

SEMINAR ZUR THEORIE DER ATOME, KERNE UND
KONDENSIERTEN MATERIE

Lokalisierte Strukturen und Fronten in
Reaktions-Diffusions-Systemen

von

Karsten Sitterberg

AM 23.11.2011

Westfälische Wilhelms-Universität Münster
Fachbereich Physik

1 Einleitung

Komplexe dynamische Systeme sind in der Lage, spontan Muster und Strukturen auszubilden. Die Bedingungen, unter denen dies möglich wird, werden im Folgenden erläutert.

2 Strukturbildung

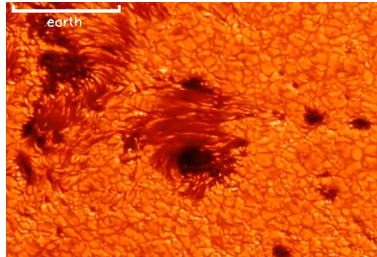
2.1 Grundlagen

Damit es in einem System grundsätzlich zu Raum-Zeitlicher Selbstorganisation / Strukturbildung kommen kann, muss ein komplexes dynamisches System vorliegen, das zum einen eine eigene, innere Dynamik besitzt und zum anderen weit vom thermischen Gleichgewicht entfernt ist. Diesen Sachverhalt erkannte schon Descartes in seinem Werk „Discours de la méthode“: „komplexe Systeme können ihre innere Ordnung steigern“ [Gure].

Beispiele für die in Strukturbildungsprozessen entstehenden Muster:



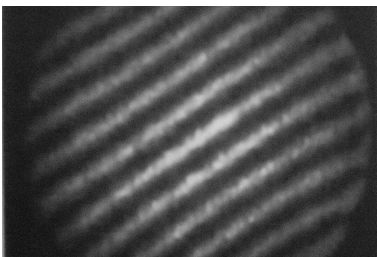
(a) Spiralgalaxien: Spiralen [Apod]



(b) Strukturbildung auf der Sonnenoberfläche [Apod]



(c) Polarlichter: Spiralen [Geo]



(d) Gasentladungen: Streifen [Gure]



(e) Leopardenfell: Flecken [Wiki]



(f) Imperator-Kaiserfisch : Streifen [Wiki]

2.2 Voraussetzungen für Strukturbildung

Wenn wir nun ein System betrachten, welches die obigen Grundlagen zur Strukturbildung erfüllt, so muss dieses noch die im folgenden genannten Voraussetzungen erfüllen. Damit das System einen dauerhaften, weiten Abstand zum thermischen Gleichgewicht erreicht, muss dieses

- offen sein (für einen kontinuierlichen Austausch von Materie/Energie) und
- einen externen „Treiber“ besitzen, die Energie ins System abgeben (z.B. Spannungsquelle, Fluss chemischer Stoffe).

Weiterhin muss das System Nichtlinear sein, da die Bildung von Strukturen ein nichtlinearer Effekt ist, und das System muss Attraktoren im Sinne von stabilen Zuständen besitzen.

Die (mathematische) Beschreibung der Strukturbildung geschieht dabei durch nichtlineare Gleichungen, zum Beispiel Reaktions-Diffusions-Gleichungen, wie sie im folgenden beschrieben werden.

3 Reaktions-Diffusions-Gleichungen

3.1 Grundlagen - Kontinuitätstheorie

Ein bisschen Kontinuitätstheorie: Betrachte eine Stoffmenge N_V im Gebiet der Konzentration $c(\vec{r}, t)$:

$$N_V = \int_V dV c(\vec{r}, t)$$

Die zeitliche Veränderung der Stoffmenge N_V entspricht den Teilchen, die aus dem Gebiet herausströmen und/oder aus der Reaktion neu entstehen.

$$\frac{\partial N_V}{\partial t} = - \int_{\partial V} d\vec{A} \cdot \vec{J} + \int_V dV R(c)$$

