= МАТЕМАТИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ==

УДК: 51-7, 53.09

Моделирование полярона малого радиуса в 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", Пущино, Московская область, Россия

Аннотация. В ряде публикаций, описывающих биофизические эксперименты по переносу зярада в ДНК, предполагается, что на коротких расстояниях в 2-3 нуклеотидных пары заряд переносится по суперобменному механизму, а в длинных фрагментах заряд формирует полярон, который движется вдоль цепочки под действием температурных флуктуаций. С помощью прямого моделирования мы исследовали динамику полярона малого радиуса в однородной цепочке под действием постоянного электрического поля при конечной температуре окружающей среды. Показано, что в цепочках с параметрами, соответствующими однородным адениновым фрагментам ДНК, переноса заряда по поляронному механизму – последовательного движения полярона с сайта на сайт – нет. Проверка «полярон или делокализованное состояние» основана на контроле средних характеристик: параметра делокализации, положения максимума вероятности и максимального по модулю смещения. Также рассмотрена динамика отдельных реализаций. В цепочке без поля наблюдается режим «неподвижный переключения между состояниями полярон делокализованное состояние», и новый полярон возникает на случайном сайте. Под действием постоянного поля заряд в среднем движется по направлению поля, но перенос происходит в делокализованном состоянии.

Ключевые слова: модель Холстейна, полярон малого радиуса, уравнение Ланжевена, напряженность постоянного поля, ДНК.

введение

Вопрос о возможных механизмах переноса избыточного заряда в биополимерных цепочках, таких как ДНК, представляет интерес для биофизики. Интерес к механизмам переноса заряда также связан с возможностью применения ДНК в молекулярной электронике [1–3].

В настоящее время опубликовано множество работ, посвященных моделированию движения заряженной частицы в молекулярных цепочках различного типа. Одним из возможных механизмов переноса заряда в биополимерах является поляронный, или солитонный. Благодаря своей стабильности, поляронный механизм переноса заряда привлекает внимание большого числа исследователей. В настоящее время сложилось представление, что носителями тока в ДНК могут являться поляроны или солитоны, см., например, работы [3–5] и ссылки в них.

^{*}fialka@impb.ru

^{**}lak@impb.ru

В данной работе исследованы свойства поляронов в холстейновской модели молекулярной цепочки, соответствующей простейшему представлению дуплекса ДНК как последовательности нуклеотидных пар [5–9]. Рассмотрен случай полярона малого радиуса, когда в невозмущенной цепочке заряд с вероятностью, близкой к единице, локализован на одном сайте; это реализуется, например, при параметрах однородных адениновых фрагментов ДНК. В этом случае при нулевой температуре полярон неподвижен, как показывают теоретические выкладки [10] об отсутствии зоны проводимости у полярона малого радиуса и результаты вычислительных экспериментов [11]. Однако исследователи полагали, что при конечной температуре перенос заряда может происходить как серия поляронных прыжков, вызванных температурными флуктуациями [12–16]. Мы исследовали этот вопрос с помощью прямого моделирования динамики полярона в однородных цепочках с учетом температуры и под действием постоянного электрического поля.

модель

Модель основана на гамильтониане Холстейна для дискретной цепочки [17]. В полуклассическом приближении, выбирая волновую функцию Ψ в виде $\Psi = \sum_{n=1}^{N} b_n |n\rangle$, где b_n – амплитуда вероятности нахождения заряда (электрона или дырки) на *n*-ом сайте (n = 1,...N, N – длина цепочки), усредненный гамильтониан имеет вид:

$$\left\langle \Psi \left| \hat{H} \right| \Psi \right\rangle = \sum_{m,n} \mathbf{v}_{mn} b_m b_n^* + \frac{1}{2} \sum_n M \dot{\tilde{u}}_n^2 + \frac{1}{2} \sum_n k \tilde{u}_i^2 + \sum_n \alpha' \tilde{u}_n b_n b_n^* + \sum_n e \tilde{E} a n b_n b_n^*.$$
(1)

