

Belousov-Zhabotinsky 化学体系中 混沌同步的自适应参数调节法研究

李艳妮, 陈 兰, 蔡遵生*, 赵学庄

(南开大学化学系, 天津 300071)

摘 要: 采用自适应参数调节法, 对两个 BZ-CSTR 化学体系混沌动力学行为的同步进行了数值模拟研究, 并采用横截 Lyapunov 指数判据确认同步行为的稳定性. 还对该方法进行了改进, 得出了具有实验可行性的参数调节律. 结果发现, 只有当 $[Ce^{4+}]$ 作为检测变量, 并且参与对参数的调节作用时, 才有可能实现混沌的同步, 而 $[Br^-]$ 则不能. 此外, 还通过平均同步时间的计算研究了不同刚性常数 ϵ 与衰减常数 δ 组合的同步效率.

关键词: Belousov-Zhabotinsky; 混沌同步; 自适应参数调节法

中图分类号: O643.1 文献标识码: A

Chaos Synchronization in the Belousov-Zhabotinsky Chemical Reaction by Self-Adaptive Parameter Adjustment Scheme

Li Yanni, Chen Lan, Cai Zunsheng*, Zhao Xuezhuan

(Department of Chemistry, Nankai University, Tianjin 300071)

Abstract Employing the self-adaptive parameter adjustment scheme, the chaotic dynamical behaviors in the coupled Belousov-Zhabotinsky-CSTR chemical system were investigated numerically. The confirmation of synchronization is using the criteria of maximum transverse Lyapunov exponent. The results show that when all the variables are involved in the parameter adjustment rule, the chaos synchronization between the response and the target systems were obtain. However, as only some of the variables can be detected easily in the real experiment, there are difficulties in employing this scheme experimentally. Therefore, that scheme to investigate the role of single variable separately were modified. The results show that no chaos synchronization can be obtained when $[Br^-]$ and $[HBrO_2]$ are used separately, except when $[Ce^{4+}]$ and $[BrMA]$ are used. However, there is no easy way to detect $[BrMA]$ in the experiment, $[Ce^{4+}]$ becomes the unique feasible variable involved in the adjustment role. Besides, the synchronization efficiency of different combinations of stiff constant and damping constants has been studied by means of synchronization-arriving time.

Key words Belousov-Zhabotinsky, Chaos synchronization, Self-adaptive parameter adjustment scheme

1 引 言

近年来, 非线性化学反应因其丰富而复杂的动

力学行为所具有的潜在广泛应用前景而备受人们的关注. 例如, 对于反应体系中三稳性临界点处二级相变行为^[1]、金属催化剂表面反应的混沌行为^[2]、差

速流动反应器中的动力学行为^[3]等都有研究成果报道,同时还深入到非线性动力学行为的控制^[4-6]与同步研究上.我们对混沌系统的同步方法进行了一些研究.同步的方法可以分为两大类:一类是变量调节^[7-9],另一类是参数调节^[10-12].在变量调节的方案中,要么是两个系统将各自的某一或全部变量分别反馈到对方系统中,要么是驱动系统的某一或全部变量单向反馈到响应系统中.尽管在理论上变量偶合法既可以是单个变量的耦合,也可以是多个变量的耦合,耦合作用既可以是单向的,也可以是双向的,但具体到化学体系中,实验上较为可行的方案只有质量偶合法^[13],即全部变量都参与的相互耦合.两个反应器之间通过一个小孔进行物质的交换,由孔径的大小来决定耦合作用的强弱. Schneider 等已将该方法成功地应用到 Belousov-Zhabotinsky-Continuous-Stirred-Tank-Reactor (BZ-CSTR) 体系中^[13],得到了混沌的同步.而其它的变量耦合方式在应用到化学体系中时是有困难的.参数调节的方法在这方面则有其独特的优势.1994年, John 和 Amritkar 根据一种适应性控制方法^[14],提出了适应性参数调节的方法^[12],可通过调节系统的参数,得到混沌的同步,并且他们成功地把它应用到 Lorenz 和 Rössler 体系中.由于 BZ-CSTR 体系中的流率 k_f 是一个实验上非常便于调节的参量,因此,我们将上述适应性参数调节的方案应用到 BZ-CSTR 体系中.本工作利用 BZ 体系的模型机理进行数值模拟,以期所得结果能够对实验研究提供指导.