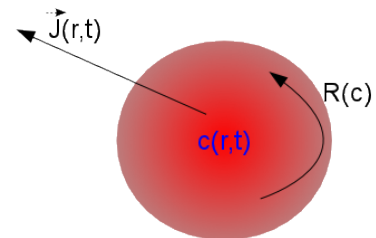
mit \vec{J} : Teilchenstromdichte und $R(c)$: lokale Reaktionskinetik
Dies lässt sich mit dem Integralsatz von Gauss schreiben als:

$$\int_V (\dot{c} + \vec{\nabla} \cdot \vec{J} - R(c)) dV = 0$$

Daraus folgt nun:

$$\frac{\partial c}{\partial t} = R(c) - \vec{\nabla} \cdot \vec{J}$$

KONTINUITÄTSGLEICHUNG (MIT LOKALER REAKTIONSKINETIK)



3.2 Herleitung der Reaktions-Diffusions-Gleichungen

Das erste Fick'sche Gesetz besagt

$$\vec{J} = -D\vec{\nabla}c.$$

Es ist also die Teilchenstromdichte proportional dem negativen Konzentrationsgradienten ($-\vec{\nabla}c$). Weiterhin wird die Proportionalitätskonstante D Diffusionskoeffizient genannt. Mit obiger Kontinuitätsgleichung ergibt sich :

$$\partial_t c = R(c) - \vec{\nabla}(-D\vec{\nabla}c)$$

bzw. für D isotrop, also $D = \text{const.}$:

$$\partial_t c = D\Delta c + R(c)$$

REAKTIONS-DIFFUSIONSGLEICHUNG

3.3 Reaktionskinetiken

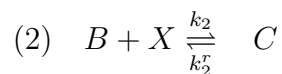
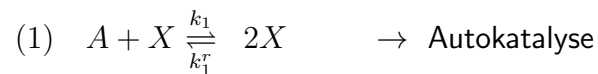
Der Term $R(c)$ in der Reaktions-Diffusionsgleichung steht dabei für die lokale Reaktionskinetik. Um diese zu erklären, betrachte ein System mit folgenden, kontinuierlich ablaufenden Prozessen:

- Stoffe werden Reaktor zugeführt
- Produktion neuer Stoffe durch Reaktion im Reaktor
- Produkte werden entfernt

Es wird sich also ein stationärer Zustand einstellen

3.3.1 Beispiel

Stoffe A,B,C,X mit Konzentrationen a, b, c, n



Die Reaktionen können in beide Richtungen ablaufen, abhängig von den Reaktionsraten k_1, k_1^r, k_2, k_2^r .

Mit der Annahme, dass a, b, c, k_j extern konstant gehalten werden, kann man nun der Frage nach dem Zeitverhalten und dem Gleichgewichtszustand von n nachgehen. Dazu muss man die Prozesse (1) und (2) bilanzieren:

$$\begin{aligned} 1 : \quad r_1 &= k_1 a n - k_1^r n^2 \\ 2 : \quad r_2 &= -k_2 b n + k_2^r c \\ \Rightarrow \quad \partial_t n &= r_1 + r_2 \end{aligned}$$

Man kann nun noch eine Variablentransformation durchführen, sodass $k_1^r = 1$, $k_1 a = 1$ und $k_2 b = \beta$, $k_2^r c = \gamma$, dann:

$$\dot{n} = (1 - \beta)n - n^2 + \gamma$$

LOKALE REAKTIONSKINETIK

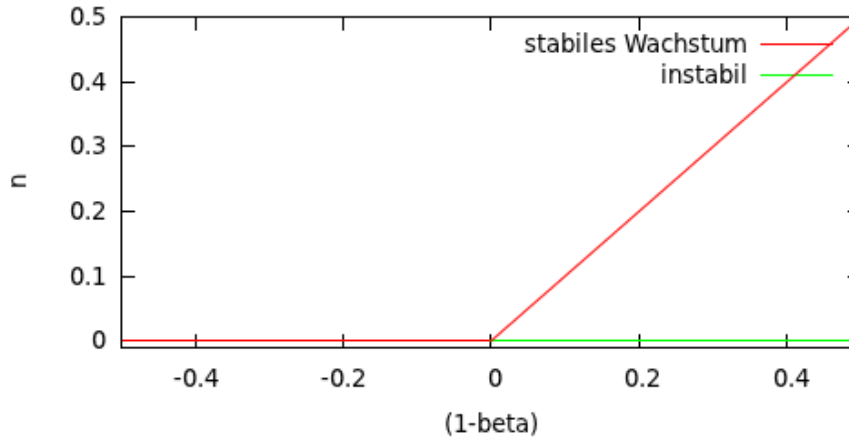


Abbildung 1: Stabilitätsverlauf für $\dot{n} = \gamma = 0$

4 2-Komponenten Reaktions-Diffusions-Systeme (RDS)