Здесь v_{mn} ($m \neq n$) — матричные элементы перехода заряда между m-м и n-м сайтами (зависящие от интеграла перекрытия), v_{nn} — энергия электрона на n-ом сайте. Мы рассматриваем приближение ближайших соседей, т.е. $v_{mn} = 0$, если $m \neq n \pm 1$. Полагаем, что внутрисайтовые колебания \tilde{u}_n относительно центра масс малы и могут считаться гармоническими; полагаем линейной зависимость энергии заряда на n-ом сайте от смещения сайта \tilde{u}_n , α' — константа связи квантовой и классической подсистем, M — эффективная масса сайта, k — упругая постоянная.

Последнее слагаемое в (1) учитывает постоянное внешнее поле с напряженностью \tilde{E} , e – заряд электрона, a – расстояние между соседними сайтами.

Уравнения движения гамильтониана (1) имеют вид:

$$i\hbar \frac{db_n}{d\tilde{t}} = v_{n,n-1}b_{n-1} + v_{n,n}b_n + v_{n,n+1}b_{n+1} + \alpha'\tilde{u}_nb_n + nEb_n, \qquad (2)$$

$$M \frac{d^2 \tilde{u}_n}{d\tilde{t}^2} = -k\tilde{u}_n - \alpha' |b_n|^2 - \tilde{\gamma} \frac{d\tilde{u}_n}{d\tilde{t}} + A_n(\tilde{t}).$$
(3)

В подсистему (3) для моделирования термостата добавлены член с трением ($\tilde{\gamma}$ – коэффициент трения) и случайная сила $A_n(\tilde{t})$ со свойствами $\langle A_n(\tilde{t}) \rangle = 0$, $\langle A_n(\tilde{t}) A_m(\tilde{t} + \tilde{s}) \rangle = 2k_{\rm B}K\tilde{\gamma}\delta_{mn}\delta(\tilde{s})$ (*K* – температура [K]). Такой способ задания термостата с помощью уравнений Ланжевена (3) давно известен [18, 19].

Мы рассматриваем однородные цепочки и выбираем $v_{nn} = 0$. В этом случае уравнения движения (2), (3) после обезразмеривания имеют вид

$$ib_n = \eta(b_{n-1} + b_{n+1}) + \chi u_n b_n + nEb_n, \qquad (4)$$

$$\ddot{u}_{n} = -\omega^{2} u_{n} - \chi |b_{n}|^{2} + \gamma \dot{u}_{n} + \xi Z_{n}(t).$$
(5)

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. Безразмерные величины коэффициентов связаны с размерными параметрами следующим образом. Выберем τ – характерное время, $\tilde{t} = \tau t$. Матричные элементы $\eta = v_{nn+1} \tau / \hbar$, напряженность $E = ea\tilde{E}\tau/\hbar$ (*e* – заряд электрона, *a* – расстояние между соседними сайтами). Частоты колебаний сайтов $\omega = \sqrt{\tau^2 k / M}$, $\chi = \alpha' \sqrt{\tau^3 / \hbar M}$. $Z_n(t)$ – случайная величина со свойствами

$$\left\langle Z_{n}(t) \right\rangle = 0, \qquad \left\langle Z_{n}(t) Z_{n}(t+t') \right\rangle = \delta(t'),$$

$$\xi = \sqrt{2k_{\rm B}K^{*}\tau/\hbar} \sqrt{\gamma T}, \qquad (6)$$

где $T = K/K^*$ – безразмерная температура.

ВЫЧИСЛИТЕЛЬНЫЙ ЭКСПЕРИМЕНТ

При заданной температуре термостата T проводился расчет множества реализаций (траекторий системы (4),(5) из разных начальных данных и с разными временными «случайными» последовательностями), и считаются средние по реализациям временные зависимости. Расчеты отдельных реализаций выполнялись 2o2s1g-методом [20] с добавлением искусственной нормировки (полная вероятность нахождения заряда в системе $\sum |b_n|^2 = \sum p_n = 1$, переменные b_n «подправляются» так, чтобы сумма квадратов их модулей равнялась единице).