2 适应性参数调节方案

设响应体系的方程为:

$$\dot{u} = f(u, \mu)$$

其中, $u = (u_1, u_2, \dots, u_N)$ 为状态变量; $\mu = (\mu_1, \mu_2, \dots, \mu_k)$ 为体系的可调节的参数.相应的目标体系的演化方程为:

$$\dot{u}^* = f(u^*, \mu^*)$$

其中 u^* 和 μ^* 分别与响应体系的 u 和 μ 相对应.我们的目的就是通过调节响应体系的参数 μ_i , 使得响应体系的变量 u 最终能与目标体系的变量 u^* 同步.对参数 μ_i 的调节律如下^[12]:

$$\dot{\mu}_i = -\varepsilon (u - u^*)_j \operatorname{sgn}\left(\frac{\partial f_j}{\partial \mu_i}\right) - \delta (\mu_i - \mu_i^*) \quad (1)$$

式中, ε 和 δ 为可调节的量,分别称为刚性常数和衰减常数; u_j 为响应体系的变量,其演化方程中包含

参数 μ_i ; u_j^* 为目标体系中与 u_j 相对应的变量; μ_i^* 为目标体系中与响应体系的参数 μ_i 相对应的参数值; $\operatorname{sgn}(x)$ 表示 x 的符号.调节 ε 和 δ 取适当的值,如果能使使得响应体系的条件 Lyapunov 指数(CLE)均为负值(同步的必要条件)^[9],便有可能达到响应体系与目标体系的同步,若又有整个体系的最大横截 Lyapunov 指数(TLE)为负,则该同步是稳定的^[15],从而是在实验上可以确认的.

3 4 变量 Montanator 模型

我们进行数值模拟采用的是由 Gyorgyi 和 Field 提出的以 4 个反应中间物浓度为状态变量的 Montanator 模型^[16],所用的参数和初值均与他们的相同,其中 $Y_1 = [\text{Br}^-]$, $Y_2 = [\text{HBrO}_2]$, $Y_3 = [\text{Ce}^{4+}]$, $Y_4 = [\text{BrMA}]$, k_f 为流率,是该模型中的唯一可调参量.采用定步长的四阶 Runge-Kutta 算法进行积分运算,以及由 Wolf 等提出的算法^[17]来计算 CLE.我们研究两个完全相同的体系之间的同步,即目标和响应体系的动力学演化方程及参数都相同而只是初值稍有差异.取 $k_f = 6.16 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$,使得两个体系都是处于混沌区内.分别用 Y_1 、 Y_2 、 Y_3 和 Y_4 代表响应体系中的四个变量,用 k_f 代表响应体系中的参数流率,相应的目标体系中的变量表示为: Y_1^* 、 Y_2^* 、 Y_3^* 和 Y_4^* ,参数为 k_f^* .

4 数值计算结果

在 BZ-4-变量 Montanator 模型中,唯一可调节的体系参数就是流率 k_f ,并且该参数在所有四个状态变量的演化方程中都存在.根据适应性参数调节方案原理的要求^[12],我们构建了对参数 k_f 的调节律:

$$\dot{k}_f = -\varepsilon \left[\sum_{i=1}^4 (Y_i - Y_i^*) \operatorname{sgn}\left(\frac{\partial Y_i}{\partial k_f}\right) \right] - \delta (k_f - k_f^*) \quad (2)$$

其中, Y_i^* ($i=1, 2, 3, 4$) 为目标体系的变量,与响应体系的变量 Y_i 相对应; k_f^* 为目标体系中的参数流率,与响应体系的参数 k_f 相对应.通过调节 ε 和 δ 能够使得响应体系的所有 CLE 都为负,从而达到响应体系与目标体系之间的完全同步,见图 1,调节作用自 $t = 2.1 \times 10^4 \text{ s}$ 开始.其中均方差 S 为:

$$S = \sqrt{\sum_{i=1}^4 (Y_i - Y_i^*)^2}$$

是两个混沌体系相对应变量的均方差.我们所用

的目标体系各变量初值: $Y_1 = 2.826 \times 10^{-6}$ mol/L, $Y_2 = 2.842 \times 10^{-5}$ mol/L, $Y_3 = 1.1405 \times 10^{-5}$ mol/L, $Y_4 = 1.27154 \times 10^{-3}$ mol/L, 而响应体系各变量的初值是随机选取的, 分别为: $Y_1 = 2.825 \times 10^{-6}$ mol/L, $Y_2 = 2.843 \times 10^{-5}$ L/mol, $Y_3 = 1.1442 \times 10^{-5}$ mol/L, $Y_4 = 1.26980 \times 10^{-3}$ L/mol.

