

УДК: 51-7, 53.09

Динамика полярона большого радиуса в модельной полинуклеотидной цепочке со случайными возмущениями

Фиалко Н.С.^{*}, Лахно В.Д.^{}**

*Институт математических проблем биологии – филиал Федерального государственного учреждения "Федеральный исследовательский центр Институт прикладной математики им. М.В. Келдыша Российской академии наук",
Пушино, Московская область, Россия*

Аннотация. В работе с помощью вычислительного эксперимента исследована динамика полярона в цепочке с учетом температуры, которая имитируется случайными возмущениями ланжевеновского типа, и под действием постоянного электрического поля. В достаточно длинной невозмущенной цепочке смещение центра масс полярона и его скорость не зависят от ее длины. В полуклассической модели Холстейна, используемой для моделирования переноса заряда в ДНК, область существования поляронов в термодинамически равновесном состоянии зависит не только от температуры, но и от длины цепочки. Поэтому при моделировании из поляронных начальных данных временные зависимости среднего смещения центра масс заряда при одинаковой температуре различны для цепочек разной длины. По результатам вычислительного эксперимента, для полярона большого радиуса временная зависимость «среднего смещения полярона», которая учитывает только пик полярона и его положение, для цепочек разной длины ведет себя одинаково на временах, пока полярон не разрушается. Одинаковый угол наклона смещения полярона позволяет найти среднюю скорость полярона. Проведенные расчеты позволяют предположить, что в модели Холстейна при нулевой температуре подвижность полярона большого радиуса маленькая, но ненулевая.

Ключевые слова: модель Холстейна, термостат Ланжевена, ДНК, заряд, напряженность, смещение центра масс заряда, смещение полярона.

ВВЕДЕНИЕ

Возможность переноса возбуждения по солитонному или поляронному механизму в квазиодномерных биомакромолекулах, таких как ДНК или белки, давно привлекает внимание исследователей [1–6]. В настоящее время вопрос о проводящих свойствах ДНК привлекает широкий круг исследователей в связи с возможностью использования ДНК в нанобиоэлектронике, см., например, [7–11].

Исследованиям динамики поляронов в одномерных цепочках, имитирующих ДНК как цепочку сайтов, посвящено большое количество работ. В них движение сайтов классической цепочки описывается разными способами, с помощью гармонических потенциалов, как в SSH-модели [12, 13], или модели Холстейна [14–17], или более сложными, такими как потенциал Морса и Пейрарда – Бишопа – Доксуа [18–22]. Для

^{*}fialka@impb.ru

^{**}lak@impb.ru

модели Холстейна исследовалась динамика поляронов во внешнем электрическом поле аналитически (в непрерывной среде) [23] и численно [14, 16], получены зависимости скорости полярона от напряженности поля. При моделировании обычно рассматриваются невозмущенные цепочки и полагается, что слабые возмущения (с энергией много меньше характерной энергии, равной глубине поляронного уровня) мало меняют свойства полярона.

В случае конечных температур, когда на цепочку все время действует случайная сила со стороны окружающей среды, слабые воздействия существенно влияют на характеристики полярона. В работе Ломдала [24] прямым численным экспериментом было показано, что давидовский солитон при физиологических температурах быстро разрушается и перенос им энергии невозможен. При энергии связи солитона ~ 300 К его разрушение происходит при очень низкой температуре меньше 10 К. Последующие вычислительные эксперименты и аналитические оценки разных авторов [25–29] подтвердили вывод, что поляроны разрушаются при температурах гораздо меньших, чем энергия полярона.

Ранее для однородных гуаниновых фрагментов в рамках холстейновской модели была рассчитана подвижность заряда μ в области «высоких» (когда заряд находится в делокализованном состоянии) температур [30], и сделана оценка зависимости подвижности от температуры [31]. Приведенная в [31] зависимость $\mu = CT^{-2.3}$ означает большой рост подвижности при понижении температуры. Но предполагалось, что при низких температурах (тепловая энергия меньше энергии связи полярона) в цепочке заряд формирует поляронное состояние, с гораздо меньшей подвижностью [10].

Результаты моделирования, однако, показывают [32, 33], что в термодинамически равновесном состоянии существование полярона зависит не только от температуры термостата T , но и от длины цепочки N , т.е. от тепловой энергии рассматриваемой цепочки NT . Получается, что при одинаковой температуре в коротких цепочках полярон не разрушается, а в длинных в термодинамическом равновесии заряд находится в делокализованном состоянии. В поляронной области при одинаковой температуре в термодинамическом равновесии средние характеристики, такие как параметр делокализации и максимальная вероятность (в пике полярона), зависят от длины цепочки. Получается, что в этой области нет стационарных процессов (аналогичных среднеквадратичному смещению $\langle X^2(t) \rangle$ или среднему смещению $\langle X(t) \rangle$ под действием внешнего поля), которые зависят только от температуры.

В данной работе изложены результаты моделирования динамики заряда в цепочках разной длины при конечной температуре из начальных данных «полярон + тепловые возмущения цепочки». Рассмотрен случай полярона большого радиуса, часть параметров выбрана соответствующей однородным тиминовым фрагментам ДНК. Прямым моделированием найдены общие зависимости при одинаковой температуре и одинаковой напряженности внешнего поля на начальном этапе, когда полярон в длинных цепочках еще не успел разрушиться.

ОПИСАНИЕ ПОСТАНОВКИ ЗАДАЧИ

Модель основана на гамильтониане Холстейна для дискретной цепочки сайтов [34]. В случае ДНК сайту соответствует комплементарная пара оснований. Предполагается, что заряд может распространяться вдоль одной нити ДНК. В предыдущей части [35], где были описаны результаты моделирования полярона малого радиуса, приведен гамильтониан, размерные уравнения движения и переход к безразмерным уравнениям, которые в случае однородной цепочки сайтов имеют вид

$$i\dot{b}_n = \eta(b_{n-1} + b_{n+1}) + \chi u_n b_n + nEb_n, \quad (1)$$

$$\ddot{u}_n = -\omega^2 u_n - \chi |b_n|^2 + \gamma \dot{u}_n + \xi Z_n(t). \quad (2)$$

Здесь b_n – амплитуда вероятности нахождения заряда на n -ом сайте (вероятность $p_n = b_n b_n^*$), u_n – смещение n -го сайта из равновесного положения. Параметры: η – матричные элементы перехода заряда между сайтами, χ – константа связи квантовой (1) и классической (2) подсистем, последнее слагаемое в (1) учитывает постоянное внешнее поле с напряженностью E . В уравнения (2) добавлены член с трением (γ – коэффициент трения) и белый шум $Z_n(t)$ с коэффициентом ξ , $\xi^2 = A^* \gamma T$, имитирующие ланжевеновский термостат с температурой T (A^* – масштабный множитель); ω – частота колебаний сайтов.

Моделирование динамики полярона в цепочке при заданной температуре T проводится так же, как это делалось в [35]: рассчитывается множество траекторий системы (1),(2) из разных начальных данных и с разными временными псевдослучайными последовательностями; затем считаются средние по реализациям временные зависимости. В качестве начальных данных использован полярон (амплитуды вероятности b_n и смещения, соответствующие наименьшей энергии при $T=0$), к этим смещениям добавляются независимые гауссовы величины, соответствующие температуре, и скорости сайтов задаются случайными гауссовыми с соответствующим распределением. Во всех реализациях в начальный момент центр полярона локализован на одном и том же сайте n_0 .