Начальные данные: в квантовой подсистеме (4) амплитуды вероятностей соответствуют полярону – состоянию с наименьшей энергией, а в классической подсистеме (5) мы складываем поляронные смещения со случайными смещениями, вызванными температурой. Скорости сайтов задаются из равновесного распределения. Во всех реализациях в начальный момент центр полярона задается на одном и том же сайте n_0 .

Параметры модели, соответствующие нуклеотидным парам [14, 21, 22]: $M = 10^{-21}$ г, террагерцовая частота колебаний сайтов $\omega = 10^{12}$ сек⁻¹ соответствует жесткости водородных связей $k \sim 0.062$ эВ/Å², константа связи $\chi = 0.13$ эВ/Å. В адениновой цепочке polyA для соседних аденинов матричный элемент перехода между сайтами $v_{AA} = 0.030$ эВ, в безразмерных величинах при выборе характерного времени $\tau = 10^{-14}$ сек это соответствует $\eta = 0.456$, $\omega = 0.01$, $\chi = 0.02$ ($\chi/\omega = 2$). Для температуры мы выбрали характерное значение $K^* = 1$ К. В цепочках polyA образуется полярон малого радиуса, при T = 0 в состоянии с наинизшей энергией заряд с вероятностью 0.97 локализуется на одном сайте, параметр делокализации $R = 1/\Sigma p_n^2 \sim 1.05$.

Оценки области существования полярона в термодинамически равновесном состоянии для адениновых цепочек [23] $NTE^* < 0.8$ ($E^* \sim 0.001309$ при выбранных характерных величинах) дают границу $NT_{crit} \sim 610$, т.е. для цепочки 200 сайтов $T_{crit} \sim 3$ (K = 3 K).

Для однородных цепочек было показано [23], что в термодинамически равновесном состоянии средние величины зависят не от значений параметров, а от их соотношений: у систем с параметрами { η , ω , χ } и { η , $C\omega$, $C\chi$ }, где C = const, среднее распределение вероятностей, полная энергия, параметр делокализации R и другие характеристики одинаковы. Однако время выхода из поляронного к термодинамически равновесному состоянию будет сильно различно. При численном моделировании для классической подсистемы мы использовали адаптированные значения параметров ω = 0.5, χ = 1, при которых система быстрее выходит к состоянию термодинамического равновесия, т.е. полярон быстрее разрушается. Также в цепочках без внешнего поля мы моделировали

динамику полярона с параметрами, рассмотренными Холстейном [24]: $\omega = \eta = 0.608$, $\chi = 2.12$, для которого $R \sim 1.02$. Для этого, еще более узкого полярона $N T_{crit} \sim 2200$ [25].

При проведении вычислительного эксперимента рассчитываются (и осредняются, обычно, по 50 реализациям) вероятности распределения заряда по сайтам $p_n(t)$, параметр делокализации $R = 1/\sum p_n^2(t)$; если заряд формирует полярон, то $R \sim 1$, а если заряд переходит в делокализованное состояние, то $\langle R \rangle \sim N/2$ [25]; среднее смещение центра масс заряда $X = \sum p_n(t)(n - n_0)$, где n_0 совпадает с центром полярона в начальный момент времени. Сохраняются по реализациям значения максимума вероятности $p_M(t) = \max_n p_n(t)$, $n_M(t)$ – номер сайта, на котором вероятность нахождения заряда максимальная, и смещения $u_M(t)$ на сайте n_M . Также в «цепочке с окном», где не рассматривается часть с центром n_M (для 200-сайтовых цепочек мы убирали по 10 сайтов слева и справа, т.е. 21 сайт с центром n_M) выбирается сайт с наибольшим по модулю смещением

$$|u_K| = \max_{|n - n_M| > 10} |u_n|$$
(7).

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; если при этом p_M много больше средней вероятности в цепочке, возможно, это некий аналог солектрона (заряд «затянуло» в яму с самым большим смещением) [26, 27], однако при моделировании мы такой ситуации не наблюдали.

