行政院國家科學委員會補助專題研究計畫 ■ 成 果 報 告
□期中進度報告

以本徵值處理薄膜擴散

計畫類別：■ 個別型計畫　　□ 整合型計畫
計畫編號：NSC　94－2113－M－009－015－
執行期間：　　2005 年 08 月 01 日至 2006 年 12 月 31 日

計畫主持人：陳振興
共同主持人：
計畫參與人員： 廖培真、陳淑媺、楊凱婷

成果報告類型(依經費核定清單規定繳交)：■精簡報告　□完整報告

本成果報告包括以下應繳交之附件：
□赴國外出差或研習心得報告一份
□赴大陸地區出差或研習心得報告一份
□出席國際學術會議心得報告及發表之論文各一份
□國際合作研究計畫國外研究報告書一份

處理方式：除產學合作研究計畫、提升產業技術及人才培育研究計畫、列管計畫及下列情形者外，得立即公開查詢
□涉及專利或其他智慧財產權，■一年□二年後可公開查詢

執行單位：國立交通大學

中　華　民　國　96　年　3　月　29　日

目　　錄

1.中英文摘要---Ⅲ

2. 前言，研究目的及文獻探--1

3. 研究方法--2

4. 結果與討論---6

5. Appendix (A)--7

6. References--8

中文摘要 ：

自不同的起始及邊界條件在解出 Laplace domain 下的薄膜擴散傳輸方程式，求出各條件下的擴散流速與傳輸矩陣元素的關係。例如，上游(x = 0)是反射面，下游(x = h)是吸收面，起始點在 x = 0 有一單位濃度擴散質，在 x = h 的擴散流為 $\hat{J}_d(s) = 1/T_{11}(s)$，然後將 $\hat{J}_d(s)$ 作泰勒級數展開，發現展開係數恰為 $J_d(t)$ 的各階矩(moment)。而另一方面各階距又可以用相同邊界條件的定常擴散方程式本微值表示出來。最後將 $\hat{J}_d(s)$ 以本微值表示係數的泰勒展開式代入 $\hat{J}_d(s) = 1/T_{11}(s)$ 即可求 T_{11}(s)的泰勒展開式，其中係數以上述本微值表示。同樣操作，可陸續求 T_{12}(s), T_{22}(s)的泰勒級數展開式。最後利用恆等式 det[T(s)] = $T_{11}(s)T_{22}(s) - T_{12}(s)T_{21}(s) = 1$，也可以將 T_{21}(s)的泰勒展開式其展開係數以各式本微值表示。此結果有很多應用，譬如延滯時間的互易性即是一列。

關鍵詞: 本徵值、薄膜擴散、傳輸矩陣、格林函數。

Abstract :

With the help of the solution of the downstream flux, $\hat{J}(s)$, from the membrance transport equation in the Laplace domain at appropriate initial and boundary conditions, the relation between flux and the element of the transmission Matrix, $T(s)$, are found. The flux then is to be expended as a Taylor's series of s with the expansion coefficients expressed by the time moments of the flux. The latter in turn can be expressed by the eigenvalues of the steady-state diffusion equation with the same boundary conditions. Thus, with the relationship of $\hat{J}(s)$ and the element of $T(s)$, one can further express this matrix element as a Taylor's series of s with expansion coefficients expressed by the function of the corresponding eigenvalues. Taylor's expansion of $T_{11}(s), T_{12}(s), T_{22}(s)$ in terns of eigen values can all be obtained in this manner. The remaining $T_{21}(s)$ can be obtained from the identity det [T(s)] = $T_{11}(s)T_{22}(s) - T_{12}(s)T_{21}(s) = 1$. Once the eigenvalue expression of the elements of the transmission matrix has been established, applications to membrance transports are facilitated.

