

反应扩散系统中波传播的锁频现象*

周路群 程 熹 欧阳颀[†]

(北京大学物理学院 北京 100871)

摘 要 在空间延展系统中,当增强外部光强时,作者观察到波传播的 $N: N-1$ ($N \geq 2$) 锁频现象. 此现象是在光敏 BZ 反应实验中观察到的. 通过构建一个映射函数,发现在波周期和外部光强的关系中存在魔鬼阶梯,并且此阶梯与实验数据相吻合.

关键词 锁频现象,反应扩散系统,斑图

Frequency locking of propagating wave fronts in reaction – diffusion systems

ZHOU Lu-Qun CHENG Xi OUYANG Qi[†]

(School of physics, Peking University, Beijing 100871, China)

Abstract We have observed $N: N-1$ ($N \geq 2$) frequency-locking of propagating wave fronts when the light intensity is increased in a spatially extended system. The experiments were carried out using the light-sensitive form of the Belousov – Zhabotinsky reaction. By constructing a mapping function, the characteristic devil's staircase can be reproduced when plotting wave period versus light intensity, in agreement with the experimental data.

Keywords frequency locking phenomena, reaction-diffusion systems, patterns

1 引言

在非线性动力学研究中,锁频现象一直广泛受到人们的关注^[1],而且这种现象被发现在生物节律^[2,3]和生物钟^[4]起着重要的作用. 比如,在起搏点周期驱动的心室肌肉细胞群中,通常发生 1:1 节律现象. 然而,当驱动频率增加或者驱动振幅减少的时候,这种 1:1 节律现象就要被其他反常的心脏节律所取代,诸如 $N: N-1$ ($N \geq 2$) 2:2, 或者 2:1 的锁频现象.

BZ (Belousov – Zhabotinsky) 反应被广泛用于实验研究非线性时空动力学中,诸如斑图形成^[5]及其控制问题^[6],噪声的有序作用^[7]等等. 在这样的系统中锁频现象或者共振现象同样吸引着人们的兴趣. 在光敏 BZ 反应中,一个周期外力可以用来诱导

螺旋波的共振漂移^[8],或者使得曲折驻波斑图形成,同时当改变外部频率时伴随着锁频现象存在^[9]. 这些现象都归功于钨催化剂的光敏性质,因为在外界光强作用下,它将改变化学反应的速率,从而改变系统的动力学行为. 在空间延展系统中,这种光敏性质使得可见光降低波的传播速度,甚至完全抑制波的传播^[10].

在光敏的 BZ 反应中,我们报道了可见光作用于波传播的实验现象. 当一系列波周期地进入照射区域时,随着外界光强的改变,我们观察到 $N: N-1$ ($N \geq 2$) 的锁频现象. 然后我们构建了一个映射函数,发现在波周期和外部光强的关系中存在表征锁频现象的魔鬼阶梯,并且此阶梯与实验数据相吻合.

* 国家自然科学基金(批准号:10335010)资助项目
2005-04-25 收到

[†] 通讯联系人. Email: qi@pku.eud.cn

2 实验装置和实验结果

实验装置包括一个溶胶反应器(如图1),放在有4个小磁铁的架子上,小磁铁用来旋转反应器里的磁搅拌子,从而使得反应器里的溶液混合均匀.在这个溶胶反应器的中间,有一个直径为7.0cm的空间,其中置有一层很薄的硅胶,厚度为 $0.33 \pm 0.02\text{mm}$.光敏的钨催化剂被固定在硅胶中,其浓度为 4.2mM .BZ反应的溶液(不包括钨催化剂)以速率 20ml/h 被连续地泵入反应器中.反应器中总体积大约为 20ml .反应在硅胶内进行,因此硅胶做得很薄是为了减小三维效应.每一次实验我们准备 100ml 的新鲜BZ溶液,其中各成分浓度如下: $[\text{NaBrO}_3] = 0.27\text{M}$ $[\text{MA}] = 0.2\text{M}$ $[\text{H}_2\text{SO}_4] = 0.3\text{M}$ $[\text{NaBr}] = 0.1\text{M}$.实验在 $22 \pm 1^\circ\text{C}$ 的恒温环境中进行.

