ЖЭТФ, 2021, том 160, вып. 1 (7), стр. 107–118

ТРАНСПОРТНОЕ УРАВНЕНИЕ ДЛЯ СУБДИФФУЗИИ СМЕШАННОГО ПРОИСХОЖДЕНИЯ

В. П. Шкилев *

Институт химии поверхности им. А. А. Чуйко Национальной академии наук Украины
03164, Киев, Украина

Поступила в редакцию 22 января 2021 г.,
после переработки 2 марта 2021 г.
Принята к публикации 2 марта 2021 г.

Предлагается транспортное уравнение для модели, представляющей собой комбинацию модели случайных барьеров и модели многократного захвата. Отрицательные корреляции, обусловленные барьерами, моделируются путем добавления к уравнению источникового и стокового членов. В случае процессов, сохраняющих вероятность, предлагаемое уравнение эквивалентно известному ранее уравнению. Однако в случае процессов с потоками вероятности через границы результаты принципиально различаются. В частности, это транспортное уравнение дает разные значения времени первого прохождения для стационарной и нестационарной субдиффузии. В случае стационарной субдиффузии оно воспроизводит результат модели дробного броуновского движения, а в случае нестационарной субдиффузии — модели случайных блужданий с непрерывным временем. На примере диффузии в гармоническом потенциале продемонстрирована термодинамическая согласованность уравнения.

DOI: 10.31857/S0044451021070117

1. ВВЕДЕНИЕ

Субдиффузия — это случайные блуждания, характеризующиеся тем, что скорость роста среднеквадратичного смещения не остается постоянной, как у обычной диффузии, а со временем уменьшается. Подобного рода замедляющаяся диффузия встречается во многих областях [1–5]. Существуют два принципиально отличающиеся друг от друга вида субдиффузии: стационарная и нестационарная. При стационарной субдиффузии среднее количество скачков, совершаемых частицей, пропорционально времени, как и при обычной диффузии. Замедление диффузии происходит из-за того, что при одном и том же количестве скачков частица смещается на меньшее расстояние, чем при обычной диффузии. Это связано с тем, что частица имеет тенденцию возвращаться в ранее посещавшиеся места, т. е. скачки назад более вероятны, чем скачки вперед. Характерными особенностями этого вида субдиффузии являются ее независимость от момента начала наблюдения за диффундирующей частицей и зависимость проводимости от частоты [6]. Существует несколько моделей, описывающих стационарную субдиффузию: модель случайных барьеров [6–8], модель Лоренца [9, 10], модель случайных блужданий на фракталах [3, 11], модель вязкоупругости [4, 5, 12], модель дробного броуновского движения (fractional Brownian motion) [4, 5, 13, 14].

При нестационарной субдиффузии смещение как функция количества скачков остается таким же, как и при обычной диффузии. Замедление диффузии происходит вследствие снижения со временем подвижности частиц, которое, как правило, связано с задержкой частиц в разного рода ловушках. Характерной особенностью этого вида субдиффузии является ее зависимость от момента начала наблюдения за частицей. В частности, если в начальный момент времени частицы находятся в равновесии с окружающей средой, то, как и при обычной диффузии, среднеквадратичное смещение пропорционально времени и проводимость не зависит от частоты. Отличие от обычной диффузии проявляется только в отличии формы функции распределения от гауссовой [6]. К моделям, описывающим нестационарную субдиффузию, относятся модель случайных ловушек [6, 8], модель многократного захвата [6, 15, 16], модель случайных блужданий с непрерыв-

* E-mail: shkilevv@ukr.net

ным временем (continuous time random walk, CTRW) [4,5,17], модель стохастического коэффициента диффузии (diffusing diffusivity) [18].

Как показывают эксперименты, в реальных физических системах часто одновременно присутствуют оба вида субдиффузии [11,19–21]. Для математического описания таких систем необходимы соответствующие модели. Обычно такие модели строятся путем комбинирования известных моделей стационарной и нестационарной субдиффузии [11, 21–26].

Чтобы с помощью математической модели можно было решать различные практические задачи, желательно иметь для этой модели транспортное уравнение, аналогичное уравнению Фоккера – Планка. В настоящее время известна одна модель субдиффузии смешанного происхождения, для которой существует такое уравнение. Это комбинация модели случайных барьеров и модели многократного захвата, первоначально предложенная в работах [27–29]. Авторы этих работ использовали полученное ими уравнение для описания времяпролетного эксперимента. Поэтому они рассматривали только неравновесное начальное условие и внешнюю силу считали не зависящей от времени. Обобщение этого уравнения на произвольные начальные условия и зависящую от времени силу было осуществлено в работах [30–33].

Авторы работы [34] рассмотрели две модели субдиффузии: стационарную, в которой замедление диффузии обусловлено отрицательными корреляциями, т. е. тем фактом, что скачки назад более вероятны, чем скачки вперед, и нестационарную, в которой замедление диффузии обусловлено снижением со временем подвижности частиц. Пропагаторы (плотности вероятности) обеих моделей удовлетворяют одному и тому же субдиффузионному уравнению, которое в изображениях Лапласа записывается как (преобразование Лапласа функции времени $f(t)$ будем обозначать через $f(s)$: $f(s) = \int\limits_0^\infty \exp(-st) f(t)\, dt$)

$$s\rho(x,s) - \delta(x) = h^2 \Theta(s) \frac{\partial^2 \rho(x,s)}{\partial x^2}. \qquad (1)$$

Здесь s — переменная Лапласа, x — пространственная координата (ради простоты здесь и далее рассматриваем одномерный случай), $\Theta(s)$ — функция памяти, равная в данном случае $\nu s^{0.5}$, h и ν — постоянные параметры, $\rho(x,s)$ — изображение Лапласа плотности вероятности $\rho(x,t)$ найти частицу в точке x в момент времени t.

С помощью уравнения (1) можно вычислить вероятность выживания частицы на полубесконечном интервале с поглощающей границей. На больших временах эта вероятность ведет себя как $t^{-0.25}$. Авторы работы [34] вычислили эту вероятность в рамках обеих моделей также и непосредственно, без использования уравнения (1). Оказалось, что результат, даваемый этим уравнением, правилен в рамках нестационарной модели, но неправилен в рамках стационарной модели. В последней вероятность выживания на больших временах ведет себя так же, как и в случае нормальной диффузии, а именно, как $t^{-0.5}$. Тем самым авторы показали, что хотя в рамках стационарной модели пропагатор удовлетворяет уравнению (1), это уравнение не может использоваться для вычисления вероятности выживания на полубесконечном интервале. В принципе, вывод о том, что уравнение (1) не соответствует стационарной модели, можно было бы сделать на основе анализа одной лишь формы этого уравнения. Это уравнение отличается от обычного уравнения диффузии только тем, что коэффициент диффузии зависит от переменной Лапласа. Оно, так же как и обычное уравнение диффузии, предполагает, что частица может совершить скачок в обоих направлениях с равной вероятностью. Следовательно, оно не может адекватно представлять замедляющуюся диффузию, обусловленную тем фактом, что скачки в разных направлениях имеют разную вероятность.