РЕЗУЛЬТАТЫ МОДЕЛИРОВАНИЯ

Динамика отдельной реализации (E = 0)

Результаты моделирования показывают, что при малых температурах термостата T полярон неподвижен. Максимум вероятности уменьшается с увеличением T, однако центр полярона n_0 не меняется. При $T \sim T_{crit}$ динамика заряда такова: в состоянии термодинамического равновесия полярон образуется на каком-то сайте, какое-то время существует, потом разрушается, какое-то время заряд можно считать делокализованным по всей цепочке, потом полярон «собирается» на другом сайте и т.д.



Рис. 1. Динамика распределения вероятностей (вверху) и смещений (внизу) в термодинамически равновесном состоянии. Цепочка из N = 30 сайтов, $\omega = \eta = 0.608$, $\chi = 2.12$, $\gamma = 0.3$, T = 70.

На рисунке 1 показана динамика распределения вероятностей и смещений в цепочке с холстейновскими параметрами при N = 30, T = 70 (NT = 2100) в термодинамически равновесном состоянии. На графиках начальный момент выбран, когда система уже пришла к равновесному состоянию. Сам процесс «разрушения» начального полярона очень длительный, в данном случае (рис. 1) выход к термодинамическому состоянию занимает $t \sim 15 \cdot 10^5$. На интервалах, когда заряда локализован на нескольких сайтах рядом (самый длительный на рисунке 1 от $t \sim 6 \cdot 10^5$ до $t \sim 6.5 \cdot 10^5$), максимум вероятности $p_{\rm M} \sim 0.6$ и смещение на сайте с максимумом вероятности $u_{\rm M} \sim -3$. На интервалах делокализованнного состояния (например, от $t \sim 1.5 \cdot 10^5$ до $t \sim 2.5 \cdot 10^5$) смещения сайтов $|u_n| < 1$. В модели Холстейна, когда сайты – несвязанные осцилляторы, оценка среднеквадратичных отклонений σ при температуре T [28] (см. соотношения (6)) равна:

$$\sigma^2 = \left\langle u_n^2 \right\rangle = k_B K^* \frac{\tau}{\hbar} \cdot \frac{T}{\omega^2} \,. \tag{8}$$

Для выбранных характерных значений $K^* = 1$ К, $\tau = 10^{-14}$ с, $k_B K^* \tau / \hbar \sim 0.001309$, и для нижнего графика рисунка 1 $\sigma \sim 0.5$. То есть, когда заряд находится в делокализованном состоянии, смещения сайтов цепочки лежат в интервале трех сигм, посчитанном для температурных флуктуаций, а когда заряд локализован, то на сайте с максимумом вероятности смещение u_M превышает 6 σ , и мы полагаем, что это именно поляронное состояние.

Результаты моделирования показывают, что при параметрах полярона малого радиуса в однородных цепочках без поля полярон не перемещается последовательно с сайта на сайт. Можно сказать, что здесь наблюдается «режим переключения» между поляронным состоянием и делокализованным, и где после интервала делокализации будет новый центр полярона – не зависит от прошлого положения полярона.

Динамика отдельной реализации в цепочке с постоянным полем ($E \neq 0$)

Типичная картина динамики приведена на рисунке 2. Здесь моделируется polyA цепочка длиной 200 сайтов. Изображены зависимости от времени положения максимума вероятности в цепочке $n_{\rm M}(t)$ (рис. 2,*a*), значение максимума вероятности $p_{\rm M}(t)$ (рис. 2,*b*) и смещение на этом сайте $u_{\rm M}(t)$, наложенное на максимальное по модулю смещение u_K в «цепочке с окном (рис. 2,*c*).