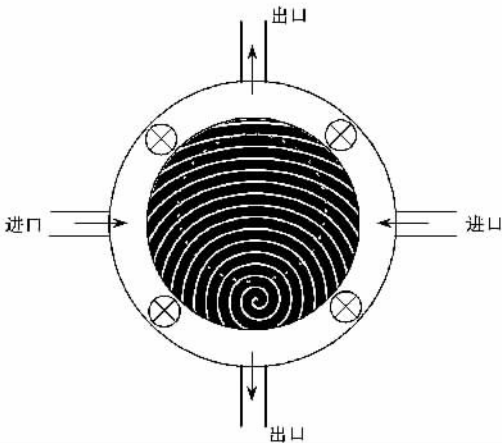


图1 反应器示意图.内圆是反应媒介,其中在薄的溶胶层中固定了催化剂;虚线表示的圆是可见光照射区.BZ反应的溶液(不包括钨催化剂)通过2个入口被连续地泵入反应器中,然后通过2个出口流出,4个搅拌子保证了反应溶液的均匀性)

开始时,背景光照为 $I_0 = 0.15\text{W/m}^2$ 的情况下,在反应器中产生一个螺旋波,其周期为 $T_0 = 44 \pm 2\text{s}$,并使得螺旋波的端点靠近反应媒介的边缘.然后将一张黑纸做成的罩贴在反应器的下面,其上有一直径为 4.6cm 的孔,孔中心略微偏离反应器的中心.这样螺旋波的端点总是落在黑暗的区域中,如图1所示,图中虚线代表的是光照区.从下方用一个电脑控制的投影仪(日立CP-S370)通过一带通滤光片($310\text{—}530\text{nm}$)照射整个反应器.利用CCD照相机(Hamamatsu C3077)录制在光照区由透射光形成

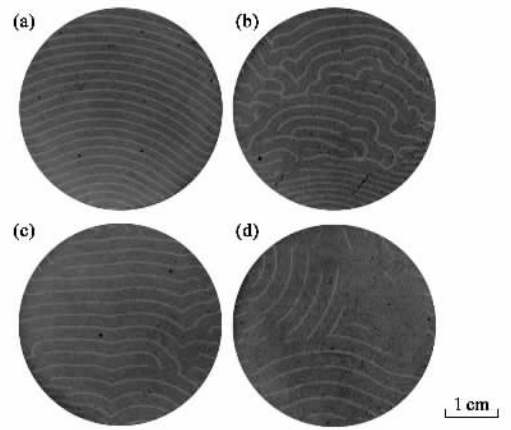


图2 在不同光照强度下光照区内形成的斑图
(a) 1.31W/m^2 ; (b) 1.58W/m^2 ; (c) 2.29W/m^2 ;
(d) 2.70W/m^2

的波的图像,并通过采集卡(DT3155)数字化存入计算机,以便将来分析.

每一次实验我们在投射一定光强的光照之前让反应进行40分钟,然后,投射光照等待10分钟,再开始录下40分钟的传播波峰的图像.图2显示了在不同光照强度下所观察到的斑图.我们发现系统存在两个临界点 I_{\min} ,大约是 1.31W/m^2 ; I_{\max} ,大约是 2.8W/m^2 .当光照低于 I_{\min} ,波的传播速度和波长减少,如图2(a)所示,但是没有出现波破裂的现象.当光强强于 I_{\min} ,可观察到波破裂现象以及系统选择一个新的特征周期和波长[见图2(b)–(d)];当光强高于 I_{\max} ,波立即消失.在 I_{\min} 和 I_{\max} 之间,我们发现 $N-1$ ($N \geq 2$)个波能存活,其中 N 依赖于所用的光强值.比如,在图2(c)中,每一次波破裂之后有两个波能存活;在远离边界的地方,这两个波重新形成规则的、具有更大特征波长周期斑图,其波的周期是 T_0 的 $3/2$ 倍.在较强光强下,同样能观察到这样的现象.图2(d)显示的是两个波峰中只有一个能存活且周期是 T_0 的 $2/1$ 倍.另外,尽管在图2(b)所用的相对较低的光强条件下,很难看出在一次波破裂之后有多少个波能存活,但是通过周期的测量,我们可以估计为 T_0 的 $4/3$ 倍;也就是说,在一次破裂之后有3个波存活.然后我们对这些斑图进行定量分析,通过提取一个空间点灰度值的时间序列,然后进行傅里叶分析,我们可以获得波的周期以及对空间斑图进行二维傅里叶变换,我们可以获得在一定光照条件下波的波长和波速.所得数据与理论分析的结果一起显示在图3中.