Параметры модели, соответствующие нуклеотидным парам [36–38], в безразмерных величинах $\omega = 0.01$, $\chi = 0.02$, матричный элемент перехода между тиминами $\eta = 2.4$; $A^* \approx 0.001309$ для характерной температуры $T^* = 1$ К, характерное время $\tau = 10^{-14}$ сек. В цепочках polyT образуется полярон большого радиуса $R = 1/\sum |b_n|^4 = 1/\sum p_n^2 \approx 6.9$, заряд локализован в области примерно семи сайтов с максимумом вероятности $\max_n p_n = p_M \approx 0.22$. Моделируются цепочки длиной $N = 200, 400$ и 700 сайтов. Расчеты отдельных реализаций выполняются 2o2s1g-методом [39].

Мы рассматриваем область малых температур, при которых в термодинамическом равновесии заряд формирует полярон в сравнительно длинных цепочках. Оценки области существования полярона в термодинамически равновесном состоянии для тиминных фрагментов [33] $NTA^* < 0.5$ дают границу $NT_{\text{crit}} \sim 382$. Т.е. для цепочки 200 сайтов $T_{\text{crit}} \sim 1.9$ (что соответствует 1.9 К), для цепочки 400 сайтов $T_{\text{crit}} \sim 0.96$, и для цепочки 700 сайтов $T_{\text{crit}} \sim 0.48$. Полученные результаты находятся в «нефизической области», для температур ниже дебаевской Θ классическое описание движения сайтов неприменимо [24]. Тем не менее, на наш взгляд результаты представляют интерес как описание ситуации, когда на динамику полярона влияет случайная сила.

ВЫЧИСЛИТЕЛЬНЫЙ ЭКСПЕРИМЕНТ

Для однородных цепочек было показано [33], что в термодинамически равновесном состоянии средние величины зависят не от значений параметров, а от их соотношений: у систем с параметрами $\{\eta, \omega, \chi\}$ и $\{\eta, C\omega, C\chi\}$, $C = \text{const}$, среднее распределение вероятностей, полная энергия и т.п. одинаковы. Однако время выхода из поляронного состояния к термодинамически равновесному будет сильно различно. На рисунке 1 приведены графики разрушения начального поляронного состояния для 60-сайтовых цепочек, у которых параметры квантовой подсистемы одинаковы (соответствуют polyT фрагментам), а классические ω, χ меняются. Для характерных частот ДНК $\omega = 0.01$ время разрушения t порядка 10^5 (что соответствует 10^{-9} сек) довольно большое. Графики посчитаны для температуры $T = 10$, которая больше температуры разрушения для 60-сайтовых цепочек $T_{\text{crit}} \approx 6.4$ и для ДНК сопоставима с дебаевской температурой $\theta = \tilde{\omega} k_B T \approx 8$ К.

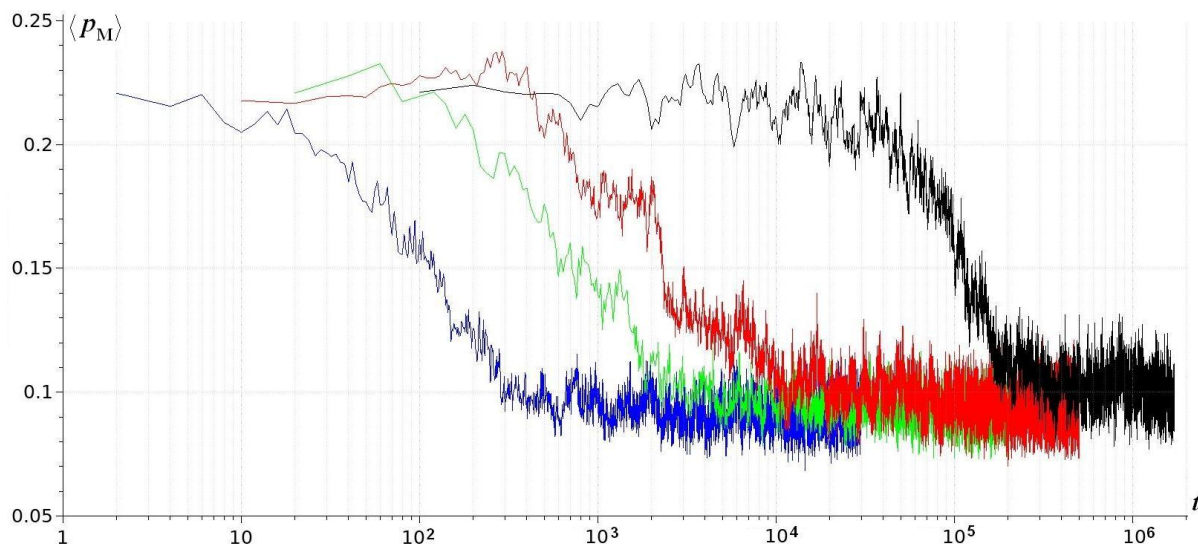


Рис. 1. Графики максимума вероятности $\langle p_M(t) \rangle = \langle \max_n p_n \rangle$ для цепочек polyT длиной $N = 60$ сайтов с разными параметрами χ и ω классической подсистемы (с сохранением $\chi/\omega=2$): $\omega = 0.5$ (синяя), $\omega = 0.1$ (зеленая), $\omega = 0.05$ (красная) и $\omega = 0.01$ (черная). Трение $\gamma = 4\omega$. Начальное состояние – полярон, температура $T = 10$, среднее по 24 реализациям.

При численном моделировании для классической подсистемы (2) мы использовали адаптированные значения параметров $\omega = 0.5$, $\chi = 1$, трение γ порядка ω , при которых система быстрее выходит к состоянию термодинамического равновесия. Прямым моделированием исследована возможность поляронного переноса заряда (на начальном интервале времени) при разной величине напряженности поля E от 0.0005 до 0.01. Для фиксированного E осредняются (обычно по сотне реализаций) временные зависимости вероятности распределения заряда по сайтам $\langle p_n(t) \rangle$, параметр делокализации $\langle R \rangle = \langle 1/\sum p_n^2(t) \rangle$, значения максимума вероятности $\langle p_M(t) \rangle = \langle \max_n p_n(t) \rangle$, $\langle n_M(t) \rangle$ – номер сайта, на котором вероятность нахождения заряда максимальная, среднее смещение центра масс заряда

$$\langle X(t) \rangle = \left\langle \sum_n p_n (n - n_0) \right\rangle, \quad (3)$$

где n_0 совпадает с центром полярона в начальный момент времени, и «смещение полярона»

$$\langle X_M(t) \rangle = \langle p_M(t)(n_M - n_0) \rangle, \quad (4)$$

некий аналог X , рассчитанный только для максимума вероятности. Также в «цепочке с окном», где не рассматривается часть с центром n_M (мы убрали по 10 сайтов слева и справа, т.е. 21 сайт с центром n_M) выбирается сайт с наибольшим по модулю смещением $|u_K| = \max_{|n-n_M|>10} |u_n|$. Если заряд находится в поляронном состоянии, т.е. локализован в небольшой области, то вне ее смещения главным образом определяются случайными толчками. Это дополнительная проверка: если $|u_K| > |u_M|$, то считаем, что в цепочке нет полярона.

РЕЗУЛЬТАТЫ МОДЕЛИРОВАНИЯ

В однородных цепочках разрушение поляронных состояний зависит не только от температуры термостата, но и от количества сайтов, т.е. от тепловой энергии цепочки. Если в начальный момент в цепочке задан полярон, то какое-то время до развала он существует. Исследуем, как он движется в цепочке под действием поля с постоянной напряженностью E .

Стандартный метод оценки скорости полярона v при разной напряженности E по среднему смещению центра масс заряда $\langle X(t) \rangle = vt$ при конечной температуре не работает. В цепочках разной длины начальный полярон разрушается по-разному, это продемонстрировано на рисунках 2, 3.