Der britische Mathematiker Alan Turing formulierte 1952 Gleichungen, die ein Reaktions-Diffusions-System beschreiben können, welches aus zwei Komponenten besteht.

$$\begin{aligned} \partial_t u(\vec{r}, t) &= D_u \Delta u(\vec{r}, t) + f(u, v) \\ \tau \partial_t v(\vec{r}, t) &= D_v \Delta v(\vec{r}, t) + g(u, v) \end{aligned}$$

τ : Zeitverhältnis von u, v

Dies besitzt die Gleichgewichtspunkte $\vec{u}_0 = (u_0, v_0)^T$.

Dabei sind Gleichgewichtspunkte die homogenen ($\Delta \vec{u} = 0$) und stationären ($\partial_t \vec{u} = 0$) Lösungen des Systems. Diese sind meist stabil gegen die lokale Dynamik/Reaktionskinetik, aber nicht gegen Diffusion.

⇒ Dies ist Ungewöhnlich, Diffusion wird meist als stabilisierend angesehen!!

Aufgrund dieser Instabilität gegen Diffusion kann es nun zur **Musterbildung** kommen.

4.1 Turing-Instabilität

Als „Turing-Instabilität“ wird die eben genannte Instabilität der homogenen Lösung der Reaktions-Diffusionsgleichungen gegenüber der Diffusion bezeichnet.

Die Turing-Instabilität kann dazu führen, dass sich im System stationäre räumliche Muster ausbilden. Diese Muster hängen unter anderem ab von den

- Parametern der lokalen Reaktionskinetik
- Diffusions-Koeffizienten

4.1.1 Lineare Stabilitätsanalyse

Um nun die Stabilität eines solchen Systems zu berechnen, betrachten wir beispielhaft ein 2-Komponenten-System:

$$\partial_t \vec{u} = \mathbf{D} \Delta \vec{u} + \vec{R}(\vec{u}), \quad \mathbf{D} = \begin{pmatrix} D_u & 0 \\ 0 & D_v \end{pmatrix}$$

Dies hat die Gleichgewichtslösung \vec{u}_0 (aus $\vec{R}(\vec{u}) = 0$, stabil in Abwesenheit von Diffusion)

Einfluss der Diffusion:

Betrachte kleine Störung des Gleichgewichts: $\vec{u} = \vec{u}_0 + \vec{u}$ mit $\vec{R}(\vec{u}_0) = 0$, dann gilt

$$\begin{aligned} \partial_t \vec{u} &= \mathbf{D} \Delta \vec{u} + R(\vec{u}_0 + \vec{u}) \\ &= \mathbf{D} \Delta \vec{u} + R(\vec{u}_0) + (\partial_{\vec{u}} \vec{R})_{\vec{u}_0} \vec{u} + \dots \end{aligned}$$

mit der Definition

$$A = (\partial_{\vec{u}} \vec{R})_{\vec{u}_0} = \begin{pmatrix} \partial_u f & \partial_v f \\ \partial_u g & \partial_v g \end{pmatrix}_{(u_0, v_0)^T}$$

erhält man

$$\partial_t \vec{u} = \mathbf{D} \Delta \vec{u} + A \vec{u}.$$

Dies wird als die Linearisierung des Systems bezeichnet. Um dieses linearisierte System zu lösen, kann man den Ansatz $\vec{u} = \vec{\varphi} e^{\lambda t + i \vec{k} \cdot \vec{r}}$ betrachten. Dieser Ansatz bedeutet physikalisch die Aufspaltung der Lösungen in verschiedene Moden.

