

# ПОВЕДЕНИЕ АВТОВОЛН ВБЛИЗИ ПОРОГА РАСПРОСТРАНЕНИЯ ПРИ БЫСТРОЙ ДИФФУЗИИ АКТИВАТОРА

*А. Ю. Довженко, Э. Н. Руманов\**

*Институт структурной макрокINETИКИ и проблем материаловедения Российской академии наук  
142432, Черногoлoвкa, Московскaя обл., Россия*

Поступила в редакцию 11 июля 2003 г.

С помощью численного моделирования изучено поведение автоволн в среде, параметры которой близки как к порогу распространения, так и к границе диффузионной (колебательной) неустойчивости. В подпороговой области параметров волна затухает, а высоко над порогом — движется равномерно. Непосредственно над порогом ее скорость испытывает хаотические пульсации, которые перемежаются интервалами колебаний постоянной амплитуды. Переход от равномерного движения к хаотическому осуществляется серией удвоений периода и занимает относительно небольшой промежуток значений бифуркационного параметра. В подпороговой области характерное время затухания волны оказалось нерегулярной функцией этого параметра, возрастающей в среднем по мере приближения к порогу.

PACS: 05.65.+b, 05.70.Jk, 82.40.Ck

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Для описания автоволн часто используется математическая модель, содержащая два уравнения диффузии с источниками [1–3]. Интенсивность источника растет (по нелинейному закону) с концентрацией одного из компонентов — активатора — и является убывающей функцией концентрации другого — ингибитора. В [4] рассмотрена активная среда, параметры которой близки к порогу распространения автоволн. Для скорости волны получено квазистационарное уравнение. В надпороговой области параметров его решения описывают выход волны на режим равномерного движения, а под порогом — медленную стадию затухания, определяющую характерное время этого процесса. Восприимчивость волны к воздействиям (вариациям параметров) вблизи порога велика. Поэтому малые случайные неоднородности, имеющиеся во всякой реальной среде, вызывают интенсивные хаотические пульсации скорости и амплитуды. Дисперсия пульсаций и их корреляционное время растут по мере приближения к порогу.

Высокая восприимчивость вблизи порога способствует развитию неустойчивостей. В неподвижной

среде устойчивость определяется отношением коэффициентов диффузии ингибитора и активатора. Диффузионная неустойчивость возможна как при больших, так и при малых значениях этого отношения. При быстрой диффузии ингибитора неустойчиво однородное распределение концентраций. Накопление активатора в каком-либо участке среды ускоряет там реакцию, а компенсирующее накопление ингибитора невозможно. Формируются страты, пятна и т. п. Быстрая диффузия активатора превращает равномерное движение фронтов и импульсов в периодическое, скорость волны колеблется около своего среднего значения. Активатор проникает в исходное вещество перед фронтом, следует «вспышка», после чего волна замедляется, пока не сформируется новый, насыщенный активатором слой.

Для волн экзотермической реакции роль активатора играет тепло, а ингибитора — продукты реакции. Параметром, характеризующим устойчивость, является число Льюиса  $L$  — отношение коэффициентов диффузии и температуропроводности. Численное моделирование в [4] проводилось при  $L = 1$ , когда равномерное движение волны устойчиво во всей надпороговой области параметров. Здесь мы рассмотрим диффузионную (колебательную) неустой-

\*E-mail: ed@ism.ac.ru

чивость в условиях высокой припороговой восприимчивости и положим  $L = 0$ . Такую волну можно исследовать с помощью уравнений

$$\frac{\partial \eta}{\partial t} = k(1 - \eta)e^{-E/T} = \varphi(\eta, T),$$

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \chi \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \frac{Q}{c} \varphi - \frac{T - T_0}{\tau},$$

где  $\eta$  — концентрация продукта реакции,  $t$  — время,  $k$  имеет смысл частоты столкновений,  $E$  — энергия активации, для определенности принято, что  $\varphi$  пропорционально концентрации исходного вещества,  $T$  — температура,  $\chi$  — температуропроводность,  $x$  — координата вдоль направления распространения волны,  $Q$  — теплота реакции,  $c$  — теплоемкость,  $T_0$ ,  $\tau$  — температура термостата и время теплообмена с ним. Волной реакции называют решение этих уравнений в виде движущегося слоя, который разделяет исходное вещество ( $\eta = 0$ ) и продукты реакции ( $\eta = 1$ ). Для волн этого типа (бегущих фронтов), а также для бегущих импульсов есть порог распространения (см. обзор [3] и ссылки там). В надпороговой области параметров для каждого их набора имеются два волновых решения, устойчива только быстрая волна. На пороге оба решения сливаются и исчезают. Поведение в припороговой области для разных автоволн качественно сходно. Но в случае экзотермической реакции эффекты более контрастны, их легче анализировать.

