

*Н. Ю. ШВЕД, И. В. ШАПОЧКИНА, В. М. РОЗЕНБАУМ*

## **ТЕМПЕРАТУРНОЕ ОБРАЩЕНИЕ ДВИЖЕНИЯ АДИАБАТИЧЕСКОГО БРОУНОВСКОГО МОТОРА**

Рассмотрено движение броуновской частицы, возникающее при циклическом включении и выключении пространственно-периодического асимметричного потенциала (on-off ratchet) с периодом цикла, превышающим время релаксации. Выведены расчетные формулы, позволяющие находить среднюю скорость частицы при произвольной форме потенциального профиля. С целью демонстрации принципиальной возможности обращения направления движения частицы с изменением температуры рассмотрен двухъямный потенциальный рельеф в низкотемпературном приближении и высокотемпературное феноменологическое разложение средней скорости по обратной температуре. Проведенное рассмотрение обобщает широко цитируемый принцип работы он-офф рэтчета (R. D. Astumian, 1997), в котором наличие единственного минимума на периоде потенциала простой формы обеспечивало движение в сторону ближайшего барьера. Это обобщение состоит в том, что потенциалы сложной формы с несколькими минимумами на периоде потенциала при определенных условиях могут обеспечить новое нетривиальное свойство адиабатического броуновского мотора – возможность обращения направления движения путем изменения температуры. Детальный анализ эффекта, не ограничивающий диапазон используемых температур, проведен для антисимметричного потенциала, представляющего собой сумму первых трех фурье-гармоник. Найдены условия, накладываемые на экстремумы периодического потенциала сложной формы, при которых становится возможным обращение направления движения.

**Ключевые слова:** броуновские моторы; рэтчеты; адиабатически быстрые и адиабатически медленные процессы; флуктуации потенциала; диффузионная динамика.

We consider the motion of a Brownian particle that occurs when a spatially periodic asymmetric potential is cyclically switched on and off (on-off ratchet) with the cycle period longer than the relaxation time. Analytical expressions are derived which allow one to find the average particle velocity in a potential profile of an arbitrary shape. To demonstrate the possibility in principle of temperature-governed reversal of the particle motion direction, a two-well potential profile in the low temperature approximation and a high-temperature phenomenological expansion of the average particle velocity in terms of inverse temperature are considered. The analysis developed generalizes the widely cited working principle of the on-off ratchet [R.D. Astumian, Science 276, 917 (1997)] in which the existence of the unique minimum on a period of the potential of a simple form provides propulsion to the nearest barrier. The generalization is that potentials of complex shape with several minima on the potential period can provide, under the certain conditions, a new nontrivial property of an adiabatic Brownian motor, namely, its ability to reverse the direction of motion by temperature variation. The effect is analyzed in details, without any limitation on the temperature range, for an antisymmetric potential representing by the sum of the first three Fourier harmonics. The conditions imposed on extrema of a periodic potential of complex shape are found in which motion reversal is possible.

**Key words:** Brownian motors; ratchets; adiabatically fast and adiabatically slow processes; time dependent potential; diffusion dynamics.

Броуновские моторы моделируют процессы возникновения направленного движения наночастиц в отсутствие средних приложенных сил и градиентов концентраций, которые обусловлены неравновесными воздействиями различной природы. Эти воздействия описываются стохастической или детерминистической зависимостью потенциальной энергии частицы от времени, возникающей за счет изменения параметров самой частицы (конформационного состояния, заряда, мультипольных моментов) или внешних сил с нулевым средним значением [1, 2]. Простейший случай флуктуаций потенциальной энергии, допускающий аналитическое описание, состоит в рассмотрении адиабатического дихотомного процесса мгновенных переключений между двумя долго живущими состояниями с различными потенциальными рельефами. Броуновский мотор, функционирующий в таком режиме флуктуаций потенциальной энергии, относится к одной из разновидностей адиабатических броуновских моторов [3]. Поскольку в адиабатическом приближении стирается различие между стохастическим и детерминистическим переключением потенциальных рельефов [4], то флуктуационный процесс можно считать периодическим с большим периодом  $\tau$  цикла переключения потенциалов, превышающим время релаксации.