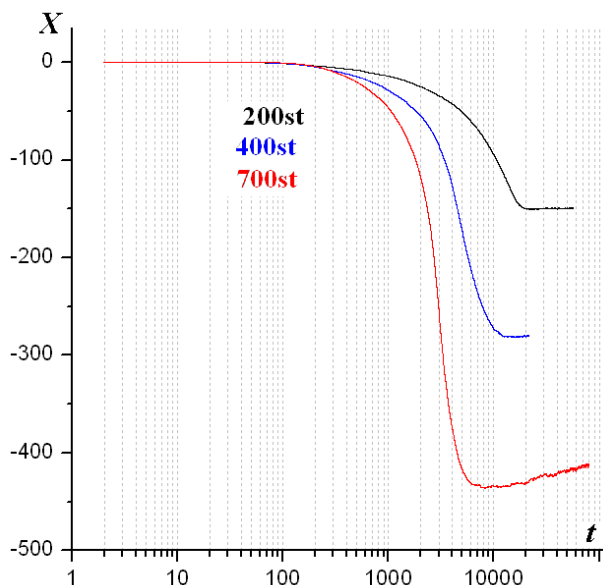


Рис. 2. Для цепочек разной длины разным цветом показаны графики $\langle X(t) \rangle = \langle \sum p_n(t) (n - n_0) \rangle$, n_0 совпадает с центром полярона при $t = 0$. Параметры $\eta = 2.4$, $\chi = 1$, $\omega = 0.5 = \gamma$; $T = 1$, $E = 0.001$. Среднее по 95 реализациям.

На рисунке 2 графики приведены в полулогарифмическом масштабе, но видно, что кривые для цепочек разной длины быстро (на времени $t \sim 200-300$) расходятся, т.е. у зависимостей $\langle X(t) \rangle$ разный наклон. При больших $t \sim 20000$ график для 200-сайтовой цепочки почти константа – на этих временах заряд уже локализован у края с наименьшей энергией.

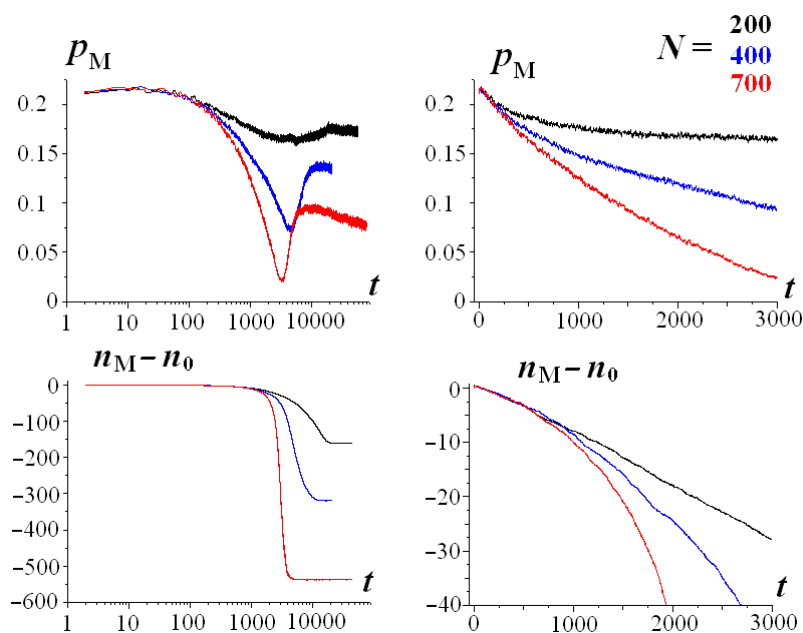


Рис. 3. Графики максимума вероятности $\langle p_M(t) \rangle$ (вверху) и зависимости положения $\langle n_M(t) - n_0 \rangle$ максимума от времени (внизу). При $t = 0$ $n_M = n_0$. Слева – на больших временах в полулогарифмическом масштабе, справа – на начальном этапе расчетов. Параметры рис. 2 (*polyT* фрагменты, $\eta = 2.4$, $\chi = 1$, $\omega = 0.5 = \gamma$; $T = 1$, $E = 0.001$, среднее по 95 вариантам).

Зависимости положения максимума вероятностей $\langle n_M(t) \rangle$ в невозмущенной цепочке (при $T = 0$) с точностью до константы совпадают с $\langle X(t) \rangle$. При $T \neq 0$ графики $\langle n_M(t) \rangle$ тоже быстро расходятся для цепочек разной длины (рис. 3, внизу), т.е. предположение «заряд там, где его вероятность максимальна», чтобы вместо $\langle X \rangle$ следить за $\langle n_M \rangle$ (которую можно сопоставить с «координатой заряда»), тоже не очень удачное: кривые для цепочек разной длины близки только на сравнительно коротких временах в начале счета. Из рисунков 2, 3 следует, что «общий» участок (кривые близки друг другу) при этих параметрах расчета для цепочек разной длины существует на коротком времени $t < 300$.

