

# Inestabilidades de Turing en el Bruselator

Trabajo de investigación presentado por  
Begoña Peña

Enero 1999

Dpto. de Física y Matemática Aplicada,  
Facultad de Ciencias, Universidad de Navarra,  
E-31080 Pamplona, España

**D. Carlos Pérez García**, Catedrático del Departamento de Física y Matemática Aplicada de la Universidad de Navarra

**CERTIFICA:** que la presente Memoria, “Inestabilidades de Turing en el Bruselator” ha sido realizada bajo mi dirección en el Departamento de Física y Matemática Aplicada de la Universidad de Navarra por Dña. Begoña Peña Pellicer.

Para que conste, en cumplimiento de la legislación vigente, firmo la presente certificación en Pamplona, el veintiuno de Diciembre de mil novecientos noventa y ocho.

Fdo.: Carlos Pérez García

# Índice

<b>1</b>	<b>Introducción</b>	<b>3</b>
<b>2</b>	<b>Sistemas de reacción–difusión</b>	<b>7</b>
2.1	Mecanismos de inestabilidad . . . . .	8
2.2	Dispositivos experimentales . . . . .	10
<b>3</b>	<b>El Bruselator</b>	<b>13</b>
3.1	Análisis del problema lineal . . . . .	14
3.1.1	Cálculo de los coeficiente lineales para la bifurcación de Turing . . . . .	18
<b>4</b>	<b>Ecuaciones de amplitud</b>	<b>21</b>
4.1	Análisis débilmente no lineal . . . . .	22
4.1.1	Caso de bandas . . . . .	23
4.1.2	Solución hexagonal . . . . .	28
4.2	Estabilidad de las soluciones . . . . .	35
4.2.1	Solución de bandas . . . . .	35
4.2.2	Solución hexagonal . . . . .	37
4.3	Diagramas de estabilidad . . . . .	40
<b>5</b>	<b>Ecuación de la fase</b>	<b>47</b>
5.1	Derivación de las ecuaciones . . . . .	47
5.1.1	Caso de bandas: inestabilidades de Eckhaus y zig–zag . . . . .	47
5.1.2	Fase hexagonal . . . . .	49
<b>6</b>	<b>Conclusiones</b>	<b>57</b>
<b>A</b>	<b>Inestabilidades en un sistema reacción–difusión</b>	<b>59</b>
A.1	Condiciones en un modelo general de dos variables . . . . .	59
A.2	Modelos reacción–difusión . . . . .	63
A.3	Modelo realista LRE . . . . .	65
<b>B</b>	<b>Ecuación de la fase hexagonal</b>	<b>67</b>
	<b>Bibliografía</b>	<b>71</b>



# Capítulo 1

## Introducción

Hasta hace relativamente poco, se tenía en física la engañosa idea de que el todo es igual a la suma de las partes. Por ello, la física y las matemáticas se centraban en resolver la parte lineal de los problemas, suponiendo que las no linealidades tan solo producirían pequeñas correcciones en la solución. Sin embargo, a principios de este siglo H. Poincaré [1] advirtió que al incluir términos no lineales en los modelos se producían cambios cualitativos en las soluciones. También hizo notar que, en ciertos sistemas, la sensibilidad a las condiciones iniciales podía conducir a la impredecibilidad de las trayectorias, aún tratándose de sistemas deterministas. Hubo que esperar a que en 1963 E. Lorenz [2] demostrara dicha impredecibilidad en un modelo simplificado de sólo tres ecuaciones no lineales acopladas, con el que describía la formación de rollos de convección en la atmósfera.

También en otros sistemas fuera del equilibrio se encontraron comportamientos no explicados a partir de teorías lineales. La termodinámica describe la evolución de un sistema próximo al equilibrio y el estado final que alcanza, con unas pocas variables, las funciones de estado. Sin embargo, cuando el sistema se halla lejos del equilibrio deja de ser válida, pues las interacciones no lineales ya no son despreciables y dominan la dinámica. En un sistema aislado fuera del equilibrio pueden darse situaciones interesantes -coexistencia de fases, estados metaestables, fenómenos de histéresis-, pero se trata de estados transitorios que decaen hacia el estado de equilibrio. Por el contrario en un sistema abierto, que intercambia materia y/o energía con su entorno, el comportamiento cambia drásticamente dependiendo del forzado que lo mantiene fuera de equilibrio.

El primer estudio sistemático sobre problemas de este tipo se debe a Bénard [3], que observó la formación de estructuras hexagonales estacionarias en una capa de fluido calentada por debajo y abierta a la atmósfera. Cuando no hay calentamiento la temperatura permanece constante en todos los puntos del sistema y cualquier fluctuación se amortigua exponencialmente de acuerdo con la teoría lineal de procesos irreversibles. Con un calentamiento débil se establece un gradiente lineal de temperaturas a través de la capa de fluido. Las simetrías de este nuevo estado (excepto en la dirección del gradiente) se mantienen idénticas a las de equilibrio y el calor se transmite exclusivamente por conducción, de manera que la respuesta del sistema es simplemente una función lineal del calentamiento externo. La termodinámica permite resolver esta situación lineal, por lo que se dice que el estado conductivo es la solución de la rama

termodinámica, y al igual que en equilibrio las fluctuaciones se amortiguan exponencialmente. La respuesta del sistema cambia radicalmente al aumentar aún más el forzado (el calentamiento en este caso). El fluido no es capaz de transportar el calor con suficiente rapidez por conducción y aparece la convección. Las simetrías del estado inicial se rompen definitivamente y surgen soluciones cualitativamente distintas del estado de equilibrio.

Se han observado comportamientos análogos en sistemas químicos y ópticos, en los que al variar un parámetro de control -concentración de algún reactivo o excitación luminosa-, el estado de referencia se desestabiliza y se producen roturas de simetría espaciales o temporales hasta que, para un forzado suficientemente alto, se llega a un estado turbulento. Los mecanismos desestabilizantes en cada sistema se basan en principios físicos bien distintos (autocatálisis más difusión en el primer caso; acoplamiento entre la difusión y la difracción en el segundo). Sin embargo, como ocurría en el fluido, pasamos de un estado homogéneo, sin correlaciones entre las distintas partes del sistema, a comportamientos colectivos que, finalmente, desembocan en la turbulencia.

Desde el punto de vista matemático, estos sistemas se describen mediante un conjunto de ecuaciones no lineales acopladas en derivadas parciales, de las que, en general, no se conoce solución analítica. No existe todavía ningún formalismo general que permita resolver problemas no lineales, pero en los últimos años se han desarrollado diferentes técnicas, tal como la teoría de bifurcaciones, para tratar de forma unificada problemas de áreas tan distintas como la física, la economía, la biología o la química.

La teoría de bifurcaciones estudia las inestabilidades que sufren los sistemas dinámicos. Al variar de forma continua alguno de los parámetros que intervienen (*parámetro de control*), aparecen nuevas ramas de soluciones como consecuencia de la rotura de alguna simetría; se dice entonces que el sistema sufre una *bifurcación*, concepto matemático asociado al de inestabilidad. Una solución inicialmente estable puede perder su estabilidad tras la bifurcación, y a su vez las nuevas estructuras se desestabilizan en favor de otras (inestabilidades secundarias, terciarias, etc).

En particular, en el trabajo que aquí se presenta, se aplican estas técnicas al caso de un sistema de reacción-difusión. Cuando el sistema está aislado, el estado de equilibrio viene dado por la ley de acción de masas:

$$\frac{\prod_i C_i}{\prod_j C_j} = cte \quad (1.1)$$

donde  $\prod_j C_j$  representa el producto de las concentraciones de los reactivos y  $\prod_i C_i$  el de los productos.

De forma similar al problema de Bénard, si se mantiene el sistema fuera del equilibrio suministrando reactivos continuamente -parámetro de control- la situación puede complicarse. Cuando el aporte es muy pequeño el sistema se encuentra en la rama termodinámica y la solución es un estado estacionario y homogéneo en el que la razón entre las concentraciones (1.1) sigue siendo constante, aunque diferente de la de equilibrio. Sin embargo, si se aumenta el parámetro de control el sistema puede sufrir una rotura espacial de simetría. Esto es posible si existe un mecanismo que hace crecer las fluctuaciones en la concentración de alguna especie, desestabilizando el estado anterior y haciendo aparecer otra solución con menor simetría. El ejemplo más claro es la autocatálisis, ya que la especie que la sufre estimula su propia producción. Otro

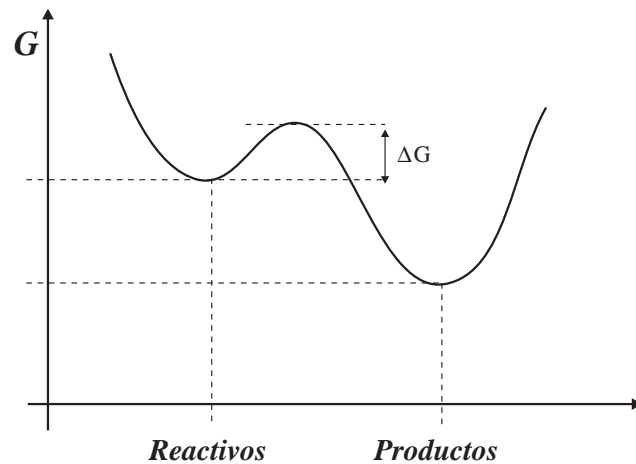


Figura 1.1: Representación de un proceso exotérmico en el que el desprendimiento de energía produce una reacción en cadena.

ejemplo es la catálisis exotérmica, que conlleva la emisión de energía en forma de calor. Si esta reacción necesita superar un cierto umbral, el sistema tiene un bucle de realimentación positiva, ya que cualquier fluctuación que provoque la reacción, supone un aumento de la temperatura y por tanto un aumento en la velocidad de reacción. Esta es la situación representada en el esquema 1.1.

En nuestro trabajo hemos considerado un modelo sencillo, el Brusselator, que como veremos, es representativo de las inestabilidades de los sistemas reacción-difusión: inestabilidad oscilatoria o de Hopf (asociada a la rotura de simetría temporal) y la inestabilidad de Turing (consecuencia de la rotura de la simetría espacial). En el capítulo siguiente se explican con detalle los mecanismos de la inestabilidad de Turing y las condiciones en las que ésta tiene lugar, así como los dispositivos experimentales más utilizados y sus características más relevantes. En el capítulo 3 se introduce el modelo Brusselator y se realiza un análisis lineal de las ecuaciones, encontrando los puntos de bifurcación. A continuación se realiza el análisis no lineal cerca de la inestabilidad de Turing, con la obtención mediante métodos perturbativos, de las ecuaciones de amplitud y fase que describen la dinámica cerca del umbral. A partir de éstas se estudian las inestabilidades frente a perturbaciones homogéneas en el cuarto capítulo y frente a perturbaciones de gran longitud de onda en el quinto.





## Capítulo 2

# Sistemas de reacción–difusión

En algunos sistemas químicos fuera del equilibrio puede producirse una rotura espacial de la simetría, dando lugar a estructuras estacionarias (ver figura 2.1). Este hecho fue predicho por Turing en 1952 [4], aunque tuvieron que pasar casi 40 años para observar dichas estructuras en la reacción CIMA (chlorite–iodide–malonic acid reaction) [5]. Turing demostró que un sistema de reactivos uniformemente distribuidos puede sufrir una inestabilidad debida al acoplamiento entre la difusión y la reacción para ciertas concentraciones de los reactivos, dando lugar a una estructura estacionaria y periódica en el espacio (ver figura 2.1), con una longitud de onda independiente de la geometría del reactor utilizado en el experimento. Esta característica hace que estos sistemas tengan particular interés, no sólo en cinética química, sino también por sus aplicaciones a sistemas biológicos. De hecho, se ha propuesto multitud de modelos basados en la idea de Turing para describir la formación de estructuras en organismos vivos [6],[7]. Por ejemplo, la diferenciación celular a partir de un estado homogéneo se puede explicar por la distribución inhomogénea de un morfogén que contiene información sobre la funcionalidad futura de las células.



Figura 2.1: Patrones de Turing observados experimentalmente. [18]

Sin embargo no es éste el único motivo por el que resulta interesante estudiar los sistemas químicos. En éstos las estructuras sobreviven en condiciones de fuerte no linealidad, a diferencia de lo que sucede en los sistemas hidrodinámicos, en los que las interacciones no lineales conducen rápidamente a un estado turbulento. De esta forma, se pueden estudiar inestabilidades secundarias, competición de estructuras, modos mixtos, etc. Por otro lado, en algunos casos el sistema sufre una bifurcación de Hopf, produciendo la transición directa de un patrón estacionario a uno oscilatorio [8]. Cuando ambas bifurcaciones se producen a la vez (punto de codimensión dos), las dos inestabilidades quedan acopladas, dando lugar a estructuras mixtas, y a veces conduciendo al caos espacio-temporal no muy lejos del umbral [9], [10].

También se ha observado la formación de espirales, ondas viajeras, etc, en la reacción de Belousov-Zhabotinskii [11]. Por eso los sistemas químicos son un buen banco de pruebas para estudiar el comportamiento dinámico de sistemas no lineales. Sin embargo, presentan el serio inconveniente de que su modelización, incluso en los casos más elementales, no está tan clara como para los sistemas hidrodinámicos, para los cuales las ecuaciones que gobiernan la dinámica están determinadas desde primeros principios.

## 2.1 Mecanismos de inestabilidad

Tal como se explica en el Apéndice A, un sistema de reacción-difusión de  $N$  componentes se describe mediante un sistema de  $N$  ecuaciones no lineales acopladas en derivadas parciales:

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} = D_i \nabla^2 c_i + f_i(c_1, \dots, c_N, \mathbf{x}, t), \quad i = 1, N \quad (2.1)$$

donde  $f_i$  son funciones de las concentraciones  $c_i$ , que representan la cinética de reacción, y  $D_i$  son los coeficientes de difusión.

