

АНОТАЦІЯ

Шаповал Д. Ю. Кооперативні явища, скейлінг та утворення структур у моделях реакційно-дифузійних процесів. — Кваліфікаційна наукова праця на правах рукопису.

Дисертація на здобуття наукового ступеня доктора філософії за спеціальністю 104 — Фізика та астрономія. — Інститут фізики конденсованих систем НАН України, Львів, 2022.

Дисертаційна робота присвячена дослідженню впливу локальних флуктуацій концентрації реагуючих речовин та транспортних властивостей реагентів на зміну законів скейлінгу у реакційно-дифузійних процесах, а також впливу неоднорідних властивостей каталізатора на рівноважну поведінку утворених адсорбатів. Для досягнення поставленої мети було розв'язано декілька задач.

Спочатку досліджено зміну скейлінгу при переході між дифузійно-обмеженим, характерним для одновимірних систем, та реакційно-обмеженим, характерним для багатовимірних систем, кооперативними режимами у реакційно-дифузійних системах. Такий перехід аналізується шляхом порівняння універсальної поведінки односортового коагуляційно-дифузійного процесу зі стохастичним скиданням на великих часах на одновимірному ланцюжку та ґратці Бете. На цей випадок за допомогою наближення бен-Аврагама-Ґлассера було поширено добре вивчений для одновимірних систем метод порожніх інтервалів, у якому в неперервній границі поведінка моделі описується скейлінговою змінною λ , зокрема $\lambda \rightarrow 0$ відповідає випадку ланцюжка, а $\lambda \rightarrow \infty$ — ефективно багатовимірній системі. Знайдено логарифмічні поправки до скейлінгу густини частинок при $\lambda \rightarrow \infty$, а також розраховано перехідні скейлінгові функції та ефективні критичні показники.

Для того щоб дослідити вплив локальних флуктуацій реагуючих речовин та транспортних властивостей реагентів на зміну законів скейлінгу у флуктуаційно-домінуючій дифузійно-обмеженій системі, було розглянуто двосортну систему рухомих частинок-пасток, що можуть взаємно анігілювати або коагулювати, у той

час як частинки-мішені можуть адсорбуватись частинками-пастками. Аномальна дифузія частинок обидвох сортів моделюється далекосяжними стрибками – польотами Леві (випадкові блукання, в яких довжина кроку описується розподілом ймовірностей з “товстим хвостом”). Система розглядається у дифузійно-обмеженому режимі, який досягається для просторової вимірності нижче верхньої критичної $d < d_c$. Вимірність d_c для досліджуваної системи визначається контролюючим параметром далекосяжних стрибків. Для дослідження скейлінгової поведінки такої двосортної системи використано метод теорети-польової ренормалізаційної групи. Розраховано універсальні нетривіальні показники для скейлінгової поведінки густини та кореляційної функції густина-густина частинок-мішеней у однопетлевому наближенні. При заміні просторової вимірності на ефективну (залежну від контролюючого параметру розподілу Леві) отримані показники можна пов’язати з аналогічними виразами для випадку звичайної дифузії, подібно до того як це спостерігається для критичної поведінки систем із далекосяжними взаємодіями. В одновимірному випадку отримані аналітичні результати для показника часового загасання густини частинок-мішеней підтверджені методом комп’ютерного експерименту.

Для дослідження впливу неоднорідних властивостей каталізатора на рівноважну поведінку утворених адсорбатів, що фомуються в процесі каталітично-активованих реакцій задачу було розглянуто в одновимірному та ефективно багатовимірному випадках. При цьому структура каталітичної підкладки, яка часто не є точно визначеною геометрично, розглядалась як множина рухомих або локалізованих випадково розподілених каталітичних вузлів або зв’язків між вузлами.