Благодаря экспоненциальной зависимости скорости реакции от температуры нелинейность источника существенна лишь в малой окрестности температурного максимума — в зоне реакции. Отношение длины волны к размеру зоны реакции определяется числом Зельдовича

$$Z = E(T_b - T_0)/T_b^2, \quad (1)$$

$$T_b = T_0 + Q/c. \quad (2)$$

Обычно  $Z \gg 1$ , что позволяет аппроксимировать источник  $\varphi$  дельта-функцией. Тогда для скорости волны  $u(t)$  получается нелинейное интегральное уравнение, решать которое в общем случае не проще, чем находить  $u$ , решая исходные уравнения. Однако вблизи порога скорость меняется медленно, и удалось, используя разложение по степеням ускорения  $du/dt$ , прийти к простому уравнению первого порядка [4]. Исследование условий применимости квазистационарного уравнения показало, что при малых  $L$  оно непригодно. Это очевидным образом обусловлено диффузионной неустойчивостью: движение волны неравномерно, ускорения не малы. Изучать

волну, свойства которой определяются как близостью к порогу, так и колебательной неустойчивостью, будем при помощи численного моделирования. Если взять в качестве масштаба для  $t$  характерное время реакции  $\tau_R = (1/k) \exp(E/T_b)$ , а для  $x$  — длину  $\sqrt{\chi \tau_R}$ , то уравнения для концентрации и температуры можно переписать в виде

$$\frac{\partial \eta}{\partial t} = \Phi(\eta, \Theta), \quad \Phi = (1 - \eta) \exp\left(\frac{\Theta}{1 + A\Theta}\right), \quad (3)$$

$$\frac{\partial \Theta}{\partial t} - \frac{\partial^2 \Theta}{\partial x^2} = Z\Phi - \frac{\Theta + Z}{S}, \quad (4)$$

где  $\Theta$  — температура, отсчитанная от  $T_b$  в масштабе  $AT_b$ ,  $A = T_b/E$ . Число Семенова  $S = \tau/\tau_R$  служит основным варьируемым параметром. Использовалось значение  $Z = 6$ , для которого, согласно данным работ [5, 6], становится заметным влияние неустойчивости: при  $1/S = 0$  волна движется равномерно, а к пороговому значению  $S_{th}$ , возможно, примыкает узкая колебательная область. Длина участка, на котором проводились вычислительные эксперименты,  $x_0 = 1000$ , что превышает примерно в десять раз ширину волны и в триста раз передний участок, определяющий ее скорость и амплитуду. Поэтому пригодно простое граничное условие

$$\partial \Theta / \partial x = 0 \quad (5)$$

при  $x = 0$  и  $x = x_0$ . Начальные условия (подробнее см. ниже) выбирались так, чтобы волна распространялась справа налево, и, как только точка  $\eta(x) = 0.5$  оказывалась в левой половине интервала (т. е. при  $x < x_0/2$ ), проводился пересчет, т. е. сдвиг на десять узлов сетки. Участок такой длины на левом конце интервала прибавляется, на правом — отбрасывается. Было установлено, что промежуток времени между такими сдвигами не меньше 15–20 шагов. Шаг по времени составляет 0.01, по пространству — 0.05. Эти значения малы по сравнению соответственно с минимальным временем вспышки реакции (в условиях периодического или хаотического режима) и с шириной зоны реакции.

Когда величина  $S$  намного превышает пороговое значение  $S_{th}$ , скорость равномерного движения волны перестает зависеть от  $S$  и равна  $u_0 \approx 0.398$ . Это достаточно близко к значению  $1/\sqrt{Z}$ , полученному в приближении узкой зоны реакции, тогда как пороговое значение  $S_{th} \approx 326.2$  заметно больше полученного в том же приближении значения  $2eZ^2$ . В этом проявляется влияние колебательной неустойчивости, которое должно быть особенно сильным вблизи порога, где восприимчивость волны велика.

Как мы увидим, диффузионная неустойчивость не только повышает порог распространения, но и существенно усложняет движение волны в околопороговой области изменения параметров.