Большинство основополагающих результатов, проясняющих принципы работы броуновских моторов, было получено для асимметричных периодических потенциальных рельефов наиболее простой формы, а именно для пилообразного потенциала, допускающего аналитическое вычисление интегралов от больцмановских (и им подобных) функций распределения, или для потенциала, представленного суммой двух синусоид (двух первых гармоник), – сглаженного аналога пилообразного потенциала [1, 2, 5, 6]. В данной статье рассматриваются потенциалы сложной формы с несколькими минимумами на периоде потенциала, которые обеспечивают новое нетривиальное свойство адиабатического броуновского мотора – возможность обращения направления движения путем изменения температуры. Такое свойство было известно только для специфических режимов работы неадиабатических моторов с простыми потенциальными профилями [6].

Рассмотрим движение броуновской частицы в двух циклически переключающихся долгоживущих состояниях с периодическими потенциальными рельефами  $V_a(x)$  и  $V_b(x)$ . Согласно лемме Паррондо [7] средняя скорость частицы  $\langle v \rangle$  определяется суммой потоков  $J_a(x, t)$  и  $J_b(x, t)$  через произвольное поперечное сечение  $x = x_0$ , проинтегрированных по времени жизни каждого состояния:

$$\langle v \rangle = \frac{L}{\tau} [\Phi_{a \rightarrow b}(x_0) + \Phi_{b \rightarrow a}(x_0)], \quad \Phi_{a \rightarrow b}(x_0) \equiv \int_0^{\tau_b} dt J_b(x_0, t);$$

$$\Phi_{a \rightarrow b}(x_0) = \int_0^L dx \rho_+[V_b(x)] \int_{x_0}^x dy \{ \rho_- [V_b(y)] - \rho_- [V_a(y)] \}; \tag{1}$$

$$\rho_{\pm} [V(x)] = \frac{\exp[\pm \beta V(x)]}{\int_0^L dx \exp[\pm \beta V(x)]}, \quad \beta = (k_B T)^{-1},$$

где  $L$  – пространственный период потенциальных профилей;  $\tau = \tau_a + \tau_b$  – временной период цикла, складывающегося из состояний с временами жизни  $\tau_a$  и  $\tau_b$ ;  $k_B$  – постоянная Больцмана;  $T$  – абсолютная температура. Времена жизни  $\tau_a$  и  $\tau_b$  считаются настолько большими, что к моменту переключения потенциалов функции распределения становятся равновесными,  $\rho_- [V_a(x)]$  и  $\rho_- [V_b(x)]$ . Величина  $\Phi_{a \rightarrow b}(x_0)$  равна доле частиц, пересекающих поперечное сечение  $x_0$  за время жизни  $\tau_b$  состояния  $b$ .

Легко проверить, что сумма величин  $\Phi_{a \rightarrow b}(x_0)$  и  $\Phi_{b \rightarrow a}(x_0)$  не зависит от  $x_0$ , так что средняя скорость не зависит от положения выбранного поперечного сечения и без ограничения общности можно полагать  $x_0 = 0$ .

Рассмотрим случай циклических включений (on) и выключений (off) асимметричного периодического потенциального профиля  $V(x)$  (так называемый on-off ratchet). Тогда  $V_a(x) = V(x)$ ,  $V_b(x) = 0$ ,  $\rho_{\pm}[V_b(x)] = L^{-1}$  и величина  $\Phi_{b \rightarrow a}(0) = \Phi_{\text{off} \rightarrow \text{on}}$  запишется в виде

$$\Phi_{\text{off} \rightarrow \text{on}} = \int_0^L dx \rho_+[V(x)] \int_0^x dy \{ \rho_-[V(y)] - L^{-1} \}. \quad (2)$$

Величина  $\Phi_{a \rightarrow b}(0) = \Phi_{\text{on} \rightarrow \text{off}}$  может быть преобразована к простому виду

$$\Phi_{\text{on} \rightarrow \text{off}} = \frac{\langle x \rangle}{L} - \frac{1}{2}, \quad \langle x \rangle = \int_0^L dx x \rho_-[V(x)], \quad (3)$$

путем замены порядка взятия интегралов. Таким образом,  $\Phi_{\text{on} \rightarrow \text{off}}$  определяется положением «центра тяжести» распределения  $\rho_-[V(x)]$  относительно центра периода потенциала.