У першій задачі досліджуються рівноважні властивості адсорбату, що формується в процесі каталітично-активованих реакцій $A + B \rightarrow \emptyset$ у двосортній системі на ланцюжках із каталітичними елементами (зв’язки між вузлами – модель I та вузли – модель II), що розміщені випадково за сценарієм відпаленого (каталітичні елементи в рівновазі із системою) та замороженого (каталітичні елементи локалізовані) безладів. У випадку одновимірних ланцюжків для обох типів каталітичних елементів та для обох типів безладу знайдено точні розв’язки. У випадку

відпаленого безладу для моделей I та II отримано точні вирази для усередненої за безладом великої канонічної статистичної суми, а отже, для тиску адсорбату та його термодинамічних похідних. У випадку замороженого безладу проблему усереднення логарифма великої канонічної статистичної суми розв'язано двома підходами. У першому підході задача зводиться до комбінаторного перерахунку усіх можливих повністю каталітичних кластерів із фіксованим положенням каталітичних зв'язків або вузлів і знаходження точних виразів для статистичних ваг таких кластерів. У другому підході задача переписується у термінах спін-1 моделі. В результаті це дозволило представити усереднений за безладом тиск як усереднений логарифм сліду нескінченного добутку випадкових матриць розмірності 3×3 , взаємно нескорельованих для моделі I та парно скорельованих у випадку моделі II. Знайдені точні розв'язки є нетривіальними прикладами нескінченного добутку випадкових матриць, для яких показник Ляпунова може бути розрахований у явному вигляді.

У другій задачі досліджуються рівноважні властивості адсорбату у такій двосортній системі на псевдоґратках Бете (глибоко всередині дерева Кейлі) та Фушімі (глибоко всередині дерева Фушімі). В цій задачі ми розширюємо модель I та вважаємо, що частинки одного й того ж сорту при зустрічі на сусідніх вузлах взаємодіють одна з одною. Для двох типів псевдоґраток для симетричного випадку з рівними хімічними потенціалами частинок обох сортів та однаковою взаємодією частинок одного й того ж сорту отримано повну фазову діаграму двокомпонентного адсорбату. Показано, що фазова діаграма досить складна та складається з декількох фаз: фаза зі спонтанно порушеною симетрією між частинками різних сортів, в якій вони присутні з різними середніми густинами; симетрична фаза, в якій частинки присутні при однакових густинах, а переходи між цими фазами можуть бути як першого роду, так і неперервні. Більш того, через свою дводольну природу на ґратці Бете існують дві додаткові фази із структурним впорядкуванням (система спонтанно розділяється на дві підґратки з різним покриттям частинками на кожній з підґраток), натомість на ґратці Фушімі такі фази відсутні через більш сильні фрустраційні ефекти.

Ключові слова: реакційно-дифузійний процес, скейлінг, стохастичне скидання, кросовер, польоти Леві, ренормалізаційна група, відпалений безлад, заморожений безлад, переходи лад-безлад та порушення симетрії, ґратка Бете, ґратка Фушімі

ABSTRACT

Shapoval D. Yu. Cooperative phenomena, scaling and structure formation in models of reaction-diffusion processes. — Qualifying scientific work on the rights of the manuscript.

Thesis for the Degree of Doctor of Philosophy on the speciality 104 — Physics and Astronomy. — Institute for Condensed Matter Physics of the National Academy of Sciences of Ukraine, Lviv, 2022.

The thesis is devoted to the study of the influence of local fluctuations in the reactant concentration and reactant transport properties on the change in scaling laws in reaction-diffusion processes, as well as the influence of heterogeneous properties of the catalyst on the equilibrium behavior of the formed adsorbates. Achieving the set goal, several problems were solved.

First, the change in scaling at the crossover between diffusion-limited, characteristic for one-dimensional systems, and reaction-limited, characteristic for high-dimensional systems, cooperative regimes in reaction-diffusion systems was investigated. Such a crossover is analyzed by comparing the universal behavior of a single-species coagulation-diffusion process with stochastic reset at large times on a one-dimensional chain and a Bethe lattice. For this case, the well-studied empty-interval method for one-dimensional systems was extended using the ben-Avraham-Glasser approximation, in which the model behavior in the continuum limit is described by the scaling variable λ , in particular, $\lambda \rightarrow 0$ corresponds to the case of a chain, and $\lambda \rightarrow \infty$ is effectively a high-dimensional system. Logarithmic corrections to the scaling of the particle-density at $\lambda \rightarrow \infty$ were found, as well as the crossover scaling functions and the effective critical exponents were calculated.

