

非对称双链分子结构的热整流效应*

张茂平¹⁾ 钟伟荣^{1)†} 艾保全²⁾

1) (暨南大学物理系思源实验室, 广州 510632)

2) (华南师范大学物理与电信工程学院, 广州 510006)

(2010年10月21日收到; 2011年1月28日收到修改稿)

采用非平衡分子动力学方法, 研究由 Frenkel-Kontorova 模型构建的非对称双链分子结构体系, 并考察了温度、链内耦合强度、链间耦合强度以及系统尺寸对体系的热整流效应的影响. 研究表明, 低温下非对称双链体系表现出热整流效应; 在一定的范围内, 链间的耦合和链内的耦合强度越强, 体系的热整流效果就越好; 随着系统尺寸的增大, 热整流效率先减小后增加, 最后达到稳定. 非对称双链结构的链接粒子的功率谱行为与单链情形相似, 其可以用于对热整流效应的解释.

关键词: 双链分子结构, 热整流, Frenkel-Kontorova 模型, 链间相互作用

PACS: 05.60.-k, 44.10.+i, 66.10.cd, 44.05.+e

1. 引言

关于一维体系的研究, 目前主要表现两大特点: 一是单链构成的一维体系, 二是以是否含格点势的两大类模型. 基于不含格点势模型主要提出了 3 种模型, 即 FPU- α , FPU- β 和双原子 Toda^[1-4]. 现有的文献研究表明这 3 种模型的热传导行为并不是都满足傅里叶热传导定律, 如 Narayan 和 Ramaswamy^[5] 在分析一维流体的热输运性质的基础上从理论上证明了一维体系中存在反常的热输运行为, 并得到 $\kappa \propto N^{0.33}$ 的标度关系. 基于含格点势模型大致提出了几种模型, 即 Ding-a-Ding, Ding-Dong, Frenkel-Kontorova (FK) 和 ϕ^4 链等^[6-8]. 其中, FK 模型及其推广形式被应用于许多物理现象和系统的研究中, 例如位错动力学、耦合单摆、电荷密度波、Josephson 结阵列、滑动摩擦、介质摩擦学和自组织临界性^[9-12] 等等.

低维结构热整流效应的发现, 由于它具有十分重要的节能方面的潜在使用价值^[13-20], 使得热整流器件成了低维材料热输运研究的热点之一. 由此衍生非对称的一系列热效应, 如热开关、热内存等, 甚至有研究者提出热计算机雏形^[17]. 一维非对称单

链分子结构, 作为热器件最成熟的研究如 FK 模型, FPU, ϕ^4 和简谐振子模型等的热整流效应已有较为充分的研究^[21-26], 但真正的一维单链结构在实验上实现是不多见的. 相对而言, 双链结构如 DNA 分子较为常见. 因此研究双链分子结构的热输运性质, 对于实验实现更加接近. 文献^[26] 研究了完全对称的 FK 双链结构, 提出链间与链内耦合对热导率有不同的影响, 并揭示双链结构热输运性质与单链有很大不同. 在此基础上, 我们通过构造不对称的双链结构, 研究其相应热整流效应, 对于更深入理解 DNA 等生物分子结构的热性质以及能量输运问题, 甚至为生物热器件的研究具有重要启示.

2. 模型和系统的哈密顿量

本文采用了双链分子结构, 是由两条 FK 链通过线性耦合合成双链结构, 如图 1 所示.

A 链和 B 链皆由相同粒子数的两段组成, 即 I, II, III, IV 4 段. A 链的 I, II 两段由耦合强度 k_{a0} 连接, 而两段分别由链内粒子间耦合强度 k_{a1}, k_{ar} 连接, 对应的钉扎势强度为 V_{a1}, V_{ar} ; B 链的 III, IV 两段由耦合强度 k_{b0} 连接, 而两段分别由链内粒子间耦合强度 k_{b1}, k_{br} 连接, 对应的钉扎势强度为 V_{b1}, V_{br} . A

* 国家自然科学基金 (批准号: 11004082)、广东省自然科学基金 (批准号: 01005249) 和中央高校基本科研业务费专项资金 (批准号: 21609305) 资助的课题.