Keywords: eigenvalue、membrance diffusion、transmission matrix、Green‘s function

前言，研究目的及文獻探討

薄膜擴散有多方面的應用，如藥物貼片[1]，分離過程[2,3]，汙染防護[4]，近年來也應用於薄膜反應器[5,6]及生体感應器[5]，其重要性自不待言。由於有如此的廣泛用途，科學家投入了大量工作探討擴散質在薄膜內的擴散的理論，工程師也利用前者所得到的結果提出更新穎設計以供應用。但一般的理論探討著重於滲透係數（permeability），而後又有延滯時間（time lag）的加入，後者大致上是代表起始條件薄膜無擴散時需要多少時間方能達到穩態（steady-state）的量度。後來當起始條件改變為擴散值呈飽和狀態則另有提前時間（lead time）這個參數。以往數學處理是解擴散方程式。但除了幾個極簡單的例子外，一般要得到完整解是很困難的。後Segel[7]提出援用電路學input-curcuit-output的概念，用傳輸矩陣處理薄膜擴散。我們也利用Segal的概念，提出了延滯時間，平均首度通過時間的數值計算法[8]，並且提出在各邊界起始條件下的傳輸矩陣方程[9,10]。

G. H. Weiss的一篇文章[11]提出了平均首度通過時間(mean first passage time) 可以用定常擴散方程式 (steady-state diffusion equation) 的本徵值（eigenvalue）表示。 這啟發我們猜測其他的擴散參數，如延滯時間 (time lag)，提前時間 (time lead) 等是否也可以用eigenvalue來表示。我們曾經利用單步距冉規走動 (one-step random walk) 模擬薄膜擴散將各位置擴散質的濃度隨時間的改變化為聯立一階微分方程式，以矩陣的數學方法處理，得到延滯時間(t_L)可以用遷移矩陣 (transition matrix) A的反矩陣A^{-1}的trace或兩端邊界值皆為 0 的定常擴散方程eigenvalue λ_i 的倒數和表示，即 $t_L = trace\,(A^{-1}) = \sum_i \frac{1}{\lambda_i}$ [12]。這個結果大大地鼓舞了我們對此猜測的信心，而擴此類研究工作的範圍。以傳輸方程式[8-10]

$$\begin{bmatrix} a_d(s) \\ J_d(s) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} T_{11}(s) & T_{12}(s) \\ T_{21}(s) & T_{22}(s) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a_u(s) \\ J_u(s) \end{bmatrix} + T^*(s) \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \end{bmatrix}$$

中的傳輸矩陣 (transmission matrix) 的矩陣元素皆以各式 (即各種不同的邊界條件) 的eigenvalues 表示。一旦此任務成功，則其他的擴散參數，經由這傳輸矩陣可以一一的用各式的 eigenvalues 表示。

研究方法

設薄膜自x = 0 延展到x = h，對於一粒子位於x_0位置 $(0 < x_0 < h)$，其初始狀濃度為Dirac delta-function 的傳輸表示式可寫成[8]

$$\begin{bmatrix} \hat{a}_d(s) \\ \hat{J}_d(s) \end{bmatrix} = T(s) \begin{bmatrix} \hat{a}_u(s) \\ \hat{J}_u(s) \end{bmatrix} + T^*(s) \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \end{bmatrix} \tag{1}$$

$\hat{a}_u(s)$, $\hat{J}_u(s)$ 分別為上游端的活性(activity)與通量(flux)，下游端的對應量以 $\hat{a}_d(s)$, $\hat{J}_d(s)$ 表示。 T(s)為 0 到h 2x2 傳輸矩陣，$T^*(s)$為$x_0 \to h$之 2x2 之傳輸矩陣。就下列四種情形，求取矩陣各元素的Eignevalue表示式

(A) 若粒子初始位於反射面(reflecting face)，$x = 0$，而 $x = h$ 為吸收面(absorbing face)，在此起始條件下，$T^*(s) = T(s)$。代入 $\hat{a}_d(s) = 0$，$\hat{J}_u(s) = 0$ 由(1)式並利用 $T_{11}(s)T_{22}(s) - T_{12}(s)T_{21}(s) = 1$

$$\hat{J}_d(s) = \frac{1}{T_{11}(s)} \tag{2}$$

將 $\hat{J}_d(s)$ 與 $T_{11}(s)$ 在 $s = 0$ 附近作泰勒級數(Taylor series)展開，得

$$\begin{aligned} T_{11}(s) &= T_{11}(0) + s \lim_{s \to 0} \frac{dT_{11}(s)}{ds} + \frac{s^2}{2} \lim_{s \to 0} \frac{d^2 T_{11}(s)}{ds^2} + \cdots \\ &= \alpha_0 + \alpha_1 s + \alpha_2 s^2 + \ldots \end{aligned} \tag{3}$$

$$\begin{aligned} \hat{J}_d(s) &= \hat{J}_d(0) + s \lim_{s \to 0} \frac{d \hat{J}_d(s)}{ds} + \frac{s^2}{2} \lim_{s \to 0} \frac{d^2 \hat{J}_d(s)}{ds^2} + \cdots \\ &= \mu_0^d - s\mu_1^d + \frac{s^2}{2} \mu_2^d + \ldots \end{aligned} \tag{4}$$