The study of the influence of local fluctuations in the reactant concentration and reactant transport properties on the change in scaling laws in a fluctuation-dominated diffusion-limited system, a two-species system of mobile trap-particles that can mutually annihilate or coagulate, while target-particles can be adsorbed by traps was considered. Anomalous diffusion of particles of both species is modeled by

long-range jumps – Lévy flights (random walks in which the step length is described by a probability distribution with a “fat tail”). The system is considered in the diffusion-limited regime, which is achieved for the space dimension below the upper critical one $d < d_c$. The dimensionality d_c for the system under study is determined by the control parameter of long-range jumps. The field-theoretic renormalization group method was used to study the scaling behavior of such a two-species system. Universal non-trivial exponents for the scaling behavior of the density and the density-density correlation function of target-particles in the one-loop approximation were calculated. When replacing the space dimension with an effective one (that depend on the control parameter of the Lévy distribution), the obtained exponents can be related to similar expressions for the case of the ordinary diffusion, just as it is observed for the critical behavior of systems with long-range interactions. In the one-dimensional case, the obtained analytical results for the density decay exponent of target-particles are confirmed by the numerical simulations.

To study the influence of catalyst heterogeneous properties on the equilibrium behavior of the adsorbates formed in the process of catalytically activated reactions, the problem was considered in one-dimensional and effectively high-dimensional cases. At the same time, the structure of the catalytic substrate, which is often not precisely defined geometrically, was considered as a set of mobile or localized randomly distributed catalytic sites or bonds between sites.

In the first problem, the equilibrium properties of the adsorbate formed in the process of catalytically activated reactions $A + B \rightarrow \emptyset$ in a two-species system on chains with catalytic elements (bonds between sites – model I and sites – model II), placed randomly according to the annealed disorder scenario (catalytic elements in equilibrium with the system) and quenched one (catalytic elements localized) are investigated. In the case of one-dimensional chains, exact solutions were found for both types of catalytic elements and for both types of disorder. In the case of annealed disorder for models I and II, exact expressions for the disorder-averaged grand canonical partition function and, therefore, for the adsorbate pressure and its thermodynamic derivatives were obtained. In the case of quenched disorder, the

problem of averaging the logarithm of a grand canonical partition function is solved by two approaches. In the first approach, the problem is reduced to a combinatorial enumeration of all possible completely catalytic clusters with a fixed position of catalytic bonds or sites and finding exact expressions for the statistical weights of such clusters. In the second approach, the problem is rewritten in terms of the spin-1 model. As a result, this made it possible to represent the disorder-averaged pressure as the averaged logarithm of the trace of an infinite product of random 3×3 matrices, mutually uncorrelated for the model I and pairwise correlated in the case of the model II. The found exact solutions are non-trivial examples of an infinite product of random matrices for which the Lyapunov exponent can be calculated in an explicit form.

In the second problem, the equilibrium properties of the adsorbate in such a two-species system on the Bethe (deep inside the Cayley tree) and Hushimi (deep inside the Hushimi tree) pseudolattices are investigated. In this problem, we extend model I and consider that the same species may interact with each other when they meet at neighboring sites. For two types of pseudolattices, for the symmetric case with equal chemical potentials of both species and the same interaction of the same species, a full phase diagram of the two-component adsorbate was obtained. It is shown that the phase diagram is quite complex and consists of several phases: a phase with spontaneously broken symmetry between particles of different types, in which they are present with different average densities; a symmetric phase in which particles are present at the same densities, and the transitions between these phases can be both first-order and continuous. Moreover, due to its bipartite nature, two additional phases with structural ordering exist on the Bethe lattice (the system spontaneously splits into two sublattices with different particle coverage on each of the sublattices), whereas on the Hushimi lattice, such phases are absent due to stronger frustration effects.

Keywords: reaction-diffusion process, scaling, stochastic resetting, crossover, Lévy flights, renormalisation group, annealed disorder, quenched disorder, order-disorder transitions and symmetry breaking, Bethe lattice, Husimi lattice