† 通讯联系人. E-mail: wrzhong@jnu.edu.cn

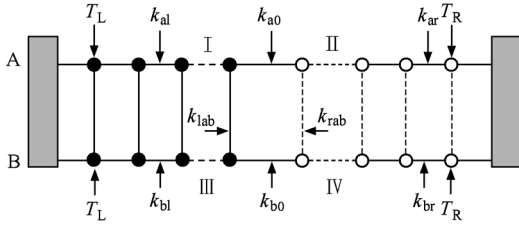


图1 双链分子体系的结构图

链的 I 和 B 链 III 两段由链间耦合强度 k_{lab} 连接, A 链的 II 和 B 链的 IV 两段由链间耦合强度 k_{rab} 连接. A 链和 B 链左端的第一个粒子和右端的最后一个粒子, 分别与温度为 T_L 和 T_R 的两个热库接触. 系统尺寸为 N , 表示 A 链(或 B 链)的粒子总数.

该体系的哈密顿总量为

$$H = H_{A I} + H_{A II} + H_{B III} + H_{B IV} + H_{int(I, III)} + H_{int(II, IV)}, \quad (1)$$

其中

$$H_M = \sum_{i=1}^N \left\{ \frac{P_{M,i}^2}{2m} + k_M(x_{M,i+1} - x_{M,i})^2 + \frac{V_M}{(2\pi)^2} [1 - \cos(2\pi x_{M,i})] \right\}, \quad (2)$$

$$H_{int(I, III)} = \sum_{i=1}^N [k_{lab}(x_{A I,i} - x_{B III,i})],$$

$$H_{int(II, IV)} = \sum_{i=1}^N [k_{rab}(x_{A II,i} - x_{B IV,i})]. \quad (3)$$

(2)式中 M 代表 I, II, III, IV 这 4 段中的一段, 粒子质量取为 $m = 1, V_{al} = V_{bl} = 5.0, V_{ar} = V_{br} = 1.0, k_{a0} = k_{b0} = 0.05$, 其他变化参数见图下标注; 采用固定边界 $x_{A I,0} = x_{A II,N+1} = 0, x_{B III,0} = x_{B IV,N+1} = 0$; A 链和 B 链平均温度为 T_0 , 左右热库的温度分别为 $T_L = T_0(1 + \Delta), T_R = T_0(1 - \Delta)$, 温差 $\Delta = T_L - T_R$ 这里的 T_0 与实际意义的温度 T_θ 有确定的关系^[24]: $T_\theta = (m\omega_\theta^2\phi^2 T_0)/k_B$, 公式中的 $m, \omega_\theta, \phi, k_B$ 分别为粒子的质量、外部电势、振荡频率和玻尔兹曼常数; 为简单起见, 采用约化单位处理, 温度、热流、谱密度、频率等皆取约化值; 在分子动力学模拟中, 我们采用朗之万热库和二阶龙格-库塔法, 选择步长 0.01 和步数 4×10^8 ; 与确定性热库(如 Nose-Hoover 热库^[25,26])的结果比较, 我们发现所得的结果定性上与热库无关, 局域温度 $T_i = \langle p_i^2 \rangle, \langle \rangle$ 表示对时间的平均; 图 1 中左端局域热流定义为^[27]

$$j_{A I,i} + j_{B III,i} = k_{al} \langle p_{A I,i}(x_{A I,i} - x_{A I,i-1}) \rangle + k_{bl} \langle p_{B III,i}(x_{B III,i} - x_{B III,i-1}) \rangle$$

$$+ k_{lab} \langle p_{A I,i}(x_{A I,i} - x_{B III,i}) \rangle + k_{lab} \langle p_{B III,i}(x_{B III,i} - x_{A I,i}) \rangle. \quad (4)$$

右端局域热流定义为^[27]

$$j_{A II,i} + j_{B IV,i} = k_{ar} \langle p_{A II,i}(x_{A II,i} - x_{A II,i-1}) \rangle + k_{br} \langle p_{B IV,i}(x_{B IV,i} - x_{B IV,i-1}) \rangle + k_{abr} \langle p_{A II,i}(x_{A II,i} - x_{B IV,i}) \rangle + k_{abr} \langle p_{B IV,i}(x_{B IV,i} - x_{A II,i}) \rangle. \quad (5)$$

判断稳定的条件为 $j_1 = j_2 = \dots = j_i = J, J_+ > 0, \Delta_+ > 0$ 表示热流从左到右流动, $J_- < 0, \Delta_- < 0$ 表示热流从右到左流动; 热整流效率定义为 $\eta = \frac{|J_+|}{|J_-|}$.