Resulta trivial demostrar que el estado estacionario y homogéneo estable de un sistema formado por una sola especie no puede sufrir bifurcación alguna [12]. Para que se produzca algún tipo de inestabilidad se precisan, al menos, dos variables dinámicas asociadas a mecanismos contrapuestos: una a la activación, responsable del crecimiento de las perturbaciones, y otra asociada a un mecanismo de inhibición que hace posible su saturación. En el apéndice A se estudian con detalle las posibles bifurcaciones del estado de referencia en un sistema de dos componentes, obteniéndose las dos inestabilidades observadas experimentalmente:

- *Inestabilidad oscilatoria o de Hopf*, cuyas condiciones de aparición son intrínsecas de la reacción y totalmente independientes de la difusión.
- *Inestabilidad de Turing*: como sugirió Turing [4], para que ésta se produzca, el sistema debe satisfacer dos condiciones: que el activador estimule su propia producción en un proceso de autocatálisis y que su coeficiente de difusión sea menor que el del inhibidor. Por tanto, al contrario de lo que sería lógico pensar, la difusión actúa como mecanismo desestabilizante y determina la aparición de un estado inhomogéneo. Se distinguen dos tipos de modelos dependiendo del mecanismo que controla la inhibición:

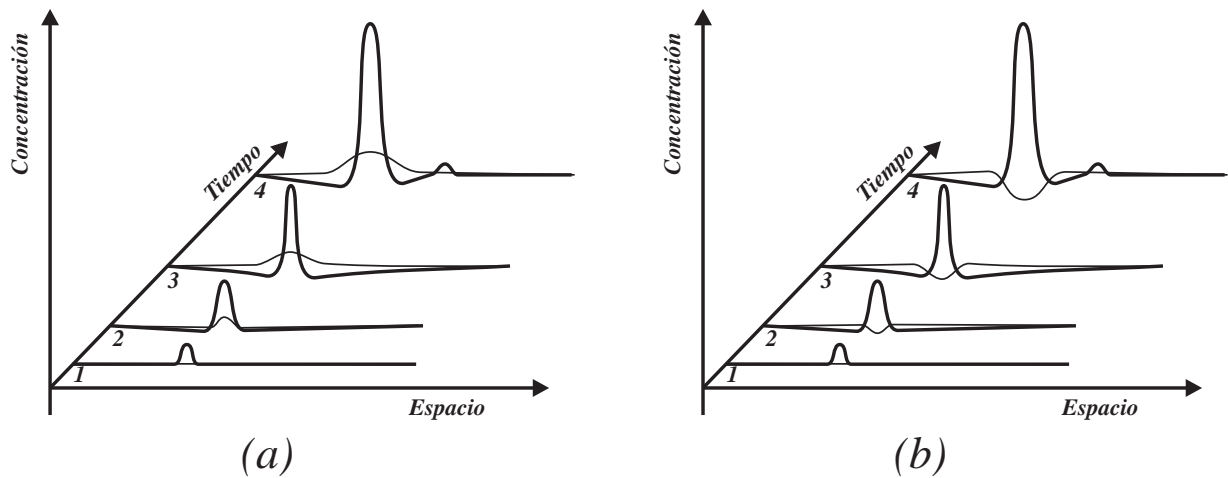


Figura 2.2: Mecanismos de la inestabilidad de Turing. En trazo grueso se ha representado la concentración del activador y en trazo más fino la de la especie que controla la inhibición. (a) Modelo activador–inhibidor [13]. (b) Modelo de agotamiento del sustrato.

### Modelos activador-inhibidor:

En ellos la especie activadora genera como producto su propio inhibidor. Este mecanismo se esquematiza en la figura 2.2a: si una perturbación produce un máximo local, el bucle de autocatálisis hace que continúen aumentando las concentraciones de ambos componentes; sin embargo, si el inhibidor difunde más rápidamente que el activador, aparece una región en torno al máximo en la que predomina la inhibición, dando lugar a mínimos de concentración de la especie autocatalítica. De esta forma la rotura de la simetría da lugar a un estado inhomogéneo en el que los máximos y mínimos de ambos componentes están en fase.

### Modelos de agotamiento del sustrato:

En este segundo caso (figura 2.2b), cuando una fluctuación produce un máximo local en la concentración del activador, se consume sustrato en el bucle de autocatálisis (especie con la que reacciona el activador para producirse a sí mismo), de manera que su concentración disminuye a medida que aumenta la del activador. Se crea por tanto un máximo local de activador y un mínimo de sustrato. Si éste difunde más rápidamente que aquél, esta situación puede automantenerse, dando lugar a un estado inhomogéneo estable en el que las concentraciones de dichos componentes están desfasadas en  $\pi$ .

En ambos casos la longitud de onda de las estructuras que aparecen queda determinada por los coeficientes difusivos y por la velocidad de producción de ambas especies (constantes de reacción), siendo totalmente independiente de las condiciones de contorno.

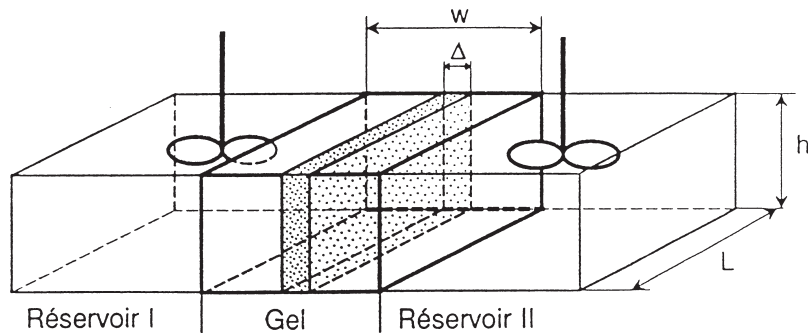


Figura 2.3: Dispositivo experimental

## 2.2 Dispositivos experimentales

Desde el punto de vista experimental los sistemas de reacción-difusión son particularmente interesantes para el estudio de formación de estructuras por varias razones: por un lado se puede conseguir sistemas extensos con facilidad, de manera que los bordes no influyan demasiado en la región central del reactor; es posible conseguir condiciones iniciales arbitrarias, ya que la reacción CIMA en particular es fotosensible y se pueden inducir patrones con las simetrías y las longitudes de onda deseadas mediante un proyector en el que se inserta una diapositiva con el patrón correspondiente; además, cambiando el tamaño de la cámara, se pueden conseguir estructuras en  $1D$ ,  $2D$  o  $3D$ .

Pero, no todo son ventajas en estos sistemas, ya que aparecen algunas dificultades a la hora de conseguir las estructuras de Turing. El problema fundamental estriba en que los procesos difusivos, fuente del mecanismo desestabilizante, deben estar preservados de la indeseada perturbación inducida por la convección. Un segundo problema es que, para que se presenten las estructuras, los coeficientes de difusión del activador y del inhibidor deben diferir sustancialmente, cosa que no ocurre para las reacciones en disoluciones normales. Estos problemas se han superado con la construcción de reactores abiertos en los que se impiden los movimientos convectivos.

Generalmente el reactor propiamente dicho es un bloque de hidrogel en contacto con dos depósitos químicos continuamente renovados, que alimentan el sistema y mantienen separados los reactivos [14]. Las demás caras suelen ser impermeables. Se utiliza un gel transparente e inerte –aunque como mostraron Agladze et al. [15] no es imprescindible su presencia– en el que los reactivos son un poco solubles para facilitar su difusión, al cual se añade un indicador de color, que permite visualizar las estructuras. Normalmente consiste un polisacárido de cadena larga (almidón) cuyo coeficiente de difusión es menor en más de un orden de magnitud que el correspondiente al resto de las especies químicas. La presencia del indicador es fundamental, no sólo para verlos, sino para la propia formación de los patrones de Turing, ya que disminuye notablemente la velocidad de difusión del activador al formar con él un compuesto que es propiamente el que cambia de color [16].

Puesto que los reactivos difunden desde los bordes, dentro del gel se establecen gradientes en

las concentraciones de éstos, de manera que en ausencia de inestabilidades las concentraciones de las dos especies dinámicas –activador e inhibidor– son constantes en planos paralelos a las caras desde las que se alimenta el sistema. Para los gradientes adecuados sin embargo, existe una región del reactor en la que este estado se desestabiliza, apareciendo un patrón de Turing.

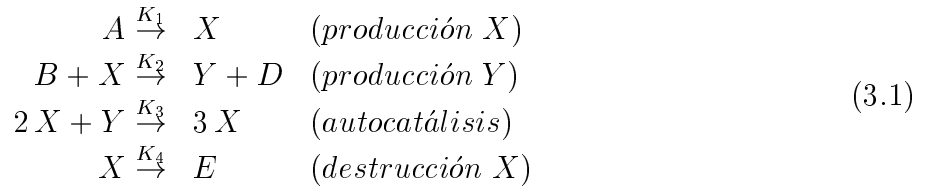
Las estructuras de Turing más claras han sido observadas en la reacción CIMA y en sus variantes. En ellas también se producen fenómenos de biestabilidad, oscilaciones, formación de frentes [17] y caos espacio-temporal [18].



# Capítulo 3

## El Brusselator

El Brusselator fue propuesto por Prigogine et al. [21] en 1968 como modelo sencillo, pero representativo, de los sistemas reacción–difusión, ya que presenta las inestabilidades observadas experimentalmente: Turing y Hopf. Su esquema de reacción es:



donde  $A$  y  $B$  son los reactivos iniciales,  $X$  e  $Y$  son las especies intermedias cuyas concentraciones son responsables de las estructuras espacio–temporales y  $E$  y  $D$  son productos que no intervienen en la formación de los patrones y que son retirados continuamente. El paso trimolecular es poco realista, pero resulta imprescindible, ya que con reacciones uni o bimoleculares no es posible tener un ciclo límite [22], ni, por tanto, una bifurcación de Hopf.

Las ecuaciones de evolución de cada especie son:

$$\begin{aligned} \partial_\tau[A] &= -K_1[A] + \tilde{D}_A \tilde{\nabla}^2[A] \\ \partial_\tau[B] &= -K_2[B][X] + \tilde{D}_B \tilde{\nabla}^2[B] \\ \partial_\tau[X] &= K_1[A] - K_2[B][X] + K_3[X]^2[Y] - K_4[X] + \tilde{D}_x \tilde{\nabla}^2[X] \\ \partial_\tau[Y] &= K_2[B][X] - K_3[X]^2[Y] + \tilde{D}_y \tilde{\nabla}^2[Y] \end{aligned}$$

donde  $K_i$  son las constantes cinéticas de reacción de cada paso y  $\tilde{D}_\alpha$  es el coeficiente de difusión de la especie  $\alpha$ . Tomaremos como variables adimensionales:

$$\begin{aligned} t &= K_4 \tau \\ \nabla^2 &= \frac{\tilde{D}_x}{K_4} \tilde{\nabla}^2 \end{aligned}$$

Puesto que  $X$ ,  $Y$  son las variables dinámicas que nos interesan, eliminamos las constantes de

reacción en las dos últimas ecuaciones, renormalizando las concentraciones:

$$\begin{aligned} A &= \left( \frac{K_1^2 K_3}{K_4^3} \right)^{1/2} [A] & B &= \frac{K_2}{K_4} [B] \\ X &= \left( \frac{K_3}{K_4} \right)^{1/2} [X] & Y &= \left( \frac{K_3}{K_4} \right)^{1/2} [Y] \end{aligned} \quad (3.2)$$

con lo que queda:

$$\begin{aligned} \partial_t A &= -K_A A + D_A \nabla^2 A \\ \partial_t B &= -K_B B X + D_B \nabla^2 B \\ \partial_t X &= A - (B + 1)X + X^2 Y + \nabla^2 X \\ \partial_t Y &= B X - X^2 Y + D \nabla^2 Y \end{aligned}$$

donde las constantes son:

$$\begin{aligned} D_{A,B} &= \frac{\tilde{D}_{A,B}}{\tilde{D}_x} & D &= \frac{\tilde{D}_y}{\tilde{D}_x} \\ K_A &= \frac{K_1}{K_4} & K_B^2 &= \frac{K_2^2}{K_3 K_4} \end{aligned}$$

Las concentraciones de los reactivos y de los productos son controlados externamente, de manera que permanecen constantes en el transcurso del experimento. Además, aunque al inyectar reactivos desde los bordes se establecen gradientes de concentración, las estructuras de Turing aparecen en una región estrecha entre dos planos de concentración constante, de forma que podemos suponer  $A$  y  $B$  constantes en ella. El sistema queda entonces reducido a dos ecuaciones diferenciales:

$$\boxed{\begin{aligned} \partial_t X &= A - (B + 1)X + X^2 Y + \nabla^2 X \\ \partial_t Y &= B X - X^2 Y + D \nabla^2 Y \end{aligned}} \quad (3.3)$$

### 3.1 Análisis del problema lineal

Veamos cómo analizar el sistema de ecuaciones (3.3), que tiene 3 parámetros independientes  $A, B$  y  $D$ , de los cuales elegimos como parámetro de control la concentración renormalizada  $B$ . Un sencillo estudio del problema lineal (análogo al realizado en el apéndice A), muestra que el estado estacionario y homogéneo dado por  $\mathbf{u}_s = (X_s, Y_s) = (A, B/A)$ , puede sufrir una inestabilidad de Turing o de Hopf, dependiendo de los valores de los parámetros. Este modelo es del tipo activador-agotamiento del sustrato, lo que significa que en las estructuras espacio-temporales que aparecen las concentraciones de  $X$  e  $Y$  presentan un “desfase en  $\pi$ ”.

