

# Tratamiento de fuentes de partículas en procesos de reacción controlados por difusión

S. Bouzat \* y H. S. Wio \*

\*Dpto. de Física, Universidad Nacional del Sur; Av. Alem 1253, 8000 Bahía Blanca

\*Centro Atómico Bariloche (CNEA) e Instituto Balseiro (UNC)

8400 -San Carlos de Bariloche (RN), Argentina

e-mail: wio@cab.cnea.edu.ar

Recientemente, un modelo basado en el esquema de Galanin ha sido explotado para analizar problemas de reacción controlados por difusión tanto en el caso de reacciones de atrapamiento ( $A + B \rightarrow B$ ) como de Aniquilación ( $A + B \rightarrow 0$ ). A fin de analizar la inclusión de fuentes de partículas en dicho modelo, hemos estudiado el problema de atrapamiento en el caso de una fuente puntual y una distribución uniforme de trampas. Se obtuvieron expresiones teóricas para el número de partículas, validas a tiempos cortos, que muestran buen acuerdo con simulaciones, y mejoran los resultados de cálculos en campo medio, comprobándose la existencia de algunas relaciones de scaling.

Recently a model based on The Galanin's Scheme has been exploited to describe diffusion controlled reactions for trapping ( $A + B \rightarrow B$ ) and annihilation ( $A + B \rightarrow 0$ ) processes. Here, in order to include sources of particles into the model, we have studied the trapping problem with a point source of particles and a uniform distribution of fixed traps. We have obtained analytical expressions valid at short times, showing a better agreement with simulations than mean field results. Some scaling relations have also been obtained.

## I. INTRODUCCIÓN

El estudio teórico de la dinámica de los sistemas de reacción es de importancia considerable en diversos campos de la ciencia tales como la química, la física y la biología. Tradicionalmente se ha tratado estos sistemas mediante la cinética química clásica que no toma en cuenta la dependencia espacial de las densidades de reactivos y productos; obteniéndose resultados incorrectos en los ritmos globales de reacción. Los llamados modelos de Campo medio pese a que incluyen dependencia espacial no suelen dar resultados correctos por ignorar efectos de correlación y fluctuaciones.<sup>(1,2)</sup>

Una descripción completa de un sistema de reacción debe tener en cuenta el carácter probabilístico de los eventos de reacción y por lo tanto debe ser hecha en términos de distribuciones de probabilidad y ecuaciones estocásticas.

El modelo de Galanin recientemente introducido posee estas características fundamentales y ha demostrado dar buenos resultados<sup>(3,4,5)</sup> para reacciones de atrapamiento y aniquilación en los casos de densidades uniformes sin fuentes, que no son descriptos correctamente por los otros métodos.

Incluso se ha podido describir correctamente el comportamiento de trampas con dinámica no Markoviana<sup>(6)</sup>. A fin de analizar el efecto de fuentes de partículas en el referido modelo, en este trabajo se estudia el problema de atrapamiento ( $A + B \rightarrow B$ ) en una dimensión con una fuente puntual de partículas ( $A$ ) en el origen de coordenadas. Consideramos el caso en que la fuente inyecta un número constante de partículas por unidad de tiempo a partir de  $t=0$ . Se supone una distribución uniformemente al azar de trampas ( $B$ ) en posiciones fijas. Se comparan los resultados con cálculos en campo medio y con simulaciones de Monte Carlo.

Se han obtenido muy buenos resultados a tiempos cortos e intermedios.

## II. ECUACIONES DE CAMPO MEDIO Y MODELO DE GALANIN.

Estamos interesados en el estudio de la densidad de partículas  $A$ , ( $n(x,t)$ ), y de su integral en el espacio, ( $N(t)$ ), que es el número total de partículas  $A$  en el sistema a tiempo  $t$ .

Como mecanismo de transporte para las partículas  $A$  supondremos un proceso difusivo con difusividad  $D$ . Los otros parámetros del problema son la intensidad de fuente ( $\mu$ ), la densidad de trampas ( $b$ ), y la constante de reacción ( $\gamma$ ).

La ecuación a campo medio para  $n(x,t)$  es:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D \frac{\partial^2 n}{\partial x^2} - \gamma b n + \mu \delta(x) \quad (1)$$

Esta ecuación es resoluble analíticamente, obteniéndose para la densidad integrada la expresión:

$$N_{cm}(t) = \frac{\mu}{\gamma b} (1 - \exp(-\gamma b t))$$

Veremos luego que esta expresión no ajusta a las simulaciones, pero desde ya observamos como primer error la independencia del resultado respecto de la difusividad. Esto no es posible en presencia de fluctuaciones en la densidad de trampas.