На графиках рисунка 2 видно, что центр поляронного состояния локализован на одном и том же сайте до разрушения полярона (интервал от t = 0 до $t \sim 6500$). На этом интервале $p_{\rm M}(t)$ убывает от 0.97 до ~ 0.5, смещение $u_{\rm M}$ на этом сайте уменьшается по модулю, но сам номер сайта $n_{\rm M}$ не меняется. Затем заряд быстро переходит в делокализованное состояние, вероятность «размазывается» по большой области ~100–150 сайтов, и в таком виде движется по направлению поля (интервал от $t \sim 6500$ до $t \sim 15000$, $p_{\rm M}(t) < 0.05$), после чего максимум вероятности локализуется в области сайтов с наинизшей энергией ($n \sim 200$), и постепенно $p_{\rm M}(t)$ увеличивается.

Значение E = 0.1 для ДНК соответствует напряженности $\tilde{E} \sim 3 \cdot 10^7$ В/м – величина не очень большая в нанометровых масштабах; так, в экспериментах [29] напряжение до 10 В подавалось на концы 20-сайтовой цепочки ДНК. Расстояние между соседними парами оснований $a \sim 3.4 \cdot 10^{-10}$ м, т.е. в этих экспериментах $\tilde{E} \sim 3 \cdot 10^8$ В/м.



Рис. 2. Динамика одной реализации, $\eta = 0.456$ (*polyA*), $\chi = 1$, $\omega = 0.5$, $\gamma = 4\omega$, T = 20. Цепочка 200 сайтов, в начальный момент полярон локализован на 20-м сайте, напряженность поля E = -0.1. *a*) – номер сайта $n_{\rm M}(t)$, на котором максимум вероятности, *b*) – само значение наибольшей вероятности $p_{\rm M}(t)$, *c*) – смещение на этом сайте $u_{\rm M}(t)$ (черная линия) и наибольшее по модулю смещение в «цепочке с окном», где убран участок в 21 сайт с центром на сайте $n_{\rm M}$ (серые квадраты).

Отметим, что для выбора «характерных» графиков мы просмотрели десяток разных реализаций для каждой из температур T = 5, 10 и 20. Качественно картина всегда одинакова – переноса по поляронному механизму нет.

Средние временные зависимости в цепочке с постоянным полем

В этом разделе для параметров, соответствующих рисунку 2, приведены средние по реализациям (осреднение по 72 вариантам). Во всех реализациях в начальный момент полярон локализован на 20-м сайте ($n_0 = 20$). Кривые более гладкие, так как развал полярона в разных реализациях происходит в разные моменты времени. На рисунке 3 приведено среднее смещение центра масс заряда $\langle X \rangle = \langle \sum p_n(t)(n - n_0) \rangle$.



Рис. 3. Среднее смещение $\langle X(t) \rangle$ и X(t) для одной реализации (серые квадраты, графики для нее же приведены на рис. 2). Цепочка polyA 200 сайтов, T = 20, E = -0.1.

График $\langle X \rangle$ на рисунке 3 сначала медленно увеличивается (на *t* до ~5000), на этом участке центр полярона неподвижен, но сам полярон медленно разрушается, и за счет этого увеличивается $\langle X \rangle$. Затем (*t* от 5000 до ~15000) график быстро растет, но здесь заряд находится в делокализованном состоянии, и для *t* > 15000 происходит медленная «сборка» заряда на другом конце цепочки.

Это же видно на графике параметра делокализации $\langle R(t) \rangle$ (рис. 4,*a*) – на промежутке до *t* ~ 5000 $\langle R(t) \rangle$ медленно растет: $\langle R(0) \rangle \sim 1.08$, $\langle R(4500) \rangle \sim 1.7$, т.е. заряд находится в локализованном состоянии. Затем идет быстрый рост $\langle R(t) \rangle$ – заряд переходит в делокализованное состояние, $\langle R(10000) \rangle \sim 100$ соответствует делокализации по всей цепочке. При этом среднее положение максимума вероятности $n_M(t = 10000) \sim 100$ в середине цепочки (рис. 4,*b*). По графикам 4,*a* и 4,*b* можно сказать, что заряд движется по цепочке в делокализованном состоянии. Это же видно на рисунке 4,*c* – смещения на сайте с максимумом вероятности $u_M(t)$ на промежутке *t* от 8000 до 15000 такие же, как на остальных сайтах. Затем заряд медленно «собирается» у края цепочки N = 200, где энергия заряда наинизшая, $\langle R \rangle$ уменьшается, и смещения u_M растут (по модулю).