Para analizar la estabilidad lineal del estado de referencia lo perturbamos ligeramente:

$$X = X_s + x, \quad Y = Y_s + y \quad (3.4)$$



y estudiamos las ecuaciones de evolución temporal para las perturbaciones:

$$\begin{aligned}\partial_t x &= (B-1)x + A^2 y + \frac{B}{A}x^2 + 2Axy + x^2 y + \nabla^2 x \\ \partial_t y &= -Bx - A^2 y - \frac{B}{A}x^2 - 2Axy - x^2 y + D\nabla^2 y\end{aligned}\quad (3.5)$$

que en forma matricial quedan:

$$\partial_t \begin{pmatrix} x \\ y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} B-1 + \nabla^2 & A^2 \\ -B & -A^2 + D\nabla^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x \\ y \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \frac{B}{A}x^2 + 2Axy + x^2 y \\ -\frac{B}{A}x^2 - 2Axy - x^2 y \end{pmatrix}\quad (3.6)$$

o de forma más compacta:

$$\partial_t \mathbf{u} = \mathcal{L} \mathbf{u} + \begin{pmatrix} \frac{B}{A}x^2 + 2Axy + x^2 y \\ -\frac{B}{A}x^2 - 2Axy - x^2 y \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \end{pmatrix}\quad (3.7)$$

donde  $\mathbf{u} = (x, y)^T$  es el vector de perturbaciones y  $\mathcal{L}$  es el operador lineal. La parte lineal,  $\partial_t \mathbf{u} = \mathcal{L} \mathbf{u}$  tiene como solución:

$$\mathbf{u}_k = \mathbf{u}_0 e^{\sigma(k)t} e^{ik \cdot r}\quad (3.8)$$

donde  $\sigma(k)$  es parámetro de crecimiento de la perturbación de número de onda  $k$ . Sustituyendo nos queda un problema de autovalores:

$$\sigma(k) \mathbf{u}_k = \begin{pmatrix} B-1-k^2 & A^2 \\ -B & -A^2 - Dk^2 \end{pmatrix} \mathbf{u}_k\quad (3.9)$$

La condición de solución no trivial viene dada por:  $\det(\mathcal{L} - \sigma(k)I) = 0$ , que nos conduce a la ecuación característica o *relación de dispersión*:

$$\sigma(k)^2 - \sigma(k)\tau + \Delta = 0\quad (3.10)$$

donde  $\tau$  es la traza y  $\Delta$  es el determinante de la matriz  $\mathcal{L}$ :

$$\begin{aligned}\tau &= B-1 - (1+D)k^2 - A^2 \\ \Delta &= A^2 + k^2[A^2 - (B-1)D] + Dk^4\end{aligned}\quad (3.11)$$

En general, esa ecuación tiene dos raíces:

$$\sigma(k) = \frac{\tau \pm \sqrt{\tau^2 - 4\Delta}}{2}\quad (3.12)$$

El estado de referencia se desestabiliza cuando la parte real de  $\sigma$  se hace positiva para algún modo  $k$ . La condición  $\Re(k) = 0$  determina la llamada curva marginal,  $B = B(k)$ , que da el valor del parámetro de control para el cual el modo  $k$  pasa a ser inestable. El mínimo de esta curva es el punto crítico  $B_c$ , y el modo (o modos) correspondientes es el modo marginal con  $k = k_c$ . Podemos distinguir dos casos:

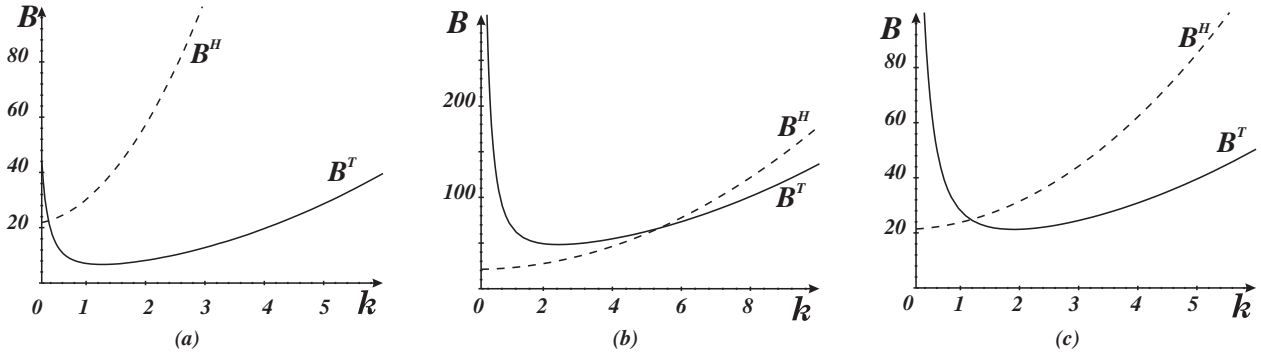


Figura 3.1: Curvas marginales para las bifurcaciones de Turing y Hopf, en los diferentes casos. (a) Inestabilidad de Turing ( $B_c^H > B_c^T$ ). (b) Inestabilidad de Hopf ( $B_c^H < B_c^T$ ). (c) Punto de codimensión dos ( $B_c^H = B_c^T$ ).

### Raíces complejas conjugadas: bifurcación de Hopf

Cuando las raíces de la eq. (3.10) son complejas conjugadas, la curva marginal viene dada por la condición  $\Re(\sigma) = 0$ , equivalente a anular el coeficiente del término lineal en  $\sigma$  de la ecuación (3.12):

$$\boxed{B^H = 1 + A^2 + (1 + D)k^2} \quad (3.13)$$

El punto crítico es:  $B_c^H = 1 + A^2$ ,  $k_c = 0$ , que corresponde a la condición (A.8) encontrada para un sistema general en el apéndice A.

Cuando  $B = B_c$ , el estado estacionario y homogéneo deja de ser estable, en favor de un estado homogéneo oscilante de frecuencia:  $\sigma = iA$ . Se dice que el sistema sufre una *bifurcación de Hopf*. Hay que hacer notar que esta inestabilidad es intrínseca del sistema, independiente de los fenómenos de difusión.

### Raíces reales: bifurcación de Turing

La bifurcación se produce cuando una de las raíces de la ecuación característica se anula, o lo que es lo mismo, cuando el término independiente se hace cero. Entonces la curva marginal entonces viene dada por:

$$\boxed{B^T = \frac{1}{Dk^2}[A^2 + k^2(A^2 + D) + Dk^4]} \quad (3.14)$$

cuyo mínimo corresponde al punto crítico condición (A.11):

$$B_c^T = (1 + A\eta)^2, \quad k_c^2 = A\eta = \left(\frac{2\pi}{\lambda_c^T}\right)^2 \quad (3.15)$$

donde hemos definido  $\eta \equiv \sqrt{1/D}$ . (Estos valores corresponden a la condición (A.9)).

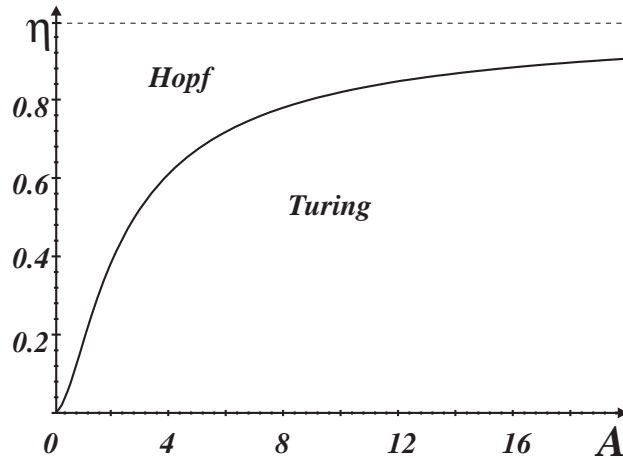


Figura 3.2: Curva en que ambas bifurcaciones se producen a la vez (ec. (3.17)).

La otra raíz es negativa, ( $\sigma < 0$ ), puesto que de lo contrario, ya estaríamos más allá de la bifurcación. Se ve claramente si se escribe en la forma:

$$\sigma = B - 1 - A^2 - (1 + D)k^2 = B - B^H(k) < 0$$

función negativa por estar suficientemente cerca del umbral  $B \sim B^T < B^H$  (ya que de lo contrario el sistema sufriría primero la inestabilidad de Hopf). El nuevo estado es una estructura de Turing, consecuencia de la rotura de simetría espacial. Cerca del umbral tan solo los modos críticos tienen tasas de crecimiento próximas a cero, mientras que el resto de los modos se amortiguan rápidamente y quedan esclavizados. Por tanto, la solución al orden lineal es una superposición de los modos marginales, que son los vectores propios del problema lineal con autovalor cero:

$$\mathbf{u}_1 = \sum_{j=1}^N \begin{pmatrix} 1 \\ -\frac{\eta}{A}(1 + A\eta) \end{pmatrix} (W_j e^{i\mathbf{k}_j \cdot \mathbf{r}} + c.c.) \quad (3.16)$$

donde  $|\mathbf{k}_j| = k_c = \sqrt{A\eta}$ .

El número de modos que contribuyen a la suma depende de la dimensión del espacio. Será  $N = 2$  si estamos en 1-D, un continuo cuando estamos en 2-D o un continuo con dos parámetros en el caso 3-D. En este trabajo vamos a estudiar estructuras en el plano, por tanto, tendremos en general un número infinito de grados de libertad. Sin embargo, nos limitaremos a las estructuras regulares observadas experimentalmente:  $N = 1$  para bandas y  $N = 3$  para hexágonos.

El tipo de bifurcación que sufre el sistema dependerá del valor de los parámetros. En la figura 3.1 se muestran las curvas marginales de cada bifurcación para diferentes casos. En particular las dos inestabilidades se producen a la vez cuando  $B_c^H = B_c^T$ , es decir, si:

$$\eta = \frac{\sqrt{1 + A^2} - 1}{A} \quad (3.17)$$

Esta curva, representada en la figura 3.2, separa en dos al espacio de parámetros: por encima de ella se produce la bifurcación de Hopf y por debajo se tiene el espacio de Turing, que siempre

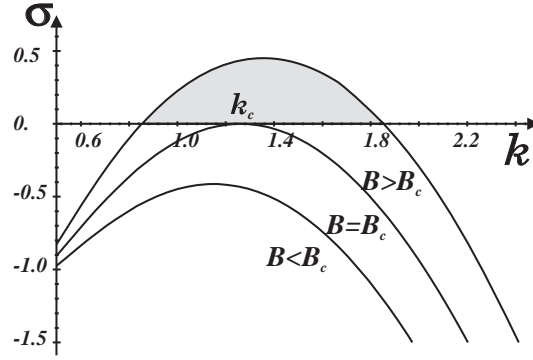


Figura 3.3: Tasa de crecimiento para diferentes valores del parámetro de control  $B$ . Por encima del punto crítico existe una banda de números de onda con  $\sigma > 0$ .

permanece por debajo de  $\eta = 1$ , es decir, que el inhibidor difunde más rápidamente que el activador.

### 3.1.1 Cálculo de los coeficiente lineales para la bifurcación de Turing

Tomemos el vector de onda en la dirección del eje  $x$ . Cerca del punto de bifurcación existe una banda de modos marginalmente estables alrededor del número de onda crítico (figura 3.3) con tasas de crecimiento próximas a cero. En estas condiciones el sistema admite como solución lineal una superposición de esos modos:

$$\mathbf{u} = \sum_{k \in \Delta k} \mathbf{u}_k e^{ik \cdot x} = \sum_{k \in \Delta k} \mathbf{u}_0 e^{\sigma t} e^{ik \cdot x} = \sum_{k \in \Delta k} \mathbf{u}_0 e^{\sigma t} e^{i(k-k_c) \cdot x} e^{ik_c \cdot x}$$

siendo  $\Delta k$  el rango de valores con  $\sigma > 0$ . Definimos la amplitud:

$$\mathbf{u}_m = \sum_{k \in \Delta k} \mathbf{u}_0 e^{\sigma t} e^{i(k-k_c) \cdot x} \quad (3.18)$$

La evolución de esa amplitud viene dada por la llamada *ecuación de amplitud* [23]:

$$\dot{\mathbf{u}} = \dot{\mathbf{u}}_m e^{ik_c \cdot x} = \sum_{k \in \Delta k} \sigma(k) \mathbf{u}_k e^{ik \cdot x} \quad (3.19)$$

Veamos cómo podemos obtener la derivada temporal de la amplitud. Desarrollando la tasa de crecimiento alrededor de  $(B_c, k_c)$ , se tiene:

$$\begin{aligned} \sigma(B, k) &\simeq \sigma(B_c, k_c) + \left. \frac{\partial \sigma}{\partial k} \right|_{k_c, B_c} (k - k_c) + \left. \frac{\partial \sigma}{\partial B} \right|_{k_c, B_c} (B - B_c) + \frac{1}{2} \left. \frac{\partial^2 \sigma}{\partial k^2} \right|_{k_c, B_c} (k - k_c)^2 \\ &+ \frac{1}{2} \left. \frac{\partial^2 \sigma}{\partial B^2} \right|_{k_c, B_c} (B - B_c)^2 + \left. \frac{\partial^2 \sigma}{\partial B \partial k} \right|_{k_c, B_c} (B - B_c)(k - k_c) + \dots \end{aligned} \quad (3.20)$$

donde sabemos que  $\sigma(B_c, k_c) = 0$ , por ser precisamente la condición de bifurcación y que  $\left. \frac{\partial \sigma}{\partial k} \right|_{k_c, B_c} = 0$  (el punto crítico es un máximo de  $\sigma$ ). Por otro lado, la relación entre  $B$  y  $k$  se

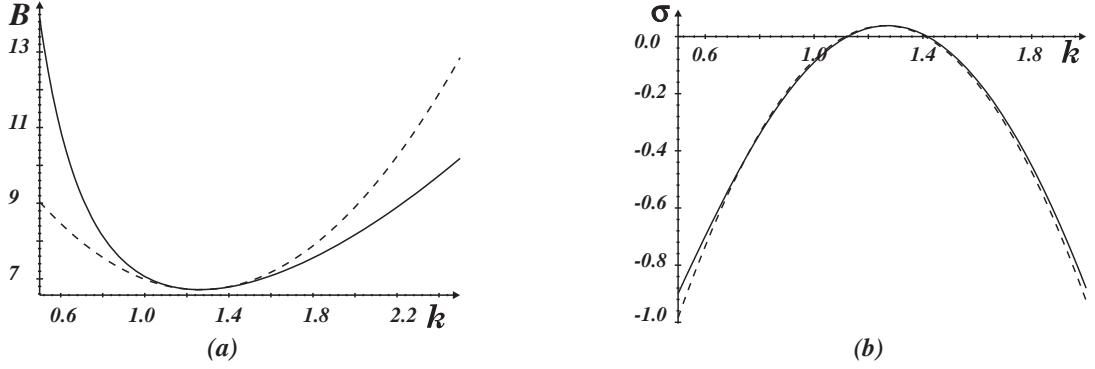


Figura 3.4: (a) Curva  $B=B(k)$  y su aproximación dada por (3.21) en línea discontinua. Se ve que ambas coinciden cerca del punto crítico. (b) Curva  $\sigma = \sigma(k)$  y la aproximación (3.22).