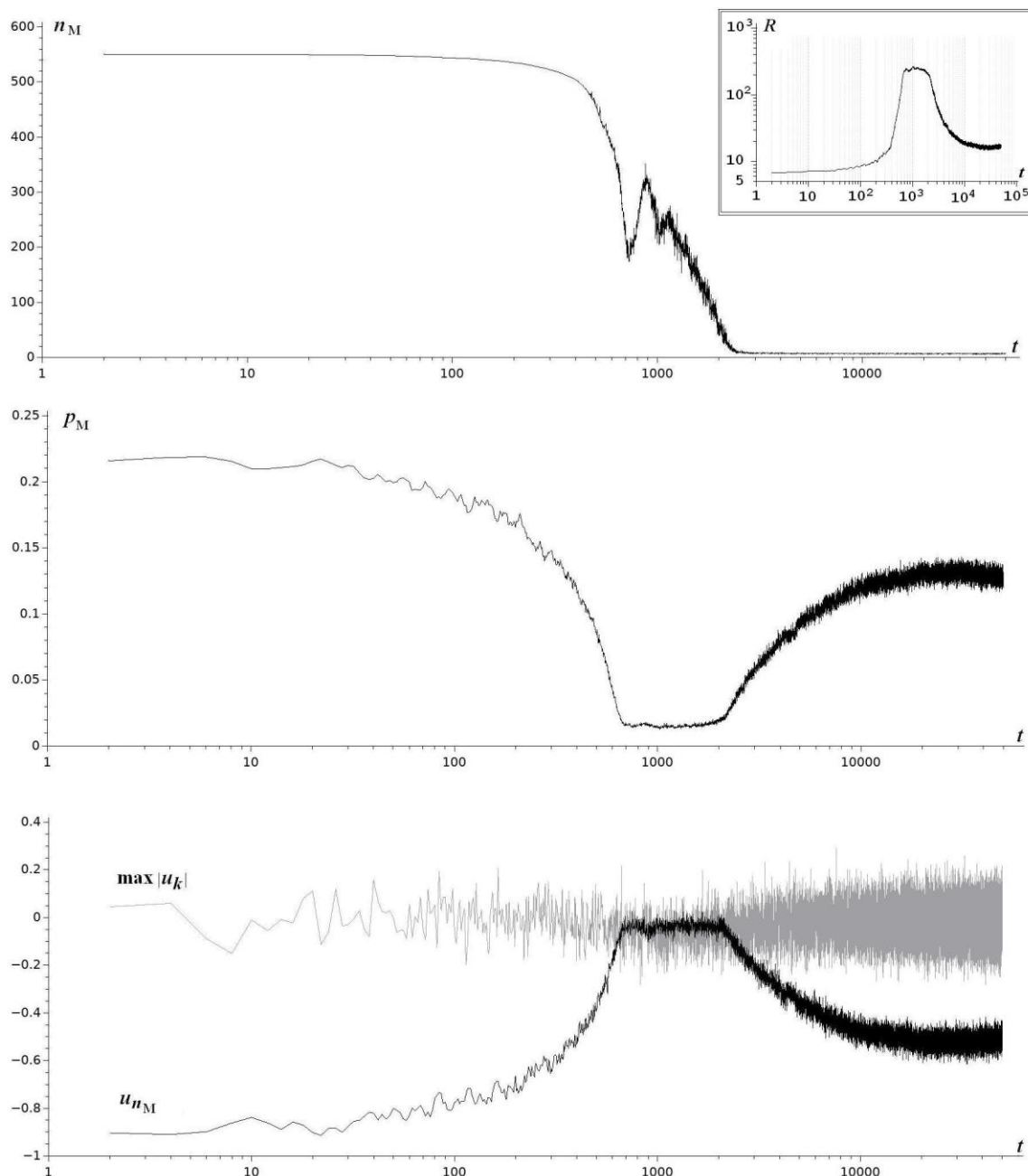


Рис. 4. Вверху: графики зависимости положения $\langle n_M(t) \rangle$ максимума вероятности; в середине: значение максимума $\langle p_M(t) \rangle$; внизу: смещения на сайте максимума $\langle u_M(t) \rangle$ (черная кривая) и наибольшие по модулю смещения в «цепочке с окном» (серая линия). Цепочка 700 сайтов, при $t = 0$ $n_M = 550$. Графики в полулогарифмическом масштабе. На врезке вверху справа – параметр делокализации $\langle R(t) \rangle$. Параметры: $\eta = 2.4$, $\chi = 1$, $\omega = 0.5$, $T = 2$, $E = 0.01$ (движение к левому краю цепочки). Среднее по 50 реализациям.

По графикам для максимума вероятности $\langle p_M(t) \rangle$ (рис. 3, сверху) видно, что для 200-сайтовой цепочки (черные кривые) $\langle p_M(t) \rangle > 0.15$ – поляронное состояние существует на всем времени счета; для 400 сайтов (синие кривые) есть участок по времени, когда $\langle p_M(t) \rangle \sim 0.07$, что в 3 раза меньше максимума в поляронном состоянии; и для 700 сайтов (красные кривые) на каком-то временном интервале $\langle p_M(t) \rangle \sim 0.01$; потом $\langle p_M(t) \rangle$ увеличивается, потому что заряд «собирается» у края с наименьшим значением поля (это же видно и на графиках $\langle n_M(t) - n_0 \rangle$, которые становятся константой).

Сходная картина для длинных цепочек (т.е. когда в термодинамическом равновесии заряд находится в делокализованном состоянии) продемонстрирована на рисунке 4 для 700-сайтовой цепочки. Здесь (сверху вниз) приведены $\langle p_M(t) \rangle$, $\langle n_M(t) \rangle$ и смещения на сайте $\langle u_M(t) \rangle$ (черная линия), наложенные на среднее для наибольших по модулю смещений в «цепочке с окном» (убран 21 сайт, серая линия). Параметры расчета были такие же, как для рисунков 2 и 3, изменены были только значения температуры ($T = 2$) и напряженности ($E = 0.01$).

На рисунке 4 видно, что сначала заряд движется в поляронном состоянии, которое постепенно разрушается. На времени $t \approx 600$ смещения на сайте с максимумом вероятности уже порядка смещений в «невозмущенной» цепочке. На времени $t \approx 2000$ заряд начинает локализоваться у края с наименьшей энергией, при этом смещения $u_M(t)$ снова становятся значительно больше, чем смещения в остальной «цепочке с окном». На времени $t \approx 20000$ кривые $\langle p_M(t) \rangle$ и $\langle u_M(t) \rangle$ приходят к термодинамически равновесным значениям. На врезке сверху рисунка 4 приведена зависимость параметра делокализации $\langle R(t) \rangle = \langle 1/\sum p_n^2 \rangle$, описывающая ту же картину: в начале расчета в цепочке полярон, $\langle R \rangle < 10$, на времени $t \approx 400$ начинается быстрый рост $\langle R(t) \rangle$, и на $t \approx 700$ функция достигает максимума $\langle R \rangle \approx 200$ (заряд находится в делокализованном состоянии [32]) и остается почти постоянной до $t \approx 2000$. Затем $\langle R(t) \rangle$ убывает, что связано с увеличением вероятности нахождения заряда на сайтах на краю цепочки, у которых самая низкая энергия электрона $\eta_{NV} \approx -NE$.

Результаты расчетов показывают, что при движении полярона «физические» величины – среднее смещение центра масс $\langle X(t) \rangle$, координата пика полярона, максимум вероятности – различаются при разной длине цепочки. Поэтому вместо $\langle X \rangle$ мы использовали «усеченный» вариант – для расчетов используются только движения вершины полярона, т.е. максимум вероятности и номер сайта, на котором он локализован (формула (4)). Расчеты показывают, что для цепочек разной длины графики $\langle X_M(t) \rangle$ совпадают на гораздо большем временном промежутке, чем $\langle n_M(t) \rangle$ или $\langle X(t) \rangle$: на рисунке 5 они совпадают на интервале $0 < t < 2500$, а расхождение графиков $\langle n_M(t) \rangle$ и $\langle X(t) \rangle$ становится заметно на гораздо меньшем времени (см. рис. 2 и 3). Отметим, что для 200-сайтовой цепочки (рис. 5, черная линия), в которой полярон при этой температуре ($T = 1$) не разрушается в термодинамически равновесном состоянии, $\langle X_M(t) \rangle$ ведет себя как прямая, пока полярон не «дойдет до края». Для более длинных цепочек полярон в какой-то момент разрушается, что заметно по резкому изменению $\langle X_M(t) \rangle$ (для 400-сайтовой цепочки, синяя линия, на времени $t \approx 4000$, и для 700-сайтовой цепочки, красная линия, – на $t \approx 2500$).

На графиках рисунка 3 видно, что $\langle n_M(t) \rangle$ в разных цепочках движется с разной скоростью – в длинных цепочках быстрее; при этом $\langle p_M(t) \rangle$ в длинных цепочках убывает со временем быстрее, чем в коротких. При этом произведение $\langle X_M \rangle$ ведет себя почти одинаково для цепочек разной длины (см. рис. 5).

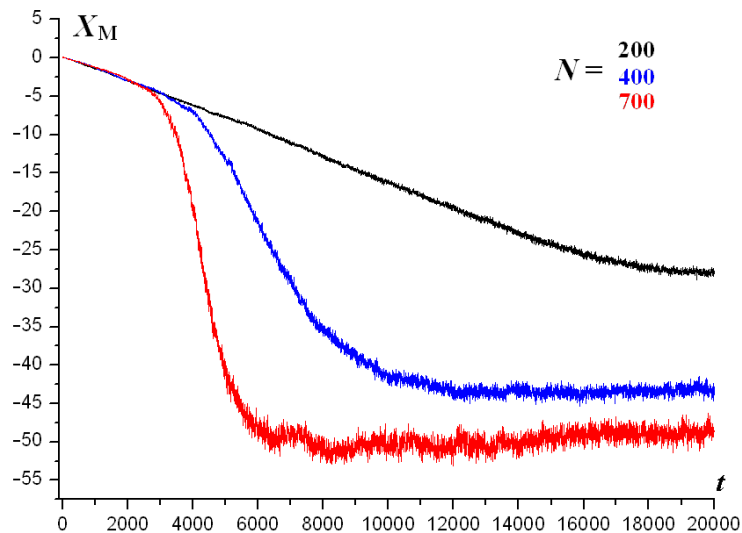


Рис. 5. Графики смещения полярона $\langle X_M \rangle$ для цепочек разной длины, параметры такие же, как для рисунков 2, 3: $\eta = 2.4$, $\chi = 1$, $\omega = 0.5 = \gamma$, $T = 1$, $E = 0.001$.