(4)式中的 μ_n^d (n = 0 , 1 , 2 ,..)為對應上述邊界及起始條件的首度通過時間(first passage time)的 n 階矩(n-th moment)，

$$\mu_n^d = \int_0^\infty t^n J_d(t) dt = (-1)^n \lim_{s \to 0} \frac{d \hat{J}_d(s)}{ds^n} \tag{5}$$

將(4)式代入(2)式，然後經由運算將 T(s)表示為多項式的函數型態，並與(3)式作比較得

$$\alpha_0 = \mu_0^d = 1 \tag{6}$$

$$\alpha_1 = \mu_1^d \tag{7}$$

$$\alpha_2 = \frac{1}{2}\left[2(\mu_2^d) - \mu_2^d\right] \tag{8}$$

式(6)-(8)為$T_{11}(s)$的泰勒級數展開係數以$J_d(t)$的各階矩表示之。根據Weiss的推導[11]，知μ_n^d可以用上述邊界條件下定常擴散方程式的格林函數$\tilde{G}$表示，且由Appendix (A) 知$\tilde{G}(x,0) = \tilde{G}(x,x)$，於是

$$\mu_1^d = \int_0^h \tilde{G}(x,0)dx = \int_0^h \tilde{G}(x,x)dx = \sum_n \frac{1}{\tilde{\lambda}_n} \tag{9}$$

此處我們已應用公式$G(x,x_0) = \sum_n \frac{\varphi(x)\varphi^*(x_0)}{\lambda_n}$，其中$\varphi(x)$及$\varphi^*(x)$為 normalized eigenfunction of the steady-state diffusion equation 及其 conjugate，因此$\int \varphi(x)dx\varphi^*(x)dx = 1$。同法，我們可得

$$\mu_2^d = 2\int_0^h \int_0^h \tilde{G}(x,z)\tilde{G}(z,0)dzdx = 2\int_0^h \int_0^h \tilde{G}(x,z)\tilde{G}(z,x)dzdx = 2\sum_n \frac{1}{\tilde{\lambda}_n^2} \tag{10}$$

由 (7)、(9)式可得

$$\alpha_1 = \int_0^h \tilde{G}(x,x)dx = \sum_n \frac{1}{\tilde{\lambda}_n} \tag{11}$$

由(8)、(9)、(10)

$$\begin{aligned}\alpha_2 &= \left[\int_0^h \tilde{G}(x,x)dx\right]^2 - \int_0^h \int_0^h \tilde{G}(x,z)\tilde{G}(z,x)dzdx \\ &= \left[\sum_n \frac{1}{\tilde{\lambda}_n}\right]^2 - \sum_n \frac{1}{\tilde{\lambda}_n^2}\end{aligned} \tag{12}$$

因此由式 (6)、 (11)、 (12)可知$T_{11}(s) = \alpha_0 + \alpha_1 s + \alpha_2 s^2 + \cdots$可以用$x = 0$為反射，$x = h$為吸收的邊界條件的穩定擴散方程式的 eigenvalues $\tilde{\lambda}_n$ 或格林函數$\tilde{G}$表示。

(B) 若粒子初始位於 x = h 的反射其濃度為 Dirac delta function 型，另一端 x = 0 為吸收，代 $\hat{J}_d(s) = 0$，$\hat{a}_u(s) = 0$及 det[T(s)]=1 由 (1) 式可得

$$\hat{J}_u(s) = -\frac{1}{T_{22}(s)} \tag{13}$$

類似於 (3)-(12) 的操作，讓我們得到$T_{22}(s) = \delta_0 + \delta_1 s + \delta_2 s^2 + \cdots$以相同邊界條件的格林函數$\hat{G}$，或

eigenvalue $\hat{\lambda}_n$表示，而其中$\delta_0, \delta_1, \delta_2$分別為

$$\delta_0 = 1 \tag{14}$$

$$\delta_1 = \int_0^h \hat{G}(x,z)dx = \sum_n \frac{1}{\hat{\lambda}_n} \tag{15}$$

$$\delta_2 = \left[\int_0^h G(x,\hat{x})dx\right]^2 - \int_0^h \int_0^h \hat{G}(x,z)\hat{G}(z,x)dzdx = \left[\sum_n \frac{1}{\hat{\lambda}_n}\right]^2 - \sum_n \frac{1}{\hat{\lambda}_n^2} \tag{16}$$