### 2. РОЖДЕНИЕ ПЕРИОДИЧЕСКОГО РЕЖИМА

Равномерное движение волны возможно при  $S > S_1 \approx 381$ , так что интервал, занятый пульсациями, относительно невелик и составляет около  $0.1S_{th}$ . При уменьшении  $S$  до  $S_1$  происходит жесткое возбуждение пульсаций, сопровождающееся гистерезисом: если  $S$  увеличивать, то колебания исчезают при  $S_0 \approx 384 > S_1$ . Зависимость от  $S$  максимального и минимального значений скорости  $u$  при пульсациях показана на рис. 1. Линии на этом графике получены следующим образом. Произвольно выбирались значения  $S_i > S_0$  и  $S_f < S_1$ . При численном интегрировании системы (3), (4) использовалась величина

$$\frac{1}{S} = \frac{1}{S_i} + \left( \frac{1}{S_f} - \frac{1}{S_i} \right) \frac{t}{t_0},$$

где  $t_0$  — время счета данного варианта. Затем счет продолжался также в течение времени  $t_0$ , а величина  $S$  возрастала от  $S_f$  до  $S_i$  по такому же закону. Как видим, положение точек перехода зависит от  $t_0$  (эффект затягивания, см. [7]), однако рост  $t_0$  ведет к насыщению, причем пределы, к которым стремят-

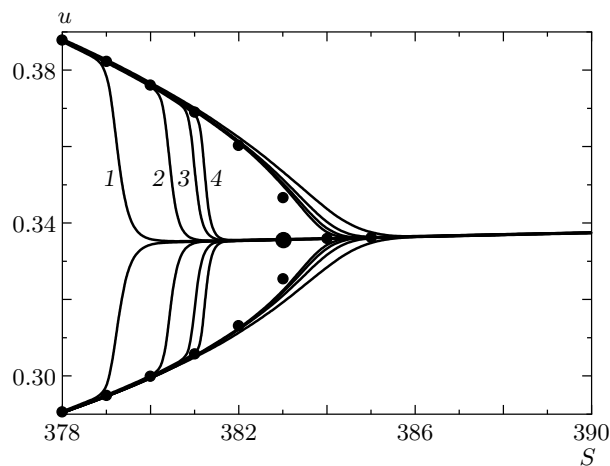


Рис. 1. Зависимость размаха пульсаций скорости от числа Семенова. Кривые 1–4 получены при медленном дрейфе  $S$  соответственно при  $t_0 = (1-4) \cdot 10^5$ , а точки — при постоянных значениях  $S$

ся эти точки, при увеличении и уменьшении  $S$  различны. Следовательно, жесткий переход к периодическому режиму не является результатом затягивания мягкого перехода при медленном уменьшении  $S$ . Для контроля проводился счет при постоянных  $S$ . По достижении заданного значения  $S$  его изменение прекращалось и счет продолжался, чтобы получить установившийся режим (время такого продолжения составляет  $10^4$ , что много больше возможных времен установления). В частности, при  $S = 383$  получено равномерное движение волны, когда было остановлено уменьшение  $S$ . Этому режиму отвечает большая точка на рис. 1, а две другие точки определяют размах колебаний, наблюдавшихся после увеличения  $S$  до того же значения.

Вместе с тем амплитуда колебаний вблизи  $S_0$  мала. По-видимому, переход от колебаний скорости к равномерному движению является жестким, но близким к мягкому. Это означает, что граница бассейнов притяжения в пространстве состояний расположена близко к предельной точке, отвечающей равномерному движению. Последнее в области гистерезиса формально устойчиво к бесконечно малым возмущениям, но воздействия конечной (хотя и малой) интенсивности должны разрушать этот режим. Ситуация напоминает паузейлово течение при больших числах Рейнольдса (см., например, [8]). Его удается поддерживать, устраняя источники возмущений на входе трубы, но достаточно слабого воздействия, чтобы произошла турбулизация потока. Роль воздействия могут играть малые неоднородности на пути волны, имеющиеся во всякой реальной среде.

Действие на равномерно движущуюся волну в области гистерезиса изучалось с помощью функции  $y(t)$ ,

$$S = \frac{S_a}{1 + y(t)}. \tag{6}$$

Возбуждение пульсаций при  $S_a = 383$  и разных  $y$  показано на рис. 2. Сначала медленным уменьшением  $S$  достигалось это значение. Затем в течение времени  $10^3$  оно оставалось постоянным, чтобы установилось равномерное движение, после чего «включалось» возмущение  $y(t)$ . График на рис. 2а получен при случайном изменении  $y$  на каждом шаге в пределах  $(-0.1, 0.1)$  в течение времени  $10^3$ . Такой «белый шум» вызывал хаотические колебания скорости. Когда он прекращался, амплитуда медленно росла до своей величины в установившемся режиме. На рис. 2б показаны пульсации, которые возбуждались импульсом в виде одного периода функции  $y = k \sin \omega t$ , причем  $2\pi/\omega = 56.11$  есть период установившихся колебаний при этом значении  $S$ .