由图1可以看出, 由于对 k_f 施加了调节作用, 随着时间的推移, S 最终变为 0, 而响应体系的参数在经过一段时间的波动调节后又趋于与目标体系的参数相等. 同时, 我们也计算了该条件下体系的横截 Lyapunov 指数, 其中最大值为 -3.712×10^{-3} bit/s, 表明同步是稳定存在的. 需要指出的是有多种 ε 和 δ 的组合都能实现同步, 这里我们只给出了其中的一种.

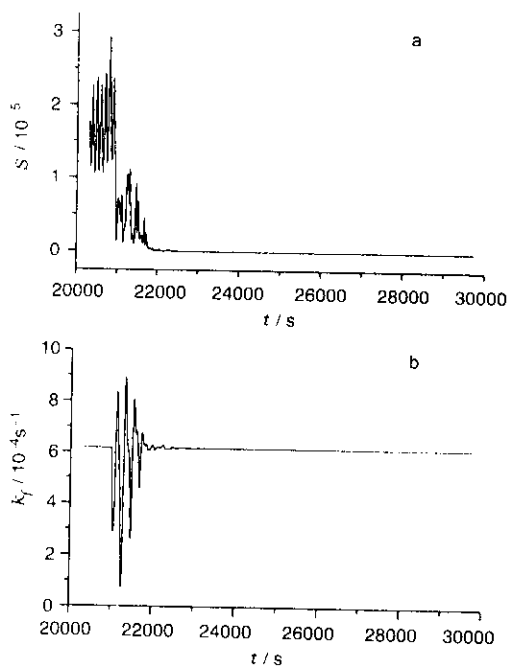


图1 全部变量都参与对参数的调节作用时

$$(\varepsilon = 2.0, \delta = 4.5 \times 10^{-2})$$

- a. 响应与目标体系相对应变量的 S 随 t 的变化,
b. 响应体系中被调节参数 k_f 随时间的变化.

Fig. 1 All variables involved in the parameter adjustment rule

$$(\varepsilon = 2.0, \delta = 4.5 \times 10^{-2})$$

- a. The plot of S between the corresponding variables in response and target systems versus t ;
b. The plot of adjusted parameter k_f in the response system versus t .

由于控制律式(2)中, 体系所有的变量都参与了对参数的调节作用, 如果具体应用到实验操作上,

我们只有同时检测体系中所有的变量才能满足控制律的要求, 这是有很大困难的. 因为, 一个体系在通常情况下并不是所有的变量都易于监测, 比如在 BZ 体系中, 只有 $[\text{Br}^-]$ 和 $[\text{Ce}^{4+}]$ 是便于监测的. 为了克服这个困难, 我们将该方法进行了改进, 尽管参数 k_f 存在于每一个状态变量的演化方程中, 但我们仍然期望能够仅仅通过监测一个变量, 并将其作用于参数的调节律中, 就能取得两个混沌体系的同步. 改进后的参数调节律为:

$$k_f = -\varepsilon(Y_i - Y_i^*) \text{sgn}\left(\frac{\partial Y_i}{\partial k_f}\right) - \delta(k_f - k_f^*) \quad (3)$$

$$(i = 1, 2, 3, 4)$$

我们尝试了将模型中的每一个变量单独作用于对参数的调节作用过程中, 结果发现, 只有变量 Y_3 ($[\text{Ce}^{4+}]$) 和 Y_4 ($[\text{BrMA}]$) 分别单独作用于参数调节律时可以达到同步的目的(见图2和图3), 同时,