Somit: $\lambda \vec{\varphi} = (A - k^2 \mathbf{D}) \vec{\varphi}$, bzw.

$$(A - k^2 \mathbf{D} - \lambda \mathbf{1}) \vec{\varphi} = 0$$

Dies ist ein Eigenwertproblem, dabei ist mit $\mathbf{1}$ die Einheitsmatrix gemeint. Die Lösbarkeitsbedingung ist $\det(A - k^2 \mathbf{D} - \lambda \mathbf{1}) \stackrel{!}{=} 0$.

Daraus erhält man die charakteristische Gleichung des Systems in Abhängigkeit von λ :

$$\lambda^2 - \lambda \text{Sp}(A - k^2 \mathbf{D}) + \det(A - k^2 \mathbf{D}) = 0$$

Die Lösung dieser Gleichung führt auf eine Abhängigkeit $\lambda(k)$, wobei gilt

- $\text{Re}(\lambda(k)) < 0$: Lösungen stabil
- $\text{Re}(\lambda(k)) > 0$: Lösungen instabil.

Für Aussagen über die Stabilität der Lösungen muss man also deren Abhängigkeit von k untersuchen.

4.1.2 Beispiel Turing-Instabilität

Betrachte ein System

$$\begin{aligned}\partial_t u &= D_u \Delta u + \varepsilon u - u^3 - v \\ \tau \partial_t v &= D_v \Delta v + u - v\end{aligned}$$

mit $\tau, D_u, D_v, \varepsilon > 0$.

Wähle nun $\tau = 1, D_u = 1, D_v = D$. Damit vereinfacht sich die Diffusionsmatrix zu

$$\mathbf{D} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & D \end{pmatrix}$$

Somit nimmt das Reaktions-Diffusions-System folgende Gestalt an:

$$\frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} u(\vec{r}, t) \\ v(\vec{r}, t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & D \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \Delta u(\vec{r}, t) \\ \Delta v(\vec{r}, t) \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \varepsilon u - u^3 - v \\ u - v \end{pmatrix}$$

Die homogene, stationäre Lösung des Systems ist \vec{u}_0 , sodass $\vec{R}(\vec{u}_0) = 0$. Also:

$$\begin{aligned}g(u_0, v_0) = 0 &\implies u_0 = v_0 \\ f(u_0, v_0) = 0 &\implies u_0 = 0 \vee u_0 = \sqrt{\lambda - 1} \vee u_0 = -\sqrt{\lambda - 1}\end{aligned}$$

Betrachte den Fall $u_0 = v_0 = 0 \implies A = \begin{pmatrix} \varepsilon & -1 \\ 1 & -1 \end{pmatrix}$,

Mit einer kleinen Störung $\tilde{\vec{u}} = \vec{u}_0 + \vec{u}$ ergibt sich dann das linearisierte System zu

$$\partial_t \vec{u} = \begin{pmatrix} \varepsilon + \Delta & -1 \\ 1 & D\Delta - 1 \end{pmatrix} \vec{u}$$

Betrachtet man nun den Ansatz $\vec{u} = \begin{pmatrix} \varphi_1 \\ \varphi_2 \end{pmatrix} e^{\lambda t + i\vec{k}\vec{r}}$.

Dann erhält man

$$\lambda \vec{u} = \begin{pmatrix} \varepsilon - k^2 & -1 \\ 1 & -Dk^2 - 1 \end{pmatrix} \vec{u}$$

Grenzwertbetrachtungen

Im Grenzwert für k klein ($k \rightarrow 0$) ergibt sich aus der Lösbarkeitsbedingung

$$\lambda_{1,2} = \frac{1}{2}(\varepsilon - 1 \pm \sqrt{(\varepsilon - 1)^2 - 4}).$$

Dabei gilt:

$0 < \varepsilon < 1$: $\lambda < 0 \implies$ Lösungen sind stabil und komplex

$\varepsilon > 1$: Lösungen sind reell und

a) instabil ($\lambda > 0$) für „+“ und

b) stabil ($\lambda < 0$) für „-“.