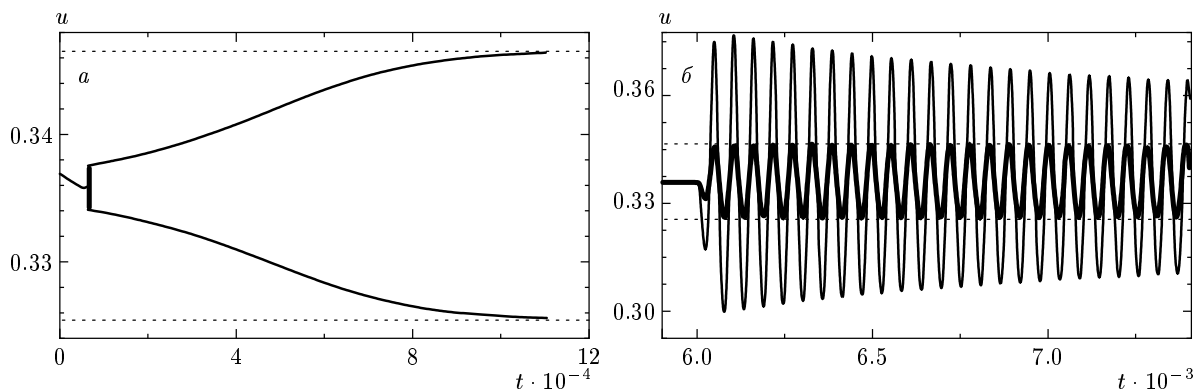


Рис. 2. Возбуждение колебаний шумовым импульсом (а) и «резонансное» возбуждение (б)

При  $k = 0.025$  время установления практически совпадает с периодом, при меньших  $k$  амплитуда нарастает медленнее, при бóльших — за период раскочиваются колебания большой амплитуды, которая затем убывает, стремясь к своему установившемуся значению, как показано на графике. Отметим, что на рис. 2а рост амплитуды колебаний, имеющих частоту установившегося режима, начинается после прекращения белого шума. Действие шума на равномерное движение волны приводит лишь к флуктуациям скорости, интенсивность которых растет, а спектр смещается в сторону низких частот по мере приближения к точке перехода  $S_1$ . Аналогично ведут себя флуктуации при  $L = 1$  вблизи порога распространения [4].

### 3. УДВОЕНИЯ ПЕРИОДА И ПЕРЕМЕЖАЕМОСТЬ

Режим, рождение которого описано в предыдущем разделе, занимает почти весь интервал  $(S_{th}, S_1)$ . По мере уменьшения  $S$  размах колебаний увеличивается, а частота уменьшается. При  $S = S_2 \approx 328$  начинаются удвоения периода. Общий вид бифуркационной диаграммы дан на рис. 3. В согласии с универсальностью Фейгенбаума [9], интервалы между последовательными удвоениями быстро выходят на закон убывающей геометрической прогрессии. Знаменатель  $1/\delta$  близок к табличному значению. Подсчитанная с этим значением величина  $S_\infty \approx 326.611$ . На рис. 4 показано распределение максимумов скорости  $u$  в хаотической области  $(S_{th}, S_\infty)$ . В рамку заключен участок, который при масштабном преобразовании повторяет исходную картину. Видны «окна», где

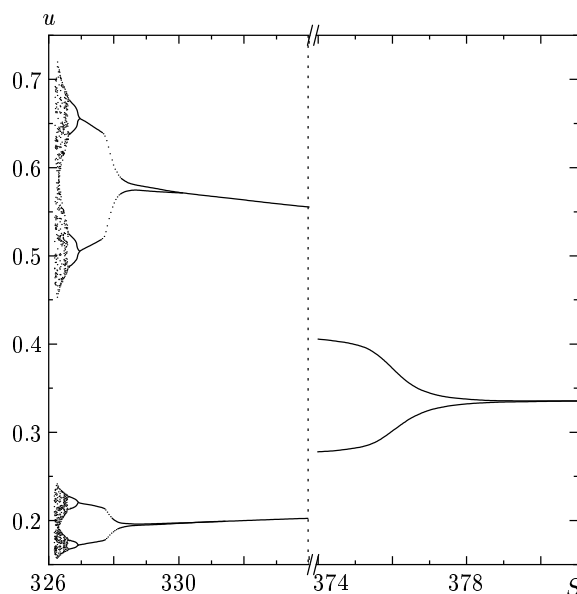


Рис. 3. Величина экстремумов функции  $u(t)$  в зависимости от  $S$

распределение концентрируется около небольшого числа точек, а затем вновь расплывается. Расширяющиеся с уменьшением  $S$  полосы перекрываются. При этом возникают сгущения, и графики  $u(t)$  показывают перемежаемость (см., например, [8]). Пример такого графика дан на рис. 5. Отметим, что в работе [10], где численное моделирование волны проводилось при  $1/S = 0$ , получены удвоения периода, сопровождающие увеличение  $Z$ . Предельная точка этих удвоений не была найдена, хаотическая область не исследовалась. Авторам работы [10] удалось наблюдать перемежаемость, лишь усложнив модель и введя фронтальный фазовый переход,