На графике 4,*c* отметим поведение максимальных (по модулю) смещений u_k в цепочке с окном (см. (7)). До разрушения полярона (*t* от 0 до 5000) их среднее (дополнительно осредненное по интервалу) примерно равно –0.025, а в конце расчета (*t* от 25000 до 30000) $\langle \langle u_k \rangle \rangle \sim -0.12$. При этом полное среднее по смещениям в цепочке с окном $\langle \langle u_n \rangle \rangle$ на *t* от 0 до 5000 составляет примерно –0.001, и на втором интервале *t* от 25000 до 30000 – примерно –0.01. Полагаем, что это вклад заряда в распределение классических сайтов. Грубая оценка «равномерное распределение по всем сайтам» для N = 200 приводит к среднему $\langle u_n \rangle = -(\chi/\omega^2) \cdot (1/N) = -0.02$, при расчетах среднее ближе к нулю, потому что часть вероятности уже локализована в конце цепочки.



Рис. 4. *a*) – осредненный параметр делокализации $\langle R(t) \rangle$ (черная линия) и R(t) для одной реализации (серая линия, соответствует рис. 2), *b*) – усредненный номер сайта с максимумом вероятности $\langle n_{\rm M}(t) \rangle$, *c*) – средние зависимости смещения на сайте $u_{\rm M}(t)$ (черная линия) и среднее для наибольших по модулю смещений в «цепочке с окном», где убран участок в 21 сайт с центром на сайте $n_{\rm M}$ (серая линия)

Поскольку нас интересует полярон, то расчетов на большие времена мы не проводили. Но по расчитанным результатам (см. рис. 4) можно предположить, что дальше вероятность локализации в районе 200 сайта будет возрастать.

Еще раз подчеркнем. Хотя на графиках осредненных зависимостей центра масс заряда $\langle X(t) \rangle$ или положения максимума вероятности $\langle n_{\rm M}(t) \rangle$ можно выбрать «примерно линейный» участок, по которому оценить скорость движения заряда, но – это не будет движение полярона, заряд движется в делокализованном состоянии. При параметрах полярона малого радиуса заряд в поляронном состоянии неподвижен даже в цепочке под действием внешнего электрического поля.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе с помощью вычислительного эксперимента исследована динамика полярона в цепочке с малыми случайными возмущениями ланжевеновского типа и под действием постоянного электрического поля. Исследован случай полярона малого радиуса. В работе рассмотрены небольшие величины напряженности внешнего поля $E \leq 0.1$. Сделаем оценку в цепочке без температуры: для полярона малого радиуса смещение сайта, на котором локализован полярон $u_{pol} \sim -\chi/\omega^2$, энергия заряда на этом сайте (см. ур. (4)) $\chi u_{pol} \sim -\chi^2/\omega^2$; для адениновых фрагментов (χ/ω)² = 4. Если напряженность *E* большая, порядка величины χu_{pol} , так что энергия заряда на соседнем сайте сравнима с этой, то можно наблюдать перенос заряда в локализованном состоянии.

Рассмотрена область малых температур, при которых в термодинамическом равновесии заряд формирует полярон в сравнительно длинных цепочках. Вычислительные эксперименты для псевдо-адениновых цепочек проведены при «ускоряющих» значениях коэффициентов: в термодинамически равновесном состоянии средние значения распределения вероятностей, параметра делокализации, полной энергии системы и других термодинамических параметров такие же, как для адениновых фрагментов, однако время выхода из поляронного состояния к термодинамически равновесному гораздо меньше. Полученные результаты частично находятся в «нефизической области» температур ниже температуры Дебая $\Theta = \tilde{\omega} k_{\rm B} K$ (для параметров ДНК Θ ≈ 8 K), для которых классическое описание движения сайтов неприменимо [18]. В этом случае на наш взгляд результаты представляют интерес как описание динамики полярона в цепочке, которая испытывает малые случайные возмущения со специальными свойствами.