Para introducir el modelo de Galanin empezemos por considerar el caso de trampas móviles. Cada trampa efectúa una caminata al azar  $R_i(t)$ . La densidad  $n(x,t)$  se obtiene promediando sobre todas las posibles historias de las trampas, la densidad de partículas  $A$ , ( $\rho(x,t)$ ), correspondiente a una historia. De esta manera:

$$n(x,t) = \langle \rho(x,t) \rangle.$$

En una dimensión, la absorción debida a cada

trampa puede suponerse totalmente localizada y la ecuación para  $\rho(x,t)$  resulta ser:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \frac{\partial^2 \rho}{\partial x^2} - \gamma \sum_i \delta(x - R_i(t)) \rho + \mu \delta(x) \quad (2)$$

Nótese que si al efectuar el promedio, el término de reacción se factoriza (ignorando correlaciones), se obtiene para  $n(x,t)$  la ecuación de campo medio.

La ecuación integral correspondiente a (2) es:

$$\rho(x,t) = \int_0^t dt' \int_{-\infty}^{\infty} dx' G(x-x', t-t') [\mu \delta(x') - \gamma \sum_i \delta(x' - R_i(t')) \rho(x', t')] \quad (3)$$

donde  $G(x,t) = (4\pi Dt)^{-1/2} \exp(-x^2/4Dt)$  es el propagador de difusión.

La ecuación (3) puede en principio resolverse iterando, obteniéndose así una serie infinita de términos a promediar. En lugar de hacer esto, trabajaremos con la llamada función de Absorción:

$$A(x,t) = \left\langle \sum_i \delta(x - R_i(t)) \rho(x,t) \right\rangle$$

que también puede calcularse utilizando (3) e iterando.

Para efectuar los promedios<sup>(3, 4, 5)</sup> supondremos que los procesos estocásticos  $R_i(t)$  son markovianos con una cierta probabilidad de transición  $W(x,t,x',t')$ . La condición de trampas fijas corresponde a la elección  $W(x,t,x',t') = \delta(x-x')$ .

Al hacer los promedios, cada término sucesivo de la serie infinita da lugar a un número creciente de términos. La serie completa es muy difícil de sumar. Sin embargo, luego de transformar Fourier en el espacio, Laplace en el tiempo, y hacer un reordenamiento de términos que no se detalla en este trabajo, semejante al utilizado para problemas sin fuentes<sup>(3, 4, 5)</sup>, pueden encontrarse sub-series de tipo geométrico cuyas contribuciones son sumables.

Mediante este procedimiento se obtiene la siguiente aproximación para la transformada  $A(k,s)$  de la función de absorción:

$$A(k,s) = \frac{\mu b (s + \gamma \sqrt{s/4D})^{-1}}{(s + Dk^2 + \gamma b / (1 + \gamma / \sqrt{4Ds}))} \quad (4)$$

La transformada de la densidad puede calcularse utilizando:

$$n(k,s) = G(k,s) [\mu/s - \gamma A(k,s)] \quad (5)$$

La transformada de Laplace del número de partículas es  $N(s) = n(k=0, s)$ . Su antitransformada puede calcularse analíticamente resultando una expresión complicada que no incluimos. En la figura 1 se compara este resultado y el de campo medio con simulaciones de Monte Carlo.

El resultado obtenido para  $N(t)$  resulta ser muy bueno a tiempos cortos e intermedios, pero no logra predecir la entrada en régimen estacionario. Este es el estado en que permanece el sistema a partir del momento en que el número de procesos de captura por unidad de tiempo iguala a la intensidad de fuente, quedando  $n(x,t)$  y  $N(t)$  constantes en el tiempo.