Ясно, что полученный авторами работы [34] результат относится также и к модели случайных барьеров, поскольку в этой модели субдиффузия обусловливается отрицательными корреляциями, но транспортное уравнение имеет вид (1). Этот результат означает, что уравнение (1) не может использоваться в рамках модели случайных барьеров для описания таких процессов, как случайные блуждания на полубесконечном интервале с поглощающей границей. Поскольку транспортное уравнение для модели субдиффузии, представляющей собой комбинацию модели случайных барьеров и модели многократного захвата, основано на уравнении (1), результат работы [34] относится и к нему. Следовательно, для того чтобы транспортное уравнение, предложенное в работах [27–33], могло использоваться для решения задач с поглощающими границами, оно должно быть усовершенствовано.

В данной работе уравнение (1) преобразуется к виду обыкновенного уравнения диффузии с источником и стоком. Показывается, что полученное таким образом уравнение адекватно представляет замедляющуюся диффузию, обусловленную отрицательными корреляциями. В случае диффузии в неограниченном пространстве полученное уравнение эквивалентно уравнению (1), но в случае процессов с потоками вероятности через границы оно дает принципиально иные результаты. В частности, вероятность выживания на полубесконечном интервале, вычисленная с помощью этого уравнения, убывает на больших временах быстрее, чем в случае нормальной диффузии, тогда как вероятность выживания, вычисленная с помощью уравнения (1), убывает медленнее, чем в случае нормальной диффузии. Среднее время первого прохождения для аномальной субдиффузии на ограниченном интервале с поглощающими границами, полученное с помощью этого уравнения, оказывается конечным, тогда как та же величина, вычисленная с помощью уравнения (1), является бесконечной. Предлагаемое уравнение дает результаты, качественно согласующиеся с результатами, получаемыми в рамках модели дробного броуновского движения. Поскольку модель дробного броуновского движения, так же как и модель случайных барьеров, описывает замедляющуюся диффузию, обусловленную отрицательными корреляциями, данный факт может служить аргументом в пользу предлагаемого уравнения.

Аналогично уравнению (1) может быть преобразовано также и транспортное уравнение для субдиффузии смешанного происхождения, предложенное в работах [27–33]. В настоящей работе рассматриваются следующие вопросы, касающиеся полученного в результате такого преобразования уравнения: 1) на примере субдиффузии в гармоническом потенциале показывается термодинамическая согласованность уравнения; 2) выводятся формулы, позволяющие находить параметры уравнения на основе второго и четвертого моментов в случае чистой субдиффузии или на основе первого и второго моментов в случае субдиффузии в постоянном силовом поле; 3) предлагаются конкретные аналитические выражения для фигурирующих в уравнении функций памяти.

2. МОДЕЛЬ СЛУЧАЙНЫХ БАРЬЕРОВ

2.1. Модифицированное уравнение

Случайные блуждания в модели случайных барьеров являются одним из видов так называемых усиленных случайных блужданий (reinforced random walks). Это случайные блуждания, в которых блуждающая частица имеет тенденцию возвращаться в ранее посещавшиеся места. Они широко изучаются в математическом, а также экологическом контекстах [35, 36]. Большинство разработанных в этой области моделей являются вычислительными. Одним из немногих исключений является модель, предложенная в работах [37, 38]. Суть этой модели состоит в том, что усиленные случайные блуждания представляются в виде комбинации двух независимых процессов: обычной диффузии и процесса, возвращающего частицу в одно из ранее посещавшихся мест. Кинетическое уравнение в рамках этой модели имеет следующий вид:

$$\frac{\partial\rho(x,t)}{\partial t} = D\frac{\partial^2\rho(x,t)}{\partial x^2} - r\rho(x,t) + r\int\limits_0^t K(t,\tau)\rho(x,\tau)\,d\tau. \quad (2)$$

Здесь D — коэффициент диффузии, r — скорость возвращающего процесса, $K(t,\tau)$ — положительная функция, удовлетворяющая условию нормировки

$$\int\limits_0^t K(t,\tau)\,d\tau = 1.$$

Последний член этого уравнения представляет приток вероятности в точку x как результат выбора момента времени τ в прошлом с вероятностью $K(t,\tau)$ и перемещения частицы в эту точку с вероятностью $\rho(x,\tau)$ [39].

Покажем, что уравнение (1) может быть приведено к виду (2). Для этого умножим его на Θ_∞ ($\Theta_\infty = \lim_{s\to\infty}\Theta(s)$), разделим на $\Theta(s)$ и прибавим к обеим частям выражение $s\rho(x,s) - \delta(x)$. В результате получим

$$s\rho(x,s) - \delta(x) = h^2\Theta_\infty\frac{\partial^2\rho(x,s)}{\partial x^2} - \left[\frac{\Theta_\infty}{\Theta(s)} - 1\right][s\rho(x,s) - \delta(x)]. \quad (3)$$

Теперь введем функцию $\phi(s)$:

$$\phi(s) = 1 - \frac{s}{r}\left[\frac{\Theta_\infty}{\Theta(s)} - 1\right]. \quad (4)$$

Здесь r — коэффициент в разложении функции $\Theta(s)$ при больших s:

$$\Theta(s) = \Theta_\infty\left(1 - \frac{r}{s} + \frac{c}{s^2} + \ldots\right).$$

При больших s функция $\phi(s)$ стремится к нулю, а при малых — к единице. Функция $\Theta(s)$ выражается через нее как

$$\Theta(s) = \frac{\Theta_\infty s}{s + r(1-\phi(s))}. \quad (5)$$

Отсюда видно, что если в качестве $\phi(s)$ взять преобразование Лапласа плотности вероятности, т. е. монотонно убывающую от единицы до нуля (при s изменяющемся от нуля до бесконечности) функцию, то ей будет соответствовать монотонно возрастающая функция $\Theta(s)$. При s, стремящемся к бесконечности, эта функция $\Theta(s)$ будет стремиться к конечному значению Θ_∞, а при s, стремящемся к нулю, — либо к конечному значению, либо к нулю, в зависимости от поведения функции $\phi(s)$ в окрестности нуля. Если в этой окрестности функция $\phi(s)$ представима в виде

$$\phi(s) = 1 - k_1 s + \ldots,$$

то значение будет конечным:

$$\Theta_0 = \frac{\Theta_\infty}{1 + r k_1}.$$

Если же функция $\phi(s)$ представима в виде

$$\phi(s) = 1 - k_2 s^\alpha + \ldots$$

с параметром α, заключенным в пределах от 0 до 1, то функция $\Theta(s)$ будет представима в этой окрестности в виде

$$\Theta(s) = \frac{\Theta_\infty}{r k_2} s^{1-\alpha}.$$

Из этого рассмотрения следует, что, задавая разные плотности вероятности $\phi(s)$, можно получать функции $\Theta(s)$ такие, что уравнение (1) будет описывать как переходную (переходящую в нормальную на больших временах), так и асимптотическую (продолжающуюся неограниченно долго) субдиффузию.