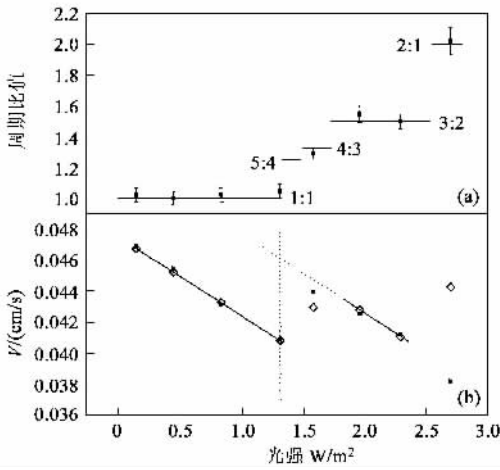


图3 随着光强的增加波峰的周期(a)和速率(b)的变化情况, 实正方形是实验点 (a)中的实线来自迭代函数的理论计算 (b)中的实线是对实验点的线性拟合以及空心菱形块是迭代函数的理论计算值

3 迭代函数以及理论计算

我们利用反应扩散系统中的色散关系可以理解所观察到的现象, 即: 波速是波周期的单调增函数, 并且存在一个临界点^[11]. 另外, 当系统施加了外部光照后, 系统的可激发性降低, 在色散关系中, 这意味着同样大小的速度就必须对应更长的周期或者同样大小的周期对应较小的波速. 因此, 当具有一定周期和波长的、处在光照外的螺旋波端点送出一个波峰时, 记为 w1, 当它进入由于光照引起可激发性降低的光照区后, 它的速度将从 v_0 降到 v_1 . 但是当下一个速度为 v_0 的波峰也传播到这个光照区时, 将跑进前一个波峰 w1 的恢复波背内, 这将导致它的速度降为 v_2 , 要低于 v_1 . 由此, 当光强低于 I_{min} 时, 波峰不会出现破裂, 然而, 这种情况下光强只是降低波长和波速[见图 2(a)]而不改变周期. 当光强高于 I_{min} , 波的速度将会降至色散关系定义的最小波速, 于是波就会破裂, 生成的两个自由端将迅速萎缩到边界并消失, 见图 2(c). 由于这种破裂腾出了空间, 使得下一个波峰立即提高它的波速至最大值. 然而, 接下来几个波峰的速率又会依次降低, 直到达到临界最小速度, 出现新的波破裂现象. 这个过程不断重复进行. 在远离边界的地方, 这些存活的波峰将通过相互作用形成一个规则的周期斑图结构, 其特征周期和波长将依赖于光照区内投射的光强值.

接下来我们将构建两个相邻波峰之间的映射函

数. 图 3(b)显示了在波速与低于 I_{min} 的光强之间存在较好的线性关系. 因此, 我们假设存在光照 I 时波峰的波速 v 和周期 T 之间具有如下线性关系:

$$v - v_{min} = k [T - T_{min} - \alpha I] = k (T - T'), \quad (1)$$

其中 $T' = T_{min} + \alpha I$. 参数 k 和 α 由图 2(b) 中的实验数据确定. 左边的直线是由弱光照情况下出现 1:1 现象的数据点拟合而得的; 右边的直线是根据 3:2 现象的数据点拟合出来的, 并且有与前一条直线同样的斜率. 所以 $k\alpha$ 即是这些直线的斜率, k 则代表着两条直线在同样光强处的速率差, 如图中虚线所示.