halla a partir de un desarrollo análogo de la curva marginal (3.14):

$$B \simeq B_c + \left. \frac{\partial B}{\partial k} \right|_{k_c} (k - k_c) + \frac{1}{2} \left. \frac{\partial^2 B}{\partial k^2} \right|_{k_c} (k - k_c)^2 + o(\delta k^3)$$

La primera derivada es cero en el punto crítico, al ser éste un mínimo de la curva, por tanto hasta orden cuadrático:

$$B - B_c \simeq \frac{1}{2} \left. \frac{\partial^2 B}{\partial k^2} \right|_{k_c} (k - k_c)^2 = 4(k - k_c)^2 \quad (3.21)$$

Sustituyendo esta relación en la ecuación (3.20), hasta orden  $(k - k_c)^2$  queda:

$$\sigma(B, k) \simeq \left. \frac{\partial \sigma}{\partial B} \right|_{k_c, B_c} (B - B_c) + \frac{1}{2} \left. \frac{\partial^2 \sigma}{\partial k^2} \right|_{k_c, B_c} (k - k_c)^2 + o(\delta k^3)$$

que de forma más compacta puede escribirse como:

$$\sigma(B, k) \simeq \sigma_0 [\mu - \xi_0^2 (k - k_c)^2] \quad (3.22)$$

donde se ha definido:

$$\sigma_0 = B_c \left. \frac{\partial \sigma}{\partial B} \right|_{k_c, B_c} = \frac{1 + A\eta}{1 - \eta^2} \quad \xi_0^2 = \frac{-1}{2\sigma_0} \left. \frac{\partial^2 \sigma}{\partial k^2} \right|_{k_c, B_c} \quad \mu = \frac{B - B_c}{B_c}$$

El cálculo directo de  $\xi_0$  a partir de la expresión de  $\sigma$  dada por la eq.(3.12) es bastante complicado. Sin embargo, en torno caso marginal  $\sigma \simeq 0$  se tiene:

$$\mu \simeq \xi_0^2 (k - k_c)^2 \implies B - B_c = B_c \xi_0^2 (k - k_c)^2$$

Utilizando la ecuación  $B - B_c = 4(k - k_c)^2$  obtenemos la expresión exacta para  $\xi_0$ , que es la misma que si utilizásemos la forma completa de  $\sigma$ :

$$\xi_0^2 \simeq \frac{4}{(1 + A\eta)^2}$$

La derivada temporal de cada modo viene dada por la ecuación (3.22), que toma la forma:

$$\dot{\mathbf{u}}_m = \sum_{k \in \Delta k} \sigma_0 [\mu - \xi_0^2 (k - k_c)^2] \mathbf{u}_k e^{i(k - k_c) \cdot x} \quad (3.23)$$

Por otro lado se tiene que:

$$\partial_x^2 \mathbf{u}_m = - \sum_{k \in \Delta k} \mathbf{u}_0 e^{\sigma t} (k - k_c)^2 e^{i(k - k_c) \cdot x} \quad (3.24)$$

de donde se obtiene la ecuación de amplitud lineal:

$$\boxed{\tau_0 \partial_t \mathbf{u}_m = \mu \mathbf{u}_m + \xi_0^2 \partial_x^2 \mathbf{u}_m} \quad (3.25)$$

con:

$$\mu = \frac{B - B_c}{B_c} \quad \tau_0 = \frac{1 - \eta^2}{1 + A\eta} \quad \xi_0^2 = \frac{4}{(1 + A\eta)^2} \quad (3.26)$$

siendo  $\mu$  la supercriticalidad,  $\tau_0$  el tiempo característico de relajación de las perturbaciones (adimensionalizado por  $K_4^{-1}$ ) y  $\xi_0^2$  la longitud de correlación (adimensionalizada por  $\sqrt{\tilde{D}_x / K_4}$ ), que nos da la longitud característica de ‘influencia’ de las perturbaciones.

De este análisis se deduce que las escalas lentas de espacio y tiempo de la dinámica de amplitud son de distinto orden, ya que si los términos espaciales intervienen hasta un cierto orden, las temporales no intervienen hasta el siguiente:

$$\partial_\tau A \sim \partial_x^2 A \quad (3.27)$$

(Podríamos haber deducido este mismo resultado a partir de la ecuación característica (3.22), ya que  $\sigma(k) \sim (k - k_c)^2$ ).

# Capítulo 4

## Ecuaciones de amplitud

En el análisis lineal hemos introducido la amplitud como parámetro de orden, nulo antes de la bifurcación y que caracteriza el nuevo estado que aparece tras la inestabilidad. Mediante este análisis hemos obtenido el umbral para la bifurcación de Turing y la ecuación lineal que satisface esta amplitud. Sin embargo esa ecuación es incompleta, ya que, para que las perturbaciones no crezcan indefinidamente, son necesarios términos no lineales que saturen su crecimiento. Además, este análisis no permite predecir el tipo de estructura que aparece después de la bifurcación. Por tanto, resulta necesario hacer un estudio no lineal del problema.

En un sistema pequeño, cuya dimensión característica ( $L$ ) es del mismo orden que la longitud de onda de la estructura que aparece ( $\lambda$ ), los modos están aislados, de manera que tan solo unos pocos se excitan (*variedad central*) y el problema puede ser descrito con unos pocos grados de libertad. Llamemos  $A_1$  al conjunto de modos marginalmente inestables y  $A_2$  a los modos amortiguados, de forma que sus ecuaciones de evolución pueden representarse mediante las ecuaciones:

$$\begin{aligned}\frac{dA_1}{dt} &= \sigma_1 A_1 + f_1(A_1, A_2) \\ \frac{dA_2}{dt} &= \sigma_2 A_2 + f_2(A_1, A_2)\end{aligned}\tag{4.1}$$

donde  $\tau_1 = 1/\sigma_1$  y  $\tau_2 = |1/\sigma_2|$  son los tiempos característicos de evolución de esos modos, que verifican:  $\tau_1 \gg \tau_2$ . Entonces, para fluctuaciones con tiempos  $\tau_1$  se tiene que:

$$\left| \frac{dA_1}{dt} \right| \sim |\sigma_1| A_2 \ll |\sigma_2| A_2$$

y por tanto se puede suponer:

$$A_2 \simeq \frac{-1}{\sigma_2} f_1(A_1, A_2)\tag{4.2}$$

de manera que el segundo modo queda esclavizado por la dinámica del primero y puede eliminarse adiabáticamente de las ecuaciones [24]. Al introducir la expresión (4.2) en la ecuación

(4.1) se obtiene:

$$\frac{dA_1}{dt} = \sigma_1 A_1 + F(A_1) \quad (4.3)$$

que nos dará la forma normal de la bifurcación.

No incluimos por el momento ninguna modulación espacial, pues como primer paso suponemos que la estructura tiene una longitud de onda constante a lo largo del patrón,  $\lambda_c$ . Sin embargo, en un sistema extenso ( $L \gg \lambda$ ) se tiene una banda continua de modos inestables (figura 3.3), con lo que, en principio, la variedad central tendría dimensión infinita. Para tratar este tipo de sistemas se toman como parámetros de orden las envolventes de las amplitudes de los modos inestables. Ahora estas nuevas amplitudes no son constantes, sino que varían en escalas lentas de espacio y tiempo, y el número de onda, a su vez, cambia de un punto a otro del patrón. Como hemos visto en el análisis lineal  $\partial_t A \sim \partial_x^2 A$ , por tanto, la ecuación de evolución: en  $1-D$  resulta:

$$\boxed{\partial_t A_1 = \sigma_1 A_1 + F(A_1) + \xi_0^2 \partial_x^2 A_1} \quad (4.4)$$

Estas son las llamadas ecuaciones de amplitud que se pueden encontrar utilizando diferentes métodos perturbativos. Los más comunes son el método de Galerkin–Eckhaus y el de las múltiples escalas. El primero consiste en desarrollar la solución en modos de Galerkin para encontrar las ecuaciones que satisfacen las amplitudes que los acompañan. Se pueden obtener perturbativamente considerando que cerca del punto crítico las amplitudes son pequeñas y que la contribución de los términos con potencias altas es despreciable. Además la dinámica de los modos no marginales (de tiempos de relajación cortos) está esclavizada por los modos críticos, de manera que se eliminan adiabáticamente. El número de grados de libertad queda reducido entonces a la dimensión de la variedad central formada por los modos críticos.

En el método de las múltiples escalas se desarrollan las soluciones cerca del umbral y los operadores diferenciales en serie de potencias de un parámetro pequeño,  $\epsilon$ , que mide la distancia al umbral y que estará directamente relacionado con la supercriticalidad. De esta forma se separan las distintas escalas espacio–temporales y las ecuaciones de amplitud se encuentran procediendo orden por orden en  $\epsilon$ . Este es el método utilizado a continuación para el Bruselator por tener una interpretación física más clara.

## 4.1 Análisis débilmente no lineal

Partimos de las ecuaciones de evolución para las perturbaciones (3.7):

$$\partial_t \mathbf{u} = \mathcal{L} \mathbf{u} + \begin{pmatrix} B \\ A \end{pmatrix} x^2 + 2Axy + x^2y \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \end{pmatrix} \quad (4.5)$$

donde  $\mathbf{u} = (x, y)^T$  es el vector de perturbaciones y  $\mathcal{L}$  es el operador lineal:

$$\mathcal{L} = \begin{pmatrix} B - 1 + \nabla^2 & A^2 \\ -B & -A^2 + D \nabla^2 \end{pmatrix} \quad (4.6)$$



Al igual que en el análisis lineal elegimos como parámetro de control la concentración renormalizada  $B$ . Se toma como solución un desarrollo perturbativo en términos de potencias de  $\epsilon$ :

$$\begin{aligned} B &= B_c + \epsilon B_1 + \epsilon^2 B_2 + \dots \\ \mathbf{u} &= \epsilon \mathbf{u}_1 + \epsilon^2 \mathbf{u}_2 + \epsilon^3 \mathbf{u}_3 + \dots \end{aligned}$$

Cuando  $B_1 = 0$ , como ocurre en el caso de bandas, la bifurcación es supercrítica, mientras que de lo contrario, -por ejemplo para los hexágonos-, se tiene una bifurcación subcrítica, más difícil de tratar. Analizemos cada caso por separado.

### 4.1.1 Caso de bandas

En este caso podemos considerar únicamente la dirección del patrón de bandas para simplificar el desarrollo. Teniendo en cuenta la relación  $\partial_\tau A \sim \partial_x^2 A$  encontrada en el análisis lineal, las escalas lentas de espacio y tiempo se pueden desarrollar en función de  $\epsilon$  en la forma:

$$\begin{aligned} \partial_x &= \partial_{x_0} + \epsilon \partial_X \\ \partial_t &= \partial_\tau + \epsilon^2 \partial_T \end{aligned}$$

Introduciendo estos desarrollos en el operador lineal de la ecuación (4.6), éste se expresa también como una serie de potencias de  $\epsilon$ :

$$\mathcal{L} = \mathcal{L}_0 + \epsilon \mathcal{L}_1 + \epsilon^2 \mathcal{L}_2 + \epsilon^3 \mathcal{L}_3 + \dots$$

donde:

$$\begin{aligned} \mathcal{L}_0 &= \begin{pmatrix} B_c - 1 + \partial_{x_0}^2 & A^2 \\ -B_c & -A^2 + D \partial_{x_0}^2 \end{pmatrix} \\ \mathcal{L}_1 &= \begin{pmatrix} B_1 + 2\partial_{x_0} \partial_X & 0 \\ -B_1 & 2D \partial_{x_0} \partial_X \end{pmatrix} \\ \mathcal{L}_2 &= \begin{pmatrix} B_2 + \partial_X^2 & 0 \\ -B_2 & D \partial_X^2 \end{pmatrix} \end{aligned}$$

Para obtener las ecuaciones de amplitud basta ir orden por orden en  $\epsilon$ :

**Orden  $\epsilon$ :** Se recupera el problema lineal:

$$(\partial_\tau - \mathcal{L}_0) \mathbf{u}_1 = 0$$

cuyas soluciones son las encontradas en el capítulo anterior (ecuación (3.16)). El caso de bandas corresponde a  $N = 1$ :

$$\mathbf{u}_1 = \begin{pmatrix} 1 \\ \alpha \end{pmatrix} (W_1 e^{ik_c \cdot r} + c.c.) \quad (4.7)$$

donde:  $\alpha = -\eta(1 + A\eta)/A$  y *c.c* representa el complejo conjugado, que se incluye para obtener una solución real.

Son necesarios también los autovectores del operador adjunto  $\mathcal{L}_0^+$ , dados por:

$$\mathcal{L}_0^+ \bar{\mathbf{v}} = 0 \implies \mathbf{v} = (1, \beta)e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}, \quad \beta = \frac{A\eta}{1 + A\eta}$$

que cumplen la relación de ortogonalidad:

$$\langle \mathbf{v}(\mathbf{k}) | \mathbf{u}(\mathbf{k}') \rangle = \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(1 - \eta^2)$$

Para encontrar las ecuaciones de evolución de las amplitudes, debemos ir al orden siguiente.