3. 结果与分析

3.1. 体系平均温度与热流的关系

图 2 显示, 温差 $\Delta > 0$ 时, 热流 J_+ 随着温差 Δ_+ 增大而增大; 温差 $\Delta < 0$ 时, $T_0 = 0.1$ 和 $T_0 = 0.2$ 两条曲线表现出与其余 3 条曲线不同的变化, 此时前者都有 $|\Delta_-|$ 增大, 热流 J_- 逐渐趋近零, 而后者仍保持温差 $\Delta > 0$ 情形. 这表明在合适的温度下, 该体系具有热整流效应. 对比 Δ_+ 和 Δ_- 发现, 当 $\Delta_+ = |\Delta_-|$ 时, J_+ 明显要比 $|J_-|$ 大, 这表明该体系的热流并不对称. 图 2 分析表明, 该体系热流不对称, 在合适的温度下还表现出热整流效应.

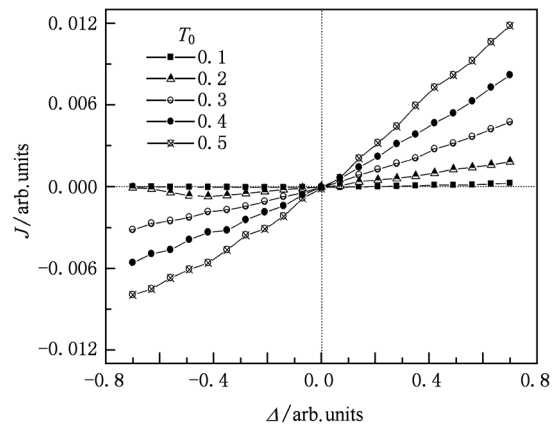


图 2 在不同平均温度 T_0 下双链两端热库温差 Δ 与热流 J 的关系 主要参数: $k_{al} = k_{bl} = 1.0, k_{ar} = k_{br} = 0.2, k_{ab} = 0.1, N = 64$

文献[28,29]对低温下的量子效应影响作了报道. 其结果表明, 对于简谐模型, 低温下整流效应会减弱和消失. 从我们的结果看, 低温下的量子效应反而会提高热整流效应. 这是因为我们研究的是存

在外势垒的非简谐 FK 模型,在低温下声子数量减少,声子的扩散性输运方式减弱,声子的弹道输运方式成为决定热流大小的重要因素,声子从高势垒往低跃迁的概率比从低势垒往高势垒跃迁高,因此整流效应更明显.

3.2. 链内和链间耦合强度与热流的关系

选取图 2 中分析得到的合适温度 $T_0 = 0.2$ 的条件下,分析链内耦合强度与热流关系,得图 3. 从图 3 可以看出,温差 $\Delta > 0$ 时,3 条曲线都有热流 J_+ 随着温差 Δ_+ 增大而增大;温差 $\Delta < 0$ 时,3 条曲线都有 $|\Delta_-|$ 增大,热流 J_- 逐渐趋近零,其中 $k_{al} = k_{bl} = 1.0$ 和 $k_{al} = k_{bl} = 1.2$ 两条曲线表现尤为明显. 图 3 说明该体系具有热整流效应. 图 3 分析表明,链内耦合强度在较小的情况下体系的热整流效应不明显,随着链间耦合强度增大体系的热整流效应越显著.