另一方面, 后一个波峰的速率依赖于前一个波峰的恢复波背的长度, 因此我们假设这两个相邻波峰的速率具有如下的线性关系

$$v_{n+1} - v_n = b (T_0 - T_1), \quad (2)$$

其中 T_0 是光照外区域内波源的周期, v_n 和 T_1 代表满足色散关系(1)的前一个波峰的波速和周期, v_{n+1} 指的是后一个波峰的速率, 系数 b 可以从所录图像中当一次波破裂发生时获得.

结合(1)式和(2)式, 可得如下映射函数:

$$V_{n+1} = V_n (1 - b/k) + b (T_0 - T'),$$

其中 $V_{n+1} = v_{n+1} - v_{min}$ 以及 $V_n = v_n - v_{min}$. 当 $V < 0$, 即 $v < v_{min}$, 发生一次波破裂. 在我们的实验中, $b < k$ 总是满足. 当 $T_0 > T'$, V_{n+1} 总是大于零, 波不会破. 然而当 $T_0 \leq T'$, V_{n+1} 的值就会接近零, 从而波破裂发生. 因此, 发生波破裂现象所对应的最小光强为 $I_{min} = (T_0 - T_{min}) / \alpha$, 在实验大概等于 1.31 W/m^2 . 一旦一个波峰断了, 自由端迅速萎缩且消失, 就会使得下一个波峰的速度立即达到最大值 V_{max} . 综上所述, 最后的迭代函数为

$$V_{n+1} = \begin{cases} V_n (1 - b/k) - \alpha b T_d, & V_n (1 - b/k) - \alpha b T_d > 0, \\ V_{max}, & V_n (1 - b/k) - \alpha b T_d \leq 0. \end{cases}$$

其中 $I_d = I - I_{min}$ 是迭代函数的变量. 从实验数据中多次测量可得各个参数的平均值如下: $K = 2.5 \times 10^{-4} \text{ cm/s}^2$, $\alpha = 20.5 \text{ s (W/m}^2 \text{)}^{-1}$, $b = 1.2 \times 10^{-4} \text{ cm/s}^2$, $V_{max} = 5.8 \times 10^{-3} \text{ cm/s}$, 其中 b 和 V_{max} 有 20% 的误差, 其他的大约为 5%.

图 4 显示的是随着 I_d 的增加, 出现 $N : N - 1$ ($N \geq 2$) 的锁频现象时不同 N 时的稳定迭代轨道. 举例来说, 在图 4(c) 中, 沿着对角线有 3 个稳定的迭代点, 分别对应 3 个不同速率, 其中 1 个是 V_{max} . 在 V_{max} 之前, 存在 1 个小于零的波速, 对应着 1 个不稳定的波峰, 这就是为什么我们看到了 4:3 的锁频现

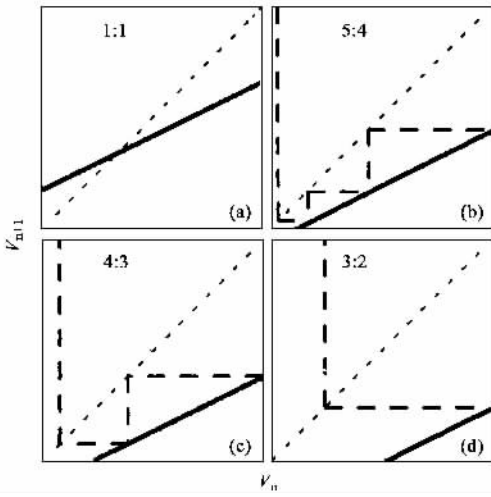


图4 稳定的迭代轨道(虚线所示),迭代函数(实线所示)以及对角线(点线所示),锁频比例如下(a)1:1;(b)5:4;(c)4:3;(d)3:2

象,即当4个波峰越过边界时,只有3个能存活.接下来我们可以计算当从3:2到2:1转变发生时对应的光强 I_{d1} , 4:3到3:2时的 I_{d2} ,以及5:4到4:3时的 I_{d3} ,结果如下:

$$I_{d1} = \frac{V_{\max} \left(1 - \frac{b}{k}\right)}{\alpha b} \quad I_{d2} = \frac{V_{\max} \left(1 - \frac{b}{k}\right)^2}{\alpha b \left[1 + \left(1 - \frac{b}{k}\right)\right]},$$

$$I_{d3} = \frac{V_{\max} \left(1 - \frac{b}{k}\right)^3}{\alpha b \left[1 + \left(1 - \frac{b}{k}\right) + \left(1 - \frac{b}{k}\right)^2\right]}, \quad (3)$$

代入参数值,得到 $I_{d1} = 1.23 \text{ W/m}^2$, $I_{d2} = 0.42 \text{ W/m}^2$ 以及 $I_{d3} = 0.18 \text{ W/m}^2$. 这些结果画在图3(a)中,大致上与实验数据吻合.

