

## **Равномерное движение и блоховские осцилляции полярона в однородной молекулярной полинуклеотидной цепочке в постоянном электрическом поле на основе модели Пейрарда – Бишопа – Холстейна**

Коршунова А.Н., Лахно В.Д.

*Институт математических проблем биологии РАН – филиал ИПМ РАН  
им. М.В. Келдыша*

[alya@impb.ru](mailto:alya@impb.ru)

Проведены численные эксперименты, демонстрирующие возможность поляронного переноса заряда в однородных незамкнутых полинуклеотидных цепочках при наличии постоянного электрического поля в цепочке. Ранее нами было проведено численное моделирование стационарных и нестационарных режимов движения заряда в молекулярной цепочке в постоянном электрическом поле на основе модели Холстейна. В данном исследовании была использована более детальная модель ДНК – нелинейная модель Пейрарда – Бишопа – Холстейна. Считается, что, по сравнению с простой моделью Холстейна, модель ПБХ лучше описывает динамические свойства ДНК. Сначала нами были изучены особенности движения заряда в однородных молекулярных полинуклеотидных цепочках конечной длины при отсутствии внешнего электрического поля. Исследования проводились в цепочках на основе моделей Пейрарда – Бишопа – Холстейна и Пейрарда – Бишопа – Доксуа – Холстейна. Показано, что в используемой в данной работе модели Пейрарда – Бишопа – Холстейна полярон может двигаться по цепочке с постоянной скоростью на большие расстояния для небольших значений напряжённости электрического поля. С увеличением значения напряжённости электрического поля равномерного движения заряда не наблюдается, заряд переходит в колебательный режим движения с блоховскими осцилляциями.

*Ключевые слова: ДНК, нанобиоэлектроника, полярон, перенос заряда, модель Пейрарда – Бишопа – Холстейна.*

## **Uniform Motion and Bloch Oscillations of Polaron in Homogeneous Molecular Polynucleotide Chain in Constant Electric Field Based on the Peyrard – Bishop – Holstein Model**

Korshunova A.N., Lakhno V.D.

*Institute of mathematical problems of biology RAS – the Branch of Keldysh Institute of Applied Mathematics RAS*

The numerical experiments which demonstrate the possibility of polaron charge transfer in a homogeneous non-closed polynucleotide chain in the presence of a constant electric field have been carried out. Previously, we performed a numerical simulation of stationary and non-stationary regimes of charge motion in a molecular chain subjected to a constant electric field based on the Holstein model. In this study, we use a more detailed DNA model – the nonlinear Peyrard–Bishop–Holstein (PBH) model. Today, it is considered that the PBH model describes the dynamic properties of DNA better than the simple Holstein model. Earlier we studied the charge motion in homogeneous finite-length molecular polynucleotide chains in the absence of an applied electric field. In experiments with chains, the PBH and Peyrard–Bishop–Dauxois–Holstein model were used. It is shown that in the PBH model used in this work, a polaron can move along the chain at a constant velocity over long distances for small values of electric field intensity. With an increase in the value of the electric field intensity the uniform motion of the charge is not observed, the charge goes into an oscillatory mode of motion with Bloch oscillations.

*Key words: DNA, nanobioelectronics, polaron, charge transfer, Peyrard-Bishop-Holstein model.*

## 1. Введение

В настоящее время активно развиваются исследования переноса заряда в ДНК, этой проблеме посвящено большое количество теоретических работ [1–9]. Это связано с возможностью использования полинуклеотидных цепочек типа ДНК в качестве базовых элементов нанобиэлектронных устройств, в том числе в качестве нанопроводов [10–14]. Основным носителем тока в однородных полинуклеотидных цепочках считается полярон [15–19].

В работах [20, 21] нами были показаны особенности движения заряда в однородных молекулярных полинуклеотидных цепочках конечной длины при отсутствии внешнего электрического поля в рамках моделей Пейрарда – Бишопа – Холстейна (ПБХ) и Пейрарда – Бишопа – Доксуа – Холстейна.

