синусоїдального стаціонарного потенціалу напрямом руху мотора, крім зміни фазового зсуву між складовими, можна керувати зміною температурного та частотного параметрів. Найбільш чутливими до такого керування будуть моделі з невисокою частотою флуктуацій, у яких стаціонарний потенціальний профіль містить одну потенціальну яму на просторовому періоді.

Проведені дослідження мають фундаментальний характер і можуть бути використані при розрахунках напрямку руху наночастинок при ініціюванні ретчет-ефекту в системах, для яких властиві періодичні плавні стаціонарні потенціали, наприклад, при моделюванні флуктуаційного руху вздовж дипольних ланцюжків чи волокон цитоскелета [1–3, 13].

Pulsating brownian motor with smooth modeling potentials in the framework of small fluctuation approximation

T.Ye. Korochkova

Chuiiko Institute of Surface Chemistry of National Academy of Sciences of Ukraine
17 General Naumova Str., Kyiv, 03164, Ukraine, tais.crust@gmail.com

Brownian motors belong to the class of nanoscale devices that use the thermal noise of the environment as one of the necessary components in the mechanism of their operation. Today, there are a lot of practical implementations of such nanomachines, both inorganic, fairly simple mechanisms produced artificially, and more complex ones created from separate biological components available at the cellular level. One of the options for implementing the mechanism of straightening the chaotic thermal noise of the environment into unidirectional motion is the presence of a motor particle in the field of action of an asymmetric periodic stationary potential, which undergoes certain small disturbances (fluctuations) periodically over time. To describe such asymmetric one-dimensional structures (for example, dipole chains or fibers of the cytoskeleton) in the theory of Brownian motors, two model potentials are most often used: piecewise linear sawtooth and double sinusoidal. In this work, within the framework of the approximation of small fluctuations, a model of a pulsating Brownian motor with a stationary double sinusoidal potential and a disturbing small harmonic signal is considered. A new method of parametrization of such a problem is proposed, which allows to separate the contributions from various factors affecting the operation of the ratchet, and the numerical procedure for calculating the average speed of the directional movement of nanoparticles for the selected type of model potentials is specified. A number of numerical dependences of the average speed on the main parameters of the system were obtained. Peculiarities of the behavior of the motor as dependent on the parameter responsible for asymmetry and the number of potential wells on the spatial period of the stationary potential have been investigated. It is shown that the direction of the generated flux of nanoparticles depends not only on the phase shift between the stationary and fluctuating components of the potential, but also on the temperature of the system and the frequency of fluctuations, i.e., a possibility of temperature-frequency control of the direction of movement in the considered model has been found. Diagrams have been constructed that allow you to choose the ratio between the parameters of the nanomotor to create a flux of particles in the desired direction.

Keywords: Brownian motors, nanoscale mechanisms, diffusion transport, ratchet effect, directed motion of nanoparticles, modeling potentials in the theory of Brownian motors, temperature-frequency control

ЛІТЕРАТУРА

1. Hänggi P., Marchesoni F. Artificial Brownian motors: Controlling transport on the nanoscale // *Rev. Mod. Phys.* – 2009. – V. 81. – P. 387–442.
2. Reimann P. Brownian Motors: Noisy Transport far from Equilibrium // *Phys. Rep.* – 2002. – V. 361, N 2–4. – P. 57–265.
3. Cubero D., Renzoni F. Brownian Ratchets: From Statistical Physics to Bio and Nanomotors. – Cambridge, UK: Cambridge University Press, 2016. – 200 p.
4. Feynman R.P. There's Plenty of Room at the Bottom // *Eng. Sci.* – 1960. – V. 23, N 5. – P. 22–36.
5. Gross M. Travels to the Nanoworld. – Perseus, New York. – 1999. – 299 p.
6. Drexler K.E. Nanosystems: Molecular Machinery, Manufacturing and Computation. – N.Y.: Wiley. – 1992. – 576 p.
7. Kottas G.S., Clarke L.I., Horinek D., Michl J. Artificial molecular motors // *Chem. Rev. Washington, D.C.*, 2005. – V. 105. – P. 1281–1376.
8. Balzani V., Credi A., Silvi S., Venturi M. Artificial nanomachines based on interlocked molecular species: Recent advances // *Chem. Soc. Rev.* – 2006. – V. 35, N 11. – P. 1135–1149.
9. Kay E.R., Leigh D.A., Zerbetto F. Synthetic Molecular Motors and Mechanical Machines // *Angew. Chem.* – 2007. – V. 46, N 1–2. – P. 72–191.
10. Lau B., Kedem O., Schwabacher J., Kwasnieski D., Weiss E.A. An introduction to ratchets in chemistry and biology // *Mater. Horiz.* – 2017 – V. 4, N 3. – P. 310–318.
11. Astumian R.D., Hänggi P. Brownian motors // *Phys. Today.* – 2002. – V. 55, N 11. – P. 33–39.
12. Hänggi P., Marchesoni F., Nori F. Brownian motors // *Ann. Phys.* – 2005. – V. 14. – P. 51–70.
13. Корочкова Т.Е., Розенбаум В.М., Шапочкина И.В. Модельный пилообразный потенциал в теории броуновских моторов // *Поверхность.* – 2015. – Вып. 7(22). – С. 12–23.
14. Розенбаум В.М., Шапочкина И.В., Трахтенберг Л.И. Метод функций Грина в теории броуновских моторов // *Успехи физ. наук.* – 2019. – Т. 189, № 5. – С. 529–543.