Соотношения (2) и (3) являются основными расчетными формулами, позволяющими находить среднюю скорость  $\langle v \rangle = (L/\tau)(\Phi_{\text{off} \rightarrow \text{on}} + \Phi_{\text{on} \rightarrow \text{off}})$  при любой форме потенциального профиля  $V(x)$ . Цель данного сообщения – поиск таких потенциальных профилей, которые допускают обращение направления движения броуновской частицы с изменением температуры. Чтобы показать принципиальную возможность такой ситуации, рассмотрим потенциальный профиль, изображенный на рис. 1.

Будем предполагать, что абсолютный максимум функции  $V(x)$  на ее периоде  $x \in [0, L)$  достаточно высок, а температура достаточно мала, чтобы пренебречь потоком частиц через этот максимум и считать  $\Phi_{\text{off} \rightarrow \text{on}} \approx 0$ . Поскольку величина  $\Phi_{\text{off} \rightarrow \text{on}}$  определена при  $x_0 = 0$ , то границы рассматриваемого периода выбираются таким образом, чтобы они проходили через абсолютные максимумы функции  $V(x)$ . Пусть функция  $V(x)$  имеет абсолютный минимум в точке  $x = x_r$ . В пределе низких температур среднее значение  $\langle x \rangle$  в формуле (3) стремится к  $x_r$ , поэтому при  $x_r > L/2$  получаем, что  $\Phi_{\text{on} \rightarrow \text{off}} > 0$  и средняя скорость положительна. Изменение направления движения с ростом температуры можно ожидать в случае, когда при увеличении температуры «центр тяжести» распределения  $\rho_-[V(x)]$  может сместиться влево от точки  $x = L/2$ . Последнее возможно, если существует локальный минимум функции  $V(x)$  в точке  $x_l < L/2$  (см. рис. 1).

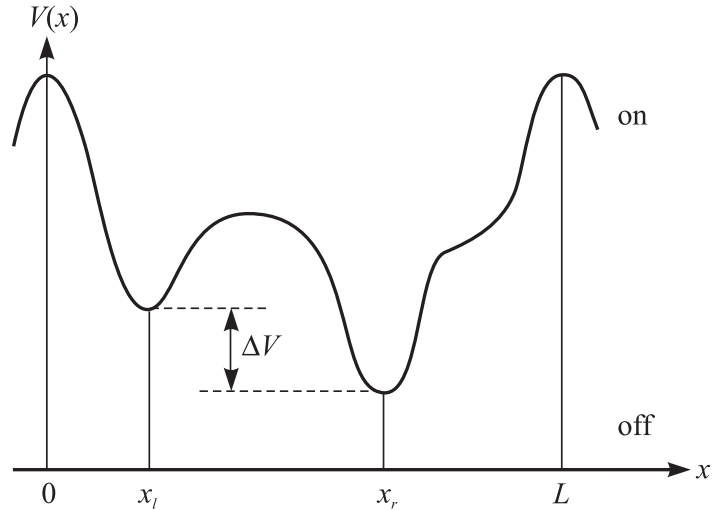


Рис. 1. Схематическое изображение двухъямного потенциального профиля в модели он-офф рэтчета, допускающего обращение направления движения броуновской частицы с изменением температуры

Для оценки температурной зависимости величины  $\Phi_{\text{on} \rightarrow \text{off}}$  используем низкотемпературное приближение, в котором искомые величины могут быть выражены через вероятности заполнения левой  $\rho_l$  и правой  $\rho_r$  потенциальных ям:

$$\rho_{l,r} = \int_{(l,r)} dx \rho_-[V(x)] \propto \exp[-\beta V(x_{l,r})] \quad (4)$$

(пропорциональность  $\rho_{l,r}$  соответствующим больцмановским экспонентам  $\exp[-\beta V(x_{l,r})]$  предполагает одинаковую кривизну левой и правой потенциальных ям вблизи локальных минимумов – одинаковые статистические веса соответствующих состояний). Тогда  $\langle x \rangle = x_l \rho_l + x_r \rho_r$ . Поскольку  $\int_0^L dx \rho_-[V(x)] = 1$ , то  $\rho_l = \exp(-\beta \Delta V) [1 + \exp(-\beta \Delta V)]^{-1}$ ,  $\rho_r = [1 + \exp(-\beta \Delta V)]^{-1}$ , где  $\Delta V = V(x_l) - V(x_r)$ , и для  $\Phi_{\text{on} \rightarrow \text{off}}$  получаем

$$\Phi_{\text{on} \rightarrow \text{off}} = \frac{x_r + x_l \exp(-\beta \Delta V)}{L[1 + \exp(-\beta \Delta V)]} - \frac{1}{2}. \quad (5)$$