(C) 假設初始薄膜沒有濃度，$x = 0$及$x = h$分別保持ρ_0及 0 之濃度

其矩陣傳輸表示式可寫成[8]

$$\begin{bmatrix} \hat{a}_d(s) \\ \hat{J}_d(s) \end{bmatrix} = T(s) \begin{bmatrix} \hat{a}_u(s) \\ \hat{J}u(s) \end{bmatrix} \tag{17}$$

由(17)式，代入$\hat{a}_d(s) = 0$，$\hat{a}_u(s) = \frac{\rho_0}{K_u}$=constant，可得

$$\hat{J}_d(s) = -\frac{1}{T_{12}(s)}\hat{a}_u(s) \tag{18}$$

將$T_{12}(s)$ 在$s = 0$附近作Taylor series展開

$$\begin{aligned} T_{12}(s) &= T_{12}(0) + s\lim_{s\to 0}\frac{d^2 T_{12}(s)}{ds^2} + \cdots \\ &= -\beta_0 - \beta_1 s - \beta_2 s^2 \cdots \end{aligned} \tag{19}$$

又由time lag之first及second moments之表示式，及對time lag研究的成果[8,12]

知

$$P = \frac{1}{\beta_0} \tag{20}$$

$$t_L = \lim_{s\to 0}\frac{-\frac{d}{ds}s\hat{J}_d(s)}{s\hat{J}_d(s)} = \frac{\beta_1}{\beta_0} \tag{21}$$

$$t_L^{(2)} = \lim_{s\to 0}\frac{\frac{d^2}{ds^2}s\hat{J}_d(s)}{s\hat{J}_d(s)} = 2\left(\frac{\beta_1}{\beta_0}\right)^2 - 2\left(\frac{\beta_2}{\beta_0}\right) \tag{22}$$

根據我們先前所推導[12]

$$t_L = \int_0^h G(x,x)dx = \sum_n \frac{1}{\lambda_n} \tag{23}$$

$$\begin{aligned} t_L^{(2)} &= \int_0^h \int_0^h G(x,y)G(y,x)dxdy + \int_0^h \int_0^h G(x,x)G(y,y)dxdy \\ &= \sum_n \frac{1}{\lambda_n^2} + \left[\sum_n \frac{1}{\lambda_n} \right]^2 \end{aligned} \tag{24}$$

其中 G(x,y)為兩邊 boundary 為$G(0,y) = G(h,y) = 0$的格林函數，

由 (20)-(24) 式可得

$$\beta_1 = \frac{P}{2}\left[\int_0^h G(x,x)dx \right] = \frac{1}{P}\sum_n \frac{1}{\lambda_n} \tag{25}$$

$$\begin{aligned} \beta_2 &= \frac{P}{2}\left[\int_0^h \int_0^h G(x,x)G(y,y)dxdy - \int_0^h \int_0^h G(x,y)G(y,x)dxdy \right] \\ &= \frac{P}{2}\left[\left(\sum_n \frac{1}{\lambda_n} \right) - \sum_n \frac{1}{\lambda_n^2} \right] \end{aligned} \tag{26}$$

由此式子 (20)、(25)、(26)知T_{12}(s)可用兩端皆為 0 的邊界條件之穩定擴散方程式的格林函數 eigenvalues λ_n 表示。

(D) 根據$\det(T(s)) = 1 = T_{11}(s)T_{22}(s) - T_{12}(s)T_{21}(s)$,[8]將上面(A)、(B)、(C)所得的$T_{11}$(s),$T_{12}$(s),$T_{22}$(s)的本徵值函數為係數的泰勒級數代入，即得$T_{21}(s) = -\gamma_0 - \gamma_1 s - \gamma_2 s^2 + \cdots$，其中

$$\gamma_0 = 0 \tag{27}$$

$$\gamma_1 = -P\left[\sum_n \left(\frac{1}{\tilde{\lambda}_n} + \frac{1}{\hat{\lambda}_n} \right) \right] \tag{28}$$