Стационарные и нестационарные режимы движения заряда в молекулярной цепочке в постоянном электрическом поле на основе модели Холстейна рассматривались нами в работах [22–25]. В данном исследовании рассматривается поляронный перенос заряда в однородных незамкнутых полинуклеотидных цепочках при наличии постоянного электрического поля в цепочке рамках модели Пейрарда–Бишопа–Холстейна. Показано, что, в зависимости от выбранных параметров цепочки и значения напряжённости электрического поля, полярон может двигаться с постоянной скоростью сохраняя свою первоначальную форму, или же, полярон разваливается и далее, потерявший форму полярона, заряд движется по направлению поля совершая блоховские осцилляции.

## 2. Математическая модель

Исследование поляронного переноса заряда в однородной незамкнутой G/C цепочке ДНК выполнялось в рамках квантово-классической модели, которая является комбинацией модели Холстейна [26, 27] и модели Пейрарда – Бишопа [2], в которой для описания взаимодействия нуклеотидов в паре используется нелинейный потенциал Морзе. Подробно это описано в работах [28, 3]. Цепочка рассматривается однородная, незамкнутая, имеющая два конца.

Динамика квантовой частицы в классической цепочке описывается системой нелинейных дифференциальных уравнений, которая в безразмерных переменных имеет вид [28]:

$$\dot{c}_n = -i\tau_e (c_{n-1} + c_{n+1}) - i\chi_{el} q_n c_n - i\lambda \tilde{E} n c_n, \quad (1)$$

$$\ddot{q} + \Gamma \dot{q} = e^{-q_n} (e^{-q_n} - 1) + \omega_{bond}^2 (q_{n-1} - 2q_n + q_{n+1}) - \chi_h |c_n|^2, \quad (2)$$

здесь  $c_n$  – амплитуды вероятности локализации заряда на  $n$ -ом сайте,  $\sum_n |c_n(\tilde{t})|^2 = 1$ ,  $\tau_e$  – отношение характерных времён эволюции волновой функции электрона и динамики возмущений в решётке,  $\chi_{el}$  и  $\chi_h$  – безразмерные параметры связи электрона и решётки,  $q_n$  – нормированное смещение,  $\omega_{bond}$  – нормированная частота колебаний сайтов в решётке. В классические уравнения движения (2) введена диссипация, определяемая коэффициентом трения  $\Gamma$ . Напряжённость электрического поля  $E = \tilde{E}E_0$ ,

$$E_0 = 10^4 \text{ В/см}, \quad \lambda = \frac{eE_0 a}{\hbar\omega_M}, \quad a - \text{постоянная решётки,}$$

$\omega_M$  – частота линейных колебаний в изолированном сайте.  $\tilde{t} = \omega_M t$  – безразмерное время.

Уравнение (1) – дискретное уравнение Шрёдингера для электрона, (2) – уравнение движения нуклеотидных пар. Система нелинейных дифференциальных уравнений (1),(2) решается методами: (а) – типа Рунге – Кутта 4-го порядка и (б) – явного 4-х шагового метода Адамса – Бэшфорда на этапе предсказания и расчетом поправки 3-х шаговым методом Адамса – Мултона. Расчёты выполнялись с использованием вычислительных средств МСЦ РАН.

## 3. Движение полярона в электрическом поле

Согласно работам [28, 2] полинуклеотидной цепочке *PolyG / PolyC* соответствуют следующие значения параметров:  $\tau_e = 18$ ,  $\chi_{el} = 8.5$ ,  $\chi_h = 0.5$ ,  $\omega_{bond} = 0.2$ . При таких параметрах цепочки в ПБХ модели полярон располагается на большом количестве сайтов. Характерный размер такого полярона  $\lim_{\tilde{t} \rightarrow \infty} d(\tilde{t}) \approx 52$ , где

$$d(\tilde{t}) = \sum_n |c_n(\tilde{t})|^2 / \sum_n |c_n(\tilde{t})|^4 = 1 / \sum_n |c_n(\tilde{t})|^4.$$