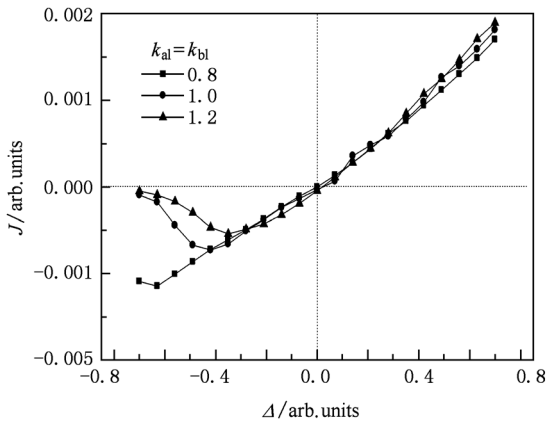


图 3 不同链内耦合强度 k_{al} 下的热流 J 与双链两端热库温差 Δ 的关系 主要参数: $k_{lab} = k_{rnb} = 1.0, k_{ar} = k_{br} = 5k_{al} = 5k_{bl}, T_0 = 0.2, N = 64$

同样选取图 2 中分析得到的合适温度 $T_0 = 0.2$ 和图 3 得到的合适链内耦合强度 $k_{al} = k_{bl} = 1.0$ 的条件下,得到图 4. 从图 4 可以看出,图 3 和 4 有相同变化的规律,即温差 $\Delta > 0$ 时,5 条曲线都有热流 J_+ 随着温差 Δ_+ 增大而增大;温差 $\Delta < 0$ 时,5 条曲线都有 $|\Delta_-|$ 增大,热流 J_- 逐渐趋近零,其中 $k_{ab} = 0.3, k_{ab} = 0.5$ 和 $k_{ab} = 1.0$,这 3 条曲线表现尤为明显. 图 4 再次说明该体系具有热整流效应. 图 4 分析表明,该体系具有热整流效应,并且随着链间耦合强度增大体系的热整流效应越显著.

从图 4 分析可知,链间耦合强度对热整流效应显著. 为此在 0.01—1.0 之间随机选取 19 个数值

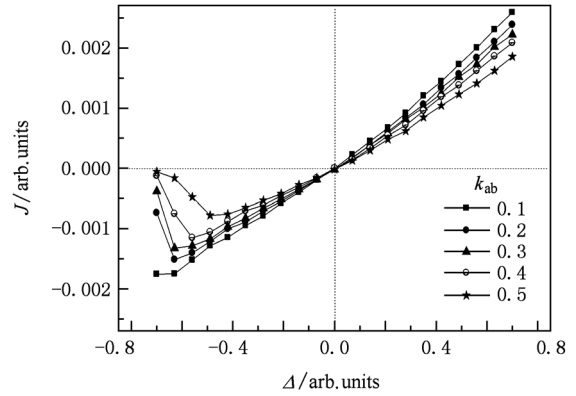


图 4 不同链间耦合强度 k_{ab} 下的热流 J 与双链两端热库温差 Δ 的关系 主要参数: $k_{ar} = k_{br} = 0.2, T_0 = 0.2, N = 64$

作为链间耦合强度,由此进一步讨论热流和热整流效率分别与链间耦合强度的关系,得图 5 和图 6.

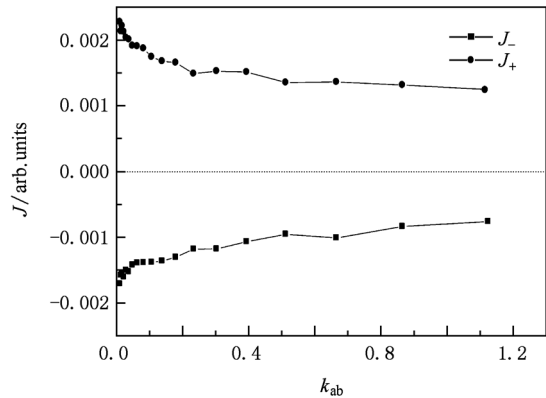


图 5 正负向热流 J_+, J_- 与耦合强度 k_{ab} 的关系 主要参数: $k_{al} = k_{bl} = 1.0, k_{ar} = k_{br} = 0.2, T_0 = 0.2, N = 64$