$$\gamma_2 = -P\left[\left(\sum_n \frac{1}{\hat{\lambda}_n} \right)^2 + \left(\sum_n \frac{1}{\tilde{\lambda}_n} \right)^2 - \sum_n \left(\frac{1}{\tilde{\lambda}_n^2} + \frac{1}{\hat{\lambda}_n^2} \right) + \sum_n \frac{1}{\hat{\lambda}_n} \sum_n \frac{1}{\tilde{\lambda}_n} - \sum_n \frac{1}{\lambda_n} \sum_n \left(\frac{1}{\hat{\lambda}} + \frac{1}{\tilde{\lambda}} \right) \right] \tag{29}$$

因此$T_{21}(s)$也可用$\lambda_n, \tilde{\lambda}_n, \hat{\lambda}_n$來表示。

結果與討論

現在我們整理(A), (B), (C)及(D)所得的結果

$$T(s)=\begin{bmatrix} T_{11}(s), & T_{12}(s) \\ T_{21}(s), & T_{22}(s) \end{bmatrix}$$

$$=\begin{bmatrix} \alpha_0+\alpha_1 s+\alpha_2 s^2+\cdots, & \beta_0+\beta_1 s+\beta_2 s^2+\cdots \\ \gamma_0+\gamma_1 s+\gamma_2 s^2+\cdots, & \delta_0+\delta_1 s+\delta_2 s^2+\cdots \end{bmatrix} \tag{30}$$

其中各項系數分別為

$$\alpha_0=1,\ \alpha_1=\sum_n \frac{1}{\tilde{\lambda}_n},\ \alpha_2=\left[\sum_n \frac{1}{\tilde{\lambda}_n}\right]^2-\sum_n \frac{1}{\tilde{\lambda}_n^{\ 2}} \tag{31}$$

$$\beta_0=\frac{1}{P},\ \beta_1=\frac{1}{P}\sum_n \frac{1}{\lambda_n},\ \beta_2=\frac{P}{2}\left[\left(\sum_n \frac{1}{\lambda_n}\right)-\sum_n \frac{1}{\lambda_n^2}\right] \tag{32}$$

$$\gamma_0=0,\ \gamma_1=-P\left[\sum_n\left(\frac{1}{\tilde{\lambda}_n}+\frac{1}{\hat{\lambda}_n}\right)\right],$$

$$\gamma_2=-P\left[\left(\sum_n \frac{1}{\hat{\lambda}_n}\right)^2+\left(\sum_n \frac{1}{\tilde{\lambda}_n}\right)^2-\sum_n\left(\frac{1}{\tilde{\lambda}_n^{\ 2}}+\frac{1}{\hat{\lambda}_n^{\ 2}}\right)+\sum_n \frac{1}{\hat{\lambda}_n}\sum_n \frac{1}{\tilde{\lambda}_n}-\sum_n \frac{1}{\lambda_n}\sum_n\left(\frac{1}{\hat{\lambda}}+\frac{1}{\tilde{\lambda}}\right)\right] \tag{33}$$

$$\delta_0=1,\ \delta_1=\sum_n \frac{1}{\tilde{\lambda}_n},\ \delta_2=\left[\sum_n \frac{1}{\hat{\lambda}_n}\right]^2-\sum_n \frac{1}{\hat{\lambda}_n^{\ 2}} \tag{34}$$

其中λ_n為兩端皆為吸收邊界條件的 steady-state diffusion equation 的 eigenvalue$\tilde{\lambda}_n$為 $x=0$ 為反射 $x=h$ 為吸收時相同方程式的 eigenvalue $\tilde{\lambda}_n$為 $x=0$ 吸收，$x=h$ 為反射時相同方程式的本徵值。

我們可以利用這個結果處理很多擴散問題。例如:在起始條件為薄膜中無擴散質，在$x=0$ 的一端 $\rho(0,t)=\rho_0$ $x=h$一端為$\rho(h,t)=0$ 的time lag 與$x=0$ 為$\rho(0,t)=0$, $x=h$為$\rho(h,t)=\rho_0$ 的time lag相等。此稱為延滯時間(time lag)的互易關係(reciprocal relation)。[13,14]其證明如下

由(1)式，在第一組邊界條件下得

$$\hat{J}_d(s)=-\frac{1}{T_{12}}\hat{a}_u(s)=-\frac{1}{T_{12}}\frac{\rho_0}{K_u}\frac{1}{s}$$