**Orden  $\epsilon^2$ :** Se tiene:

$$(\partial_{\tau_0} - \mathcal{L}_0)\mathbf{u}_2 = \mathcal{L}_1\mathbf{u}_1 + \left(\frac{B_c}{A}x_1^2 + 2Ax_1y_1\right) \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} I_{2x} \\ I_{2y} \end{pmatrix} \quad (4.8)$$

de modo que, a orden 2 y superiores, se obtienen ecuaciones lineales inhomogéneas de la forma:

$$L_0\mathbf{u}_i = (\partial_\tau - \mathcal{L}_0)\mathbf{u}_i = \mathbf{I}_i \quad (4.9)$$

La matriz  $L_0$  no es invertible, ya que tiene un autovalor cero, el correspondiente al modo crítico. Por tanto, el sistema tiene solución únicamente cuando nos restringimos al subespacio en que el problema es invertible, es decir, cuando  $\mathbf{I}_i - \text{Ker}(L_0^+)$ , que es lo se conoce como *condición alternativa de Fredholm* [24]:

$$\langle \mathbf{v} | \mathbf{I}_i \rangle = 0 \quad (4.10)$$

a la que sólo contribuyen los términos resonantes con los modos críticos debido a la ortogonalidad de los modos de Fourier. Habitualmente no se obtiene nada de ella a este orden, ya que se cumple de manera trivial, pero aplicada a nuestro caso, para  $e^{ik_c \cdot r}$  queda:

$$B_1W_1 + 2ik_c\partial_X W_1 - \eta^2(-B_1W_1 + 2ik_c D\partial_X W_1) = 0 \implies B_1 = 0 \quad (4.11)$$

Esto significa que  $\epsilon^2 = (B - B_c)/B_c$ , es decir, que la bifurcación es supercrítica, y que la forma normal es:

$$\partial_t A = \mu A - gA^3$$

La solución a orden 2 es suma de la solución general del problema homogéneo y una solución particular del sistema completo. Teniendo en cuenta que la parte no lineal de  $I_{2i}$  contiene términos cuadráticos en  $x_1, y_1$ , la solución toma la forma:

$$\mathbf{u}_2 = \begin{pmatrix} 1 \\ \alpha \end{pmatrix} (W_2 e^{ik_c \cdot r} + c.c.) + \begin{pmatrix} a_0 \\ b_0 \end{pmatrix} + \left[ \begin{pmatrix} a_1 \\ b_1 \end{pmatrix} e^{ik_c \cdot r} + \begin{pmatrix} a_2 \\ b_2 \end{pmatrix} e^{i2k_c \cdot r} + c.c. \right] \quad (4.12)$$

Podemos encontrar los coeficientes de la solución particular sustituyéndola en la ecuación (4.8) y recordando la ortogonalidad de las ondas planas:

- $\mathbf{e}^0$ : Se obtienen los coeficientes del modo  $k = 0$ :

$$a_0 = 0 \quad (4.13)$$

$$b_0 = \frac{-2}{A^3}(1 - A^2\eta^2)|W_1|^2 \quad (4.14)$$

- $\mathbf{e}^{ik_c \cdot \mathbf{r}}$ : A pesar de aplicar la condición alternativa de Fredholm, sobreviven términos resonantes debido a los términos espaciales. Se obtiene la relación:

$$a_1 + \frac{Ab_1}{\eta(1 + A\eta)} = \frac{-2i}{A\eta(1 + A\eta)}k_c \partial_X W_1 \quad (4.15)$$

Para calcular los coeficientes explícitamente deberíamos exigir también que la solución particular sea ortogonal a la solución general del problema homogéneo; sin embargo para nuestro análisis nos basta con esta relación.

- $\mathbf{e}^{i2k_c \cdot \mathbf{r}}$ : Los coeficientes del modo  $k = 2k_c$  resultan:

$$a_2 = \frac{4(1 - A^2\eta^2)}{9A^2\eta}W_1^2 \quad (4.16)$$

$$b_2 = \frac{-(1 + 4A\eta)(1 - A^2\eta^2)}{9A^3}W_1^2 \quad (4.17)$$

Para llegar a las ecuaciones de amplitud debemos analizar el orden siguiente:

**Orden  $\epsilon^3$ :** La ecuación a este orden queda:

$$(\partial_\tau - \mathcal{L}_0)\mathbf{u}_3 = \mathcal{L}_1\mathbf{u}_2 + (-\partial_T + \mathcal{L}_2)\mathbf{u}_1 + \left[ \frac{B_c}{A}2x_1x_2 + 2A(y_1x_2 + y_2x_1) + x_1^2y_1 \right] \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \end{pmatrix}$$

o en forma más compacta:

$$(\partial_\tau - \mathcal{L}_0) \begin{pmatrix} x_3 \\ y_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} I_{3x} \\ I_{3y} \end{pmatrix}$$

De nuevo aplicando la condición alternativa de Fredholm:

$$\langle \mathbf{v} | \mathbf{I}_3 \rangle = 0$$

se tiene:

$$-(1 + \alpha\beta)\partial_{\tau_2}W_1 + (1 - \beta)B_2W_1 + (1 + D\alpha\beta)\partial_X^2W_1 + 2ik_c[\partial_X(a_1 + W_2) + \beta D\partial_X(b_1 + \alpha W_2)] \\ + \left[ \frac{2B_c}{A}a_2 + 2A(b_2 + a_2\alpha) + 3\alpha W_1^2 \right] (1 - \beta)\overline{W_1} + 2Ab_0(1 - \beta)W_1 = 0$$

Sustituyendo  $\alpha$  y  $\beta$ , y recordando la relación (4.15) se llega a:

$$(1 - \eta^2)\partial_T W_1 = \frac{B_2}{1 + A\eta}W_1 + \frac{4}{1 + A\eta}\partial_X^2 W_1 - \frac{1}{9A^3\eta}(-8A^3\eta^3 + 5A^2\eta^2 + 38A\eta - 8)|W_1|^2 W_1 \quad (4.18)$$

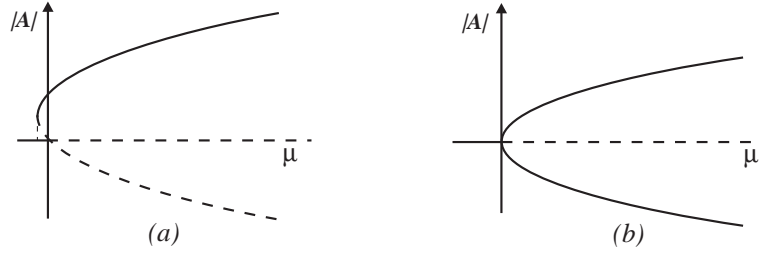


Figura 4.1: (a) Bifurcación subcrítica. (b) Bifurcación supercrítica.

Si multiplicamos esta expresión por  $\epsilon^3$  se recuperan los operadores espacio-temporales y reconstruir la solución:

$$\begin{aligned} \partial_\tau + \epsilon^2 \partial_T &= \partial_t & \partial_{x_0} + \epsilon \partial_X &= \partial_x \\ \epsilon^2 B_2 &= B - B_c & \epsilon W_1 + \epsilon^2 W_2 &= T \end{aligned} \quad (4.19)$$

llegándose a la ecuación de amplitud:

$$\boxed{\tau_0 \partial_t A = \mu A - g |A|^2 A + D^T \partial_x^2 A} \quad (4.20)$$

donde:

$$\begin{aligned} \tau_0 &= \frac{1 - \eta^2}{1 + A\eta} & \mu &= \frac{B - B_c}{B_c} \\ g &= \frac{-8 + 38 A\eta + 5 A^2 \eta^2 - 8 A^3 \eta^3}{9 A^3 \eta (1 + A\eta)} & D^T &= \frac{4}{B_c} \end{aligned} \quad (4.21)$$

Los coeficientes lineales  $D^T$ ,  $\tau_0$  y  $\mu$  coinciden con los hallados en el capítulo anterior, como era de esperar. Además comprobamos que, efectivamente, la ecuación de amplitud, sin la difusión, corresponde a la forma normal de una bifurcación pitchfork (de horquilla) supercrítica (figura 4.1):

$$\tau_0 \partial_t A = \mu A - g |A|^2 A$$

Si tomamos como solución  $T = R e^{i\phi}$  y separamos las partes real e imaginaria:

$$\partial_t R = \mu R - g R^3 \quad (4.22)$$

$$\partial_t \phi = 0 \implies \phi = cte \quad (4.23)$$

La segunda ecuación indica que la fase es un modo marginal, de manera que la ecuación queda invariante bajo una traslación de fase, equivalente a una traslación espacial  $x \rightarrow x + \Delta x$ . Esta simetría de la ecuación de amplitud se rompe en la dirección del vector de ondas del patrón, ya que las soluciones no son invariantes bajo traslaciones.

Por otro lado, la ecuación para la amplitud tiene dos soluciones estacionarias:

- $R_s = 0$ , la solución estacionaria y homogénea que, como comprobaremos más adelante, es estable cuando  $\mu < 0$ , es decir, por debajo del punto crítico;

- $R_B = \sqrt{\mu/g}$ , solución no trivial, que es estable por encima del umbral  $B_c$ .

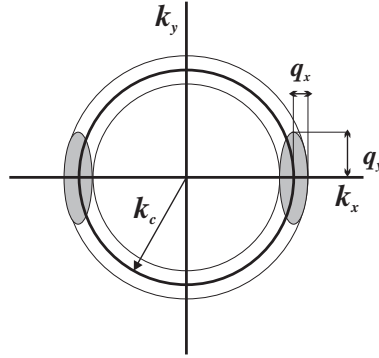


Figura 4.2: Dominio de vectores de onda que intervienen en la modulación espacial de un patrón de bandas en  $2-D$ .

La ecuación (4.20) rige la evolución espacio-temporal de la amplitud más allá del punto de bifurcación. Su forma es la misma para cualquier sistema unidimensional que sufra una ruptura espacial de la simetría. Sin embargo, en sistemas bidimensionales debemos tener en cuenta las modulaciones de la amplitud no sólo en la dirección del número de onda, sino también en la perpendicular a él. La generalización de esta ecuación no puede hacerse de manera trivial, ya que los operadores diferenciales dependen de distinta forma del parámetro  $\epsilon$  [24] según las direcciones:

$$\partial_x = \partial_{x_0} + \epsilon \partial_X \quad (4.24)$$

$$\partial_y = \partial_{y_0} + \epsilon^{1/2} \partial_Y \quad (4.25)$$

Esto se debe a que si tomamos  $\hat{x}$  en la dirección del número de onda de las bandas, y lo perturbamos ligeramente (figura 4.2):

$$\vec{k} = (k_c + q_x)\hat{x} + q_y\hat{y}$$

el operador laplaciano al orden más bajo queda:

$$\nabla^2 \simeq k_c^2 + 2q_x k_c + q_y^2 \quad (4.26)$$

Por tanto,  $q_x \sim q_y^2$  y entonces:

$$\partial_T A \sim \partial_x^2 A \sim \partial_y^4 A \quad (4.27)$$

Si realizamos el mismo desarrollo teniendo en cuenta la modulaciones de la amplitud en la dirección  $\hat{y}$ , se obtiene la ecuación (4.20) pero con el cambio  $2\partial_{x_0}\partial_X \rightarrow 2\partial_{x_0}\partial_X + \partial_Y^2$  (que se deduce de la ecuación (4.26)), que es la llamada *ecuación de Newell-Whitehead-Segel* (NWS):

$$\tau_0 \partial_t A = \mu A - g|A|^2 A + D^T \left( \partial_X + \frac{1}{2ik_c} \partial_Y^2 \right)^2 A \quad (4.28)$$

Las características del sistema concreto sólo afectan a los coeficientes, ya que la forma de esta ecuación es general para el caso de un patrón de bandas (o rollos para convección R-B [25]): el término lineal corresponde al crecimiento exponencial ya obtenido del análisis lineal, el cúbico es el responsable de la saturación de las perturbaciones y el difusivo da cuenta de las modulaciones espaciales de la amplitud de las bandas, esencial para estudiar defectos e inestabilidades de fase.

### 4.1.2 Solución hexagonal

En un patrón hexagonal se tiene simetría quiral ( $x \rightarrow -x, y \rightarrow -y$ ), y por tanto no hay diferencia entre las direcciones  $\hat{x}, \hat{y}$ . Los operadores espaciales en este caso se pueden tratar conjuntamente, ya que se desarrollan en la misma escala:

$$\nabla = \nabla_0 + \epsilon \nabla_1 \quad (4.29)$$

El operador temporal, teniendo en cuenta el análisis lineal, se toma al igual que antes como:

$$\partial_t = \partial_\tau + \epsilon^2 \partial_T \quad (4.30)$$

Introduciendo estos desarrollos en el operador lineal de la ecuación (4.6), se tiene al igual que en el caso de bandas:

$$\mathcal{L} = \mathcal{L}_0 + \epsilon \mathcal{L}_1 + \epsilon^2 \mathcal{L}_2 + \epsilon^3 \mathcal{L}_3 + \dots$$

donde ahora:

$$\begin{aligned} \mathcal{L}_0 &= \begin{pmatrix} B_c - 1 + \nabla_0^2 & A^2 \\ -B_c & -A^2 + D \nabla_0^2 \end{pmatrix} \\ \mathcal{L}_1 &= \begin{pmatrix} B_1 + 2\nabla_0 \nabla_1 & 0 \\ -B_1 & 2D \nabla_0 \nabla_1 \end{pmatrix} \\ \mathcal{L}_2 &= \begin{pmatrix} B_2 + \nabla_1^2 & 0 \\ -B_2 & D \nabla_1^2 \end{pmatrix} \end{aligned}$$

**Orden  $\epsilon$ :** Se recupera de nuevo el orden lineal y la solución corresponde al caso  $N = 3$  de la ecuación (3.16):

$$\mathbf{u}_1 = \begin{pmatrix} 1 \\ \alpha \end{pmatrix} \sum_{j=1}^3 (W_j e^{i\mathbf{k}_j \cdot \mathbf{r}} + c.c.), \quad |\mathbf{k}_j| = k_c \quad (4.31)$$

donde  $\alpha = -\eta(1 + A\eta)/A$  y con la condición de resonancia  $\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 + \mathbf{k}_3 = 0$ , es decir, son tres sistemas de bandas a  $120^\circ$ .