15. Ajdari A., Prost J. Drift induced by a spatially periodic potential of low symmetry - Pulsated dielectrophoresis // *C.R. Acad. Sci., Ser. II: Mec., Phys., Chim., Sci. TerreUnivers.* – 1992. – V. 315, N 13. – P. 1635–1639.
16. Bartussek R., Hänggi P., Kissner J.G. Periodically rocked thermal ratchets // *Europhys. Lett.* – 1994. – V. 28, N 7. – P. 459–464.
17. Rozenbaum V.M., Shapochkina I.V., Lin S.H., Trakhtenberg L.I. Theory of Slightly Fluctuating Ratchets // *JETP Lett.* – 2017. – V. 105, N 8. – P. 542–547.
18. Высоцкая В.А., Шапочкина И.В., Корочкова Т.Е., Розенбаум В.М. Стохастические броуновские моторы с малыми флуктуациями потенциальной энергии // *Хімія, фізика та технологія поверхні.* – 2017. – Т. 8, № 3. – С. 299–309.
19. Shapochkina I.V., Korochkova T.Ye., Rozenbaum V.M., Bugaev A.S. Temperature-Frequency Controlling the Characteristics of a Pulsating Brownian Ratchet with Slightly Fluctuating Potential Energy // *Nonlinear Phenomena in Complex Systems.* – 2021. – V. 24, N 1. – P. 71 – 83.
20. Rozenbaum V.M., Shapochkina I.V., Teranishi Y., Trakhtenberg L.I. High-temperature ratchets driven by deterministic and stochastic fluctuations // *Phys. Rev. E.* – 2019. – V. 99, N 1. – P. 012103–1–10.
21. Rozenbaum V.M., Shapochkina I.V., Sheu S.-Y., Yang D.-Y., Lin S.H. High-temperature ratchets with sawtooth potentials // *Phys. Rev. E.* – 2016. – V. 94. – P. 052140-1–052140-8.

REFERENCES

1. Hänggi P., Marchesoni F. Artificial Brownian motors: Controlling transport on the nanoscale. *Rev. Mod. Phys.* 2009. **81**: 387.
2. Reimann P. Brownian Motors: Noisy Transport far from Equilibrium. *Phys. Rep.* 2002. **361**(2–4): 57.
3. Cubero D., Renzoni F. *Brownian Ratchets: From Statistical Physics to Bio and Nanomotors.* (Cambridge, UK: Cambridge University Press, 2016).
4. Feynman R.P. There's Plenty of Room at the Bottom. *Eng. Sci.* 1960. **23**(5): 22.
5. Gross M. *Travels to the Nanoworld.* (New York: Perseus, 1999).
6. Drexler K.E. *Nanosystems: Molecular Machinery, Manufacturing and Computation.* (N.Y.: Wiley, 1992).
7. Kottas G.S., Clarke L.I., Horinek D., Michl J. Artificial molecular motors. *Chem. Rev. Washington, D.C.* 2005. **105**: 1281.
8. Balzani V., Credi A., Silvi S., Venturi M. Artificial nanomachines based on interlocked molecular species: Recent advances. *Chem. Soc. Rev.* 2006. **35**(11): 1135.
9. Kay E.R., Leigh D.A., Zerbetto F. Synthetic Molecular Motors and Mechanical Machines. *Angew. Chem.* 2007. **46**(1–2): 72.
10. Lau B., Kedem O., Schwabacher J., Kwasnieski D., Weiss E.A. An introduction to ratchets in chemistry and biology. *Mater. Horiz.* 2017. **4**(3): 310.
11. Astumian, R. D., Hänggi P., Brownian motors. *Phys. Today.* 2002. **55** (11):33.
12. Hänggi, P., Marchesoni F., Nori F., Brownian motors. *Ann. Phys.* 2005. **14**: 51.
13. Korochkova T.Ye., Rozenbaum V.M., Shapochkina I.V. Sawtooth potential model in the theory of a brownian motors. *Surface.* 2015. **7**(22): 12. [in Russian].
14. Rozenbaum V.M., Shapochkina I.V., Trakhtenberg L.I. Green's function method in the theory of Brownian motors. *Physics-Uspokhi.* 2019. **62**(5): 496.
15. Ajdari A., Prost J. Drift induced by a spatially periodic potential of low symmetry - Pulsated dielectrophoresis. *C.R. Acad. Sci., Ser. II: Mec., Phys., Chim., Sci. TerreUnivers.* 1992. **315**(13): 1635.
16. Bartussek R., Hänggi P., Kissner J.G. Periodically rocked thermal ratchets. *Europhys. Lett.* 1994. **28**(7): 459.
17. Rozenbaum V.M., Shapochkina I.V., Lin S.H., Trakhtenberg L.I. Theory of Slightly Fluctuating Ratchets. *JETP Lett.* 2017. **105**(8): 542.
18. Vysotskaya U.A., Shapochkina I.V., Korochkova T.Ye., Rozenbaum V.M. Stochastic Brownian motors with small potential energy fluctuations. *Him. Fiz. Tehnol. Poverhni.* 2017. **8**(3): 299. [in Russian].
19. Shapochkina I.V., Korochkova T.Ye., Rozenbaum V.M., Bugaev A.S. Temperature-Frequency Controlling the Characteristics of a Pulsating Brownian Ratchet with Slightly Fluctuating Potential Energy. *Nonlinear Phenomena in Complex Systems.* 2021. **24**(1): 71.
20. Rozenbaum V.M., Shapochkina I.V., Teranishi Y., Trakhtenberg L.I. High-temperature ratchets driven by deterministic and stochastic fluctuations *Phys. Rev. E.* 2019. **99**(1): 012103-1-10.
21. Rozenbaum V.M., Shapochkina I.V., Sheu S.-Y., Yang D.-Y., Lin S.H. High-temperature ratchets with sawtooth potentials. *Phys. Rev. E.* 2016. **94**: 052140-1–052140-8.

Надійшла 15.04.2023, прийнята 27.05.2024