С использованием функции $\phi(s)$ уравнение (3) запишется как

$$s\rho(x,s) - \delta(x) = h^2 \Theta_\infty \frac{\partial^2 \rho(x,s)}{\partial x^2} - \\ - r\rho(x,s) + r\phi(s)\rho(x,s) + r\frac{1-\phi(s)}{s}\,\delta(x). \quad (6)$$

Переход к оригиналам дает

$$\frac{\partial \rho(x,t)}{\partial t} = D\frac{\partial^2 \rho(x,t)}{\partial x^2} - r\rho(x,t) + \\ + r\int_0^t \phi(t-\tau)\rho(x,\tau)\,d\tau + r\left[1 - \int_0^t \phi(\xi)\,d\xi\right]\delta(x). \quad (7)$$

Это уравнение является частным случаем уравнения (2) с коэффициентом диффузии, равным $h^2\Theta_\infty$, и функцией

$$K(t,\tau) = \phi(t-\tau) + \left[1 - \int_0^t \phi(\xi)\,d\xi\right]\delta(\tau).$$

Предпоследний член в правой части уравнения (7) соответствует возврату частицы в ранее посещавшиеся места, а последний — возврату в точку старта.

Уравнение (7) эквивалентно уравнению (1), но, в отличие от него, оно может адекватно представлять случайные блуждания с отрицательными корреляциями. Для этого необходимо, чтобы возвращающий процесс сохранял вероятность, т. е. чтобы источник и сток, проинтегрированные по всему пространству, взаимно компенсировались. Это условие выглядит следующим образом:

$$\Sigma(t) - \int_0^t \phi(t-\tau)\Sigma(\tau)\,d\tau = 1 - \int_0^t \phi(\xi)\,d\xi. \quad (8)$$

Здесь через $\Sigma(t)$ обозначена суммарная вероятность $\int_{-\infty}^{\infty} \rho(x,t)\,dx$. В случае процесса в неограниченном пространстве вероятность сохраняется: $\Sigma(t) = 1$, поэтому данное условие выполняется. Однако в случае процесса в ограниченной области с потоками вероятности через границы оно выполняться не будет. Поэтому уравнение (7) должно быть модифицировано.

В данной работе рассматривается одна из простейших возможных модификаций. Она состоит в том, что в уравнении (7) изменяется только последний член. Модифицированное уравнение записывается в виде

$$\frac{\partial \rho(x,t)}{\partial t} = D\frac{\partial^2 \rho(x,t)}{\partial x^2} - r\rho(x,t) + \\ + r\int_0^t \phi(t-\tau)\rho(x,\tau)\,d\tau + \\ + r\left[\Sigma(t) - \int_0^t \phi(t-\tau)\Sigma(\tau)\,d\tau\right]\delta(x). \quad (9)$$

Здесь величина $\Sigma(t)$ равна интегралу от $\rho(x,t)$ по всей доступной области. Очевидно, что в этом уравнении источник и сток взаимно компенсируются в любом случае. Несмотря на свою простоту, эта модификация дает качественно правильные результаты. Покажем это на двух примерах.

2.2. Вероятность выживания

Найдем вероятность выживания частицы, стартующей из точки x_0 ($x_0 > 0$) на полубесконечной прямой $x > 0$ с поглощающей границей $x = 0$. Запишем уравнение (9) в изображениях Лапласа:

$$s\rho(x,s)-\delta(x)=D\frac{\partial^2\rho(x,s)}{\partial x^2}-\\ -\kappa\rho(x,s)+\kappa\Sigma(s)\delta(x). \quad (10)$$

Здесь

$$\kappa=r(1-\phi(s))=s\left[\frac{\Theta_\infty}{\Theta(s)}-1\right].$$

Уравнение (10) по виду совпадает с уравнением, описывающим диффузию с ресеттингом (diffusion with resetting) [40]. В данном случае «скорость ресеттинга» κ зависит от переменной Лапласа. Но при вычислении вероятности выживания эта зависимость никак не сказывается, поэтому мы можем прямо воспользоваться результатом работы [40]. В этой работе получено следующее выражение для преобразования Лапласа вероятности выживания:

$$Q(s)=\frac{1-\exp\left(-x_0\sqrt{\dfrac{s+\kappa}{D}}\right)}{s+\kappa\exp\left(-x_0\sqrt{\dfrac{s+\kappa}{D}}\right)}. \quad (11)$$

Подставляя сюда

$$D=h^2\Theta_\infty,\quad \kappa=s\left[\frac{\Theta_\infty}{\Theta(s)}-1\right],$$

получаем

$$Q(s)=\frac{1-\exp\left(-x_0\sqrt{\dfrac{s}{h^2\Theta(s)}}\right)}{s+s\left[\dfrac{\Theta_\infty}{\Theta(s)}-1\right]\exp\left(-x_0\sqrt{\dfrac{s}{h^2\Theta(s)}}\right)}. \quad (12)$$

Пусть при малых s функция памяти ведет себя как $\Theta(s)\propto s^{1-\alpha}$ с параметром α, заключенным в пределах от 0 до 1. Тогда функция $Q(s)$, вычисленная по формуле (12), будет вести себя как $Q(s)\propto s^{-\alpha/2}$, а соответствующая вероятность выживания — как $Q(t)\propto t^{\alpha/2-1}$. В то же время вероятность выживания для нормальной диффузии ведет себя как $Q(t)\propto t^{-1/2}$, т. е. убывает медленнее.