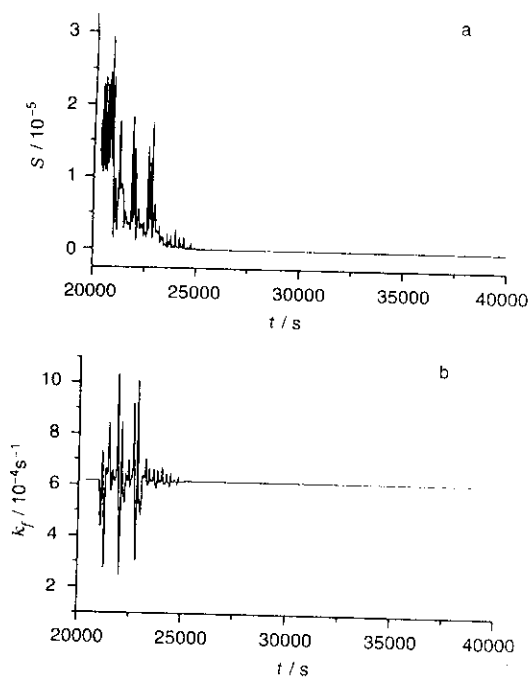


图2 单个 Y_3 变量参与对参数的调节作用时($\varepsilon = 5.0, \delta = 0.15$)

- a. 响应与目标体系相对应变量的 S 随 t 的变化,
b. 响应体系中被调节参数 k_f 随 t 的变化.

调节作用自 $t = 2.1 \times 10^4$ s 开始.

Fig. 2 Only variable Y_3 involved in the parameter adjustment rule ($\varepsilon = 5.0, \delta = 0.15$)

- a. The plot of S between the corresponding variables in response and target systems versus t ;
b. The plot of k_f in the response system versus t .

The adjustment begins at $t = 2.1 \times 10^4$ s.

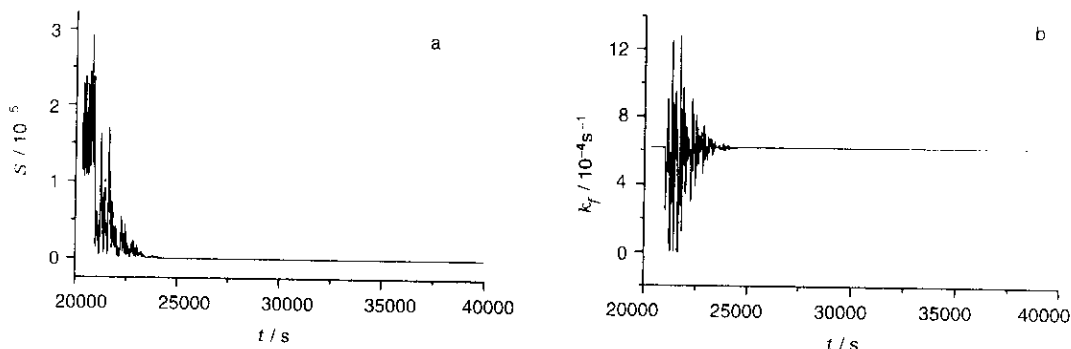


图 3 单个 Y4 变量参与对参数的调节作用时($\varepsilon = 5.0$ $\delta = 1.5 \times 10^{-2}$)

- a. 响应与目标体系相对应变量的 S 随 t 的变化,
- b. 响应体系中 k_j 随 t 的变化. 调节作用自 $t = 2.1 \times 10^4$ s 开始.

Fig. 3 Only variable Y4 involved in the parameter adjustment rule($\varepsilon = 5.0$ $\delta = 1.5 \times 10^{-2}$)

- a. The plot of S between the corresponding variables in response and target systems versus t ;
- b. The plot of k_j in the response system versus t. The adjustment begins at $t = 2.1 \times 10^4$ s.

我们也分别计算了图 2 以及图 3 条件下体系的横截 Lyapunov 指数, 其中最大的值分别为 -1.387×10^{-3} 和 -5.706×10^{-4} bit/s, 表明同步是稳定存在的. 而变量 $Y1$ ([Br⁻])及 $Y2$ ([HBrO₂])单独使用时, 无论如何调节 ε 和 δ 的组合, 按调节律式(3)都得不到混沌的同步. 另外, 由于 $Y2$ 和 $Y4$ 变量代表的中间物无法检测, 只有 $Y1$ 和 $Y3$ 变量代表的中间物可以在实验中方便检测. 所以, 综合起来讲, 只有 $Y3$ ([Ce⁴⁺])才是实验上真正可用于调节律调节体系参数的变量.