Из этого выражения следует, что управление направлением движения путем изменения температуры возможно, когда левый локальный минимум ближе к левому барьеру, чем правый абсолютный минимум к правому барьеру, т. е. когда  $x_l < L - x_r$ . Тогда при  $T < T_s$  броуновская частица движется направо, а при  $T > T_s$  – налево, где

$$T_s = k_B^{-1} \Delta V / \ln[(L/2 - x_l) / (x_r - L/2)] \quad (6)$$

соответствует точке остановки броуновского мотора. Отметим, что проведенное рассмотрение обобщает широко цитируемый принцип работы рэтчета с циклически включающимся и выключающимся пилообразным потенциалом [8], в котором наличие единственного минимума обеспечивало движение по направлению к ближайшему барьеру.

Возможность обращения направления движения может быть показана и в рамках высокотемпературного приближения. Известно, что средняя скорость движения частицы при циклическом включении и выключении потенциала является нечетным функционалом  $V(x)$  [3]. С другой стороны, лидирующий член разложения скорости по обратной температуре пропорционален  $T^{-3}$  [4, 6]. Поэтому справедливо следующее феноменологическое разложение скорости по малому параметру  $\beta V$ :

$$\langle v \rangle = (L/\tau)\Phi, \quad \Phi = A(\beta V)^3 + B(\beta V)^5, \quad (7)$$

где  $V$  – амплитуда изменения  $V(x)$ ;  $A$  и  $B$  – коэффициенты, зависящие от формы потенциального профиля  $V(x)$ . Обращение направления движения происходит при  $\beta_s V = \sqrt{-A/B}$  (называемой точкой остановки мотора), когда знаки коэффициентов  $A$  и  $B$  противоположны.

Приведенный выше анализ двухъямного потенциального рельефа в низкотемпературном приближении и высокотемпературное феноменологическое разложение средней скорости движения частицы по обратной температуре демонстрируют потенциальную возможность существования эффекта зависимости не только величины, но и знака средней скорости броуновского мотора от температуры. Оставаясь в рамках модели он-офф рэтчета, перейдем далее к более общему рассмотрению, не ограничивающему диапазон используемых температур. Пусть  $V(x)$  – функция, задающая плавный пространственно-периодический потенциал сложной формы, содержащий два и более минимума на периоде. Для таких потенциалов вследствие их плавности реальным приближением с достаточной точностью может служить сумма нескольких (наибольших) первых фурье-гармоник. В данной работе мы будем рассматривать антисимметричные потенциалы вида

$$V(x) = V[\sin(2\pi x/L) + A_2 \sin(4\pi x/L) + A_3 \sin(6\pi x/L)], \quad (8)$$

что достаточно для исследования интересующего нас эффекта, поскольку наличие третьей гармоники обеспечивает трехъямную форму потенциала с возможным расположением левого локального минимума ближе к левому барьеру, чем правого абсолютного минимума к правому (чего нельзя достичь, оставляя только две первые гармоники). Отметим, что именно для таких потенциалов в нашей работе [9] был рассчитан коэффициент  $A$  высокотемпературного разложения (7):

$$A = \frac{3}{16\pi} A_2 \left( 1 + \frac{14}{9} A_3 \right), \quad (9)$$

который удобно использовать для выбора тех или иных значений параметров модели. При  $A_2 = 1/4$  и  $A_3 = 0$  имеем стандартный «почти пилообразный» рельеф с одним минимумом на периоде  $L$ .