Таким образом, модифицированное уравнение предсказывает, что отрицательные корреляции должны ускорять убывание вероятности выживания. Подтверждением справедливости этого предсказания является тот факт, что в модели дробного броуновского движения, в которой замедление диффузии происходит за счет отрицательных корреляций, вероятность выживания уменьшается быстрее, чем в нормальной диффузии. Если взять модель дробного броуновского движения, в которой среднеквадратичное смещение растет по закону $\mathrm{MSD}(t)\propto t^\alpha$, то вероятность выживания будет убывать по такому же закону, какой предсказывается модифицированным уравнением: $Q(t)\propto t^{\alpha/2-1}$ [41]. Кроме того, справедливость этого предсказания можно усмотреть из следующего рассуждения. Отрицательные корреляции затрудняют удаление частицы от точки старта. Значит, на больших временах частица будет находиться в некоторой ограниченной области с большей вероятностью, чем в отсутствие отрицательных корреляций. А поскольку подвижность частицы при наличии отрицательных корреляций остается такой же, как и при обычной диффузии, все точки этой области, включая поглощающую границу, будут посещаться чаще, чем при обычной диффузии. Следовательно, вероятность для частицы выжить на больших временах при наличии отрицательных корреляций будет меньше, чем в их отсутствие.

Напомним, что в случае нестацинарной субдиффузии, описываемой уравнением (1), при функции памяти $\Theta(s)\propto s^{1-\alpha}$ вероятность выживания на больших временах ведет себя как $Q(t)\propto t^{-\alpha/2}$, т. е. она убывает медленнее, чем при нормальной диффузии.

Второй пример — это вычисление среднего времени прохождения для частицы, стартующей из точки x_0 на интервале (a,b) с поглощающими границами. Здесь тоже можно воспользоваться результатом для диффузии с ресеттингом. В работе [42] получено следующее выражение для преобразования Лапласа вероятности выживания:

$$Q(s)=\frac{1-g(x_0,s)}{s+\kappa g(x_0,s)}, \quad (13)$$

где

$$g(x_0,s)=\frac{\exp\left[(b-x_0)\sqrt{\dfrac{s+\kappa}{D}}\right]+\exp\left[(x_0-a)\sqrt{\dfrac{s+\kappa}{D}}\right]}{1+\exp\left[(b-a)\sqrt{\dfrac{s+\kappa}{D}}\right]} \quad (14)$$

(данное выражение для $g(x_0, s)$ получается в результате упрощения выражения, приведенного в работе [42]). Среднее время первого прохождения вычисляется по формуле $T_r = \lim_{s\to 0} Q(s)$. Подставляя

$$D = h^2\Theta_\infty, \quad \kappa = s\left[\frac{\Theta_\infty}{\Theta(s)} - 1\right]$$

в выражения (13) и (14) и устремляя s к нулю, получаем для T_r конечное значение:

$$T_r = \frac{(b - x_0)(x_0 - a)}{2h^2\Theta_\infty}. \tag{15}$$

Как известно, уравнение (1) дает

$$T_r = \frac{(b - x_0)(x_0 - a)}{2h^2\Theta(0)}. \tag{16}$$

При $\Theta(s) \propto s^{1-\alpha}$ это значение будет бесконечным. Тот факт, что для субдиффузии, обусловленной отрицательными корреляциями, среднее время первого прохождения в рассматриваемом случае должно быть конечным, подтверждается соответствующим результатом модели дробного броуновского движения [43].

2.3. Переносной член

В заключение данного раздела запишем полное транспортное уравнение для модели случайных барьеров, включающее переносной член, обусловленный зависящей от пространственной координаты и времени силой. Поскольку, согласно уравнению (9), возвращающий процесс и диффузия являются независимыми процессами, естественно предположить, что, так же как и в уравнении Фоккера–Планка, переносной член должен быть просто добавлен к правой части:

$$\frac{\partial\rho(x,t)}{\partial t} = D\frac{\partial^2\rho(x,t)}{\partial x^2} - \frac{D}{k_BT}\frac{\partial[F(x,t)\rho(x,t)]}{\partial x} - r\rho(x,t) + r\int_0^t \phi(t-\tau)\rho(x,\tau)\,d\tau + r\left[\Sigma(t) - \int_0^t \phi(t-\tau)\Sigma(\tau)\,d\tau\right]\delta(x). \tag{17}$$

Здесь k_B — постоянная Больцмана, T — абсолютная температура, $F(x,t)$ — сила. В случае, когда вероятность сохраняется, т. е. когда $\Sigma(t) = 1$, это уравнение можно, исключая источник и сток, привести к виду

$$\frac{\partial\rho(x,t)}{\partial t} = h^2\int_0^t \Theta(t-\tau)\frac{\partial^2\rho(x,\tau)}{\partial x^2}\,d\tau - \frac{h^2}{k_BT}\int_0^t \Theta(t-\tau)\frac{\partial[F(x,\tau)\rho(x,\tau)]}{\partial x}\,d\tau. \tag{18}$$

Это уравнение ранее было получено в рамках модели случайных барьеров в работе [30].

3. СУБДИФФУЗИЯ СМЕШАННОГО ПРОИСХОЖДЕНИЯ

3.1. Транспортное уравнение

Транспортное уравнение для комбинации модели случайных барьеров и модели многократного захвата, предложенное в работах [27–33], имеет следующий вид:

$$\frac{\partial\rho(x,t)}{\partial t} = h^2\int_0^t \Theta(t-\xi)\int_0^\xi \Psi(\xi-\tau)\frac{\partial^2\rho(x,\tau)}{\partial x^2}\,d\tau\,d\xi - \frac{h^2}{k_BT}\int_0^t \Theta(t-\xi)\frac{\partial}{\partial x}\left[F(x,\xi)\int_0^\xi \Psi(\xi-\tau)\rho(x,\tau)\,d\tau\right]d\xi + h^2\int_0^t \Theta(t-\xi)\frac{\partial^2\rho(x,0)}{\partial x^2}\int_\xi^\infty \Psi(\tau)\,d\tau\,d\xi - \frac{h^2}{k_BT}\int_0^t \Theta(t-\xi)\frac{\partial[F(x,\xi)\rho(x,0)]}{\partial x} \times \int_\xi^\infty \Psi(\tau)\,d\tau\,d\xi. \tag{19}$$

Здесь $\Theta(t)$ — функция памяти, обусловленная барьерами, а $\Psi(t)$ — функция памяти, обусловленная ловушками. Данный вариант уравнения соответствует равновесному начальному распределению вероятности между транспортным состоянием и ловушками. Если в начальный момент времени частица с вероятностью, равной единице, находится в транспортном состоянии, то два последних члена уравнения (19), содержащие $\rho(x,0)$, будут отсутствовать. Следует отметить, что модель многократного захвата эквивалентна континуальному пределу модели случайных блужданий с непрерывным временем [15, 16], поэтому данное уравнение справедливо также и в модели субдиффузии смешанного происхождения, представляющей собой комбинацию модели случайных барьеров и модели случайных блужданий с непрерывным временем.