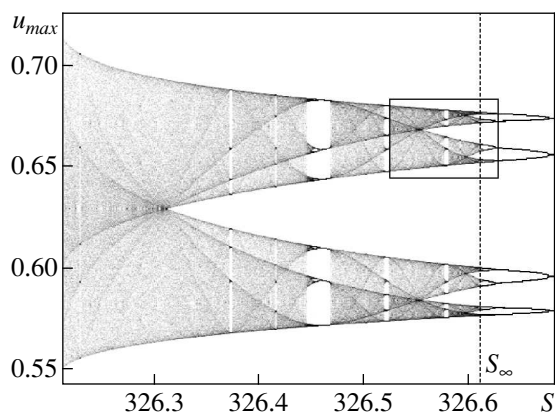


Рис. 4. Максимумы функции  $u(t)$  при различных  $S$  (часть бифуркационной диаграммы)

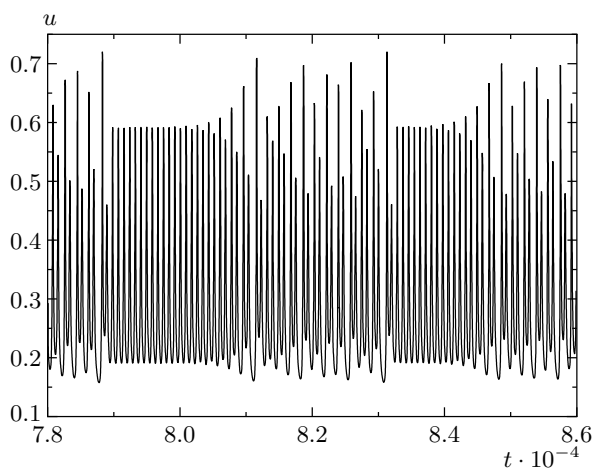


Рис. 5. Пример перемежаемости, которая возникает при значении  $S = 326.313$ , отвечающем моменту перекрытия амплитудных распределений. Полное время счета  $10^5$

предшествующий реакции.

По мере приближения к порогу  $S_{th}$  хаотическое распределение амплитуд расплывается (см. рис. 3, 4). Происходит также усложнение частотного спектра. Примеры спектров в области удвоения периода и в хаотической области показаны на рис. 6. В целом можно говорить о постепенном переходе от линейчатых спектров к сплошным. Но на этом фоне выделяются случаи возвращения к линейчатой форме. Это очевидное проявление эффекта синхронизации частот, благодаря которому распределение экстремумов скорости  $u$  концентрируется около нескольких значений и появляются «окна» на рис. 4. Непосредственно над порогом режим можно характеризовать

как развитый хаос. Зависимость  $u(t)$  и спектр этой функции показаны на рис. 6. Дисперсия скорости — величина того же порядка, что и средняя скорость  $\langle u \rangle$ . Наибольшей интенсивностью обладает участок спектра при  $n \sim 100$ , т. е. при  $\omega_n = 2\pi n/t_0 \sim 10^{-3}$  ( $t_0 = 10^5$  — полное время счета), что на два порядка меньше, чем характерная частота ( $\sim u^2$ ), и на порядок меньше, чем обратный средний промежуток времени между соседними пиками на рис. 7а. Сдвиг спектра в сторону низких частот отражает увеличение корреляционного времени пульсаций вблизи порога [4].