Применяя алгоритмы приближенного численного вычисления определенных интегралов в выражениях (2) и (3), мы получили зависимости величины  $\Phi$  от параметра  $\beta V$  (безразмерной обратной температуры) для различных значений амплитуды третьей гармоники  $A_3$  при  $A_2 = 1/4$  (рис. 2, а). На рис. 2, б, приведены соответствующие формы потенциальных рельефов, смещенные вдоль оси  $x$  таким образом, чтобы абсолютные максимумы потенциалов находились в точке  $x = 0$ . Рисунки 2, а, и 2, б, демонстрируют основные результаты работы. Обсудим их подробнее. Единственный минимум потенциала (8) при  $A_3 = 0$  (кривая 1 на рис. 2, б) расположен в точке  $x = x_r > L/2$ , что обеспечивает положительное значение (постоянство знака) потока во всей области изменения температур (кривая 1 на рис. 2, а). По мере уменьшения (т. е. увеличения по модулю) параметра  $A_3$  этот минимум остается самым глубоким среди других возникающих минимумов и смещается к центральной точке  $x = L/2$ . Согласно формуле (5) (а также формуле (4) работы [10])  $\Phi \rightarrow x_r / L - 1/2$  при  $\beta V \rightarrow \infty$ . Поэтому значение  $\Phi$