Согласно изложенному выше, уравнение (19) справедливо только в применении к процессам, сохраняющим вероятность. Чтобы получить уравнение, справедливое в общем случае, нужно преобразовать это уравнение аналогично тому, как это было сделано в предыдущем разделе для уравнения модели случайных барьеров. В результате этих преобразований получается следующее уравнение:

$$\frac{\partial \rho(x,t)}{\partial t} = h^2 \int\limits_0^t \Psi(t-\tau)\frac{\partial^2 \rho(x,\tau)}{\partial x^2}\,d\tau - \\ - \frac{h^2}{k_B T}\frac{\partial}{\partial x}\left[F(x,t)\int\limits_0^t \Psi(t-\tau)\rho(x,\tau)\,d\tau\right] + \\ + h^2 \frac{\partial^2 \rho(x,0)}{\partial x^2}\int\limits_t^\infty \Psi(\tau)\,d\tau - \\ - \frac{h^2}{k_B T}\frac{\partial[F(x,t)\rho(x,0)]}{\partial x}\int\limits_t^\infty \Psi(\tau)\,d\tau - \\ - r\rho(x,t) + r\int\limits_0^t \phi(t-\tau)\rho(x,\tau)\,d\tau + \\ + r\left[\Sigma(t) - \int\limits_0^t \phi(t-\tau)\Sigma(\tau)\,d\tau\right]\rho(x,0). \qquad (20)$$

Здесь предполагается, что параметр Θ_∞, фигурирующий в преобразованиях, равен единице. Это предположение допустимо, поскольку функции $\Theta(s)$ и $\Psi(s)$ входят в уравнение (19) таким образом, что однозначно должно быть определено только их произведение. Относительно вида уравнения (20) можно сказать следующее. Если в его правой части оставить только два первых члена, то получим транспортное уравнение для модели многократного захвата (а также CTRW), соответствующее неравновесному начальному условию. Если оставить четыре члена, то получим транспортное уравнение для этой модели, соответствующее равновесному начальному условию. Источники и стоки в этом уравнении имеют такой же смысл и такой же вид, как и в уравнениях (9) и (17), за исключением того, что начальное распределение вероятности записано в общем виде ($\rho(x,0)$ вместо $\delta(x)$).

3.2. Субдиффузия в гармоническом потенциале

В данном разделе транспортное уравнение (20) применяется к описанию субдиффузии в гармоническом потенциале. С помощью этого уравнения вычисляются преобразование Лапласа функции релаксации $\Gamma(s)$ и динамическая восприимчивость $B(\omega)$. Показывается, что найденные функции удовлетворяют соотношению

$$B(\omega) = 1 - i\omega\Gamma(i\omega),$$

требуемому теорией линейного отклика. Этот факт может служить подтверждением термодинамической согласованности уравнения (20).

Функция релаксации вычисляется в два этапа. Вначале находится стационарное распределение вероятности в присутствии постоянной возмущающей силы. Затем это распределение используется в качестве начального распределения и вычисляется его релаксация к равновесному состоянию в отсутствие возмущающей силы.

В стационарном состоянии все члены уравнения (20) исчезают, кроме двух первых членов в правой части. Для определения стационарного распределения остается уравнение

$$h^2\Psi_0 \frac{\partial^2 \rho(x)}{\partial x^2} = \frac{h^2\Psi_0}{k_B T}\frac{\partial[F(x)\rho(x)]}{\partial x}. \qquad (21)$$

Здесь

$$\Psi_0 = \int\limits_0^\infty \Psi(\tau)\,d\tau, \quad F(x) = a - bx,$$

a — постоянная составляющая силы, $-bx$ — гармоническая составляющая силы. Решением этого уравнения является

$$\rho(x) = \exp\left[\frac{ax}{k_B T} - \frac{bx^2}{2k_B T}\right]. \qquad (22)$$

Предполагая возмущающую силу малой, запишем это как

$$\rho_0(x) = \left[1 + \frac{ax}{k_B T}\right]\exp\left[-\frac{bx^2}{2k_B T}\right]. \qquad (23)$$

Эта функция далее используется в качестве начального распределения при решении уравнения (20), записанного в изображениях Лапласа:

$$s\rho(x,s) - \rho_0(x) = h^2\Psi(s)\frac{\partial^2\rho(x,s)}{\partial x^2} + \frac{h^2\Psi(s)}{k_BT}\frac{\partial[bx\rho(x,s)]}{\partial x} + \frac{h^2(\Psi_0 - \Psi(s))}{s}\frac{\partial^2\rho_0(x)}{\partial x^2} + \frac{h^2(\Psi_0-\Psi(s))}{sk_BT}\frac{\partial[bx\rho_0(x)]}{\partial x} - r(1-\phi(s))\rho(x,s) + r\frac{1-\phi(s)}{s}\rho_0(x). \quad (24)$$

Решение этого уравнения ищем в виде

$$\rho(x,s) = \left[\frac{1}{s} + \Gamma(s)\frac{ax}{k_BT}\right]\exp\left[-\frac{bx^2}{2k_BT}\right]. \quad (25)$$

Подставляя соотношения (23) и (25) в уравнение (24), находим, что это уравнение удовлетворяется при функции релаксации

$$\Gamma(s) = \frac{1}{s}\left[1 - \frac{\dfrac{h^2b}{k_BT}\Psi_0}{s + r(1-\phi(s)) + \dfrac{h^2b}{k_BT}\Psi(s)}\right]. \quad (26)$$

С использованием функции $\Theta(s)$ это выражение можно переписать как

$$\Gamma(s) = \frac{1}{s}\left[1 - \frac{\dfrac{h^2b}{k_BT}\Psi_0\Theta(s)}{s + \dfrac{h^2b}{k_BT}\Psi(s)\Theta(s)}\right]. \quad (27)$$

Ранее выражение для функции релаксации, эквивалентное данному, было получено методом субординации [32].