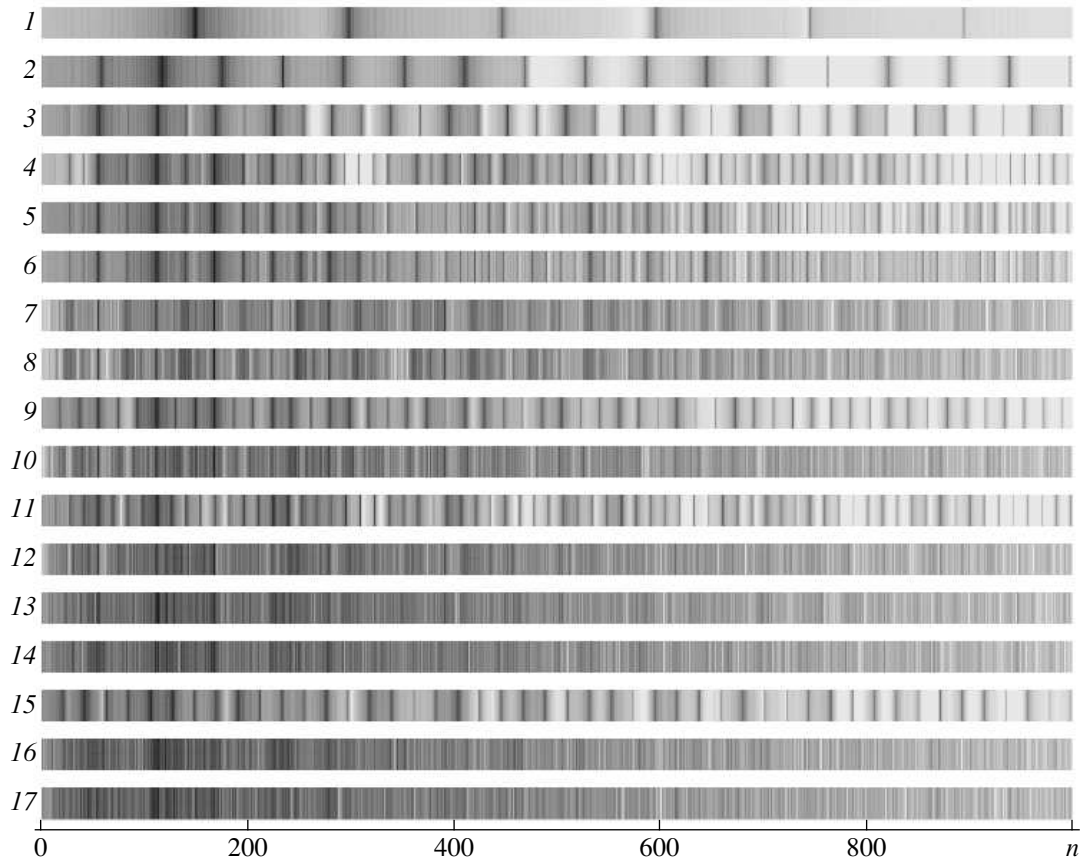
#### 4. ВРЕМЯ ЗАТУХАНИЯ

При  $S < S_{th}$  установившихся режимов распространения нет и волна затухает. В [4] определялось характерное время затухания  $t_q$  и было показано, что  $t_q \propto (S_{th} - S)^{-\beta}$ , а величина показателя  $\beta$  близка к  $1/2$  в согласии с решениями квазистационарного уравнения. Численное моделирование затухания в случае  $L = 0$  дает рост  $t_q$  «в среднем» по закону, близкому к рассмотренному в [4]. Однако на эту плавную зависимость накладываются нерегулярные вариации времени затухания, как показано на рис. 8. Происхождение вариаций можно понять, заметив, что непосредственно над порогом установившийся режим распространения волны является, как мы видели, хаотическим. При таком режиме короткие стадии быстрого движения с высокой концентрацией активатора в зоне реакции чередуются с длительными периодами «депрессии», когда концентрация активатора падает. Продолжительность этих стадий распределена случайным образом. Очевидно, что волна в условиях спада более чувствительна к потерям активатора [5]: после достаточно долгой депрессии подъем не наступает, затухание становится необратимым. При данных начальных условиях момент возникновения затяжной и глубокой депрессии оказывается случайной функцией величины  $S$ . Конечно, при других начальных условиях положения и величины «максимумов» и «минимумов» на рис. 8 могут измениться, но общий вид графика от начальных условий не зависит.