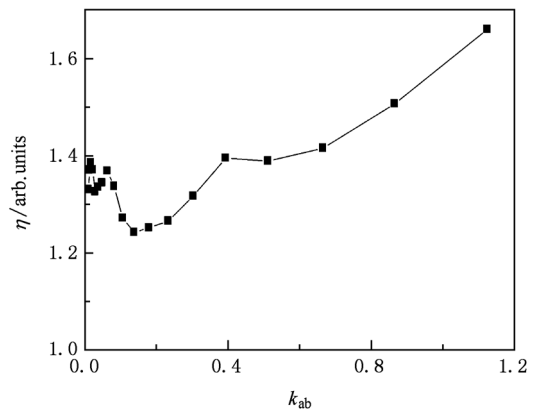
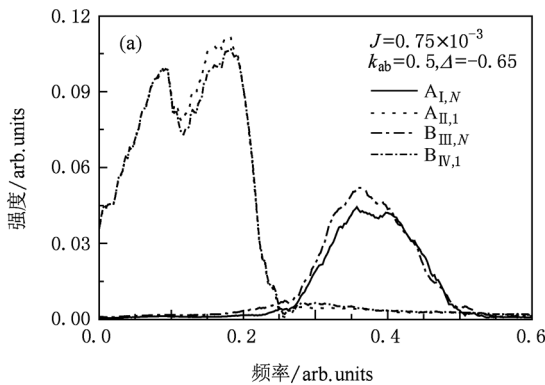


图 6 热整流效率 η 与耦合强度 k_{ab} 的关系 主要参数: $k_{al} = k_{bl} = 1.0, k_{ar} = k_{br} = 0.2, T_0 = 0.2, N = 64$

由图 5 可以看出,随着链间耦合强度加强,热流 J_+ , $|J_-|$ 都是随之减小,链间耦合强度在 0.01—0.5 之间热流变化比较急剧,在 0.5 以后热流变化比较平缓,逐渐趋于稳定. 我们可以认为在 0.5—1.0 之间,热流比较稳定. 对比 $J_+ - k_{ab}$, $J_- - k_{ab}$ 两条曲线,可以得出在 k_{ab} 相同的情况下, J_+ 明显要比 $|J_-|$ 大,再次表明该体系热流并不对称.

由图 6 可以看出,在链间耦合强度较小时,体系的热整流效率表现极不稳定;在链间耦合强度较大时,体系的热整流效率表现出一定的规律. 从整体来看,链间耦合强度大有利于提高体系热整流效率.

综合图 5 和图 6,得出:在较小的耦合强度时,



体系热流和热整流效率都极不稳定,不适合我们研究体系;在较大的耦合强度时,体系的热流趋于稳定,热整流效率有大的提高. 研究表明,在其他条件不变的情况下,双链可能比相应单链结构具有更好的热整流效率.

3.3. 热整流效应的声子谱解释

从图 7 的粒子的功率谱很容易发现,热流从左到右两段的功率谱有很多重合区,可以很好地匹配,热流也较大 ($J = 1.86 \times 10^{-3}$);热流从右到左两段的功率谱几乎没有重合区,不能够较好地匹配,热流较小 ($J = 7.5 \times 10^{-4}$). 这种功率谱匹配与热流的关系和单链情形相似^[30].

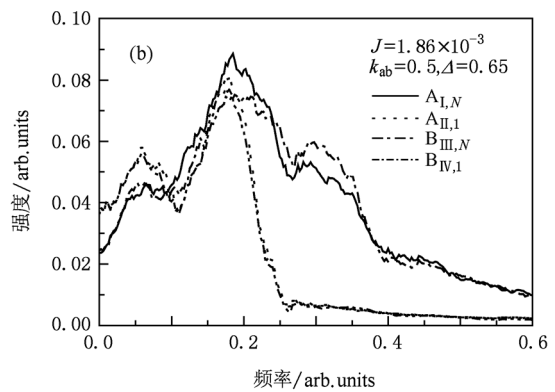


图 7 A 和 B 链各自的左端和右段相连的两个粒子的声子功率谱 (a)热流从右向左,(b)热流从左向右

3.4. 系统尺寸对热流的影响

最后,本文研究了体系的尺寸效应即粒子数对体系的热流及热整流效率的影响,分别得到图 8 和图 9.