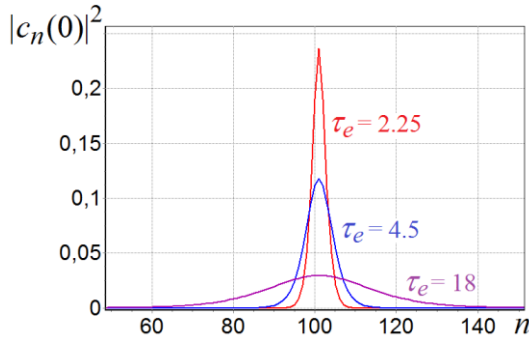
Также такой широкий полярон близок к стационарному решению континуальных уравнений (1),(2) для случая бесконечной цепочки. Но от более узких поляронов стационарное решение отличается значительно. Поэтому начальные значения были выбраны в виде обратного гиперболического косинуса:

$$|c_n(0)| = \frac{\sqrt{2}}{4} \sqrt{\frac{\chi_{el} \cdot \chi_h}{\tau_e \cdot \xi}} \operatorname{ch}^{-1} \left( \frac{(\chi_{el} \cdot \chi_h)(n - n_0)}{4\tau_e \cdot \xi} \right), \quad (3)$$

$$q_n(0) = |c_n(0)|^2 \cdot \chi_h / \xi, \quad \dot{q}_n(0) = 0,$$

где  $\xi$  – коэффициент растяжения, с помощью которого мы можем подобрать начальный полярон вида (3) максимально близким к устоявшемуся для любых параметров цепочки. Для указанных выше параметров цепочки значение коэффициента  $\xi = 1$ .

Таким образом, для моделирования движения полярона в постоянном электрическом поле мы поместили в цепочку полярон вида (3), соответствующий стационарному решению уравнений (1),(2) в отсутствие внешнего поля. Центр полярона поместили на сайт цепочки с номером  $n_0$ . Длина цепочки выбирается такой, чтобы полярон не оказался слишком близко к концу цепочки до окончания вычислений. Значение  $n_0$  (центр начального обратного гиперболического косинуса) в (3) выбирается так, чтобы на начальном этапе вычислений полярон находился достаточно далеко от концов цепочки. Поле включается “мгновенно” в начальный момент времени.

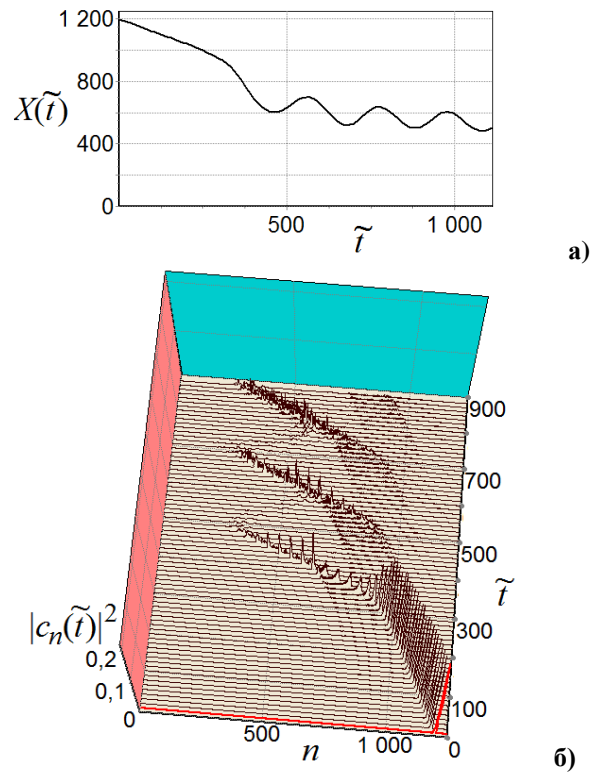


**Рис. 1.** График функции  $|c_n(0)|^2$  вида (3) в отсутствие электрического поля при различных значениях параметра  $\tau_e$ .