Список публікацій здобувача

1. *Shapoval D., Dudka M., Durang X., Henkel M.* Crossover between diffusion-limited and reaction-limited regimes in the coagulation–diffusion process // *J. Phys. A: Math. Theor.* — 2018. — Vol. 51, no. 42. — P. 425002.
2. *Shapoval D., Dudka M., Bénichou O., Oshanin G.* Equilibrium properties of two-species reactive lattice gases on random catalytic chains // *Phys. Rev. E.* — 2020. — Vol. 102. — P. 032121.
3. *Shapoval D., Dudka M., Bénichou O., Oshanin G.* Binary lattice-gases of particles with soft exclusion: exact phase diagrams for tree-like lattices // *J. Phys. A: Math. Theor.* — 2021. — Vol. 54, no. 38. — P. 385003.
4. *Shapoval D., Blavatska V., Dudka M.* Survival in two-species reaction-diffusion system with Lévy flights: Renormalization group treatment and numerical simulations // *J. Phys. A: Math. Theor.* — 2022. — Vol. 55, no. 45. — P. 455002.
5. On the crossover between diffusion-limited and reaction-limited particle systems / D. Shapoval, M. Dudka, X. Durang, M. Henkel // “Різдваїні дискусії 2018”, Кафедра теоретичної фізики, Львівський національний університет ім. І. Франка, Тези доповідей — Львів, Україна, 27–30 січня 2018. — С. 8
6. On the crossover between diffusion-limited and reaction-limited particle systems / D. Shapoval, M. Dudka, X. Durang, M. Henkel // XVIII Всеукраїнська школа-семінар та Конкурс молодих вчених зі статистичної фізики та теорії конденсованої речовини, Тези доповідей.— Львів, Україна, 7–8 червня 2018. — С. 44
7. On the crossover between diffusion-limited and reaction-limited particle systems / D. Shapoval, M. Dudka, X. Durang, M. Henkel // 43-st International Conference “Middle European Cooperation in Statistical Physics” (MECO43), Abstracts. — Krakow, Poland, 1–4 May 2018. — P. 95
8. Two-species reactive lattice gases on random catalytic chains: Annealed versus

- quenched disorder / M. Dudka, D. Shapoval, G. Oshanin, O. Bénichou // XIX Всеукраїнська школа-семінар та Конкурс молодих вчених зі статистичної фізики та теорії конденсованої речовини, Тези доповідей.— Львів, Україна, 13–14 червня 2018. — С. 34
9. Two-species reactive lattice gases on random catalytic chains: Annealed versus quenched disorder / M. Dudka, D. Shapoval, G. Oshanin, O. Bénichou // The 5th Conference “Statistical Physics: Modern Trends and Applications” (StatPhys2019) Dedicated to the 110th anniversary of the birth of M.M. Bogolyubov, Abstracts. — Lviv, Ukraine, 3–6 July 2019. — P. 151
 10. Equilibrium properties of two-species reactive lattice gases on random catalytic chains and hierarchical lattices / D. Shapoval, M. Dudka, O. Bénichou, G. Oshanin // International conference “Modern Problems of Solid State and Statistical Physics”, Abstracts. — Kyiv, Ukraine, 14–15 September 2020. — P. 28
 11. Equilibrium properties of binary reactive adsorbate on random catalytic recursive lattices / D. Shapoval, M. Dudka, O. Bénichou, G. Oshanin // XX Всеукраїнська школа-семінар та Конкурс молодих вчених зі статистичної фізики та теорії конденсованої речовини, Тези доповідей.— Львів, Україна, 15–16 жовтня 2020. — С. 28
 12. Binary mixtures of particles with soft exclusion: Exact phase diagrams for tree-like lattices / D. Shapoval, M. Dudka, O. Bénichou, G. Oshanin // 46-st International Conference “Middle European Cooperation in Statistical Physics” (MECO46), Abstracts. — Riga, Latvia, 11–13 May 2021. — P. 49
 13. Скейлінг у моделях реакційно-дифузійних процесів та утворених структур у неоднорідних середовищах / Д. Шаповал // XXI Всеукраїнська школа-семінар та Конкурс молодих вчених зі статистичної фізики та теорії конденсованої речовини, Тези доповідей.— Львів, Україна, 11–12 жовтня 2021. — С. 14
 14. Two-species reaction-diffusion system with Lévy flights / D. Shapoval,

V. Blavatska, M. Dudka // 13th Workshop on current problems in physics, Abstracts. — Lviv, Ukraine, 26-27 October 2021. — P. 21

15. Long-range hops in a two-species reaction-diffusion system: renormalization group and numerical simulations / D. Shapoval, V. Blavatska, M. Dudka // XII Conference of Young Scientists “Problems of Theoretical Physics”, Abstracts. — Kyiv, Ukraine, 21-22 December 2021. — P. 4