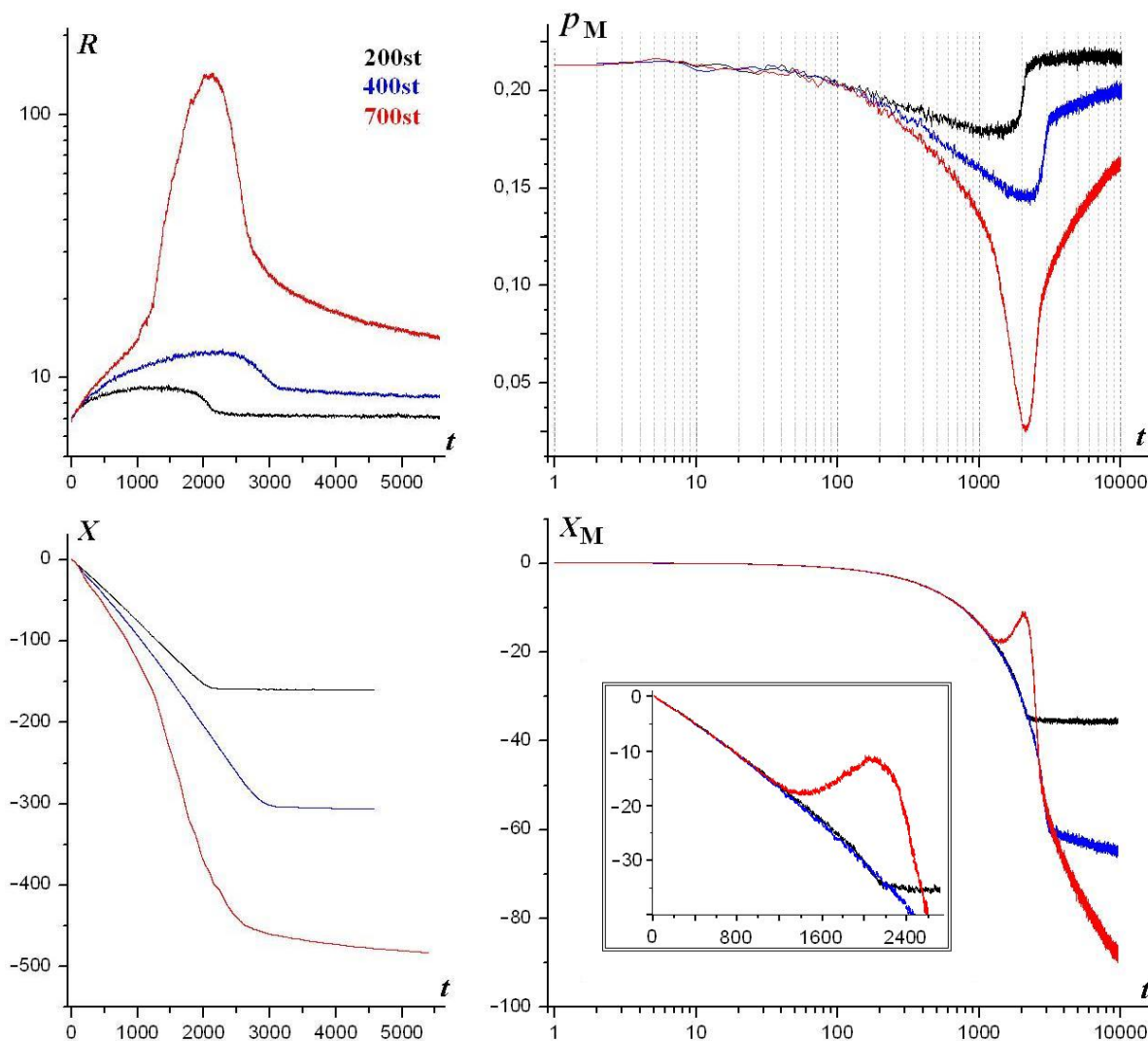


Рис. 6. Временные зависимости для цепочек разной длины. Параметры $\eta = 2.4$, $\chi = 1$, $\omega = 0.5 = \gamma$, $T = 1$, $E = 0.01$. Вверху слева – параметр делокализации $\langle R \rangle$, под ним смещение центра масс заряда $\langle X \rangle$, вверху справа максимум вероятности $\langle P_M \rangle$, под ним смещение полярона $\langle X_M \rangle$. Графики справа приведены в полулогарифмическом масштабе, и на врезке – $\langle X_M \rangle$ в обычном виде.

Увеличение напряженности ускоряет разрушение поляронного состояния. Начальный полярон рассчитан для цепочки с одинаковыми энергиями заряда на сайтах, но вносим мы его в цепочку, в которой энергии заряда линейно меняются по n (последний член в (1)) с углом наклона E . На рисунке 6 приведены графики для цепочек со значениями параметров, использованными для рисунков 2, 3 и 5 при напряженности $E = 0.01$. По графикам параметра делокализации $\langle R(t) \rangle$ видно, что для 200-сайтовой цепочки полярон не разрушается, $\langle R(t) \rangle < 10$ на всем времени интегрирования (напомним, что при $T = 0$ $R \approx 6.8$), а для 700-сайтовой $\langle R(t) \rangle$ быстро растет после $t \approx 1200$, что показывает разрушение полярона. Уменьшение $\langle R(t) \rangle$ для 700-сайтовой цепочки после $t \approx 2200$ связано с тем, что заряд дошел до края цепочки.

Разрушение полярона в 700-сайтовой цепочке на этом же времени $t > 1000$ можно увидеть также по убыванию $\langle p_M(t) \rangle$, настолько быстрому, что смещение полярона $\langle X_M(t) \rangle = \langle p_M(n_M - n_0) \rangle$ на интервале t примерно от 1200 до 2200 не увеличивается по модулю и даже возвращается к нулю (на красной кривой $\langle X_M \rangle$).

Более детальное рассмотрение динамики распределения вероятности для 700-сайтовой цепочки при такой сравнительно большой напряженности (рис. 6, см. также рис. 2, верхний график $n_M(t)$) показывает следующее. Начальный полярон движется и расплывается, от него «отрываются» волны, гораздо быстрее движущиеся по направлению поля. Затем вероятность становится ненулевой по всей цепочке, и два наибольших значения расположены так: одно P_1 примерно там, где был бы центр полярона, и второе P_2 – на краю цепочки. На этом временном интервале наблюдается первый локальный экстремум (минимум для $\langle X_M \rangle$ при $t \approx 1400$ на рис. 6, максимум для $\langle n_M \rangle$ при $t \approx 700$ на рис. 2; напомним, что эти графики получены для разных T). Затем какое-то время происходит чередование: $P_1 < P_2$, потом $P_2 < P_1$, потом опять наоборот и т.д., что связано с неоднократным отражением волны от края; при этом расстояние между ними уменьшается. На временах, совпадающих со вторым экстремумом графиков $\langle X_M \rangle$ и n_M , каких-то особенностей в динамике вероятностей не обнаружено. Вероятность на краю цепочки становится стабильно самой большой и значение $\langle n_M(t) \rangle$ близко к краю цепочки примерно на временах, когда наклон графика центра масс $\langle X(t) \rangle$ становится ближе к нулю.