Al igual que en el caso anterior, para obtener las ecuaciones de amplitud debemos llegar hasta orden  $\epsilon^3$ .

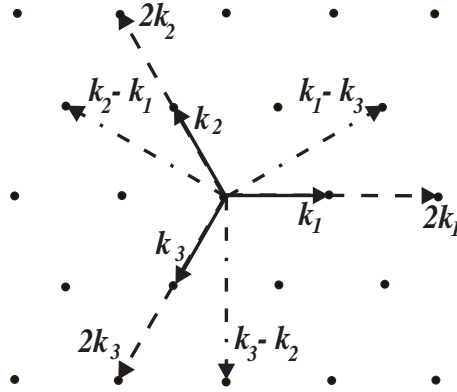


Figura 4.3: Modos que intervienen en el desarrollo.

**Orden  $\epsilon^2$ :** La ecuación queda:

$$(\partial_\tau - \mathcal{L}_0)\mathbf{u}_2 = \mathcal{L}_1\mathbf{u}_1 + \left(\frac{B_c}{A}x_1^2 + 2Ax_1y_1\right) \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} I_{2x} \\ I_{2y} \end{pmatrix} \quad (4.32)$$

De nuevo la condición resolutive viene dada por la alternativa de Fredholm, en la que los términos no lineales intervienen debido a la condición de cierre. Se tiene una para cada modo; en particular para  $\mathbf{k}_1$ :

$$\langle \mathbf{v} | \mathbf{I}_2 \rangle = 0 \implies v_x I_{2x}^{(1)} + v_y I_{2y}^{(1)} = 0 \quad (4.33)$$

donde  $I_{2i}^{(1)}$  son las proyecciones de la parte inhomogénea sobre el modo 1:

$$\begin{aligned} I_{2x}^{(1)} &= B_1 W_1 + 2ik_c(\hat{n}_1 \cdot \nabla_1)W_1 + 2\left(\frac{B_c}{A} + 2A\alpha\right)\overline{W}_2\overline{W}_3 \\ I_{2y}^{(1)} &= -B_1 W_1 + 2iD\alpha k_c(\hat{n}_1 \cdot \nabla_1)W_1 - 2\left(\frac{B_c}{A} + 2A\alpha\right)\overline{W}_2\overline{W}_3 \end{aligned}$$

Recordando que  $v_x = 1$  y  $v_y = \beta$ , la condición resolutive queda:

$$(1 - \beta) \left( B_1 W_1 + \frac{2}{A}(1 - A^2 \eta^2) \overline{W}_2 \overline{W}_3 \right) + 2ik_c(1 + D\alpha\beta) + D(\hat{n}_1 \cdot \nabla_1)W_1 = 0$$

y dado que la parte imaginaria se anula, se tiene:

$$B_1 W_1 + \frac{2}{A}(1 - A^2 \eta^2) \overline{W}_2 \overline{W}_3 = 0 \quad (4.34)$$

Las otras dos condiciones se obtienen mediante permutación cíclica de los subíndices. De aquí vemos que  $B_1 \neq 0$ , de modo que la bifurcación es subcrítica, y por tanto no es tan fácil de analizar como la supercrítica.

Pero a este orden la ecuación de amplitud no satura y debemos ir al siguiente orden, para lo cual es necesaria la solución a segundo orden. Puesto que en la ecuación (4.32) hay términos

hasta orden cuadrático en  $x_1, y_1$ , la solución general es:

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} x_2 \\ y_2 \end{pmatrix} &= \begin{pmatrix} 1 \\ \alpha \end{pmatrix} \sum_{j=1}^3 (W_j^{(1)} e^{i\mathbf{k}_j \cdot \mathbf{r}} + c.c.) + \begin{pmatrix} a_0 \\ b_0 \end{pmatrix} \\ &+ \left[ \sum_{j=1}^3 \begin{pmatrix} a_j \\ b_j \end{pmatrix} e^{i\mathbf{k}_j \cdot \mathbf{r}} + \sum_{j=1}^3 \begin{pmatrix} a_{jj} \\ b_{jj} \end{pmatrix} e^{i2\mathbf{k}_j \cdot \mathbf{r}} + \sum_{i < j}^3 \begin{pmatrix} a_{i-j} \\ b_{i-j} \end{pmatrix} e^{i(\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_j) \cdot \mathbf{r}} + c.c. \right] \end{aligned} \quad (4.35)$$

donde el primer sumando corresponde a la solución del problema homogéneo. En la figura 4.3 se muestran los modos resonantes con los modos críticos.

Sustituyéndola en la ecuación (4.32) encontramos los coeficientes de la solución particular:

- $\mathbf{e}^0$ : son los mismos que para las bandas:

$$\begin{aligned} a_0 &= 0 \\ b_0 &= \frac{-2}{A^3} (1 - A^2 \eta^2) (|W_1|^2 + |W_2|^2 + |W_3|^2) \end{aligned} \quad (4.36)$$

- $\mathbf{e}^{i2\mathbf{k}_j \cdot \mathbf{r}}$ : se tiene:

$$\begin{aligned} a_{jj} &= \frac{4}{9} \frac{1 - A^2 \eta^2}{A^2 \eta} W_j^2 \\ b_{jj} &= \frac{-1}{4} \frac{\eta(1 + 4A\eta)}{A} a_{jj} \end{aligned} \quad (4.37)$$

- $\mathbf{e}^{i\mathbf{k}_j \cdot \mathbf{r}}$ : al igual que en el caso de bandas, también sobreviven términos resonantes, obteniéndose la misma relación entre los coeficientes:

$$a_1 + \frac{Ab_1}{\eta(1 + A\eta)} = \frac{-2i}{A\eta(1 + A\eta)} k_c \nabla_1 W_1 \quad (4.38)$$

En este caso vamos a necesitar las expresiones completas de estos coeficientes. Imponemos la condición de que la solución particular sea ortogonal a la solución de la ecuación homogénea, es decir, a los autovectores del problema lineal, de modo que se llega a:

$$\begin{aligned} a_j &= \frac{-2ik_c \eta(1 + A\eta)}{A[\eta^2(1 + A\eta)^2 + A^2]} (\hat{n}_1 \cdot \nabla_1) W_j \\ b_j &= \frac{A}{\eta(1 + A\eta)} a_j \end{aligned} \quad (4.39)$$

**Orden  $\epsilon^3$ :** La ecuación a este orden:

$$(\partial_\tau - \mathcal{L}_0) \mathbf{u}_3 = \mathcal{L}_1 \mathbf{u}_2 + [-\partial_T + \mathcal{L}_2] \mathbf{u}_1 + \left( \frac{B_c}{A} 2x_1 x_2 + 2A(y_1 x_2 + y_2 x_1) + x_1^2 y_1 \right) \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \end{pmatrix} \quad (4.40)$$

que sólo se utiliza para aplicar la condición resolutive. Para el modo  $\mathbf{k}_1$ :

$$\langle \mathbf{v} | \mathbf{I}_3 \rangle = 0 \implies v_x I_{3x}^{(1)} + v_y I_{3y}^{(1)} = 0 \quad (4.41)$$



donde ahora:

$$\begin{aligned}
I_{3x}^{(1)} &= -\partial_T W_1 + (B_2 + \nabla_1^2)W_1 + [B_1 + 2ik_c(\hat{n}_1 \cdot \nabla_1)](a_1 + W_1^{(1)}) \\
&+ 2\frac{B_1}{A}\overline{W}_2 \overline{W}_3 + 2A(b_0 W_1 + b_{11}\overline{W}_1 + b_{1-2}W_2 + b_{1-3}W_3 + \overline{b}_2\overline{W}_3 + \overline{b}_3\overline{W}_2 + \alpha\overline{W}_2^{(1)} \overline{W}_3 \\
&+ \alpha\overline{W}_3^{(1)} \overline{W}_2) + \alpha(3|W_1|^2 + 6|W_2|^2 + 6|W_3|^2)W_1 + 2\left(\frac{B_c}{A} + A\alpha\right)(a_{11}\overline{W}_1 + a_{1-2}W_2 \\
&+ a_{1-3}W_3 + \overline{a}_2\overline{W}_3 + \overline{a}_3\overline{W}_2 + \overline{W}_2^{(1)}\overline{W}_3 + \overline{W}_3^{(1)}\overline{W}_2) \\
I_{3y}^{(1)} &= -\alpha\partial_T W_1 + (-B_2 + \alpha D\nabla_1^2)W_1 - B_1(a_1 + W_1^{(1)}) + 2ik_c D(\hat{n}_1 \cdot \nabla_1)(b_1 + \alpha W_1^{(1)}) \\
&- 2\frac{B_1}{A}\overline{W}_2 \overline{W}_3 - 2A(b_0 W_1 + b_{11}\overline{W}_1 + b_{1-2}W_2 + b_{1-3}W_3 + \overline{b}_2\overline{W}_3 + \overline{b}_3\overline{W}_2 + \alpha\overline{W}_2^{(1)} \overline{W}_3 \\
&+ \alpha\overline{W}_3^{(1)} \overline{W}_2) - \alpha(3|W_1|^2 + 6|W_2|^2 + 6|W_3|^2)W_1 - 2\left(\frac{B_c}{A} + A\alpha\right)(a_{11}\overline{W}_1 + a_{1-2}W_2 \\
&+ a_{1-3}W_3 + \overline{a}_2\overline{W}_3 + \overline{a}_3\overline{W}_2 + \overline{W}_2^{(1)}\overline{W}_3 + \overline{W}_3^{(1)}\overline{W}_2)
\end{aligned}$$

Sustituyendo las expresiones de los coeficientes de la solución a orden  $\epsilon^2$  y agrupando los términos, la condición resolutive a este orden queda:

$$\begin{aligned}
(1 - \eta^2)\partial_T W_1 &= \frac{1}{1 + A\eta} \left[ B_1 W_1^{(1)} + B_2 W_1 + 2\frac{B_1}{A}\overline{W}_2 \overline{W}_3 + 2\frac{1 - A^2\eta^2}{A}(\overline{W}_2^{(1)}\overline{W}_3 + \overline{W}_3^{(1)}\overline{W}_2) \right. \\
&- g'|W_1|^2 W_1 - h'(|W_2|^2 + |W_3|^2)W_1 \left. \right] + \frac{4}{1 + A\eta}(\hat{n}_1 \cdot \nabla_1)^2 W_1 \\
&+ \frac{4ik_c}{A(1 + A\eta)}[\overline{W}_2(\hat{n}_3 \cdot \nabla_1)\overline{W}_3 + \overline{W}_3(\hat{n}_2 \cdot \nabla_1)\overline{W}_2] \\
&- \frac{4ik_c\eta(1 - A^2\eta^2)}{A^2[A^2 + \eta^2(1 + A\eta)^2]}[\overline{W}_2(\hat{n}_2 \cdot \nabla_1)\overline{W}_3 + \overline{W}_3(\hat{n}_3 \cdot \nabla_1)\overline{W}_2] \quad (4.42)
\end{aligned}$$

Para obtener las ecuaciones de amplitud debemos mezclar los órdenes, lo cual es lógico si recordamos que la solución no es una función homogénea del parámetro  $\epsilon$ . Sumando la ecuación (4.34) multiplicada por  $\epsilon^2$  y (4.42) por  $\epsilon^3$  y tras reconstruir los operadores y la solución como en el caso de bandas:

$$\begin{aligned}
\partial_\tau + \epsilon^2\partial_T &= \partial_t & \nabla_0 + \epsilon\nabla_1 &= \nabla \\
\epsilon^2 B_2 &= B - B_c & \epsilon W_i + \epsilon^2 W_i^{(1)} &= A_i,
\end{aligned} \quad (4.43)$$

se tiene:

$$\boxed{
\begin{aligned}
\tau_0\partial_t A_1 &= \mu A_1 + v\overline{A}_2\overline{A}_3 - g|A_1|^2 A_1 - h(|A_2|^2 + |A_3|^2)A_1 \\
&+ i\beta_1[\overline{A}_2(\hat{n}_3 \cdot \nabla)\overline{A}_3 + \overline{A}_3(\hat{n}_2 \cdot \nabla)\overline{A}_2] \\
&+ i\beta_2[\overline{A}_3(\hat{n}_3 \cdot \nabla)\overline{A}_2 + \overline{A}_2(\hat{n}_2 \cdot \nabla)\overline{A}_3] + D^T(\hat{n}_1 \cdot \nabla)^2 A_1
\end{aligned} \quad (4.44)$$

(Mediante la rotación de los subíndices se obtienen las ecuaciones de evolución para las ampli-

tudes  $A_2$  y  $A_3$ ). Los coeficientes están dados por:

$$\begin{aligned}
\tau_0 &= \frac{1 - \eta^2}{1 + A\eta} & \mu &= \frac{B - B_c}{B_c} \\
D^T &= \frac{4}{B_c} & v &= 2 \frac{1 - A\eta}{A(1 + A\eta)} + 2 \frac{1}{A} \mu \\
\beta_1 &= \frac{4k_c}{AB_c} & \beta_2 &= \frac{-4k_c\eta(1 - A\eta)}{A^2[A^2 + \eta^2(1 + A\eta)^2]} \\
g &= \frac{1}{9} \frac{-8 + 38A\eta + 5A^2\eta^2 - 8A^3\eta^3}{A^3\eta(1 + A\eta)} & h &= \frac{-3 + 5A\eta + 7A^2\eta^2 - 3A^3\eta^3}{A^3\eta(1 + A\eta)}
\end{aligned} \tag{4.45}$$

Para que las amplitudes saturen a este orden es necesario que los coeficientes  $g$  y  $h$  sean positivos, ya que de lo contrario deberíamos llegar hasta órdenes más altos para conseguir su saturación, dando lugar a otro tipo de bifurcación. El coeficiente  $\mu$  es la distancia al umbral, mientras que  $v$ , coeficiente del término cuadrático que rompe la simetría  $A \rightarrow -A$ , está relacionado con la amplitud de los hexágonos que aparecen tras la inestabilidad. Los términos espaciales estabilizan patrones hexagonales con números de onda distintos al crítico y ligeramente distorsionados. Como era de esperar, el coeficiente del término lineal  $D^T$  es el mismo que el obtenido para bandas, lo cual era de esperar ya que se deriva del análisis lineal, que no diferencia entre las distintas estructuras de Turing.