Чтобы найти динамическую восприимчивость, прибавим к гармонической силе периодическую возмущающую силу

$$F_0\exp(i\omega t), \quad (28)$$

где ω — частота. На больших временах решение уравнения (20) с такими силами будет периодическим и имеет вид

$$\rho(x,t) = \left[1 + \frac{F_0B(\omega)x}{k_BT}\exp(i\omega t)\right] \times \exp\left(-\frac{bx^2}{2k_BT}\right), \quad (29)$$

где $B(\omega)$ — динамическая восприимчивость, которую требуется найти. На больших временах члены уравнения (20), содержащие начальное распределение $\rho(x,0)$, стремятся к нулю. Следовательно, нужно решить уравнение

$$\frac{\partial\rho(x,t)}{\partial t} = h^2\int_0^t \Psi(t-\tau)\frac{\partial^2\rho(x,\tau)}{\partial x^2}\,d\tau + \frac{h^2}{k_BT} \times \frac{\partial}{\partial x}\left[(bx - F_0\exp(i\omega t))\int_0^t \Psi(t-\tau)\rho(x,\tau)\,d\tau\right] - r\rho(x,t) + r\int_0^t \phi(t-\tau)\rho(x,\tau)\,d\tau. \quad (30)$$

Подставляя сюда (29), устремляя t к бесконечности и пренебрегая членом с F_0^2, находим

$$B(\omega) = \frac{\dfrac{h^2b}{k_BT}\Psi_0}{i\omega + r(1-\phi(i\omega)) + \dfrac{h^2b}{k_BT}\Psi(i\omega)}. \quad (31)$$

Как видим, соотношение $B(\omega) = 1 - i\omega\Gamma(i\omega)$ удовлетворяется.

3.3. Определение функций памяти

В данном разделе приводятся выражения, позволяющие находить функции $\Psi(s)$ и $\phi(s)$ по известным первому и второму моментам в случае процессов с постоянной силой или по второму и четвертому моментам в случае отсутствия силы при равновесном начальном условии. Показывается, что рассматриваемая модель способна описывать броуновскую, но не гауссову диффузию.

Решение уравнения (20) с начальным условием $\rho(x,0) = \delta(x)$ в неограниченном пространстве при наличии постоянной силы F в переменных Фурье–Лапласа имеет вид

$$\rho(k,s) = \frac{1}{s}\left[1 - \frac{\Psi_0}{\Psi(s)}\right] + \frac{\Psi_0}{\Psi(s)}\frac{1}{s + h^2\Psi(s)\Theta(s)(k^2 - i\eta k)}, \quad (32)$$

где k — переменная Фурье, $\eta = F/k_BT$. Функция $\Theta(s)$, как и прежде, выражается через $\phi(s)$:

$$\Theta(s) = \frac{s}{s + r(1-\phi(s))}.$$

Заметим, что решение, соответствующее неравновесному начальному условию, находится отсюда путем подстановки $\Psi(s)$ вместо Ψ_0, в результате чего получается выражение, содержащее только произведение функций $\Psi(s)$ и $\Theta(s)$. Такое выражение не позволяет найти эти функции по отдельности.

С использованием функции (32) моменты вычисляются по формуле

$$M_n(s) = \frac{1}{i^n} \frac{\partial^n \rho(k,s)}{\partial k^n}.$$

Первый и второй моменты записываются как

$$M_1(s) = \frac{h^2\Psi_0 \eta}{s[s + r(1-\phi(s))]}, \tag{33}$$

$$M_2(s) = \frac{2h^2\Psi_0\Theta(s)}{s^2}\left[1 + \frac{h^2\Psi(s)\Theta(s)\eta^2}{s}\right]. \tag{34}$$

Из (33) функция $\phi(s)$ выражается следующим образом:

$$\phi(s)) = 1 - \frac{1}{r}\left[\frac{h^2\Psi_0\eta}{sM_1(s)} - s\right]. \tag{35}$$

Фигурирующие здесь параметр r и произведение $h^2\Psi_0$ находятся из условия, чтобы функция $\phi(s)$ стремилась к нулю, когда s стремится к бесконечности. Это дает

$$h^2\Psi_0 = \frac{A}{\eta}, \quad r = \frac{B}{A},$$

где A и B — коэффициенты в разложении функции $M_1(s)$ при больших s:

$$M_1(s) \approx \frac{A}{s^2} - \frac{B}{s^3} + \ldots$$

Таким образом, по известному первому моменту находим параметр r, произведение $h^2\Psi_0$ и функцию $\phi(s)$. Затем на основе первого и второго моментов можно найти произведение $h^2\Psi(s)$:

$$h^2\Psi(s) = h^2\Psi_0\frac{\eta M_2(s) - 2M_1(s)}{2\eta s M_1^2(s)}. \tag{36}$$

Как и в случае обычной диффузии, по известному пропагатору найти средний квадрат диффузионного скачка h^2 невозможно. Однозначно определяется только коэффициент диффузии в случае нормальной диффузии или произведение $h^2\Psi(s)$ в рассматриваемом здесь случае.

Второй и четвертый моменты при равной нулю силе записываются как

$$M_2(s) = \frac{2h^2\Psi_0}{s[s + r(1-\phi(s))]}, \tag{37}$$

$$M_4(s) = \frac{24h^2\Psi_0 h^2\Psi(s)\Theta(s)^2}{s^3}. \tag{38}$$

Из (37) функция $\phi(s)$ выражается следующим образом:

$$\phi(s) = 1 - \frac{1}{r}\left[\frac{2h^2\Psi_0}{sM_2(s)} - s\right]. \tag{39}$$

Параметр r и произведение $h^2\Psi_0$ находятся по формулам

$$h^2\Psi_0 = \frac{A}{2}, \quad r = \frac{B}{A},$$

где A и B — коэффициенты в разложении функции $M_2(s)$ при больших s:

$$M_2(s) \approx \frac{A}{s^2} - \frac{B}{s^3} + \ldots$$

Произведение $h^2\Psi(s)$ находится на основе второго и четвертого моментов по формуле

$$h^2\Psi(s) = h^2\Psi_0\frac{M_4(s)}{6sM_2^2(s)}. \tag{40}$$

Аналогичные выражения для второго и четвертого моментов были получены в работе [44]. Авторы этой работы использовали для описания субдиффузии смешанного происхождения комбинацию модели CTRW и модели составных процессов [45]. Обе эти модели являются нестационарными, поэтому авторы трансформировали модель CTRW так, чтобы результирующая модель могла проявлять стационарные свойства (см. в [44] Supplementary Information Text S15). Вследствие этого их основное уравнение фактически соответствует не комбинации «CTRW + составные процессы», а комбинации «случайные барьеры + составные процессы». Следует отметить, что модель многократного захвата является частным видом модели составных процессов [45], поэтому полученные в настоящей работе выражения (37) и (38) могут быть получены как частные случаи общих выражений, выведенных в [44].