Diese Aufspaltung der Lösungen nennt man auch Bifurkation

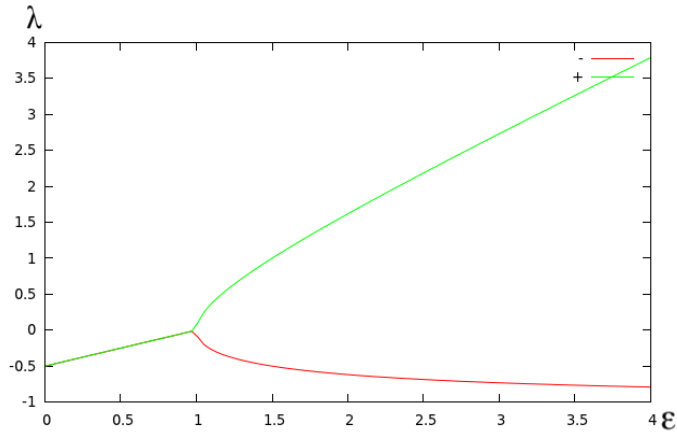


Abbildung 2: Bifurkation der Lösungen des Systems für kleine k in Abhängigkeit vom Parameter ε

Betrachtet man die Lösungen für große k , so ergibt sich

$$\lambda \vec{u} = \begin{pmatrix} -k^2 & 0 \\ 0 & -Dk^2 \end{pmatrix} \vec{u}$$

$$\Rightarrow \det(A - \lambda \mathbf{1}) = (\lambda + k^2)(\lambda + Dk^2) \stackrel{!}{=} 0$$

$$\Rightarrow \lambda_1 = -k^2, \quad \lambda_2 = -Dk^2$$

Damit sind die Lösungen λ des Systems für große k stabil und reell

Allgemeine Lösungen

Wie sieht nun im allgemeinen Fall die Stabilität des Systems in Abhängigkeit von k aus? Betrachte dazu das linearisierte System, für das $\det(A - k^2 D - \lambda \mathbf{1}) = 0$ gelten muss.

Dieses lässt sich nach λ umformen, um dann die Position des Maximums k_0 von $\lambda(k)$ zu bestimmen, für das gelten muss:

$$\partial_k \lambda|_{k_0} = 0$$

Wenn für dieses k_0 außerdem gilt, dass

$$\lambda(k_0) = 0,$$

so nennt man $k_0 = k_c$ die kritische Wellenzahl, diese ist der Anfang einer Destabilisierung des Systems.

Außerdem erhält man aus diesen Gleichungen einen geeigneten Zusammenhang zwischen ε und D , für den die Destabilisierung auftritt und sich somit Muster bilden können.

Plottet man die Lösungen des Systems für bestimmte Werte von ε und D , so erhält man Graphen folgender Gestalt:

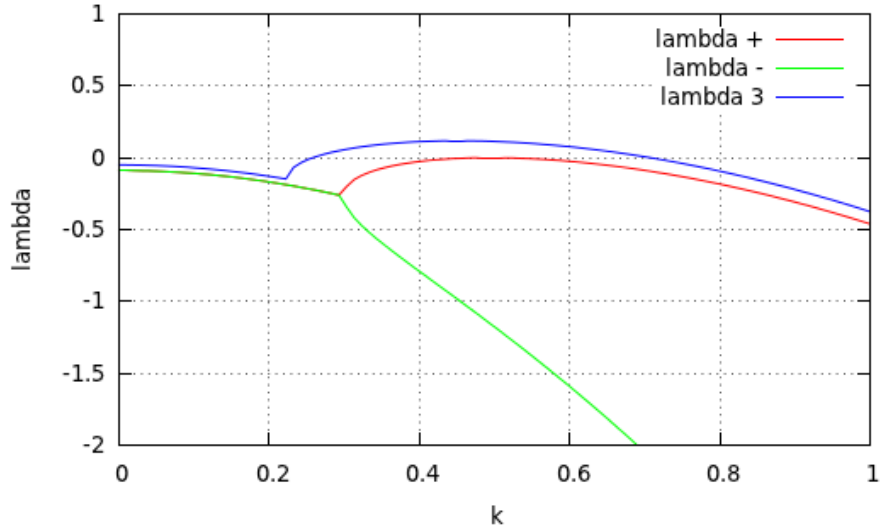


Abbildung 3: $\text{Re}(\lambda(k))$ für $\varepsilon = 0.82$, $D = 3$, $k_c = 0.49$ (unterer und mittlerer Graph), bzw. $\varepsilon = 0.9$, $D = 3$ (oberer Graph)