Проведённые вычисления показали, что для моделирования равномерного движения полярона в цепочке с параметрами, которые соответствуют параметрам цепочки ДНК, требуется выбирать очень длинные цепочки и проводить длительные вычисления. Поэтому целесообразно провести вычислительные эксперименты для цепочек с модельными параметрами, которые требуют меньших затрат.

На рисунке 1 представлены графики функции  $|c_n(0)|^2$  вида (3) для  $\tau_e = 18$ ,  $\tau_e = 4.5$ ,  $\tau_e = 2.25$ . Для  $\tau_e = 4.5$  и  $\tau_e = 2.25$  поляроны не такие широкие, они могут двигаться равномерно при больших значениях напряжённости электрического поля  $\tilde{E}$ . Объём требуемых вычислений сокращается в связи с увеличением требуемых значений  $\tilde{E}$ , так как период и максимальная амплитуда блоховских осцилляций обратно пропорциональны значению напряжённости электрического поля  $\tilde{E}$ . Период блоховских осцилляций  $\tilde{T}_{BL} \approx 13.3 \cdot \frac{2\pi}{\tilde{E}}$ , амплитуда блоховских осцилляций  $A_{BL} = \frac{4\tau_e}{\lambda\tilde{E}}$ .

На рисунке 2 показаны графики функций  $X(\tilde{t})$  и  $|c_n(\tilde{t})|^2$ , при движении заряда в электрическом поле напряжённостью  $\tilde{E} = 0.45$ . Центр заряда в начальный момент времени находится на сайте с номером  $n_0 = 1200$  в цепочке длиной  $N = 1250$  сайтов. Графики функций  $X(\tilde{t})$  и  $|c_n(\tilde{t})|^2$  на рисунке 2 наглядно показывают, что для заданного значения напряжённости электрического поля начальный полярон медленно ”оседает”, двигаясь по цепочке почти равномерно, затем резко теряет свою первоначальную форму и переходит в колебательный режим движения с блоховскими осцилляциями. Период блоховских осцилляций для  $\tilde{E} = 0.45$  примерно равен  $T_{BL} \approx 186$ .

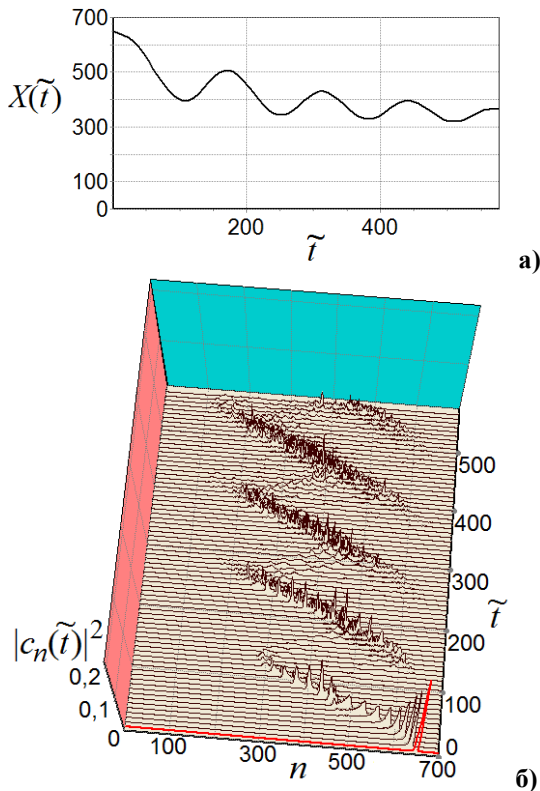


**Рис. 2.** Графики функций  $X(\tilde{t})$  и  $|c_n(\tilde{t})|^2$ , при движении заряда в электрическом поле напряжённостью  $\tilde{E} = 0.45$ , длина цепочки  $N = 1250$  сайтов.