Из выражений (37) и (38) следует, что в отсутствие случайных барьеров, т. е. при $\Theta(s) = \phi(s) = 1$, рассматриваемая модель описывает броуновскую, но не гауссову диффузию. Интересно, что если взять модель многократного захвата с одним типом ловушек, то выражение для эксцесса в рассматриваемой здесь модели совпадает с таковым в модели работы [46], построенной по принципу субординации с проинтегрированным квадратом процесса Орнштейна – Уленбека в качестве субординатора.

В модели многократного захвата с одним типом ловушек произведение $h^2\Psi(s)$ записывается как

$$h^2\Psi(s) = \frac{h^2W(s+\nu)}{s+\nu+\omega}, \tag{41}$$

где W — частота диффузионных скачков, ω — скорость перехода из транспортного состояния в ловушки, ν — скорость перехода из ловушек в транспортное состояние. В этом случае выражения для второго и четвертого моментов как функций времени при $\Theta(s) = \phi(s) = 1$ приобретают вид

$$M_2(t) = 2Dt, \tag{42}$$

$$M_4(t) = 24D^2\left[\frac{t^2}{2} + \frac{a}{\lambda^2}(e^{-\lambda t} - 1) + \frac{a}{\lambda}t\right], \tag{43}$$

где

$$D = \frac{h^2 W\nu}{\nu + \omega}, \quad \lambda = \nu + \omega, \quad a = \frac{\omega}{\nu}.$$

Если в качестве масштаба времени взять $2/(\nu + \omega)$, то получается следующее выражение для эксцесса $K = M_4(t)/M_2^2(t)$:

$$K = 3 + \frac{3a}{2t^2}(e^{-2t} - 1) + \frac{3a}{t}. \tag{44}$$

При соответствующем соотношении скоростей ν и ω (при $\omega = 2\nu$) это совпадает с результатом, полученным в работе [46].

3.4. Аналитические выражения для функций памяти

В данном разделе приводятся аналитические выражения для функций $h^2\Psi(t)$ и $\phi(t)$, предназначенные для использования при численном решении транспортного уравнения.

Простейшее выражение для функции $h^2\Psi(t)$ получается в результате перехода от изображений Лапласа к оригиналам в выражении (41):

$$h^2\Psi(t) = D\left[(1 + a)\delta(t) - a\lambda e^{-\lambda t}\right]. \tag{45}$$

Этому выражению соответствует следующая зависимость среднеквадратичного смещения от времени в процессе, стартующем из неравновесного состояния в отсутствие случайных барьеров:

$$\mathrm{MSD}(t) = 2D\left[t + \frac{a}{\lambda}\left(1 - e^{-\lambda t}\right)\right]. \tag{46}$$

Данная зависимость качественно правильно передает поведение среднеквадратичного смещения, обычно наблюдающегося в эксперименте. В некоторых случаях она может давать и количественное описание [47].

Выражение для $\Theta(t)$, аналогичное (45), выглядит следующим образом:

$$\Theta(t) = \delta(t) - re^{-(r+\kappa)t}. \tag{47}$$

Здесь r — как и прежде, скорость возвращающего процесса, а κ — формальный параметр. Соответствующее выражение для $\phi(t)$ записывается как

$$\phi(t) = \kappa e^{-\kappa t}. \tag{48}$$

В отсутствие ловушек, т. е. при $h^2\Psi(t) = h^2W$, эти выражения дают зависимость среднеквадратичного смещения от времени, совпадающую с (46) при следующих значениях параметров:

$$D = \frac{h^2 W\kappa}{r + \kappa}, \quad \lambda = r + \kappa, \quad a = \frac{r}{\kappa}.$$

Выражения, позволяющие количественно описывать не только переходную, но и асимптотическую субдиффузию, можно получить с использованием степенных функций. Функцию $h^2\Psi(t)$ возьмем в виде

$$h^2\Psi(t) = h^2W\left[\delta(t) - \frac{a\nu(1-\alpha)}{(1+\nu t)^{2-\alpha}}\right] \tag{49}$$

с формальными параметрами a, ν, α, удовлетворяющими условиям $a \in [0, 1]$, $\nu > 0$, $\alpha < 1$. Этому выражению соответствует следующая зависимость среднеквадратичного смещения от времени в процессе, стартующем из неравновесного состояния в отсутствие случайных барьеров:

$$\mathrm{MSD}(t) = 2h^2W\left[(1-a)t + \frac{a}{\nu\alpha}((1+\nu t)^{\alpha} - 1)\right] \tag{50}$$

при $\alpha \neq 0$ и

$$\mathrm{MSD}(t) = 2h^2W\left[(1 - a)t + \frac{a}{\nu}\ln(1 + \nu t)\right] \tag{51}$$

при $\alpha = 0$. Если параметр a не равен единице, то эти зависимости соответствуют переходной субдиффузии, а если $a = 1$ и $\alpha \in (0, 1)$, то — асимптотической. Следует отметить, что если в (49) положить $a = 1$, то величина Ψ_0, фигурирующая в формуле (37), будет равна нулю. Это означает, что при достижении равновесного состояния частицы полностью теряют подвижность, т. е. такая модель описывает только процессы, стартующие из неравновесного состояния.

Аналогом выражения (49) для функции $\phi(t)$ является

$$\phi(t) = \frac{\kappa(1-\beta)}{(1+\kappa t)^{2-\beta}}, \tag{52}$$

где κ и β — формальные параметры, удовлетворяющие условиям $\kappa > 0$, $\beta < 1$. С такой функцией $\phi(t)$ рассматриваемая модель в отсутствие ловушек описывает переходную субдиффузию при $\beta \leq 0$ и асимптотическую при $\beta \in (0,1)$. Это следует из того, что преобразование Лапласа функции (52) при малых s имеет вид $\phi(s) = 1 - k_1 s + \ldots$, если $\beta \le 0$, и $\phi(s) = 1 - k_2 s^\gamma + \ldots$ с параметром γ, меньшим единицы, если $\beta \in (0,1)$.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Рассмотренное в данной работе транспортное уравнение предназначено для описания процессов в неупорядоченных средах со статическим беспорядком. Фигурирующие в этом уравнении функции памяти должны определяться на основании экспериментальных данных. Для этой цели могут использоваться данные различных экспериментов: восстановление флуоресценции после обесцвечивания (fluorescence recovery after photobleaching, FRAP), флуоресцентная корреляционная спектроскопия (fluorescence correlation spectroscopy, FCS), отслеживание одиночной частицы (single particle tracking, SPT) и др. Некоторые теоретические формулы, устанавливающие связь между функциями памяти и экспериментальными данными, приведены в данной работе. Это выражения для функции релаксации, для динамической восприимчивости и для моментов функции распределения. В работе [31] приведена зависимость проводимости от частоты, а в работе [33] — выражения, описывающие кривые, получаемые в FRAP-, FCS- и SPT-экспериментах.