在第二組的邊界條件則得

$$\hat{J}_u(s)=\frac{1}{T_{12}}\frac{\rho_0}{K_u}\frac{1}{s}$$

因在 Laplace domain $\hat{J}_d(s)$與$\hat{J}_u(s)$除了符號(方向)以外，其表示法皆有同。所以 permeability, 各階 moments of fluxes。其 eigenvalue 的表示法亦同，因此其互易關係成立。

除了本計劃所顯示的傳輸矩陣元素可以用 eigenvalue, Green's function 來表示。另外我們以前的研究也表明這些元素可用擴散參數及擴散係數 D(x),配分係數,K(x),的重積分表示出來。如此一來，我們對薄膜擴散的研究將更豐富而多元。

Appendix (A)

$x=0$ 為反射端，$x=h$ 為吸收端的邊界條件，steady state diffusion equation 之 Green's function 滿足

$$\frac{\partial}{\partial x}D(x)K(x)\frac{\partial}{\partial x}G(x,x_0)=-\delta(x-x_0) \qquad \textit{with} \quad \left.\frac{\partial G(x,x_0)}{\partial x}\right|_{x=0},G(h,x_0)=0.$$

$G(x,x_0)$ 解為 $C_1\int_0^x \frac{1}{DK}dx'+C_2$ 而

分別滿足 $x=0, x=h$ 之 boundary condition 之解為 $y_1=\int_0^h \frac{1}{DK}dx,\ y_2=\int_x^h \frac{1}{DK}dx,$

而 Wroskian 行列式，W，值為

$$W=\begin{vmatrix} \int_0^h \frac{1}{DK}dx & \int_x^h \frac{1}{DK}dx \\ 0 & -\frac{1}{DK} \end{vmatrix} = -\frac{1}{DK}\int_0^h \frac{1}{DK}dx$$

因此

$$G(x,x_0)=\langle \begin{matrix} K(x)\int_x^h \frac{1}{DK}dx & x<x_0 \\ K(x)\int_{x0}^h \frac{1}{DK}dx & x>x_0 \end{matrix}$$

References:

1. D. A. Wood,”Polymeric materials used in drug delivery systems,”Chap. 3 in *Materials Used in Pharmaceutical Formulation*, edited by A. T. Florence (Blackwell Scientific, Oxford, 1984).
2. T. Matsuura, *Synthetic Membrane Separation Processes* (CRC, Boca Raton, 1994).
3. S. T. Hwang and K. Kammermeyer, *Membranes in Separations* (Krieger, Malabar, FL, 1984).
4. H. L. Frisch and A. Kloczkowski, **J. Colloid Interface Sci.** 99, 404 (1984).
5. W. R. Vieth, *Membrane Systems:Analysis and Design* (Wiley, New York, 1988).
6. R. P. W. J. Struis, S. Stucki, and M. Wiedorn, **J. Membrane Sci.** 113, 93 (1996).
7. R. A. Segal, **J. Phys. Chem.**, 95, 2556 (1991)
8. J. S. Chen and W. Y. Chang, “Matrix-theoretical Analysis in the Laplace Domain for the Time Lags and Mean First Passage Times for Reaction-Diffusion Transport,”**J. Chem. Phys.**, 106, 8022-8029 (1997).
9. J. S. Chen and W. Y. Chang, “Relation between Fluxes for Membrand Reaction-Diffusion Transport Studied by the Matrix Method,”**J. Chem. Phys.**, 107, 10709-10713 (1997).
10. J. S. Chen and W. Y. Chang, “Time Moment Analysis of First Passage Time, Time Lag and Residence Time Problems via Taylor’s Expansion of Transmission Matrix, “**J. Chem. Phys.**, 112, 4723-4730 (2000).
11. G. H. Weiss, Adv. **Chem. Phys.**, 13, 1 (1996)
12. J. S. Chen and W. Y. Chang, “Green’s Function and Eigenvalue Representations of Time Lag for Membrane Permeation Transport,”**J. Chin. Chem. Soc.**, 49, 731-736 (2002).
13. J. H. Petropoulos and P. P. Roussis, **J. Chem. Phys**. 47 1491 (1967).
14. J. S. Chen, **J. Chem. Soc. Faraday Trans.** 90 2765 (1994).