Ряд экспериментов по переносу заряда в ДНК проведен в растворах, когда существенную роль играют сольватационные эффекты [15, 30]. Учет сольватации приводит к образованию более узкого полярона, чем в «сухой» ДНК. В работе [30] показано, что с учетом сольватации дырка в однородной гуанин/цитозиновой цепочке ДНК локализована на одном сайте с вероятностью больше 0.9 (в «сухой» ДНК максимум полярона в (G/C) фрагменте равен примерно 0.7 [23]). Кроме того, результаты моделирования [31] показывают, что в неоднородных цепочках температурная устойчивость полярона повышается.

По результатам исследований можно предположить, что утверждение «поляроны движутся под действием температурных флуктуаций» для модели Холстейна в случае полярона малого радиуса не точно. Более точное утверждение: в динамике заряд «переключается» между делокализованным состоянием и неподвижным поляроном, и перенос происходит в делокализованном состоянии.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. *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.
- Lakhno V.D. DNA nanobioelectronics. International Journal of Quantum Chemistry. 2008. V. 108. № 11. P. 1970–1981. doi: <u>10.1002/qua.21717</u>.
- 3. *Charge Migration in DNA. Perspectives from Physics, Chemistry, and Biology.* Ed. Chakraborty T. Berlin: Springer, 2007. 288 p. doi: <u>10.1007/978-3-540-72494-0</u>.
- 4. Long-Range Charge Transfer in DNA II. Ed. Schuster G.B. Topics in Current Chemistry, V. 237. Springer, 2004. 245 p.
- 5. *Modern Methods for Theoretical Physical Chemistry of Biopolymers*. Eds. Starikov E.B., Tanaka S., Lewis J.P. Amsterdam: Elsevier Scientific, 2006. 461 p.