La forma de estas ecuaciones de amplitud es general para cualquier sistema en el que aparece una solución hexagonal (por ejemplo en convección de Bénard–Marangoni la derivación de estas ecuaciones puede encontrarse en las referencias [26], [27]). Para el Bruselator A. De Wit [13] calculó los coeficientes espacialmente homogéneos. En esta sección se han completado los desarrollos con los términos espaciales: uno lineal y dos cuadráticos, que tienen interés en el marco de la dinámica de fase, problema que será objeto de estudio en el siguiente capítulo. Se podría pensar que los términos espaciales no lineales son despreciables frente a los otros, sin embargo, en el caso del Bruselator los coeficientes  $\beta_1$  y  $\beta_2$  son del mismo orden que los demás coeficientes y no pueden considerarse despreciables.

Para encontrar la forma normal de la bifurcación que corresponde a estas ecuaciones nos olvidamos por un momento de las modulaciones espaciales:

$$\tau_0 \partial_t A_1 = \mu A_1 + v \bar{A}_2 \bar{A}_3 - g |A_1|^2 A_1 - h (|A_2|^2 + |A_3|^2) A_1$$

Tomando como solución  $A_j = T_j e^{\phi_j}$  y separando la parte real de la imaginaria, se tiene:

**Fase:** Las fases cumplen:

$$T_1 \tau_0 \partial_t \phi_1 = -v T_2 T_3 \text{sen} \Phi$$

donde hemos definido la fase total  $\Phi = \phi_1 + \phi_2 + \phi_3$ , cuya ecuación de evolución es:

$$\tau_0 \partial_t \Phi = -v \frac{T_1^2 T_2^2 + T_1^2 T_3^2 + T_2^2 T_3^2}{T_1 T_2 T_3} \text{sen} \Phi$$

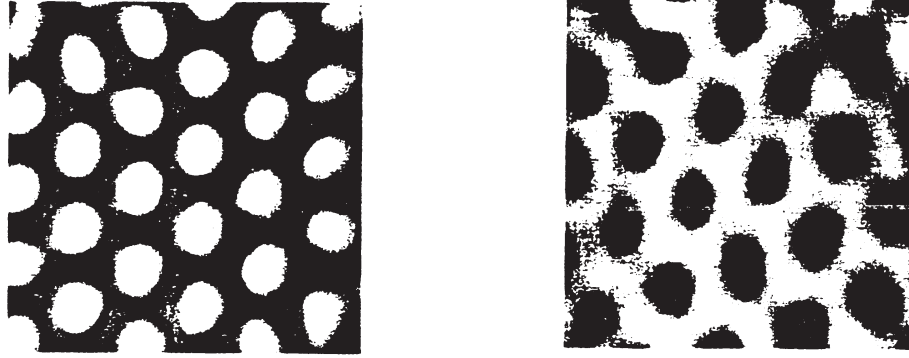


Figura 4.4: Hexágonos obtenidos en la reacción CIMA [28]. Las zonas oscuras corresponden a mínimos en la concentración de activador, mientras que las más claras son máximos. (a) Hexágonos de fase total cero,  $H_0$  (b) Hexágonos de fase total  $\pi$ ,  $H_\pi$ .

A diferencia del caso de bandas las fases no son constantes, sino que su evolución está ligada por esta ecuación. La traslación de dos de los vectores de onda es libre, pero para mantener la estructura hexagonal es necesario que el tercer vector siga el movimiento de los otros dos de acuerdo a esta ecuación. La fase total relaja monótonamente hacia uno de los dos puntos fijos:

- si  $v \geq 0 \implies \Phi = 0 \implies H_0$  estable (figura 4.4a).
- si  $v \leq 0 \implies \Phi = \pi \implies H_\pi$  estable (ver foto 4.4b).

#### Módulo:

$$\tau_0 \partial_t T_1 = \mu T_1 + |v| T_2 T_3 - g T_1^3 - h(T_2^2 + T_3^2) T_1$$

Sus soluciones son:

- $T_i = 0$ , es el estado estacionario y homogéneo.
- $T_1 = \sqrt{\mu/g}, T_2 = T_3 = 0$ , corresponde a las bandas.
- $T_1 = |v|/(h-g), T_2 = T_3 = \sqrt{\mu - gT_1^2/(g+h)}$  es un modo mixto siempre inestable en el Brusselator.
- $T_1 = T_2 = T_3 = H$  es la estructura hexagonal, aparece como solución de la ecuación:

$$\tau_0 \partial_t H = -H \left[ (g + 2h)H^2 - \mu - |v| \right] = -H(H - H_-)(H - H_+)$$

con dos soluciones estacionarias,  $H = H_\pm$ , cuya estabilidad estudiaremos en la sección siguiente. Esta ecuación es la forma normal de una bifurcación subcrítica, más difícil de tratar ya que el análisis se hace alrededor de amplitud nula, cuando en realidad la amplitud pasa de cero a un valor finito, no forzosamente infinitesimal (ver figura 4.1).

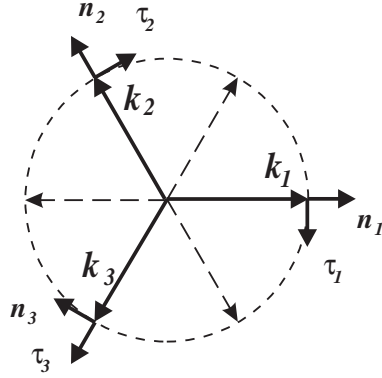


Figura 4.5: Representación de los vectores unitarios en las direcciones de los vectores de onda  $\hat{n}_i$  y los ortogonales  $\hat{\tau}_j$ .

En lo que sigue conviene expresar las derivadas espaciales en función de vectores correspondientes al modo sobre el que actúan. Para ello introducimos una base de vectores ortonormales en cada dirección  $\hat{n}_i$  (ver Figura 4.5):

$$\hat{n}_2 = -\frac{1}{2}\hat{n}_3 + \frac{\sqrt{3}}{2}\hat{\tau}_3 \quad \hat{n}_3 = -\frac{1}{2}\hat{n}_2 - \frac{\sqrt{3}}{2}\hat{\tau}_2 \quad (4.46)$$

de manera que sustituyendo ésto en la ecuación de amplitud, queda:

$$\begin{aligned} \partial_t A_1 &= \mu A_1 + v \bar{A}_2 \bar{A}_3 - g |A_1|^2 A_1 - h (|A_2|^2 + |A_3|^2) A_1 \\ &+ i \alpha_1 [\bar{A}_2 \partial_{x_3} \bar{A}_3 + \bar{A}_3 \partial_{x_2} \bar{A}_2] \\ &+ i \alpha_2 [\bar{A}_2 \partial_{\tau_3} \bar{A}_3 - \bar{A}_3 \partial_{\tau_2} \bar{A}_2] + \partial_{x_1}^2 A_1 \end{aligned} \quad (4.47)$$

donde utilizamos la notación estándar para las derivadas direccionales:  $(\hat{n}_i \cdot \nabla) \equiv \partial_{x_i}$  y hemos renormalizado el tiempo para eliminar  $\tau_0$  y el espacio para eliminar  $D^T$ . Sólo se modifican los coeficientes de los términos espaciales, que ahora son:

$$\alpha_1 = \frac{1}{\sqrt{D^T}} (\beta_1 - \frac{1}{2}\beta_2) \quad \alpha_2 = \frac{1}{\sqrt{D^T}} \frac{\sqrt{3}}{2} \beta_2 \quad (4.48)$$

Se han representado en la figura 4.6, donde puede verse que  $\alpha_1$  es siempre positivo, mientras que  $\alpha_2$  puede cambiar de signo (cuando  $A\eta = 1$ ). Cuando  $\alpha_2 = 0$ , se tiene también que  $v_0 = 0$  y por tanto en tal caso  $v \sim \mu$ . Además hay que hacer notar que  $\alpha_1 \gg |\alpha_2|$ .

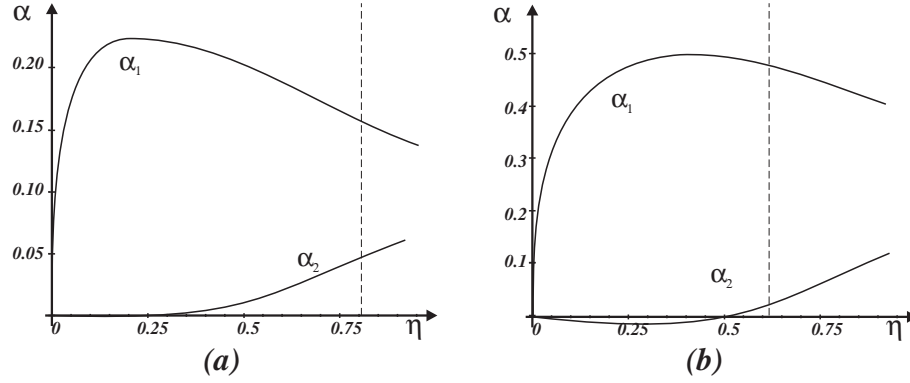


Figura 4.6: Representación de los coeficientes  $\alpha_1$  y  $\alpha_2$  para (a)  $A = 4.5$ , (b)  $A = 2.0$ . La línea discontinua indica el rango de validez de estos coeficientes, ya que a la derecha de ésta se produce antes la bifurcación de Hopf (véase (3.2)).

## 4.2 Estabilidad de las soluciones

Para estudiar la competición entre bandas y hexágonos se parte de las ecuaciones de amplitud<sup>1</sup>:

$$\begin{aligned} \partial_T A_1 &= \mu A_1 + v \bar{A}_2 \bar{A}_3 - g |A_1|^2 A_1 - h (|A_2|^2 + |A_3|^2) A_1 \\ &+ i \alpha_1 [\bar{A}_2 \partial_{x_3} \bar{A}_3 + \bar{A}_3 \partial_{x_2} \bar{A}_2] \\ &+ i \alpha_2 [\bar{A}_2 \partial_{\tau_3} \bar{A}_3 - \bar{A}_3 \partial_{\tau_2} \bar{A}_2] + \partial_{x_1}^2 A_1 \end{aligned} \quad (4.49)$$

que son válidas para ambas estructuras con  $A_2 = A_3 = 0$  para el caso de bandas; para un patrón hexagonal los otros dos modos cumplen ecuaciones análogas a ésta que resultan de la permutación cíclica de los índices (invariancia por rotación  $2\pi/3$ ).

En trabajos anteriores [13] se ha estudiado la estabilidad de las estructuras con número de onda igual a  $k_c$ , obteniendo las ecuaciones de amplitud sin los términos espaciales y estudiando la estabilidad relativa de estas soluciones. A continuación se realiza un análisis más general, teniendo en cuenta que los términos espaciales permiten la estabilidad para números de onda ligeramente distintos del crítico.

### 4.2.1 Solución de bandas

Tomemos como solución una estructura de bandas con un número de onda que difiere en  $q$  del crítico:  $A = B e^{iqr}$ . Al sustituir esta expresión en la ecuación (4.49) se obtiene que  $B = \sqrt{(\mu - q^2)/g}$ . Para estudiar la estabilidad relativa de las bandas frente a los hexágonos, tomamos perturbaciones que favorezcan la aparición de éstos:

$$A_1 = B(1 + r_1) e^{iqx_1} \quad A_2 = r_2 e^{iqx_2} \quad A_3 = r_3 e^{iqx_3} \quad (4.50)$$

<sup>1</sup>Las modulaciones en la dirección de  $\hat{y}$ , que para las bandas aparecían a través del término  $\partial_y^2$ , quedan incluidas en  $\partial_{x_i}^2$ , puesto que en esta sección se trata de estudiar la estabilidad relativa de las bandas frente a perturbaciones hexagonales. Será diferente cuando se analicen en el capítulo siguiente las inestabilidades de fase que sufre un patrón de bandas estable frente a perturbaciones de amplitud, caso en el que hay que partir de la ecuación NWS (4.28).

donde  $x_1, x_2, x_3$  indican las direcciones de los vectores de onda correspondientes a los hexágonos, que cumplen  $\hat{x}_1 + \hat{x}_2 + \hat{x}_3 = 0$ . En este caso no se añade una fase en la perturbación, ya que tan solo conduce a la invariancia traslacional en la dirección del vector de onda, tal como vimos en (4.23). Para no complicar los desarrollos vamos a considerar los términos espaciales nulos en lo que sigue:  $\alpha_1 = \alpha_2 = 0$ .

Sustituyendo esta solución en las ecuaciones de amplitud (4.49) y quedándonos únicamente con los términos lineales se tiene:

$$\begin{pmatrix} \dot{r}_1 \\ \dot{r}_2 \\ \dot{r}_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -2(\mu - q^2) & 0 & 0 \\ 0 & \frac{g-h}{g}(\mu - q^2) & vB \\ 0 & vB & \frac{g-h}{g}(\mu - q^2) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} r_1 \\ r_2 \\ r_3 \end{pmatrix} \quad (4.51)$$

Además, suponemos un crecimiento exponencial de las perturbaciones:  $r_i = a_i e^{\lambda t}$ , de forma que las bandas permanecen estables cuando los autovalores son negativos:

$$\lambda_1 = -2(\mu - q^2) < 0 \quad (4.52)$$

$$\lambda_{\pm} = (g-h)B^2 \pm |v|B < 0 \quad (4.53)$$

Se ve claramente que si  $g-h > 0$  las bandas son siempre inestables ( $A\eta < 0.564$ ). Nos centraremos en el caso más interesante en que  $g-h < 0$ , para el cual  $\lambda_- < 0$ . La condición  $\lambda_+ < 0$  determina la curva de estabilidad de amplitud de las bandas frente a los hexágonos, dada por:

$$\mu - q^2 > \frac{gv^2}{(g-h)^2} \implies v_1^2 \mu^2 + \left(2v_0v_1 - \frac{(g-h)^2}{g}\right) \mu + \frac{(g-h)^2}{g} q^2 + v_0^2 < 0 \quad (4.54)$$

cuyas raíces son:

$$\mu_{B\pm} = \frac{-\left(2v_0v_1 - \frac{(g-h)^2}{g}\right) \pm \sqrt{\left(2v_0v_1 - \frac{(g-h)^2}{g}\right)^2 - 4v_1^2 \left(\frac{(g-h)^2}{g} q^2 + v_0^2\right)}}{2v_1^2} \quad (4.55)$$

que son reales si:

$$\frac{(g-h)^2}{g} > 4v_1(v_0 + v_1q^2) \quad (4.56)$$

El rango de  $q$  en el que esto se cumple viene dado por:

$$q_{\pm} = \pm \sqrt{\frac{\alpha}{v_1}}, \quad \alpha = \frac{(g-h)^2}{4gv_1} - v_0 \quad (4.57)$$

Se distinguen dos situaciones:

- $\alpha < 0$  ( $0.564 < A\eta < 0.879$ ): las raíces son complejas conjugadas y por tanto las bandas son inestables para cualquier valor del parámetro de control (figura 4.11a).