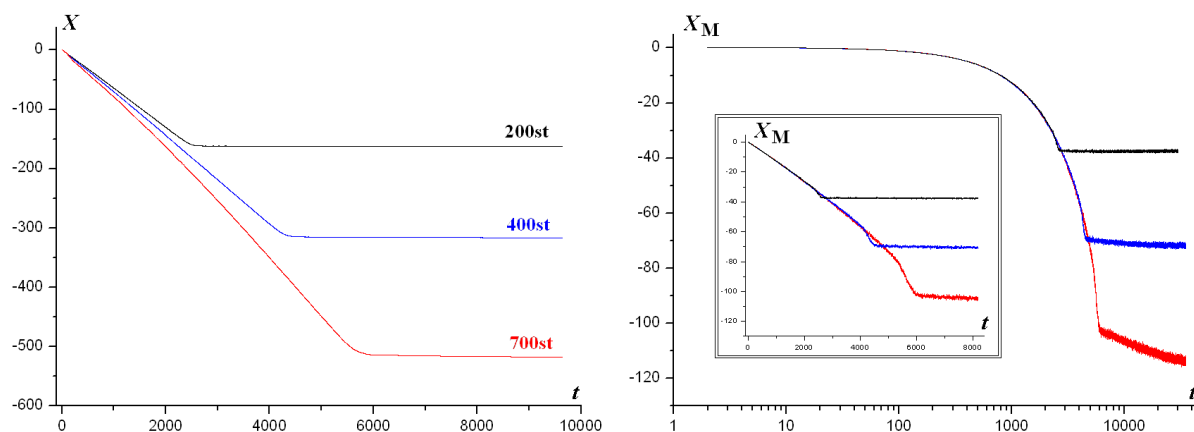


Рис. 7. Графики $\langle X \rangle$ (слева) и $\langle X_M \rangle$ (справа) для цепочек разной длины, параметры $\eta = 2.4$, $\chi = 1$, $\omega = 0.5 = \gamma$, $T = 0.5$, $E = 0.01$. Смещение полярона $\langle X_M \rangle$ приведено в полулогарифмическом масштабе для демонстрации, что кривые для разных цепочек очень близки, и на врезке – в обычном виде.

При уменьшении температуры, как и следовало ожидать, время разрушения полярона растет. На рисунке 7 приведены результаты расчетов для $T = 0.5$, $E = 0.01$. Эта температура почти совпадает с T_{crit} для 700-сайтовой цепочки, т.е. в

термодинамическом равновесии заряд формирует полярон в 200- и 400-сайтовых цепочках, а в 700-сайтовой начальный полярон разрушается довольно долго, на рисунке 7 по врезке $\langle X_M \rangle$ видно, что красная линия меняет наклон на времени $t > 5500$, при этом $\langle X(t) \rangle$ почти вышел на константу. т.е. полярон дошел почти до края цепочки.

О времени разрушения полярона для разных параметров с сохранением χ/ω

При моделировании мы использовали значение частоты сайтов $\omega = 0.5$, ускоряющие разрушение начального поляронного состояния и выход системы к термодинамическому равновесию, и выбирали значение константы связи χ такое, что отношение $\chi/\omega = 2$ (соответствует отношению параметров ДНК [30, 33]). При этом в термодинамически равновесном состоянии средние величины (полная энергия, электронная часть энергии, параметр делокализации, вероятность распределения заряда по сайтам цепочки и т.п.) такие же, как для параметров ДНК. Если использовать «более реалистичные» частоты классических сайтов $\omega = 0.01$, то время существования поляронных состояний значительно увеличивается.

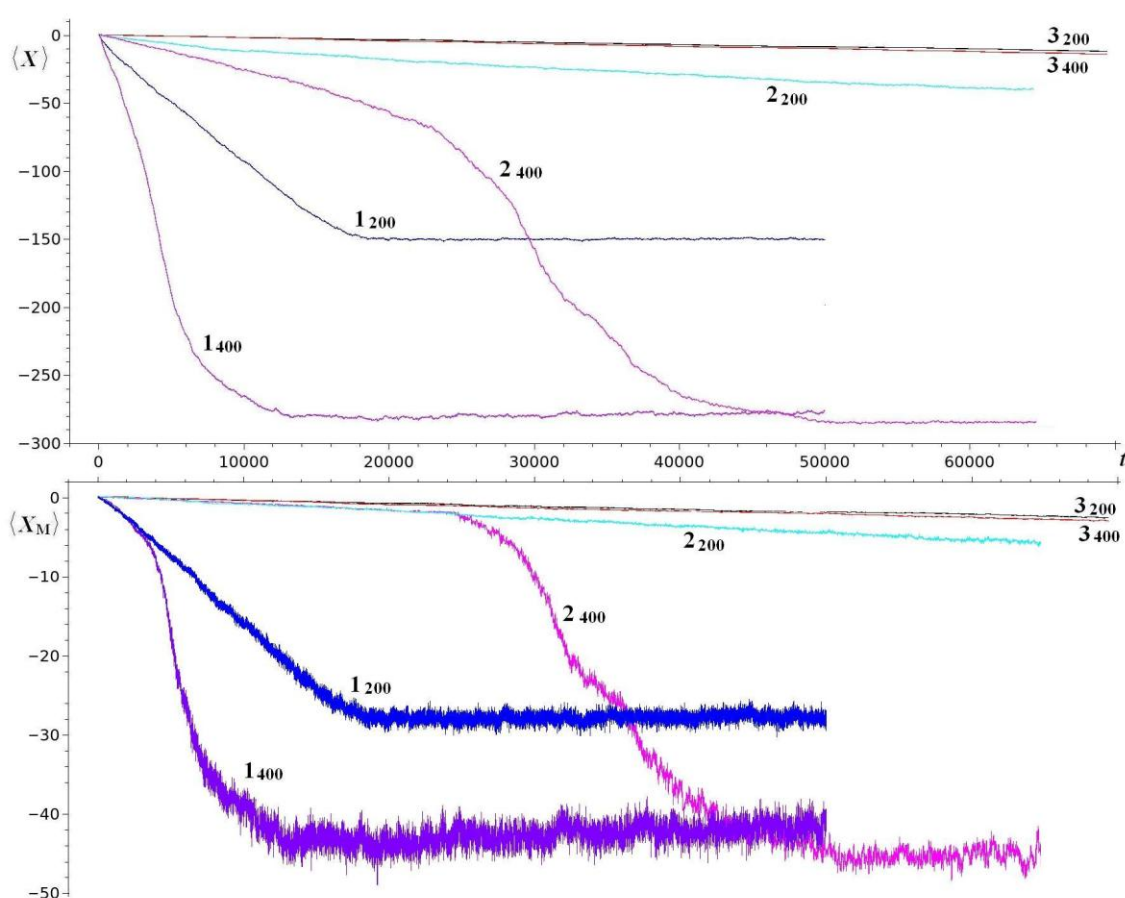


Рис. 8. Зависимости $\langle X(t) \rangle$ (вверху) и $\langle X_M(t) \rangle$ (внизу) для цепочек polyT длиной 200 и 400 сайтов. Приведены три варианта: 1) $\chi = 1, \omega = 0.5$, 2) $\chi = 0.2, \omega = 0.1$, 3) $\chi = 0.02, \omega = 0.01$ (ДНК-параметры). Цифрой рядом с графиком обозначен вариант, нижний индекс – длина цепочки. Каждая кривая – среднее по 24 реализациям, $T = 1, E = 0.001, \gamma = \omega$.