Движение заряда в электрическом поле напряжённостью  $\tilde{E} = 0.7$  показано на рисунке 3. Центр заряда в начальный момент времени находится на сайте с номером  $n_0 = 650$  в цепочке длиной  $N = 700$  сайтов. Графики функций  $X(\tilde{t})$  и  $|c_n(\tilde{t})|^2$  в примере на рисунке 3 показывают, что заряд, сразу после включения поля, быстро теряет свою первоначальную форму и переходит в колебательный режим движения. Теоретический

период блоховских осцилляций для  $\tilde{E} = 0.7$  примерно равен  $T_{BL} \approx 119$ .

Представленные на рисунках 2 и 3 примеры показывают, что теоретический период блоховских осцилляций в обоих случаях достаточно близок к численному периоду осцилляций, который демонстрируют графики функций  $X(\tilde{t})$  и  $|c_n(\tilde{t})|^2$ .

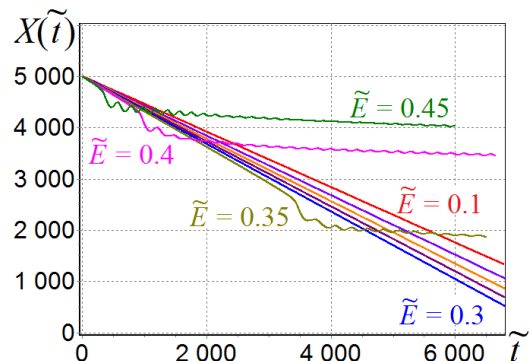


**Рис. 3.** Графики функций  $X(\tilde{t})$  и  $|c_n(\tilde{t})|^2$ , при движении заряда в электрическом поле напряжённостью  $\tilde{E} = 0.7$ , длина цепочки  $N = 700$  сайтов.

Покажем примеры моделирования движения заряда из начального поляронного состояния вида (3) при небольших значениях напряжённости электрического поля  $\tilde{E}$ . В примере на рисунке 4 выбрана цепочка длиной 6000 сайтов, начальный полярон вида (3) был помещён на сайт с номером 5000. Поле включается мгновенно в начальный момент времени. Заданы следующие значения напряжённости электрического поля:  $\tilde{E} = 0.1, 0.15, 0.2, 0.25, 0.3, 0.35, 0.4, 0.45$ .

Для значений напряжённости электрического поля  $\tilde{E} < 0.35$ , полярон движется по цепочке с постоянной скоростью, поскольку графики функции  $X(\tilde{t})$  на рисунке 4 выглядят прямыми линиями в течение показанного времени вычислений. Но, учитывая поведение полярона в данном примере для напряжённости электрического поля  $\tilde{E} = 0.35, 0.4, 0.45$ , можно предположить, что и для

меньших значений  $\tilde{E}$ , в какой-то момент времени полярон потеряет свою первоначальную форму и перейдёт в колебательный режим движения.



**Рис. 4.** Графики функций  $X(\tilde{t})$ , при движении заряда в электрическом поле различной напряжённости:

$\tilde{E} = 0.1, 0.15, 0.2, 0.25, 0.3, 0.35, 0.4, 0.45$ . Длина цепочки  $N = 6000$  сайтов. Значение  $\tau_e = 2.25$ .

#### 4. Выводы

Вычисления показали, что равномерное движение заряда по цепочке существует для небольших значений напряжённости электрического поля. Причём заряд может двигаться равномерно на очень большие расстояния, на десятки тысяч сайтов. Для больших значений напряжённости электрического поля равномерного движения заряда не наблюдается, заряд теряет свою форму и, совершая блоховские осцилляции, медленно продвигается в направлении поля. При переходе от режима равномерного движения заряда к колебательному режиму движения, при постепенном увеличении напряжённости электрического поля, наблюдается характерный режим поведения заряда. В этих случаях, для “промежуточных” значений напряжённости электрического поля, после начала движения заряд (или полярон) движется по цепочке практически равномерно, почти сохраняя свою форму, затем полярон резко теряет свою форму и начинает совершать блоховские осцилляции. Период почти равномерного движения полярона до момента его перехода в колебательный режим движения заряда быстро возрастает с уменьшением напряжённости электрического поля.