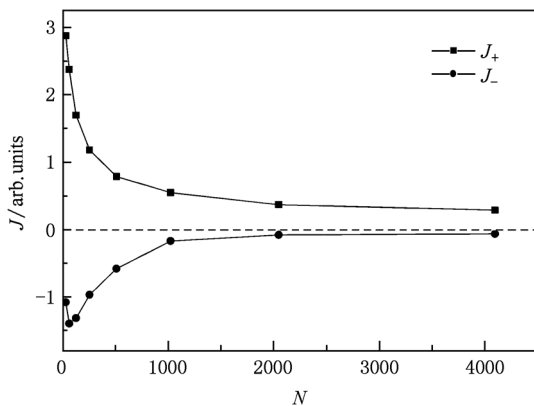


图 8 不同粒子数 N 下的正负向热流 J_+ , J_- $k_{al} = k_{bl} = 1.0, k_{ar} = k_{br} = 0.2, k_{lab} = k_{rab} = k_{ab} = 0.5, T_0 = 0.2$

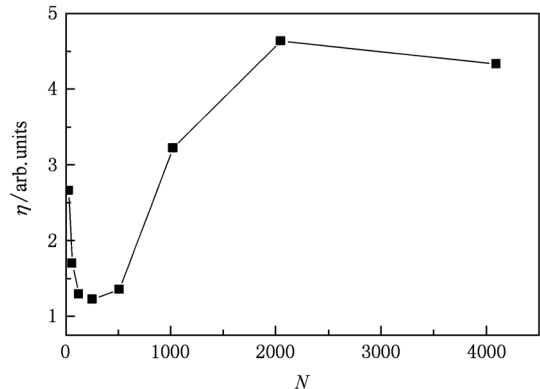


图 9 不同粒子数 N 下的热整流效率 η $k_{al} = k_{bl} = 1.0, k_{ar} = k_{br} = 0.2, k_{lab} = k_{rab} = k_{ab} = 0.5, T_0 = 0.2$

从图 8 可以看出粒子数越大,体系的热流就越小, $J_+ - N, J_- - N$ 两条曲线表现出相同的特点:随着粒子数的增大两者热流都是先急剧减小然后平缓逐渐趋于稳定. 对比 $J_+ - N, J_- - N$ 两条曲线,可以得出在粒子数相同的情况下, J_+ 明显要比 $|J_-|$ 大,同

样表明该体系热流并不对称.

图 8 表明,当粒子数大于 1000 时,体系的热流变化已经趋于平缓,继续增大粒子数,不再明显影响体系的热流.

从图 9 可知,体系热整流效率随着粒子数先陡然下降然后上升最终趋于稳定. 粒子数在 200 左右热整流效率最低约 1.2,在 2000 左右热整流效率最高约为 4.6,两者相差达 3.4.

4. 结 论

通过改变体系的温度、链内和链间耦合强度、粒子数来研究双链分子结构的一维体系的热整流效应. 体系的平均温度、链内耦合强度、链间耦合强

度及微观尺寸均影响体系的热整流效应和热整流效率;在一定范围内改变这些参数体系都表现出热整流效应和热流不对称.

在较低温度下,如 $T_0 = 0.2$,体系表现出较强的热整流效应;在高温下,体系热整流效应并不明显. 适中的链内耦合强度如 0.8—1.2 之间和较大范围的链间耦合强度如 0.1—1.0 之间,体系的热整流效应随着链内和链间耦合强度加强而显著;较高的耦合强度有利于体系获得较高的热整流效率. 体系的热流随着粒子数增大先急剧减小,然后趋于稳定;体系的热整流效率随着粒子数增大先急剧减小,接着迅速增大,最终趋于稳定. 我们的结果显示,在相同的粒子间耦合强度与非线性势的情况下,双链结构比单链结构具有更好的热整流效应.