Для цепочки без поля ($E = 0$) зависимость времени разрушения полярона от ω показана на рисунке 1. Под действием поля небольшой напряженности ситуация не меняется. «Физически осмысленные» $\langle X(t) \rangle$ при параметрах ДНК расходятся медленно, при расчетах для цепочек разной длины $\langle X(t) \rangle$ близки на больших временных интервалах. Это продемонстрировано на рисунке 8, где приведены графики $\langle X(t) \rangle$ и $\langle X_M(t) \rangle$ для цепочек с разными параметрами классической подсистемы с сохранением

отношения χ/ω в поле $E = 0.001$, $T = 1$. Разница по углу наклона среднего смещения $\langle X(t) \rangle$ в цепочках разной длины уменьшается с уменьшением частоты ω классической подсистемы, и при этом увеличивается «общий участок» поляронного смещения $\langle X_M(t) \rangle$.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе изложены результаты исследований динамики полярона большого радиуса в цепочке под действием постоянного электрического поля. Рассмотрена область малых температур, при которых начальное поляронное состояние существует длительное время. Полученные результаты находятся в «нефизической области температур», ниже дебаевской температуры классическое описание неприменимо [24]. На наш взгляд, результаты представляют интерес как описание ситуации, когда полярон движется по цепочке, которая испытывает малые случайные возмущения со специальными свойствами. В такой цепочке из динамики системы можно рассчитать среднюю кинетическую скорость сайтов, и ее сопоставить «температуре системы». Также в большинстве расчетов мы использовали специальные значения параметров, ускоряющие разрушение поляронного состояния. Мы полагаем, что картина поляронной динамики качественно сходна при разных параметрах; проведенные тестовые расчеты с различной частотой сайтов не противоречат этому предположению.

Вычислительный эксперимент показывает, что полярон большого радиуса, в отличие от полярона малого радиуса [35], может двигаться по цепочке. Прямым моделированием найдены общие зависимости при одинаковой температуре и одинаковой напряженности внешнего поля на начальном этапе, когда полярон в длинных цепочках еще не успел разрушиться.

В полуклассической модели Холстейна область существования поляронов в термодинамически равновесном состоянии зависит не только от температуры, но и от длины цепочки. Поэтому при расчетах из поляронных начальных данных среднее смещение центра масс заряда $\langle X(t) \rangle = \langle \sum p_n(n - n_0) \rangle$ при одинаковой температуре различается для цепочек разной длины. Прямым моделированием показано, что «среднее смещения полярона» $\langle X_M(t) \rangle = \langle p_M(n_M - n_0) \rangle$, учитывающее только максимум вероятности и его положение, для цепочек разной длины ведет себя почти одинаково на временах, пока полярон не разрушается. Для больших температур (когда заряд находится в делокализованном состоянии) в стационарном режиме угол наклона центра масс заряда $\langle X(t) \rangle$ и среднеквадратичного смещения $\langle X^2(t) \rangle$ [30] не зависят от длины цепочки. Поляронное смещение $\langle X_M(t) \rangle$ можно считать аналогом $\langle X(t) \rangle$ при малых температурах термостата. Проведенные расчеты позволяют предположить, что для полярона большого радиуса при нулевой температуре подвижность маленькая, но ненулевая. Этот вывод согласуется с результатами вычислительных экспериментов в цепочках без учета температуры [14, 16].

По результатам моделирования, перенос происходит быстрее в делокализованном состоянии. Так, на рисунке 3 показано, что в 700-сайтовой цепочке максимум заряда в делокализованном состоянии доходит до края на времени $t \approx 5000$. Еще столько же требуется для «сборки» вероятности на краю цепочки, наибольшее значение $p_M(t = 10000) \approx 0.9$, и дальше следует очень долгий выход к термодинамически равновесному состоянию. А для 200-сайтовой цепочки полярон проходит цепочку за $t \approx 20000$, но при этом всегда максимум вероятности $p_M > 0.15$. В данной модели возможны разные ситуации для потенциального применения ДНК в нанoeлектронике: короткий провод, по которому заряд движется медленнее, но с большей вероятностью, и длинный фрагмент, по которому перенос происходит быстрее, но диссипация заряда больше.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Давыдов А.С., Кислуха Н.И. Солитоны в одномерных молекулярных цепях. *ЖЭТФ*. 1976. Т. 71. № 9. С. 1090–1098.
2. Davydov A.S. Solitons and energy transfer along protein molecules. *J. Theor. Biology*. 1977. V. 66. № 2. P. 379–387. doi: [10.1016/0022-5193\(77\)90178-3](https://doi.org/10.1016/0022-5193(77)90178-3).
3. Davydov A.S. *Solitons in Molecular Systems*. Netherlands: Springer, 1985. 319 p. doi: [10.1007/978-94-017-3025-9](https://doi.org/10.1007/978-94-017-3025-9).
4. Якушевич Л.В. *Методы теоретической физики в исследованиях свойств биополимеров*. Под ред. Климонтовича Ю.Л. Пушино: ОНТИ НЦБИ АН СССР, 1990. 125 с.
5. Scott A. Davydov's soliton. *Phys. Rep.* 1992. V. 217. № 1. P. 1–67. doi: [10.1016/0370-1573\(92\)90093-F](https://doi.org/10.1016/0370-1573(92)90093-F).
6. Henderson P.T., Jones D., Hampikian G., Kan Y., Schuster G.B. Long-distance charge transport in duplex DNA: The phonon-assisted polaron-like hopping mechanism. *PNAS USA*. 1999. V. 96. № 15. P. 8353–8358. doi: [10.1073/pnas.96.15.8353](https://doi.org/10.1073/pnas.96.15.8353).
7. *Nanobioelectronics – for Electronics, Biology, and Medicine*. Eds. Offenhausser A., Rinaldi R. New York: Springer, 2009. 337 p. doi: [10.1007/978-0-387-09459-5](https://doi.org/10.1007/978-0-387-09459-5).
8. *Long-Range Charge Transfer in DNA II*. Ed. Schuster G.B. *Topics in Current Chemistry*. V. 237. Springer, 2004. 245 p.
9. *Charge Migration in DNA. Perspectives from Physics, Chemistry, and Biology*. Ed. Chakraborty T. Berlin: Springer, 2007. 288 p. doi: [10.1007/978-3-540-72494-0](https://doi.org/10.1007/978-3-540-72494-0).
10. Lakhno V.D. DNA nanobioelectronics. *International Journal of Quantum Chemistry*. 2008. V. 108. № 11. P. 1970–1981. doi: [10.1002/qua.21717](https://doi.org/10.1002/qua.21717).
11. Ratner M. A brief history of molecular electronics. *Nature Nanotechnology*. 2013. V. 8. № 6. P. 378–381. doi: [10.1038/nnano.2013.110](https://doi.org/10.1038/nnano.2013.110).
12. Astakhova T.Yu., Kashin V.A., Likhachev V.N., Vinogradov G.A. Polaron dynamics on the nonlinear lattice in the Su-Schrieffer-Heeger approximation. Exact and approximate solutions. *Acta Physica Polonica A*. 2016. V. 129. № 3. P. 334–339. doi: [10.12693/APhysPolA.129.334](https://doi.org/10.12693/APhysPolA.129.334).
13. Астахова Т.Ю., Кашин В.А., Лихачев В.Н., Виноградов Г.А. Поляроны на одномерной решетке в модели Су-Шриффера-Хигера. Перенос заряда в ДНК. *Матем. биология и биоинформ.* 2013. Т. 8. № 1. С. 316–339. doi: [10.17537/2013.8.316](https://doi.org/10.17537/2013.8.316).
14. Lakhno V.D., Korshunova A.N. Electron motion in a Holstein molecular chain in an electric field. *Eur. Phys. J. B*. 2011. V. 79. P. 147–151. doi: [10.1140/epjb/e2010-10565-2](https://doi.org/10.1140/epjb/e2010-10565-2).
15. Huang Zh., Chen L., Zhou N., Zhao Y. Transient dynamics of a one-dimensional Holstein polaron under the influence of an external electric field. *Ann. Phys. (Berlin)*. 2017. V. 529. P. 1600367. doi: [10.1002/andp.201600367](https://doi.org/10.1002/andp.201600367).
16. Коршунова А.Н., Лахно В.Д. Моделирование стационарных и нестационарных режимов движения заряда в однородной холстейновской цепочке в постоянном электрическом поле. *Журнал технической физики*. 2018. Т. 88. № 9. С. 1312–1319. doi: [10.21883/JTF.2018.09.46414.14-18](https://doi.org/10.21883/JTF.2018.09.46414.14-18).
17. Huang Zh., Hoshina M., Ishihara H., Zhao Y. Transient Dynamics of Super Bloch Oscillations of a 1D Holstein Polaron under the Influence of an External AC Electric Field. *Ann. Phys. (Berlin)* 2019. V. 531. P. 1800303. doi: [10.1002/andp.201800303](https://doi.org/10.1002/andp.201800303).
18. Maniadi P., Kalosakas G., Rasmussen K.O., Bishop A.R. AC conductivity in a DNA charge transport model. *Physical Review E*. 2005. V. 72. P. 021912. doi: [10.1103/PhysRevE.72.021912](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.72.021912).