Неупорядоченные среды отличаются большим разнообразием свойств, поэтому универсальных, применимых к любой среде аналитических выражений для функций памяти не существует. В каждом случае аналитическое выражение должно подбираться так, чтобы оно удовлетворительно описывало найденные на основании эксперимента зависимости. (По-видимому, впервые подобный подход использовался в работе [44].) В настоящей работе приведены простейшие выражения, которые могут рассматриваться как первые претенденты на роль функций памяти. Если они оказываются неудовлетворительными, то следует брать более сложные выражения. Например, вместо одной экспоненты в формуле (45) или одной степенной функции в формуле (49) следует соответственно взять взвешенную сумму нескольких экспонент или степенных функций. После того как функции памяти определены, транспортное уравнение можно использовать для решения конкретных задач.

ЛИТЕРАТУРА

1. R. Metzler and J. Klafter, J. Phys. A **37**, R61 (2004).

2. *Anomalous Transport: Foundations and Applications*, ed. by R. Klages, G. Radons, and I. M. Sokolov, Wiley-VCH, Weinheim (2007).

3. S. Havlin and D. Ben-Avraham, Adv. Phys. **51**, 187 (2002).

4. I. M. Sokolov, Soft Matter **8**, 9043 (2012).

5. F. Höfling and T. Franosch, Rep. Progr. Phys. **76**, 046602 (2013).

6. J. W. Haus and K. W. Kehr, Phys. Rep. **150**, 264 (1987).

7. V. M. Kenkre, Z. Kalay, and P. E. Parris, Phys. Rev. E **79**, 011114 (2009).

8. J. C. Dyre, J. Non-Crist. Sol. **135**, 219 (1991).

9. M. J. Saxton, Biophys. J. **66**, 394 (1994).

10. B. J. Sung and A. Yethiraj Phys. Rev. Lett. **96**, 228103 (2006).

11. Y. Meroz, I. M. Sokolov, and J. Klafter, Phys. Rev. E **81**, 010101 (2010).

12. R. Kupferman, J. Stat. Phys. **114**, 291 (2004).

13. А. Н. Колмогоров, ДАН СССР **26**, 115 (1940).

14. B. B. Mandelbrot and J. W. van Ness, SIAM Rev. **10**, 422 (1968).

15. P. W. Shmidlin, Phys. Rev. B **16**, 2362 (1977).

16. J. Noolandi, Phys. Rev. B **16**, 4474 (1977).

17. E. W. Montroll and G. H. Weiss, J. Math. Phys. **6**, 167 (1965).

18. M. V. Chubynsky and G. W. Slater, Phys. Rev. Lett. **113**, 098302 (2014).

19. D. Mazza, A. Abernathy, N. Golob, T. Morisaki, and J. G. McNally, Nucl. Acids Res. **40**, e119 (2012).

20. T. J. Stasevich, F. Mueller, A. Michelman-Ribeiro, T. Rosales, J. R. Knutson, and J. G. McNally, Biophys. J. **99**, 3093 (2010).

21. A. V. Weigel, B. Simon, M. M. Tamkun, and D. Krapf, PNAS **108**, 6438 (2011).

22. J.-H. Jeon, V. Tejedor, S. Burov, E. Barkai, C. Selhuber-Unkel, K. Berg-Sørensen, L. Oddershede, and R. Metzler, Phys. Rev. Lett. **106**, 048103 (2011).

23. S. M. A. Tabei, S. Burov, H. Y. Kim, A. Kuznetsov, T. Huynh, J. Jureller, L. H. Philipson, A. R. Dinner, and N. F. Scherer, PNAS **110**, 49114916 (2013).

24. T. Miyaguchi and T. Akimoto, Phys. Rev. E **91**, 010102(R) (2015).

25. Y. Golan and E. Sherman, Nature Comm. **8**, 15851 (2017).

26. T. Furnival, R. K. Leary, E. C. Tyo, S. Vajda, Q. M. Ramasse, J. M. Thomas, P. D. Bristowe, and P. A. Midgleya, Chem. Phys. Lett. **683**, 370 (2017).

27. W. Schirmacher, Sol. St. Comm. **39**, 893 (1981).

28. B. Movaghar, M. Grünewald, B. Pohlmann, D. Würtz, and W. Schirmacher, J. Stat. Phys. **30**, 315 (1983).

29. K. Godzik and W. Schirmacher, J. de Phys. **42**, 127 (1981).

30. В. П. Шкилев, ЖЭТФ **141**, 953 (2012).

31. В. П. Шкилев, ЖЭТФ **142**, 181 (2012).

32. V. P. Shkilev, Phys. Rev. E **97**, 012102 (2018).

33. V. P. Shkilev, Phys. Rev. E **98**, 032140 (2018).

34. Y. Meroz, I. M. Sokolov, and J. Klafter, Phys. Rev. Lett. **107**, 260601 (2011).

35. E. Bolthausen and U. Schmock, Ann. Probab. **25**, 531 (1997).

36. H. G. Othmer and A. Stevens, SIAM J. Appl. Math. **57**, 1044 (1997).

37. D. Boyer and C. Solis-Salas, Phys. Rev. Lett. **112**, 240601 (2014).

38. D. Boyer and J. C. Romo-Cruz, Phys. Rev. E **90**, 042136 (2014).

39. D. Boyer, M. R. Evans, and S. N. Majumdar, J. Stat. Mech. **2017**, 023208 (2017).

40. M. R. Evans and S. N. Majumdar, Phys. Rev. Lett. **106**, 160601 (2011).

41. J. H. Jeon, A. V. Chechkin, and R. Metzler, in *First-Passage Phenomena and Their Applications*, Vol. 35, ed. by R. Metzler, S. Redner, and G. Oshanin, World Scientific (2014), p. 175.

42. A. Pal and V. V. Prasad, Phys. Rev. E **99**, 032123 (2019).

43. D. O'Malley, J. H. Cushman, and G. Johnson, J. Stat. Mech.: Theory and Experiment **2011**, L01001 (2011).

44. S. Song, S. J. Park, M. Kim, J. S. Kim, B. J. Sung, S. Lee, J.-H. Kim, and J. Sung, PNAS **116**, 12733 (2019).

45. Н. Г. Ван Кампен, *Стохастические процессы в физике и химии*, Высшая школа, Москва (1990).

46. A. V. Chechkin, F. Seno, R. Metzler, and I. M. Sokolov, Phys. Rev. X **7**, 021002 (2017).

47. N. Destainville, A. Sauliere, and L. Salome, Biophys. J. **95**, 3117 (2008).