#### 5. Благодарности

Авторы выражают благодарность МСЦ РАН за предоставленные вычислительные ресурсы.

#### 6. Список литературы

1. Dauxois T., Peyrard M., Bishop A.R. Dynamics and thermodynamics of a nonlinear model for

- DNA denaturation. *Phys. Rev. E*. 1993. V. 47. P. 684. doi: [10.1103/PhysRevE.47.684](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.47.684).
2. Peyrard M., Bishop A.R. Statistical mechanics of a nonlinear model for DNA denaturation. *Phys. Rev. Lett.* 1989. V. 62. P. 2755–2758. doi: [10.1103/PhysRevLett.62.2755](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.62.2755).
  3. Chetverikov A.P., Ebeling W., Lakhno V.D., Shigaev A.S., Velarde M.G. On the possibility that local mechanical forcing permits directionally-controlled long-range electron transfer along DNA-like molecular wires with no need of an external electric field. *Eur. Phys. J. B*. 2016. V. 89. P. 101. doi: [10.1140/epjb/e2016-60949-1](https://doi.org/10.1140/epjb/e2016-60949-1).
  4. Maniadi P., Kalosakas G., Rasmussen K.O., Bishop A.R. ac conductivity in a DNA charge transport model. *Phys. Rev. E*. 2005. V. 72. P. 021912. doi: [10.1103/PhysRevE.72.021912](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.72.021912).
  5. Starikov E.B. Electron–phonon coupling in DNA: a systematic study. *Philosophical Magazine*. 2005. V. 85. P. 3435–3462. doi: [10.1080/14786430500157110](https://doi.org/10.1080/14786430500157110).
  6. 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. P. 035207. doi: [10.1088/0953-8984/20/03/035207](https://doi.org/10.1088/0953-8984/20/03/035207).
  7. Shigaev A.S., Ponomarev O.A., Lakhno V.D. A new approach to microscopic modeling of a hole transfer in heteropolymer DNA. *Chemical Physics Letters*. 2011. V. 513. P. 276–279. doi: [10.1016/j.cplett.2011.07.080](https://doi.org/10.1016/j.cplett.2011.07.080).
  8. Komineas S., Kalosakas G., Bishop A.R. Effects of intrinsic base-pair fluctuations on charge transport in DNA. *Phys. Rev. E*. 2002. V. 65. P. 061905. doi: [10.1103/PhysRevE.65.061905](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.65.061905).
  9. Shen W., Devereaux T.P., Freericks J.K. Exact solution for Bloch oscillations of a simple charge-density-wave insulator. *Phys. Rev. B*. 2014. V. 89. P. 235129. doi: [10.1103/PhysRevB.89.235129](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.89.235129).
  10. Porath D., Cuniberti G., Di Felice R. Charge transport in DNA-based devices. *Top. Curr. Chem.* 2004. V. 237. P. 183–227. doi: [10.1007/b94477](https://doi.org/10.1007/b94477).
  11. Lakhno V.D. DNA nanobioelectronics. *Int. Quantum. Chem.* 2008. V. 108. P. 1970–1981. doi: [10.1002/qua.21717](https://doi.org/10.1002/qua.21717).
  12. *Nanobioelectronics – for Electronics, Biology and Medicine*. Eds. Offenhausser A. Rinald R. N.-Y.: Springer, 2009.
  13. Taniguchi M., Kawai T. DNA electronics. *Physica E*. 2006. V. 33. P. 1–12. doi: [10.1016/j.physe.2006.01.005](https://doi.org/10.1016/j.physe.2006.01.005).