-
- [1] Lepri S, Livi R, Politi A 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 1896
- [2] Hatano T 1999 *Phys. Rev. Lett.* **59** R1
- [3] Li B, Zhao H, Hu B 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 63
- [4] Li X X, Tang Y 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 6556 (in Chinese) [李新霞、唐 翌 2006 物理学报 **55** 6556]
- [5] Narayan O, Ramaswamy S 2002 *Phys. Rev. Lett.* **89** 200601
- [6] Terraneo M, Peyrard M, Casati G 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 094302
- [7] Hu B, Yang L, Zhang Y 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 124302
- [8] Li B, Lan J H, Wang L 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 104302
- [9] Middleton A A 1992 *Phys. Rev. Lett.* **68** 949
- [10] Kim J, Choe W, Kim S, Lee H 1994 *Phys. Rev.* **49** 459
- [11] Ding W Y 1983 *Proc. Am. Math. Soc.* **88** 341
- [12] Elmer F J 1994 *Phys. Rev. E* **50** 4470
- [13] Hu B, He D, Yang L, Zhang Y 2006 *Phys. Rev. E* **74** 060101
- [14] Lan J H, Li B 2006 *Phys. Rev. B* **74** 214305
- [15] Yang N, Li N, Wang L, Li B 2007 *Phys. Rev. B* **76** 020301 (R)
- [16] Wu G, Li B 2007 *Phys. Rev. B* **76** 085424
- [17] Xie B, Li H, Hu B 2005 *Europhys. Lett.* **69** 358
- [18] Chang C W, Okawa D, Majumdar A, Zell A 2006 *Science* **314** 1121
- [19] Li B, Wang L, Casati G 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 143501
- [20] Wang L, Li B 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 177208
- [21] Dauxois T, Peyrard M, Bishop A R 1993 *Phys. Rev. E* **47** 684
- [22] Terraneo M, Peyrard M, Casati G 2002 *Phys. Rev. Lett.* **88** 094302
- [23] Li B, Wang L, Casati G 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 184301
- [24] Lan J and Li B 2006 *Phys. Rev. B* **74** 214305
- [25] Nosé S, Chem J 1984 *Phys.* **81** 511
- [26] Hoover W G 1985 *Phys. Rev. A* **31** 1695
- [27] Zhong W R 2010 *Phys. Rev. E* **81** 061131
- [28] Tomi R, Teemu O, Antti-Pekka J 2009 *Phys. Rev. B* **79** 144306
- [29] Ming Y, Wang Z X, Ding Z J, Li H M 2010 *New J. Phys.* **12** 103041
- [30] Wang J, Li J Y, Zheng Z G 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 476 (in Chinese) [王 军、李京颖、郑志刚 2010 物理学报 **59** 476]

Thermal rectification of asymmetric double-stranded molecular structure^{*}

Zhang Mao-Ping¹⁾ Zhong Wei-Rong^{1)†} Ai Bao-Quan²⁾

1) (*Siyuan Laboratory, Department of Physics, College of Science and Engineering, Jinan University, Guangzhou 510632, China*)

2) (*School of Physics and Telecommunication Engineering, South China Normal University, Guangzhou 510006, China*)

(Received 21 October 2010; revised manuscript received 28 January 2011)

Abstract

Using nonequilibrium molecular dynamics simulation, we study the thermal rectification of an asymmetric double-stranded molecular structure system. We investigate the influence of temperature, intra- and inter-chain interaction and the system size on the thermal rectification effect of the asymmetric double-chain system. It is reported that the intra- and the inter-chain interaction have an advantage on the rectification efficiency. The rectification efficiency goes to a stable value at a large system size. This phenomenon is also explained by the power spectra of the inter-particles, which is similar to the situation of the single chain system.

Keywords: double-chains molecular structure, thermal rectification, Frenkel-Kontorova model, inter-chain interaction

PACS: 05.60.-k, 44.10.+i, 66.10.cd, 44.05.+e

^{*} Project Supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11004082), the Natural Science Foundation of Guangdong Province, China (Grant No. 01005249), and the Fundamental Research Funds for the Central Universities of China (Grant No. 21609305).

[†] Corresponding author. E-mail: wrzhong@jnu.edu.cn