Die Destabilisierung des Systems beginnt also für $\varepsilon = 0.82$ und $D = 3$ mit der kritischen Wellenzahl $k_c = 0.49$. Durch Variation des Parameters ε kann eine weitere Destabilisierung des Systems erreicht werden, wodurch Moden mit weiteren Wellenzahlen zur Destabilisierung beitragen können.

5 Nichtlineare Behandlung

5.1 Sättigung

Die Amplituden $A = u_0 e^{\lambda t}$ der unterschiedlichen Moden erreichen einen Sättigungs-Zustand, für diese Amplituden-Sättigung gilt:

$$\partial_t A = \lambda A - a|A|^2 A, \quad a > 0$$

Phänomenologische Erklärung:

1. Term: aus $u = u_0 e^{\lambda t} e^{i\vec{k}\vec{r}}$
2. Term: Amplitude kann nicht unendlich Wachsen/ erreicht Sättigung, Translationsinvarianz

Die Amplitude ist gesättigt / Das Amplitudenwachstum ist beendet, wenn: $\partial_t A|_{A_0} = 0$. Somit ergeben sich die stabilen Lösungen zu

$$|A_0|^2 = \lambda/a, \quad |A_0| = \sqrt{\lambda/a}.$$

Die Lösung für $A = 0$ ist instabil, also wachsen Muster mit stabiler Amplitude.

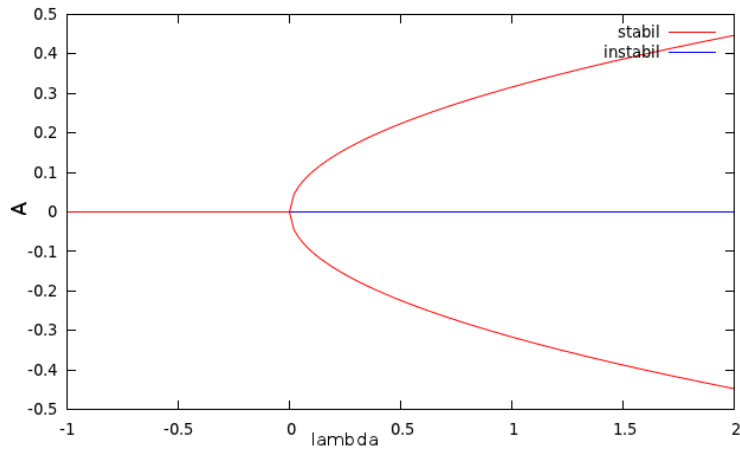


Abbildung 4: Bifurkation

5.2 Selektion von Mustern

Betrachte im 1-dimensionalen Fall ein System mit kritischer Wellenzahl k_c , dann gilt:

$$\begin{aligned}
 u &= u_0 e^{\lambda(k_c)t} \cos(k_c x) \\
 v &= v_0 e^{\lambda(k_c)t} \cos(k_c x + \phi) \quad (\text{meist } \phi = -\pi/2)
 \end{aligned}$$

Der Kosinus ergibt sich aus der Superposition der Lösungen mit k_c und $-k_c$.