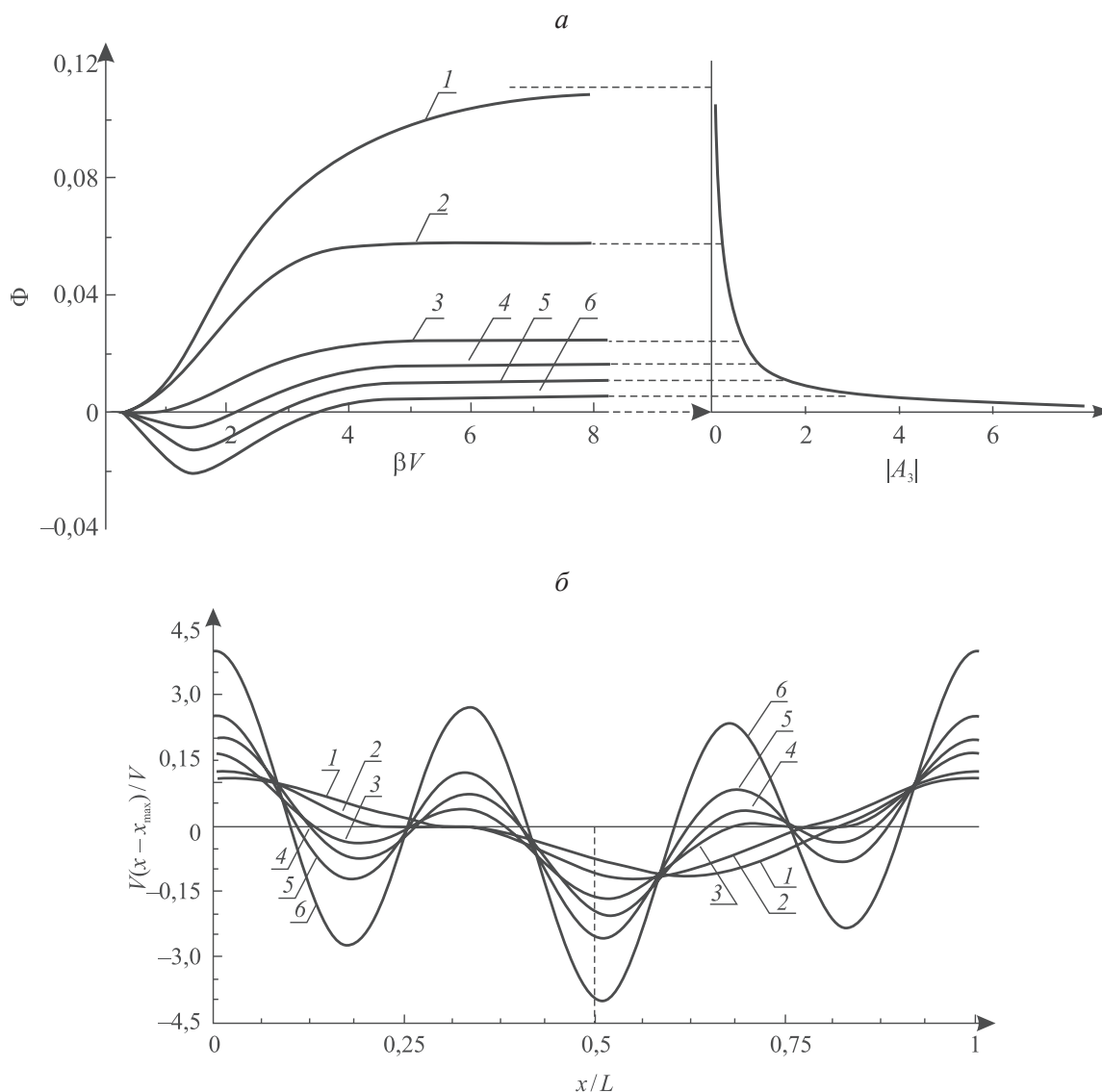


Рис. 2. Зависимость величины потока (а) (определяющего среднюю скорость движения броуновской частицы в модели адиабатического он-офф рэтчета) от безразмерной обратной температуры для различных форм потенциального рельефа (б), задаваемых функцией  $V(x - x_{\max})$ , которая определяется выражением (8) с  $A_2 = 1/4$  и  $A_3 = 0; -0,2; -9/14; -1; -1,5; -3$  (кривые 1-6);  $x_{\max}$  - координаты абсолютных максимумов (зависящих от  $A_2$  и  $A_3$ ).  
 Кривая с маркерами в правой части рисунка (а) иллюстрирует низкотемпературное поведение потока  $\Phi \rightarrow x_c / L - 1/2$

в пределе низких температур всегда положительно и убывает с ростом  $|A_3|$ . Анализ положения этого абсолютного минимума при  $|A_3| \gg 1$  показывает, что  $\Phi \approx (18\pi|A_3|)^{-1}$  в пределе  $\beta V \rightarrow \infty$ .

В высокотемпературной области основной вклад в поведение потока  $\Phi$  вносит его составляющая порядка  $(\beta V)^3$ . Из соотношений (7) и (9) видно, что при  $A_3 > -9/14$  она всегда положительна и исчезает при  $A_3 = -9/14$ , так что поток определяется вкладом  $(\beta V)^5$  более высокого порядка с положительным коэффициентом  $B$  в формуле (7) (ср. ход кривых в области малых  $\beta V$  на рис. 2, а). При  $A_3 < -9/14$  поток  $\Phi$  становится отрицательным в области высоких температур, а обращение направления движения происходит в точке остановки  $\beta_s V \propto \sqrt{-(1+14A_3/9)}$  (рис. 3). Анализ положений трех локальных минимумов при  $|A_3| \gg 1$  показывает, что при  $|A_3| \rightarrow \infty$  температура точки остановки стремится к нулю по закону  $T_s = \left[ \frac{(12 - \sqrt{3})}{8} k_B^{-1} V / \ln(6\pi|A_3|) \right]$ . Это логарифмически медленное убывание температуры точки остановки (возрастание величины  $\beta_s V$  на рис. 3) с изменением параметров потенциального профиля аналогично результату (6) для случая потенциала с двумя локальными минимумами.

Полученные закономерности поведения потока (скорости) в промежуточной области значений температур можно объяснить, проанализировав форму потенциальных профилей (рис. 2, б). Легко показать,

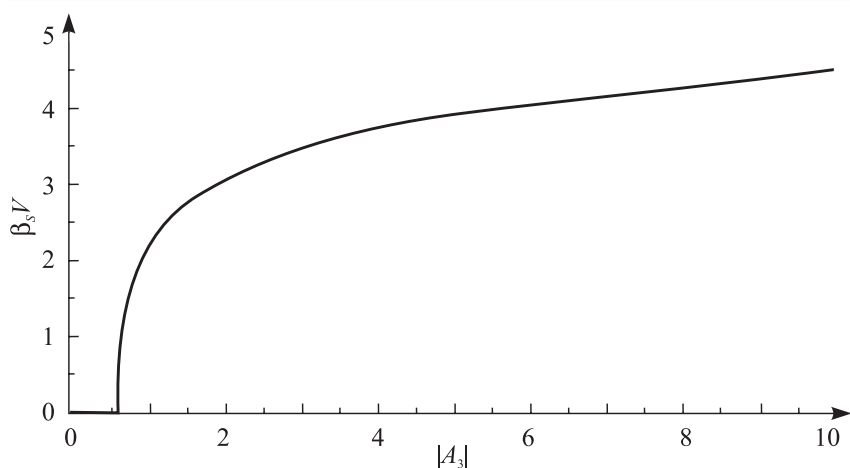


Рис. 3. Зависимость безразмерной обратной температуры, при которой направление движения броуновской частицы обращается, от амплитуды третьей гармоники потенциала (8) с  $A_2 = 1/4$