- 6. Alexandre S.S., Artacho E., Soler J., Chacham H. Small polarons in dry DNA. *Physical Review Letters*. 2003. V. 91. P. 108105. doi: <u>10.1103/PhysRevLett</u>.
- Wang Y., Fu L., Wang K.-L. Extended Holstein small polaron model for charge transfer in dry DNA. *Biophysical Chemistry*. 2006. V. 119. P. 107–114. doi: <u>10.1016/j.bpc.2005.09.008</u>.
- 8. Starikov E. Electron-phonon coupling in DNA: A systematic study. *Philosophical Magazine*. 2005. V. 85. P. 3435–3462. doi: 10.1080/14786430500157110.
- 9. Fialko N., Lakhno V. Nonlinear dynamics of excitations in DNA. *Physical Letters A*. 2000. V. 278. P. 108–112. doi: <u>10.1016/S0375-9601(00)00755-6</u>.
- Lakhno V.D. Davydov' solitons in DNA. In: Self-Organization of Molecular Systems From Molecules and Clusters to Nanotubes and Proteins. Eds. Russo N., Antonchenko V.Y., Kryachko E.S. Netherlands: Springer, 2009. P. 255–273. ISBN: 978-90-481-2482-4.
- Лахно В.Д., Фиалко Н.С. Полярон в молекулярных цепочках с дисперсией. *Физика и химия стекла*. 2011. Т. 37. № 1. С. 71–82. doi: <u>10.1134/S1087659611010068</u>.
- Grozema F.C., Berlin Y.A., Siebbeles L.D.A. Sequence-dependent charge transfer in donor-DNA-acceptor systems: A theoretical study. *International Journal of Quantum Chemistry*. 1999. V. 75. P. 1009–1016. doi: <u>10.1002/(SICI)1097-</u> <u>461X(1999)75:6<1009::AID-QUA5>3.0.CO;2-A</u>.
- Jortner J., Bixon M., Langenbacher T., Michel-Beyerle M.E. Charge transfer and transport in DNA. *PNAS USA*. 1998. V. 95. P. 12759–12765. doi: <u>10.1073/pnas.95.22.12759</u>.
- 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.
- 15. Basko D.M., Conwell E.M. Effect of Solvation on Hole Motion in DNA. *Phys. Rev. Lett.* 2002. V. 88. № 9. P. 098102. doi: <u>10.1103/PhysRevLett.88.098102</u>.
- Genereux J.C., Barton J.K. Mechanisms for DNA Charge Transport. *Chem. Rev.* 2010. V. 110. № 3. P. 1642–1662. doi: <u>10.1021/cr900228f</u>.
- 17. Holstein T. Studies of polaron motion: Part I. The molecular-crystal model. *Annals of Physics*. 1959. V. 8. № 3. P. 325–342. doi: <u>10.1016/0003-4916(59)-90002-8</u>.
- Lomdahl P.S., Kerr W.C. Do Davydov solitons exost at 300K? *Phys. Rev. Lett.* 1985.
 V. 55. № 11. P. 1235–1238. doi: <u>10.1103/PhysRevLett.55.1235</u>.
- 19. Helfand E. Brownian dynamics study of transitions in a polymer chain of bistable oscillators. J. Chem. Phys. 1978. V. 69. № 3. P. 1010–1018. doi: 10.1063/1.436694.
- Greenside H.S., Helfand E. Numerical integration of stochastic differential equations-II. Bell System Technical Journal. 1981. V. 60. P. 1927–1940. doi: <u>10.1002/j.1538-7305.1981.tb00303.x</u>.
- Voityuk A.A., Rosch N., Bixon 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.
- 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.
- Фиалко Н.С., Соболев Е.В., Лахно В.Д. О расчетах термодинамических величин в модели Холстейна для однородных полинуклеотидов. ЖЭТФ. 2017. Т. 151. № 4. С. 744–751. doi: <u>10.7868/S0044451017040000</u>.
- 24. Holstein T. Studies of polaron motion: Part II. The "small" polaron. *Annals of Physics*. 1959. V. 8. № 3. P. 343–389. doi: <u>10.1016/0003-4916(59)90003-X</u>.

- Лахно 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.
- Chetverikov A.P., Ebeling W., Velarde M.G. Local electron distributions and diffusion in anharmonic lattices mediated by thermally excited solitons. *Eur. Phys. J. B.* 2009. V. 70. P. 217–227. doi: <u>10.1140/epjb/e2009-00224-2</u>.
- 27. Chetverikov A.P., Ebeling W., Velarde M.G. On the temperature dependence of fast electron transport in crystal lattices. *Eur. Phys. J. B.* 2015. V. 88. P. 202–207. doi: 10.1140/epjb/e2015-60495-4.
- 28. Чандрасекар С. Стохастические проблемы в физике и астрономии. Под ред. Боголюбова Н.Н. М.: Государственное издательство иностранной литературы, 1947. 168 с.
- Yoo K.-H., Ha D.H., Lee J.-O., Park J.W., Kim Jinhee, Kim J.J., Lee H.-Y., Kawai T., Choi H.Y. Electrical Conduction through Poly(dA)-Poly(dT) and Poly(dG)-Poly(dC) DNA Molecules. *Physical Review Letters*. 2001. V. 87. № 19. P. 198102. doi: 10.1103/PhysRevLett.87.198102.
- 30. Voityuk A. Charge transfer in DNA: Hole charge is confined to a single base pair due to solvation effects. *J. Chem. Phys.* 2005. V. 122. P. 204904. doi: <u>10.1063/1.1924551</u>.
- Fialko N., Pyatkov M., Lakhno V. On the Thermodynamic Equilibrium Distribution of a Charge in a Homogeneous Chain with a Defect. *EPJ Web of Conferences*. 2018. V. 173. P. 06004. doi: <u>10.1051/epjconf/201817306004</u>.

Рукопись поступила в редакцию 29.03.2019. Дата опубликования 10.04.2019.