图 2 是 $\varepsilon = 5.0$ 、 $\delta = 0.15$ 时体系的同步结果. 事实上, 在一定范围内的 ε 和 δ , 都会实现混沌体系的同步. 我们进行了积分步数不同的两套运算, 分别为 5.0×10^5 以及 2.0×10^6 次迭代. 结果表明: 积分步数越多, 能够实现同步的 ε 和 δ 的有效组合就越多, 但也使得能达到同步所需要的时间, 即同步时间却越来越长, 因而没有太大的实际意义. 况且, 我们的主要目的是研究刚性常数 ε 与衰减常数 δ 之间的优化组合以及二者与同步时间的关系, 而并不是在足够长的时间范围内找出所有可能的 ε 与 δ , 所以在这里我们将积分步数设定为 5.0×10^5 , 这对于扫描可能的有意义的同步足够了.

为了考察 ε 与 δ 组合的同步效率, 需比较达到同步的时间 τ . 我们设定的同步标准是:

$$S(\tau) = \sqrt{\sum_{i=1}^4 (Y_i - Y_i^*)^2} < 1.0 \times 10^{-10}$$

这与文献 [18] 中的取值是一样的. 另外, 由于在不同的初值条件下, 体系达到同步的时间可能会有所不同, 因此, 我们随机选取了 100 个初值, 使之在原来体系初值的左右稍微有所偏离, 为 $(-0.5, 0.5) \times 10^{-2} \times (Y_i)_0$, 分别计算其同步时间, 然后求平均, 得到平均的同步时间 $\bar{\tau}$.

图 4 给出了在 ε 的不同数值下, 可得到 $\bar{\tau}$ 随 δ 的变化规律. 总的看来, 基本规律是一样的, 即随着 δ 的增大, $\bar{\tau}$ 先是逐渐降低, 随之经过一段较为平稳的状态, 然后又急剧增大. 表明只有在适当的 ε 与 δ 大小范围内同步才是可能的, 而过小或过大的 ε 与 δ 的组合都不能得到同步, 由于 ε 和 δ 可看作是耦合强度, 所以, 这个现象与文献 [19] 的研究结果是一致的. 而在 $\bar{\tau}$ 随 δ 的增大而呈平稳状态的这段范围内, 所需的平均同步时间 $\bar{\tau}$ 总是较短的, 故这些 ε 与 δ 的组合所对应的同步效率较高. 而且随着 ε 的增大, 该平稳段的 δ 值(可称有效 δ 值)随之增大, 且其取值范围也是逐渐增大的. 粗略地说, 有效 δ 的中值 δ_0 与 ε 确是协变的: $\delta_0(\varepsilon) = 0.04(1), 0.162(5), 0.75(25), 1.45(50), 3.0(100), 6.0(200)$. 此外, 对不同的 ε , 在图 4 中所示的 δ 范围以外, $\bar{\tau}$ 都不是有限的, 或者说, $\bar{\tau}$ 至少要比我们所设定的积分时间长.