19. Velarde M.G., Ebeling W., Chetverikov A.P. On the possibility of electric conduction mediated by dissipative solitons. *International Journal of Bifurcation and Chaos*. 2005. V. 15. № 1. P. 245–251. doi: [10.1142/S0218127405012144](https://doi.org/10.1142/S0218127405012144).
20. Diaz E., Lima R.P.A., Dominguez-Adame F. Bloch-like oscillations in the Peyrard-Bishop-Holstein model. *Physical Review B*. 2008. V. 78. № 13. P. 134303. doi: [10.1103/PhysRevB.78.134303](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.78.134303).
21. Berashevich J.A., Bookatz A.D., Chakraborty T. The electric field effect and conduction in the Peyrard-Bishop-Holstein model. *J. Phys.: Condens. Matter*. 2008. V. 20. № 3. P. 035207. doi: [10.1088/0953-8984/20/03/035207](https://doi.org/10.1088/0953-8984/20/03/035207).
22. Cantu Ros O.G., Cruzeiro L., Velarde M.G., Ebeling W. On the possibility of electric transport mediated by long living intrinsic localized soliton modes. *Eur. Phys. J. B*. 2011. V. 80. P. 545–554. doi: [10.1140/epjb/e2011-10880-0](https://doi.org/10.1140/epjb/e2011-10880-0).
23. Lakhno V.D. Davydov's solitons in homogeneous nucleotide chain. *International Journal of Quantum Chemistry*. 2010. V. 110. P. 127–137. doi: [10.1002/qua.22264](https://doi.org/10.1002/qua.22264).
24. Lomdahl P.S., Kerr W.C. Do Davydov solitons exist at 300K? *Phys. Rev. Lett.* 1985. V. 55. № 11. P. 1235–1238. doi: [10.1103/PhysRevLett.55.1235](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.55.1235).
25. Vitali D., Allegrini P., Grigolini P. Nonlinear quantum mechanical effects: real or artefact of inaccurate approximations? *Chemical Physics*. 1994. V. 180. № 2–3. P. 297–318. doi: [10.1016/0301-0104\(93\)E0416-S](https://doi.org/10.1016/0301-0104(93)E0416-S).
26. Salkola M.I., Bishop A.R., Kenkre V.M., Raghavan S. Coupled quasiparticle-boson systems: The semiclassical approximation and discrete nonlinear Schrodinger equation. *Physical Review B*. 1995. V. 52. № 6. R3824. doi: [10.1103/PhysRevB.52.R3824](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.52.R3824).
27. Savin A.V., Zolotaryuk A.V.. Dynamics of the amide-I excitation in a molecular chain with thermalized acoustic and optical modes. *Physica D: Nonlinear Phenomena*. 1993. V. 68. № 1. P. 59–64. doi: [10.1016/0167-2789\(93\)90029-Z](https://doi.org/10.1016/0167-2789(93)90029-Z).
28. Cruzeiro-Hansson L., Takeno S. Davydov model: The quantum, mixed quantum-classical, and full classical systems. *Physical Review E*. 1997. V. 56. № 1. P. 894–906. doi: [10.1103/PhysRevE.56.894](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.56.894).
29. Ebeling W., Velarde M.G., Chetverikov A.P. Bound states of electrons with soliton-like excitations in thermal systems. Adiabatic approximations. *Condensed Matter Physics*. 2009. V. 12. № 4. P. 633–645. doi: [10.5488/CMP.12.4.633](https://doi.org/10.5488/CMP.12.4.633).
30. Лакно В.Д., Фиалко Н.С. Подвижность дырок в однородной нуклеотидной цепочке. *Письма в ЖЭТФ*. 2003. Т. 78. № 5. С. 786–788. doi: [10.1134/1.1625737](https://doi.org/10.1134/1.1625737).
31. Лакно В.Д., Фиалко Н.С. Блоховские осцилляции в однородных нуклеотидных фрагментах. *Письма в ЖЭТФ*. 2004. Т. 79. № 10. С. 575–578. doi: [10.1134/1.1780553](https://doi.org/10.1134/1.1780553).
32. Лакно В.Д., Фиалко Н.С. О динамике полярона в классической цепочке с конечной температурой. *ЖЭТФ*. 2015. Т. 147. С. 142–148. doi: [10.7868/S0044451015010125](https://doi.org/10.7868/S0044451015010125).
33. Фиалко Н.С., Соболев Е.В., Лакно В.Д. О расчетах термодинамических величин в модели Холстейна для однородных полинуклеотидов. *ЖЭТФ*. 2017. Т. 151. № 4. С. 744–751. doi: [10.7868/S0044451017040000](https://doi.org/10.7868/S0044451017040000).
34. Holstein T. Studies of polaron motion: Part I. The molecular-crystal model. *Annals of Physics*. 1959. V. 8. № 3. P. 325–342. doi: [10.1016/0003-4916\(59\)-90002-8](https://doi.org/10.1016/0003-4916(59)-90002-8).
35. Лакно В.Д., Фиалко Н.С. Моделирование полярона малого радиуса в цепочке со случайными возмущениями. *Матем. биология и биоинформ.* 2019. Т. 14. № 1. С. 126–136. doi: [10.17537/2019.14.126](https://doi.org/10.17537/2019.14.126).
36. Voityuk A.A., Rosch N., Vixon M., Jortner J. Electronic Coupling for Charge Transfer and Transport in DNA. *J. Phys. Chem. B*. 2000. V. 104. № 41. P. 9740–9745. doi: [10.1021/jp001109w](https://doi.org/10.1021/jp001109w).

37. Lewis F.D., Wu Ya. Dynamics of superexchange photoinduced electron transfer in duplex DNA. *J. Photochem. Photobiol. C*. 2001. V. 2. № 1. P. 1–16. doi: [10.1016/S1389-5567\(01\)00008-9](https://doi.org/10.1016/S1389-5567(01)00008-9).
38. Jortner J., Bixon M., Voityuk A.A., Roesh N. Superexchange Mediated Charge Hopping in DNA. *J. Phys. Chem. A*. 2002. V. 106. № 33. P. 7599–7606. doi: [10.1021/jp014232b](https://doi.org/10.1021/jp014232b).
39. Greenside H.S., Helfand E. Numerical integration of stochastic differential equations-II. *Bell System Technical Journal*. 1981. V. 60. P. 1927–1940. doi: [10.1002/j.1538-7305.1981.tb00303.x](https://doi.org/10.1002/j.1538-7305.1981.tb00303.x).

Рукопись поступила в редакцию 27.05.2019, переработанный вариант поступил 29.06.2019.
Дата опубликования 16.07.2019.