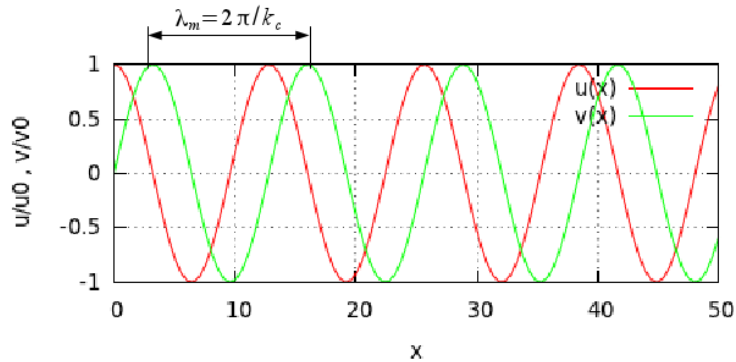


Abbildung 5: Lösung in 1-D

Im 2-dimensionalen Fall existiert ein ganzer Kreis von möglichen Wellenvektoren. Aus diesem Kreis können verschiedene Kombinationen von Wellenvektoren ausgesucht werden. Je nachdem, welche Kombinationen gewählt werden, werden unterschiedliche Muster selektiert!
zum Beispiel:

- zwei (gegenüber liegende) Vektoren \vec{k}_c und $-\vec{k}_c$
⇒ Streifen
- sechs verschiedene Vektoren
⇒ Hexagonale Muster
- viele unterschiedliche Wellenvektoren ausgewählt
⇒ Kompliziertere Muster

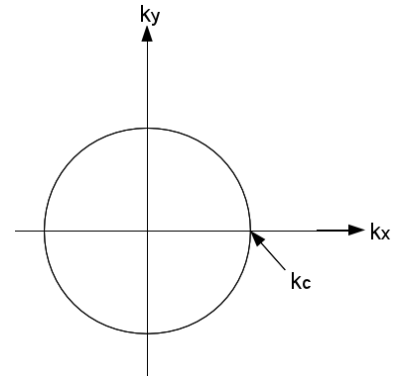
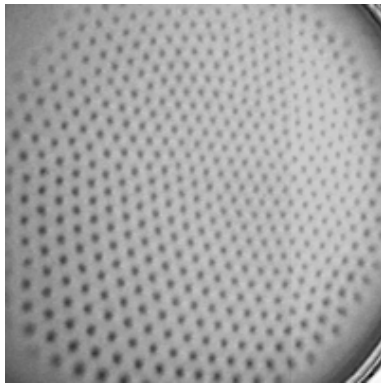


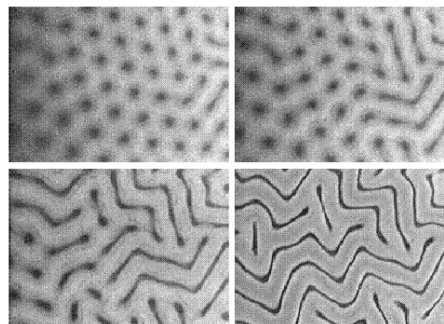
Abbildung 6: Kreis möglicher Wellenvektoren

6 Experimentelle Beobachtungen

Das o. g. dynamische System wurde auch schon experimentell untersucht:



(a) hexagonale Struktur im Experiment [Muen]



(b) oben: Hexagonale Muster gehen in Labyrinth über, unten: Labyrinthartiges Muster [Muen]

7 Zusammenfassung

- nichtlineare dynamische Systeme können spontan Strukturen und Muster erzeugen
- sie müssen dafür weit von thermodynamischen Gleichgewichtszuständen entfernt sein
- Muster durch Diffusion-Destabilisierung von stationären, homogenen Zuständen
- Instabilität, Sättigung, Selektion

8 Quellen und Literatur

[Gure] Lateral self-organization in nonlinear transport systems described by reaction-diffusion equations, Svetlana Gurevich. Dissertation, Westfälische Wilhelms-Universität Münster, 2006.

[Apod] <http://apod.nasa.gov/apod>, Stand 26.01.2012

[Geo] <http://news.nationalgeographic.com/news/2010/07/100730-science-space-sun-solar-storm-auroras/>, Stand 26.01.2012

[Wiki] <http://de.wikipedia.org>, Stand 26.01.2012

[Muen] A. Münster, Würzburg

- Synergetik, H. Haken, Springer Verlag
- Pattern formation and dynamics in nonequilibrium systems, Michael Cross and Henry Greenside, Cambridge University Press, 2009