что трехъямная форма потенциала (8) с  $A_2 = 1/4$  возникает при условии  $A_3 < -1/2$ , так что при  $A_3 < -9/14$  она уже заведомо существует. При этом с уменьшением значения параметра  $A_3$ , кроме отмеченного выше сдвига самого глубокого (центрального) минимума влево, происходит также сдвиг левого и правого локальных минимумов соответственно влево и вправо. Причем левый локальный минимум всегда расположен дальше от левого барьера, чем правый – от правого, но остается более глубоким, чем правый. Таким образом, в среднем диапазоне температур

левый минимум может конкурировать с центральным, влияя тем самым на смещение «центра тяжести» распределения  $\rho_{-}[V(x)]$  влево относительно точки  $L/2$  и, следовательно, на изменение значения потока (скорости) на отрицательное. Поток остается отрицательным при дальнейшем увеличении температуры, поскольку вызванное им усиление роли правого локального минимума недостаточно для того, чтобы «центр тяжести» снова оказался правее точки  $L/2$ . Описанной конкуренцией минимумов объясняется также убывание температуры точки остановки с ростом  $|A_3|$  (см. рис. 3). Можно показать, что в случае произвольных температур и очень больших значений  $|A_3|$  (т. е. при доминировании вклада третьей гармоники) поток  $\Phi$  стремится к нулю вследствие симметричности профиля потенциала.

Итак, рассмотрение процесса циклического включения и выключения потенциала с периодом цикла, превышающим время релаксации, позволило сделать следующий вывод: если потенциал асимметричен и имеет сложную форму с несколькими минимумами на пространственном периоде, то изменение температуры дает возможность управлять направлением движения броуновской частицы. При этом значение температуры обращения направления движения определяется параметрами потенциального рельефа.

Настоящая работа была частично поддержана грантом 3/14-Н «Наномоторы на границе раздела фаз» целевой комплексной программы фундаментальных исследований НАН Украины «Фундаментальные проблемы наноструктурных систем, наноматериалов, нанотехнологий».

#### БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. Reimann P. Brownian motors: noisy transport far from equilibrium // Phys. Rep. 2002. Vol. 361. P. 57–265.
2. Hänggi P., Marchesoni F. Artificial Brownian motors: Controlling transport on the nanoscale // Rev. Mod. Phys. 2009. Vol. 81. P. 387–442.
3. Rozenbaum V. M., Makhnovskii Yu. A., Shapochkina I. V., Sheu S.-Y., Yang D. Y., Lin S. H. Adiabatically slow and adiabatically fast driven ratchets // Phys. Rev. E. 2012. Vol. 85. 041116 (5 p.).
4. Розенбаум В. М. Высокотемпературные броуновские моторы: детерминистические и стохастические флуктуации периодического потенциала // Письма в ЖЭТФ. 2008. Т. 88. С. 381–395.
5. Astumian R. D., Bier M. Fluctuation driven ratchets: molecular motors // Phys. Rev. Lett. 1994. Vol. 72. P. 1766–1769.
6. Rozenbaum V. M., Korochkova T. Ye., Chernova A. A., Dekhtyar M. L. Brownian motor with competing spatial and temporal asymmetry of potential energy // Phys. Rev. E. 2011. Vol. 83. 051120 (10 p.).
7. Parrondo J. M. R. Reversible ratchets as Brownian particles in an adiabatically changing periodic potential // Phys. Rev. E. 1998. Vol. 57. P. 7297–7300.
8. Astumian R. D. Thermodynamics and kinetics of a Brownian motor // Science. 1997. Vol. 276. P. 917–922.
9. Розенбаум В. М., Шапочкина И. В. Адиабатические броуновские моторы с учетом инерции // Письма в ЖЭТФ. 2013. Т. 98. С. 637–641.
10. Розенбаум В. М. Низкотемпературный режим функционирования адиабатического броуновского мотора // Физика низких температур. 2014. Т. 40, № 5. С. 604–607.

Поступила в редакцию 25.03.2014.

**Никита Юрьевич Швед** – студент 5-го курса физического факультета.

**Ирина Викторовна Шапочкина** – кандидат физико-математических наук, доцент кафедры компьютерного моделирования.

**Виктор Михайлович Розенбаум** – доктор физико-математических наук, профессор, заведующий отделом теории наноструктурных систем Института химии поверхности им. А. А. Чуйко НАН Украины.