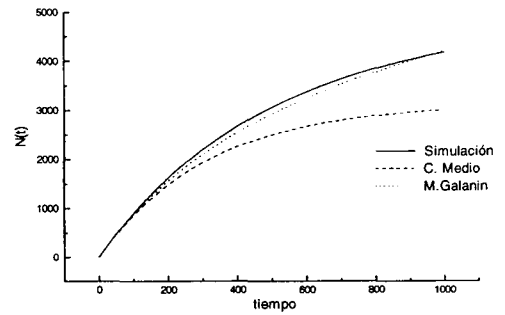


fig 1.  $N(t)$  durante el régimen transitorio. Se observa buen acuerdo entre la solución aproximada del modelo de Galanin y la simulación de Monte Carlo. La solución de campo medio difiere notablemente. Las curvas corresponden a  $D=2$ ,  $b=16$ ,  $\mu=10$ ,  $\gamma=02$

Este error en los resultados del modelo puede ser atribuido en su totalidad a la aproximación que se realiza al sumar la serie de la función de absorción. Sin embargo, es de destacar, que los resultados son buenos hasta tiempos muy cercanos al de entrada en régimen estacionario, (fig 2), y que los tiempos muy largos suelen no ser de mucho interés desde el punto de vista experimental. También cabe mencionar que en el caso de problemas sin fuentes<sup>(3, 4, 5)</sup> aproximaciones similares no conducen a este tipo de errores.

La solución de campo medio sí presenta un régimen estacionario, pero además de alcanzarse éste en tiempos mucho menores que los que indican las simulaciones, sus predicciones de los valores de  $N(t)$  y  $n(x,t)$  son incorrectas. (fig. 2)

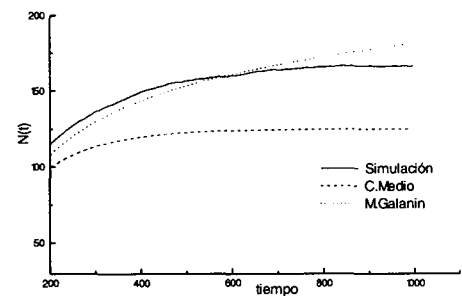


fig 2.  $N(t)$ : Detalle de la entrada en régimen estacionario. El valor asintótico de campo medio es incorrecto y se alcanza muy rápidamente ( $t \approx 500$ ). El modelo concuerda con la simulación hasta tiempos muy cercanos a la entrada en régimen estacionario ( $t \approx 800$ ). Las curvas corresponden a  $D=4$ ,  $b=4$ ,  $\mu=1$ ,  $\gamma=02$

## II. RELACIONES DE SCALING, DEPENDENCIA DE LA DENSIDAD CON LOS PARÁMETROS DEL PROBLEMA

En general, en los problemas de reacción difusión, es de interés conocer la forma en que dependen de los parámetros del problema, las densidades u otras magnitudes. Esto ocurre principalmente en los casos en que no se conocen soluciones exactas. Así mismo, también es importante encontrar relaciones entre soluciones para distintos juegos de parámetros. Toda esta información suele ser de mucha utilidad para comprender

aspectos globales de los problemas y para comparar o testear modelos teóricos y métodos de simulación.

En nuestro tratamiento de fuentes de partículas en el modelo de Galanin, es de importancia conocer la forma en que los resultados dependen de la intensidad de fuente. Pese a que no se conoce la solución exacta del modelo, puede verse en (3), que ésta debe ser lineal en  $\mu$ . Esto es porque al iterar, todos los términos de la serie quedan multiplicados por  $\mu$ , así la intensidad de fuente resulta ser un factor global del resultado.

Esta predicción del modelo, que es coherente con los resultados de simulaciones numéricas (fig. 3), elimina a  $\mu$  como parámetro relevante del problema, y da lugar a un método sencillo para tratar problemas de muchas fuentes utilizando el mismo modelo.

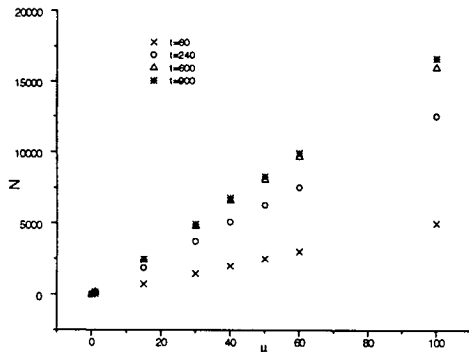


fig 3. Número de Partículas A en función de la intensidad de fuente para distintos tiempos (resultados de simulaciones de Monte Carlo). Se verifica la dependencia lineal con  $\mu$ . Los valores corresponden a  $D=.4$ ,  $b=.4$ ,  $\gamma=.02$ .