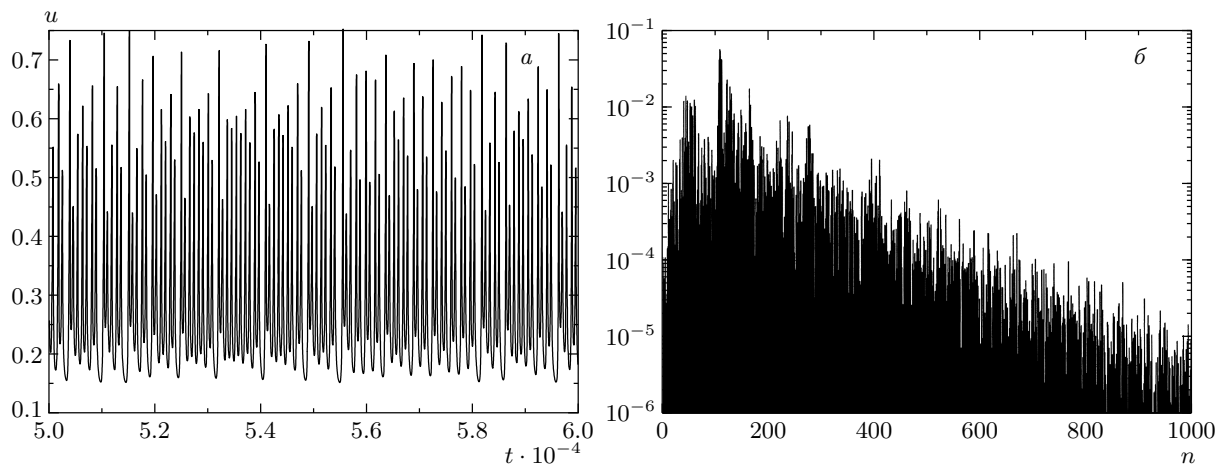
Данные, приведенные на рис. 8, получены при начальных условиях, которые дают распределения концентраций в волне, движущейся равномерно со скоростью  $u$ :

$$x < x_1, \quad \eta = 0, \quad \Theta + Z = Z \exp[k_+(x - x_1)], \quad (7)$$

$$x > x_1, \quad \eta = 1, \quad \Theta + Z = Z \exp[k_-(x - x_1)], \quad (8)$$



**Рис. 6.** Частотные спектры пульсаций скорости ( $\omega_n = 2\pi n/t_0$ ,  $t_0 = 10^5$  — полное время счета) при  $S = 350$  (1), 328 (2), 326.914 (3), 326.640 (4), 326.620 (5), 326.611 (6), 326.551 (7), 326.500 (8), 326.466 (9), 326.400 (10), 326.375 (11), 326.350 (12), 326.313 (13), 326.250 (14), 326.230 (15), 326.219 (16), 326.213 (17)



**Рис. 7.** Установившееся движение волны над порогом распространения,  $S = 326.213$ : *a* — зависимость скорости от времени; *б* — частотный спектр ( $\omega_n = 2\pi n/t_0$ , как и на рис. 6)

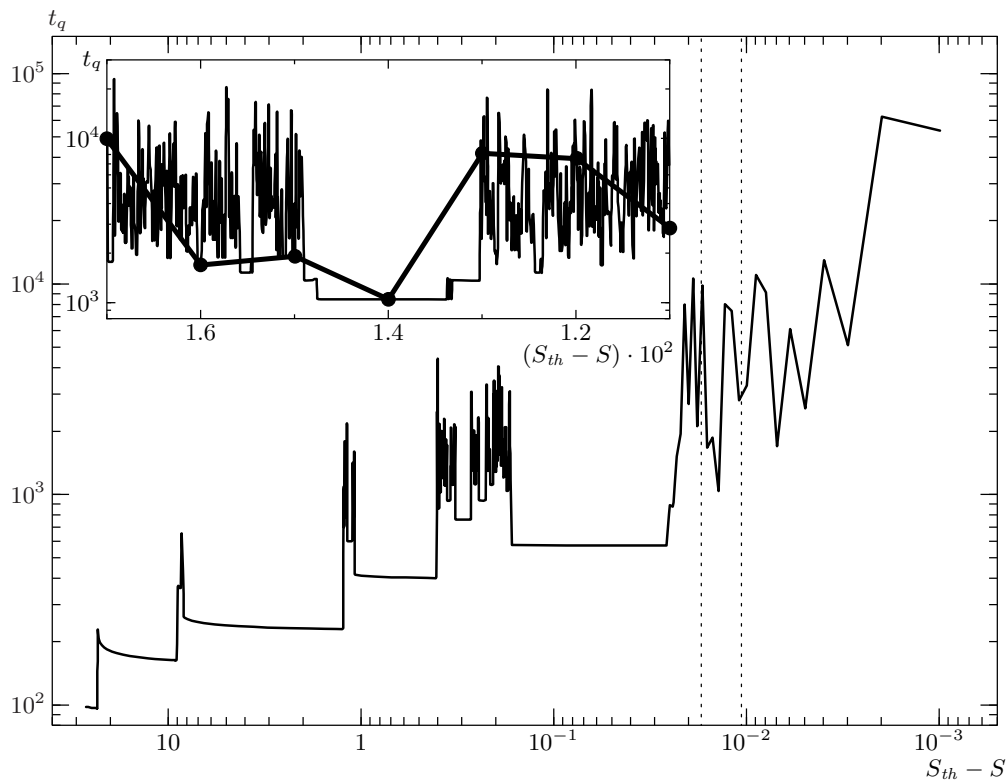


Рис. 8. Время затухания волны как функция удаления от порога. На вставке показан участок графика, ограниченный штриховыми вертикальными линиями