4 讨论与结论

尽管当 $I_d > I_{d1}$ 时在图4中可以观察到2:1的锁频现象,但是我们无法估计完全抑制波传播所对应的光强的上限值,因为稳定迭代轨道中只有 V_{\max} 和0.而且在图3(b),尽管我们可以从理论计算出速率,但是对2:1锁频现象在理论值和实验值之间存在较大的差别.因此我们认为线性迭代函数也许不适合这个区域,甚至还应该考虑非线性作用以及极限速率依赖于光强的关系.

所观察到的现象也可以看成是锁模现象,即是:

当系统控制参数发生变化时,系统选择了一个特殊的本征模式或态.这是因为系统的色散关系表明这个空间延展系统中存在大量的本征模式,当固定了初始的入射周期时,当改变外界光强时, $N:N-1$ ($N \geq 2$)的共振态被选择了出来.如果改变入射周期时,可以看到类似于Arnol'd舌头的共振区.进一步利用Oregonator模型进行具体的理论和数值模拟结果将出现在以后的文章中^[12],而且还发现扩散系数的改变也将影响共振结构.

总之,我们在空间延展的光敏BZ反应系统中实验观察到随着外界光强的增强系统中的波存在 $N:N-1$ ($N \geq 2$)的锁频现象.通过依赖于外界光强的色散关系的临界点附近的波的传播行为,我们构建了一个映射函数,获得了表征锁频现象的魔鬼阶梯,并且发现理论计算与实验数据大致吻合.

参 考 文 献

- [1] Pikovsky A, Rosenblum M, Kurths J. Synchronization: A universal concept in nonlinear sciences. Cambridge University Press, 2001
- [2] Delmar M, Michaels D C, Jalife J. Circ. Res., 1989, 65: 761; Rubenstein D S, Lipsius S L. Circulation, 1995, 91: 201
- [3] Yehia A R, Shrier A, Lo K C *et al.* Am. J. Physiol., 1997, 273: H1; Yehia A R, Jeandupeux D, Alonso F *et al.* Chaos, 1999, 9: 916
- [4] Hütt M, Rascher U, Beck F *et al.* J. Theor. Biol., 2002, 217: 383
- [5] Hildebrand M, Sköfdt H, Showalter K. Phys. Rev. Lett., 2001, 87: 088303-1
- [6] Sakurai T, Mihaliuk E, Chirila F *et al.* Science, 2002, 296: 2009; Steinbock O, Zykov V S, Müller S C. Nature, 1993, 366: 322
- [7] Wang J, Kádár S, Jung P *et al.* Phys. Rev. Lett., 1999, 82: 855; Alonso S, Sendiña-Nadal I, Pérez-Muñuzuri V *et al.* Phys. Rev. Lett., 2001, 87: 078302-1; Zhou L Q, Jia X, Ouyang Q. Phys. Rev. Lett., 2002, 88: 138301
- [8] Grill S, Zykov V S, Müller S C. J. Phys. Chem., 1996, 100: 19082
- [9] Petrov V, Ouyang Q, Swinney H L. Nature, 1997, 388: 655; Martinez K, Lin A L, Kharrazian R *et al.* Physica D, 2002, 168: 1
- [10] Reddy M K R, Nagy-Ungvarai Z, Müller S C. J. Phys. Chem. 1994, 98: 12255
- [11] Keener J P, Tyson J J. Physica D, 1986, 21: 307; Belmonte A, Flesselles J M. Phys. Rev. Lett., 1996, 77: 1174
- [12] Cheng X, Huang G, Zhou L Q *et al.* in preparation