Otro resultado importante que verifican con bastante exactitud las simulaciones, por lo menos hasta tiempos cercanos a los del régimen estacionario, proviene del modelo de campo medio.

La ecuación (1) es invariante ante la siguiente transformación dada por el parámetro  $\lambda$ :

$$\begin{aligned} D &\rightarrow \lambda^2 D & b &\rightarrow \lambda^{-1} b & (6) \\ \gamma &\rightarrow \lambda \gamma & \mu &\rightarrow \lambda \mu \end{aligned}$$

Se espera entonces, que las soluciones para distintos juegos de parámetros, relacionados de esta manera, sean proporcionales. Esto se verifica en las simulaciones dentro de un intervalo considerable de tiempos (fig 4.). De esta manera, el modelo de campo medio, pese a ser inexacto, nos provee de relaciones que son correctas y de utilidad (dentro de ciertos rangos).

Por otra parte, cabe aclarar que no es sencillo obtener este tipo de relaciones en el modelo de Galanin.

### III. CONCLUSIONES

El modelo de Galanin muestra dar buenos resultados para problemas de reacción difusión, en este caso incluyendo fuentes de partículas.

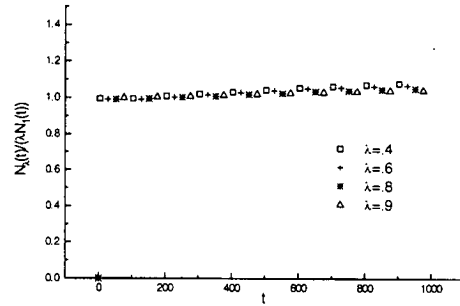


fig.4. Número de partículas correspondientes al problema con los parámetros cambiados por  $\lambda$  según (6), dividido por la misma magnitud para  $\lambda=1$  y dividido  $\lambda$ . Datos de simulaciones. La relación es aproximadamente constante (igual a 1) en el tiempo.  $\lambda=1$  corresponde a  $D=.4$ ,  $b=.1$ ,  $\gamma=.1$  y  $\mu=10$

Vale la pena entonces tratar de explotar el modelo para problemas similares. Sin embargo, debe mejorarse la forma en que se realiza la suma de términos en la función de absorción para obtener resultados buenos a tiempos largos. Este caso, de atrapamiento con fuentes, que lleva a un estacionario con densidades de trampas y partículas distinto de cero, es particularmente crítico en este aspecto.

Estudios análogos para distribuciones periódicas de trampas se encuentran en Ref. 7.

La relación de scaling obtenida a partir del modelo de campo medio ha mostrado ser válida en un amplio rango a pesar de que dicho modelo no es esencialmente correcto. Esta información complementa y la provista por el modelo más elaborado de Galanin.

Por otra parte, la información de la distribución espacial  $n(x,t)$  se haya totalmente contenida (para tiempos cortos) en (4) y (5), siendo posible realizar las antitransformadas en forma numérica, aunque esto está fuera del marco de este trabajo.

### Referencias

- 1 - S. Redner y F. Leyvraz : Kinetics and Spatial Organization of Competitive Reactions, en Fractal in science, A. Bunde y S. Havlin (eds), Springer-Verlag (1994)
- 2 - K. Lindenberg, B. J. West y R. Kopelman, en Noise and Chaos in Nonlinear Dynamical Systems, eds. F. Moss, L. A. Lugiato and W. Schleich, Cambridge University Press (1990).
- 3 - G. Abramson: Tesis Doctoral, Instituto Balseiro, 1995.
- 4 - M. A. Rodriguez, G. Abramson, H.S. Wio y A. Bru: Ann. AFA 4.43 (1992). F.G Nicolini y H.S. Wio. Ann AFA 48 (1992)
- 5 - M. A. Rodriguez, G. Abramson, H. Wio y A. Bru, Phys. Rev. E 48 , 829 (1993). G. Abramson, A. Bru Espino, M. A. Rodriguez, H.S. Wio, Phys. Rev. E 50, 4319 (1994). H. S. Wio, G. Abramson, M. A. Rodriguez y A. Bru: Chaos, Solit. & Fract. 6, 575 (1995) G. Abramson y H. Wio, Chaos, Solit. & Fract. 6, 1 (1995)
- 6 - G. Abramson y H.S. Wio ; Phys. Rev. E 53, 2265 (1996).
- 7 - A. Sanchez y H. S. Wio, Physica A 237 (1997) 452-470.