  14. Endres R.G., Cox D.L., Singh R.R.P. Colloquium: The quest for high-conductance DNA. *Rev. Mod. Phys.* 2004. V. 76. P. 195–214. doi: [10.1103/RevModPhys.76.195](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.76.195).
  15. Conwell E.M., Rakhmanova S.V. Polarons in DNA. *Proc. Natl. Acad. Sci.* 2000. V. 97. P. 4556.
  16. Lakhno V.D. Soliton-like Solutions and Electron Transfer in DNA. *J. Biol. Phys.* 2000. V. 26. P. 133–147. doi: [10.1023/A:1005275211233](https://doi.org/10.1023/A:1005275211233).
  17. Voulgarakis Nikolaos K. The effect of thermal fluctuations on Holstein polaron dynamics in electric field. *Physica B*. 2017. V. 519. P. 15–20. doi: [10.1016/j.physb.2017.04.030](https://doi.org/10.1016/j.physb.2017.04.030).
  18. Fialko N.S., Lakhno V.D. Nonlinear dynamics of excitations in DNA. *Phys. Lett. A*. 2000. V. 278. P. 108. doi: [10.1016/S0375-9601\(00\)00755-6](https://doi.org/10.1016/S0375-9601(00)00755-6).
  19. Lakhno V.D., Korshunova A.N., Formation of stationary electronic states in finite homogeneous molecular chains. *Math. Biol. Bioinf.* 2010. V. 5. P. 1–29. doi: [10.17537/2010.5.1](https://doi.org/10.17537/2010.5.1).
  20. Коршунова А.Н., Лакно В.Д. Особенности движения полярона в молекулярных полинуклеотидных цепочках конечной длины при наличии в цепочке локализованных возбуждений. *Математическая биология и биоинформатика*. 2017. Т. 12. № 1. С. 204–223. doi: [10.17537/2017.12.204](https://doi.org/10.17537/2017.12.204).
  21. Коршунова А.Н., Лакно В.Д. Особенности движения заряда в однородных молекулярных полинуклеотидных цепочках конечной длины. Быстрое формирование движущегося поляронного состояния. *Математическая биология и биоинформатика*. 2018. Т. 13. № 2. С. 534–550. doi: [10.17537/2017.12.204](https://doi.org/10.17537/2017.12.204).
  22. Lakhno V.D., Korshunova A.N. Bloch oscillations of a soliton in a molecular chain. *Eur. Phys. J. B*. 2007. V. 55. P. 85–87. doi: [10.1140/epjb/e2007-00045-3](https://doi.org/10.1140/epjb/e2007-00045-3).
  23. 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. doi: [10.1140/epjb/e2010-10565-2](https://doi.org/10.1140/epjb/e2010-10565-2).
  24. Korshunova A.N., Lakhno V.D., A new type of localized fast moving electronic excitations in molecular chains. *Physica E*. 2014. V. 60. P. 206. doi: [10.1016/j.physe.2014.02.025](https://doi.org/10.1016/j.physe.2014.02.025).
  25. Коршунова А.Н., Лакно 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).
  26. Holstein T., Studies of polaron motion: Part I. The molecular-crystal model. *Annals of Phys.* 1959. V. 8. P. 325–342. doi: [10.1016/0003-4916\(59\)90002-8](https://doi.org/10.1016/0003-4916(59)90002-8).
  27. Holstein T., Studies of polaron motion: Part II. The “small” polaron. *Annals of Phys.* 1959. V. 8. P. 343–389. doi: [10.1016/0003-4916\(59\)90003-X](https://doi.org/10.1016/0003-4916(59)90003-X).
  28. Лакно В.Д., Четвериков А.П. Возбуждение бабблов и бризеров в ДНК и их взаимодействие с носителями заряда. *Математическая биология и биоинформатика*. 2014. Т. 9. № 1. С. 4–19. doi: [10.17537/2014.9.4](https://doi.org/10.17537/2014.9.4).