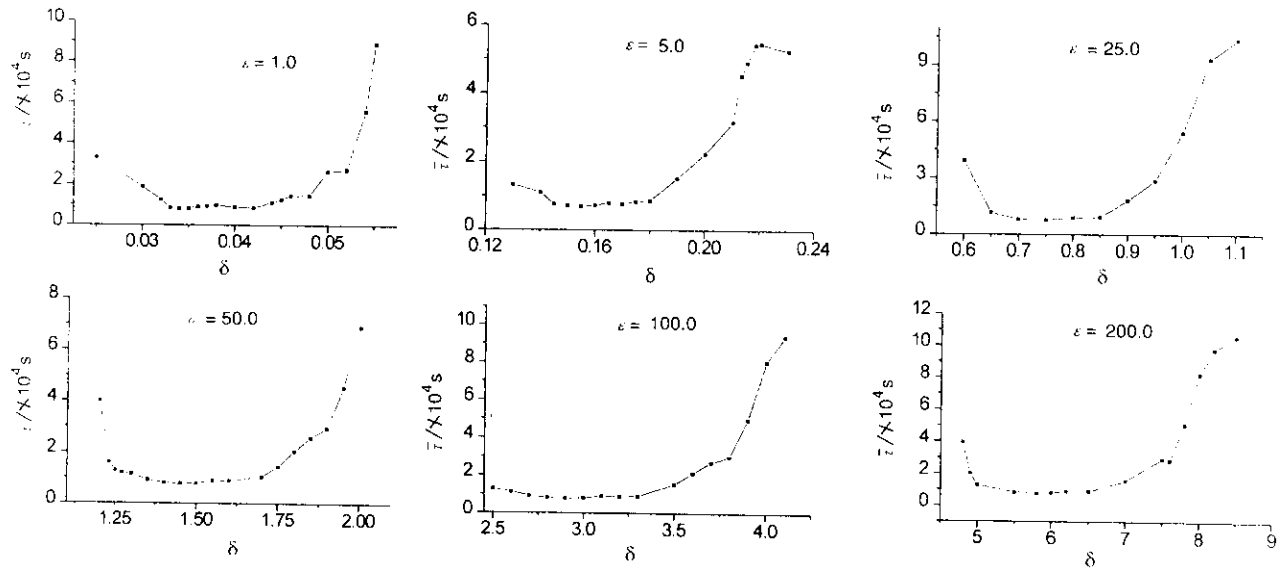


图4 在 ε 的不同数值下 $\bar{\tau}$ 与 δ 之间的关系

Fig.4 The plot of $\bar{\tau}$ as δ for distinct ε

参 考 文 献

- [1] Zhan Yehong (詹业宏), Wu Fugen (吴福根), Ou Fa (欧发). *Chin. J. Chem. Phys.* (化学物理学报), 1999 , **12** : 57
- [2] Yang Linfa (杨灵法), Hou Zhonghuai (侯中怀), Xin Houwen (辛厚文). *Chin. J. Chem. Phys.* (化学物理学报), 1999 , **12** : 171
- [3] Gong Yubing (龚玉兵), Xu Qiang (徐 强). *Chin. J. Chem. Phys.* (化学物理学报), 2001 , **14** : 181
- [4] Yao Pengpeng (姚鹏鹏), Xin Houwen (辛厚文). *Chin. J. Chem. Phys.* (化学物理学报), 2001 , **14** : 171
- [5] Jiang Yongjun (蒋勇军), Zhong Shi (钟实), Xin Houwen (辛厚文). *Chin. J. Chem. Phys.* (化学物理学报), 2000 , **13** : 161
- [6] Xin Houwen (辛厚文). *Chin. J. Chem. Phys.* (化学物理学报), 2000 , **13** : 388
- [7] Pecora L M , Carroll T L , Johnson G A , Mar D J , Heagy J

F. *Chaos* , 1997 , **7** : 520

- [8] Kapitaniak T. *Phys. Rev. E* , 1994 , **50** : 1642
- [9] Pecora L M , Carroll T L. *Phys. Rev. Lett.* , 1990 , **64** : 821
- [10] Lai Yingcheng , Grebogi C. *Phys. Rev. E* , 1993 , **47** : 2357
- [11] Liu Zonghua , Chen Shigang. *Phys. Rev. E* , 1997 , **55** : 6651
- [12] John J K , Amritkar R E. *Phys. Rev. E* , 1994 , **49** : 4843
- [13] Hauser M J B , Schneider F W. *J. Chem. Phys.* , 1994 , **100** : 1058
- [14] Huberman B A , Lumer E. *IEEE Trans. Circuits Sys.* , 1990 , **37** : 547
- [15] Fujisaka H , Yamada T. *Prog. Theor. Phys.* , 1983 , **69** : 32
- [16] Gyorgyi L , Field R J. *J. Phys. Chem.* , 1991 , **95** : 6594
- [17] Wolf A , Swift J B , Swinney H L , Vastano J A. *Physica D* , 1985 , **16** : 285
- [18] Dolnik M , Epstein I R. *Phys. Rev. E* , 1996 , **54** : 3361
- [19] Pyragas K. *Phys. Lett. A* , 1993 , **181** : 203