где

$$k_{\pm} = \frac{u}{2} \pm \sqrt{\frac{u^2}{4} + \frac{1}{S}}.$$

Распределения записаны в приближении нулевой ширины зоны реакции, расположенной в начальный момент времени в точке  $x = x_1 = 500$ . Значению  $S = 400$  отвечает  $u \approx 0.313$ . Из (3) следует, что мгновенная скорость волны равна

$$u(t) = \int \Phi dx, \tag{9}$$

причем интеграл в правой части не зависит от пределов, если расстояния между ними и зоной реакции велики по сравнению с ее шириной. Время затухания  $t_q$  определялось по моменту последней вспышки ( $\max u$ ) перед необратимым уменьшением скорости.

Скачки на рис. 8 отвечают значениям  $S$ , при которых меняется число пиков на кривой затухания  $u(t)$ . При постоянном числе вспышек зависимость  $t_q(S)$  гладкая. По мере приближения к порогу размеры таких гладких участков сокращаются. Если уменьшать интервал между значениями  $S$ , при которых рассчитывалось затухание, появляются новые детали графика, как это показано на вставке. Для

сравнения там же повторены точки кривой основного рисунка. Перестройки режима затухания являются наиболее заметным следствием диффузионной неустойчивости в подпороговой области параметров.

### 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Колебательная неустойчивость автоволн приводит к периодическим режимам и их хаотизации по мере изменения бифуркационного параметра примерно по тому же типу, что и в других известных случаях (например, для потоков при росте числа Рейнольдса). Неустойчивость рассматриваемых волн обусловлена температурной чувствительностью реакции (см. [3]), в частности ростом параметра  $Z$ , тогда как в наших вычислительных экспериментах он оставался неизменным, а варьировалось число Семенова  $S$ , определяющее близость к порогу распространения волны. Вблизи порога велика восприимчивость автоволн [4] и неустойчивость развивается даже при умеренной величине  $Z$ .

Если отвлечься от деталей полученной картины быстро следующих друг за другом переходов между

хаотическими режимами и т.п., то при  $S \rightarrow S_{th}$  в надпороговой области останутся рост дисперсии скорости и сдвиг спектра в сторону низких частот, а в подпороговой — степенной рост времени затухания. Все эти свойства обнаружены в [4], где численно моделировалась волна, не подверженная диффузионной неустойчивости. Они объясняются расходимостью на пороге низкочастотной восприимчивости. В свою очередь, рост восприимчивости связан с тем, что мала «возвращающая сила», которую должны вызывать отклонения от установившегося режима. Поэтому такие отклонения легко возникают и медленно релаксируют. В пространстве состояний бассейн притяжения к рассматриваемому аттрактору мал, как и в случае мелкой потенциальной ямы, когда устойчивое равновесие приближается к безразличному. Другой известный пример системы с высокой восприимчивостью — вещество вблизи точки непрерывного фазового перехода. Критическое поведение в этом случае инициирует «накачка» тепловым шумом. В активных системах обычно имеются более мощные источники возмущений.

Авторы благодарны А. Г. Мержанову за обсуждение результатов. Работа поддержана РФФИ (грант № 01-02-17487).

## ЛИТЕРАТУРА

1. В. А. Васильев, Ю. М. Романовский, В. Г. Яхно, УФН **128**, 625 (1979).
2. Б. С. Кернер, В. В. Осипов, УФН **157**, 201 (1989).
3. A. G. Merzhanov and E. N. Rumanov, Rev. Mod. Phys. **71**, 1173 (1999).
4. А. Ю. Довженко, С. В. Маклаков, И. Э. Руманов, Э. Н. Руманов, ЖЭТФ **122**, 1125 (2002).
5. А. П. Алдушин, Т. М. Мартемьянова, А. Г. Мержанов, Б. И. Хайкин, К. Г. Шкадинский, Физика горения и взрыва **9**, 613 (1973).
6. A. G. Merzhanov and B. I. Khaikin, Progr. Energy Combust. Sci. **14**, 1 (1988).
7. В. И. Арнольд, *Теория катастроф*, Наука, Москва (1990), с. 28.
8. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Гидродинамика*, Наука, Москва (1986), с. 151.
9. M. J. Feigenbaum, J. Stat. Phys. **19**, 25 (1978).
10. A. Bayliss and B. J. Matkowsky, SIAM J. Appl. Math. **50**, 437 (1990).