- $\alpha > 0$  ( $0.879 < A\eta < 2.418$ ): existe un rango  $\mu_{B-} \leq \mu \leq \mu_{B+}$  en el que las bandas son estables frente a perturbaciones homogéneas. Este caso se ha representado en las figuras 4.12a y 4.13a. Estas curvas son simétricas debido a su invariancia  $q \rightarrow -q$ . El rango de estabilidad está limitado por las raíces (4.57).

Por otro lado, si consideramos los términos espaciales, el desarrollo es análogo, solo que sustituyendo  $v_0 \rightarrow v_0 + 2\alpha_1 q$ . Esta corrección rompe la simetría  $q \rightarrow -q$ , de manera que ahora las curvas se inclinan hacia la izquierda (por ser  $\alpha_1 > 0$  en el caso del Bruselator). Cuando  $0.879 < A\eta < 2.918$  tanto los umbrales como el número de onda crítico de la inestabilidad cambian (figuras 4.12b y 4.13b). En el caso  $A\eta < 0.879$  (figura 4.11b), la introducción de los nuevos términos conlleva la aparición de una región de estabilidad de bandas con un número de onda menor que  $k_c$  delimitado por las raíces de la ecuación (4.56) modificada, que son:

$$q_{\pm} = \frac{-2\alpha_1 \pm \sqrt{4v_1^2 \left( v_0 - \frac{(g-h)^2}{4gv_1} \right)}}{2v_1^2} \quad (4.58)$$

### 4.2.2 Solución hexagonal

La solución hexagonal con un número de onda  $k = k_c + q$ , viene dada por las ecuaciones:

$$A_1 = H e^{iqx_1}, \quad A_2 = H e^{iqx_2}, \quad A_3 = H e^{iqx_3} \quad (4.59)$$

donde:

$$H = H_{\pm} = \frac{v \pm \sqrt{v^2 + 4(g+2h)(\mu - q^2)}}{2(g+2h)} \quad (4.60)$$

que satisface la ecuación:

$$\mu - q^2 + vH - (g+2h)H^2 = 0 \quad (4.61)$$

(recordemos que se han tomado  $\alpha_1 = \alpha_2 = 0$  para simplificar las expresiones). Para ver en qué condiciones es estable, introducimos perturbaciones homogéneas ( $\partial_x r_i = \partial_x \phi_i = 0$ ):

$$A_1 = H(1 + r_1 + i\phi_1)e^{iqx_1}, \quad A_2 = H(1 + r_2 + i\phi_2)e^{iqx_2}, \quad A_3 = H(1 + r_3 + i\phi_3)e^{iqx_3} \quad (4.62)$$

Sustituyendo estas expresiones en la ecuación (4.49) y separando la parte real de la imaginaria, el sistema de ecuaciones lineales para las perturbaciones resulta:

$$\begin{pmatrix} \dot{r}_1 \\ \dot{r}_2 \\ \dot{r}_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} a & b & b \\ b & a & b \\ b & b & a \end{pmatrix} \begin{pmatrix} r_1 \\ r_2 \\ r_3 \end{pmatrix}, \quad \begin{aligned} a &= \mu - q^2 - (3g + 2h)H^2 \\ b &= vH - 2hH^2 \end{aligned}$$

$$\begin{pmatrix} \dot{\phi}_1 \\ \dot{\phi}_2 \\ \dot{\phi}_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} c & d & d \\ d & c & d \\ d & d & c \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \phi_1 \\ \phi_2 \\ \phi_3 \end{pmatrix}, \quad \begin{aligned} c &= \mu - q^2 - (g + 2h)H^2 \\ d &= -vH \end{aligned}$$

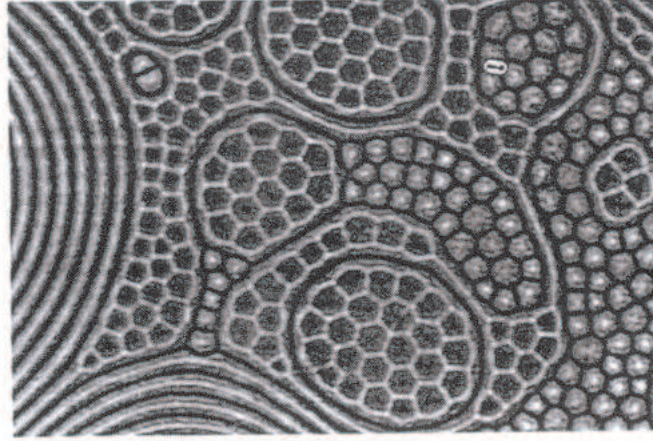


Figura 4.7: Hexágonos reentrantes up (ascendentes por el centro) y down (el fluido desciende por el centro) en convección Rayleigh-Bénard cerca del punto crítico para  $\epsilon = 3.4$  y  $P = 4.5$  [29].

De nuevo suponemos que:  $r_i = a_i e^{\sigma t}$ ,  $\phi_i = \psi_i e^{\sigma t}$ , quedando un problema simple de autovalores, dado por:

$$\sigma_1 = a + 2b = vH - 2(g + 2h)H^2 \quad (4.63)$$

$$\sigma_2 = \sigma_3 = a - b = -2vH - 2(g - h)H^2 \quad (4.64)$$

$$\sigma_f = c + 2d = -3vH \quad (4.65)$$

$$\sigma_{f2} = \sigma_{f3} = c - d = 0 \quad (4.66)$$

Dos de los autovalores de fase son cero, lo que significa físicamente que existen dos direcciones en las que se rompe la simetría traslacional a través de dos modos marginales. El tercer modo de fase, que corresponde a la fase total, está amortiguado y su dinámica está esclavizada a la de los otros dos. El signo de los autovalores de las amplitudes pueden cambiar dependiendo del valor de los parámetros. Los hexágonos serán estables mientras  $\sigma_1$  y  $\sigma_2$  sean negativos. Si nos fijamos en la condición (4.65) advertimos que:

- si  $v > 0 \implies H = H_+ > 0$ , que son los hexágonos de fase total cero,  $H_0$ . Los máximos en la concentración de activador están en el centro de los hexágonos, siendo análogos a los hexágonos up de convección, en los que el fluido asciende por el centro (ver figura 4.7).
- si  $v < 0 \implies H = H_- e^{i\pi/3} < 0$ , de fase total  $\pi$ ,  $H_\pi$ . Son los mínimos de activador los que ocupan la parte central del hexágono (equivalentes a los hexágonos down, en los que el fluido desciende por el centro).

Ambos casos se pueden tratar conjuntamente tomando como amplitud hexagonal:

$$H = \frac{|v| + \sqrt{v^2 + 4(g + 2h)(\mu - q^2)}}{2(g + 2h)} \quad (4.67)$$



que es solución de:

$$\mu - q^2 + |v|H - (g + 2h)H^2 = 0 \quad (4.68)$$

Las condiciones (4.63) y (4.64) quedan:

$$u = (g - h)H^2 + |v|H > 0 \quad (4.69)$$

$$w = 2(g + 2h)H^2 - |v|H > 0 \quad (4.70)$$

Podemos obtener de forma explícita el rango de estabilidad de los hexágonos. Por un lado, la primera condición de estabilidad marginal equivale a:

$$\sigma_1 = 0 \implies \mu_A - q^2 = \frac{-1}{4} \frac{v^2}{(g + 2h)} \quad (4.71)$$

Sustituyendo  $v = v_0 + v_1\mu$ , las raíces siempre reales de esta ecuación, son:

$$\mu_A = \frac{-2(v_0v_1 + 2(g + 2h)) \pm \sqrt{4(v_0v_1 + 2(g + 2h))^2 - 4v_1^2(v_0^2 - 4(g + 2h)q^2)}}{2v_1^2} \quad (4.72)$$

La raíz (+) corresponde a la curva marginal modificada por los términos espaciales (el mínimo se encuentra ligeramente por debajo de  $\mu = 0$ , como corresponde a una bifurcación subcrítica), que conserva la simetría  $q \rightarrow -q$ . Por debajo de este valor de  $\mu$ , los autovalores  $\sigma_1$  y  $\sigma_2$  son complejos con su parte real positiva, es decir, los hexágonos son inestables.

Por otro lado, cuando  $g - h > 0$  siempre se satisface que  $\sigma_2 < 0$ . En caso contrario se cumple cuando:

$$\mu - q^2 < \frac{(2g + h)}{(g - h)^2} v^2 \implies v_1^2 \mu^2 + \left(2v_0v_1 - \frac{(g - h)^2}{2g + h}\right) \mu + v_0^2 + \frac{(g - h)^2}{2g + h} q^2 > 0 \quad (4.73)$$

Las raíces de esta ecuación nos dan los límites del rango en el que los hexágonos son estables:

$$\mu_{H\pm} = \frac{-\left(2v_0v_1 - \frac{(g-h)^2}{(2g+h)}\right) \pm \sqrt{\left(2v_0v_1 - \frac{(g-h)^2}{(2g+h)}\right)^2 - 4v_1^2\left(v_0^2 + \frac{(g-h)^2}{2g+h}q^2\right)}}{2v_1^2} \quad (4.74)$$

que son reales a condición de que:

$$\frac{(g - h)^2}{2g + h} > 4v_1(v_0 + v_1q^2) \quad (4.75)$$

Esto se cumple entre los valores:

$$q_{\pm} = \sqrt{\frac{\beta}{v_1}}, \quad \beta = \frac{(g - h)^2}{4v_1(2g + h)} - v_0 \quad (4.76)$$

Surgen dos situaciones diferentes:

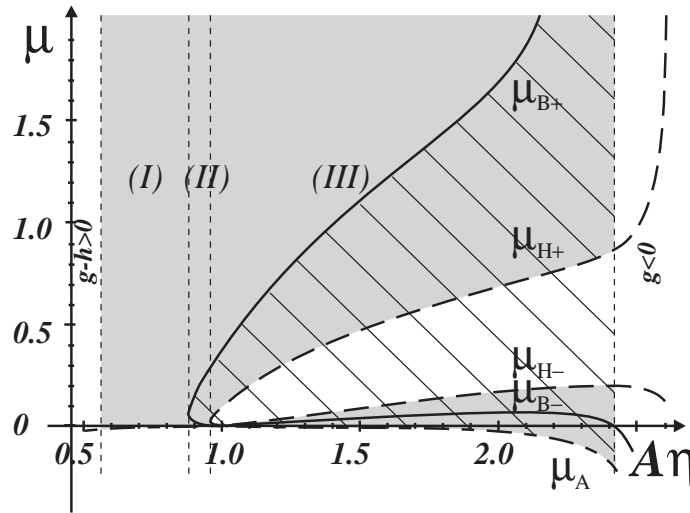


Figura 4.8: Umbrales de estabilidad para las estructuras de Turing tomando  $q = 0$ , en función de  $A\eta$ . Se distinguen tres regiones diferentes: (I) los hexágonos son siempre estables por encima de  $\mu_A$  (región sombreada); (II) los hexágonos no se desestabilizan nunca y las bandas son estables entre las curvas  $\mu_{B\pm}$  (zona rayada); (III) existen dos regiones de estabilidad separadas para la solución hexagonal, estructura que coexiste con las bandas en dos rangos distintos del parámetro de control  $\mu_{B-} < \mu < \mu_{H-}$  y  $\mu_{H+} < \mu < \mu_{B+}$  (ver sección 4.3).

- si  $\beta < 0$  ( $0.564 < A\eta < 0.953$ ) no existen raíces reales con  $q = 0$  y por tanto los hexágonos con  $k = k_c$  son siempre estables por encima de la curva marginal (figura 4.11a).
- si  $\beta < 0$  ( $0.953 < A\eta < 2.418$ ) los hexágonos son estables en dos regiones separadas: en  $\mu_A < \mu < \mu_{H-}$  y en  $\mu_{H+} < \mu$  (figuras 4.12a y 4.13a).

Si se tienen en cuenta los términos espaciales no lineales, el desarrollo es similar, cambiando  $v_0 \rightarrow v_0 + 2\alpha_1 q$ , de manera que, tal como ocurría en las bandas, las curvas dejan de ser simétricas, y se modifican los umbrales y los números de onda críticos. En las mismas figuras pueden verse las curvas en las dos situaciones diferenciadas anteriormente.

### 4.3 Diagramas de estabilidad

Unificando las condiciones de estabilidad de hexágonos y bandas del apartado anterior podemos distinguir cuatro situaciones para  $q = 0$ , representadas en la figura 4.9:

**Caso 1:**  $\frac{(g-h)^2}{4g} < v_1 v_0$ .

Los hexágonos son siempre estables en este caso, ya que la condición (4.73) se cumple siempre; por el contrario la condición para la estabilidad de bandas (4.54) no se cumple nunca, con lo que las bandas son siempre inestables. En el caso del Bruselator los hexágonos que aparecen son los  $H_0$ , por ser  $v > 0$  por encima del punto de bifurcación.

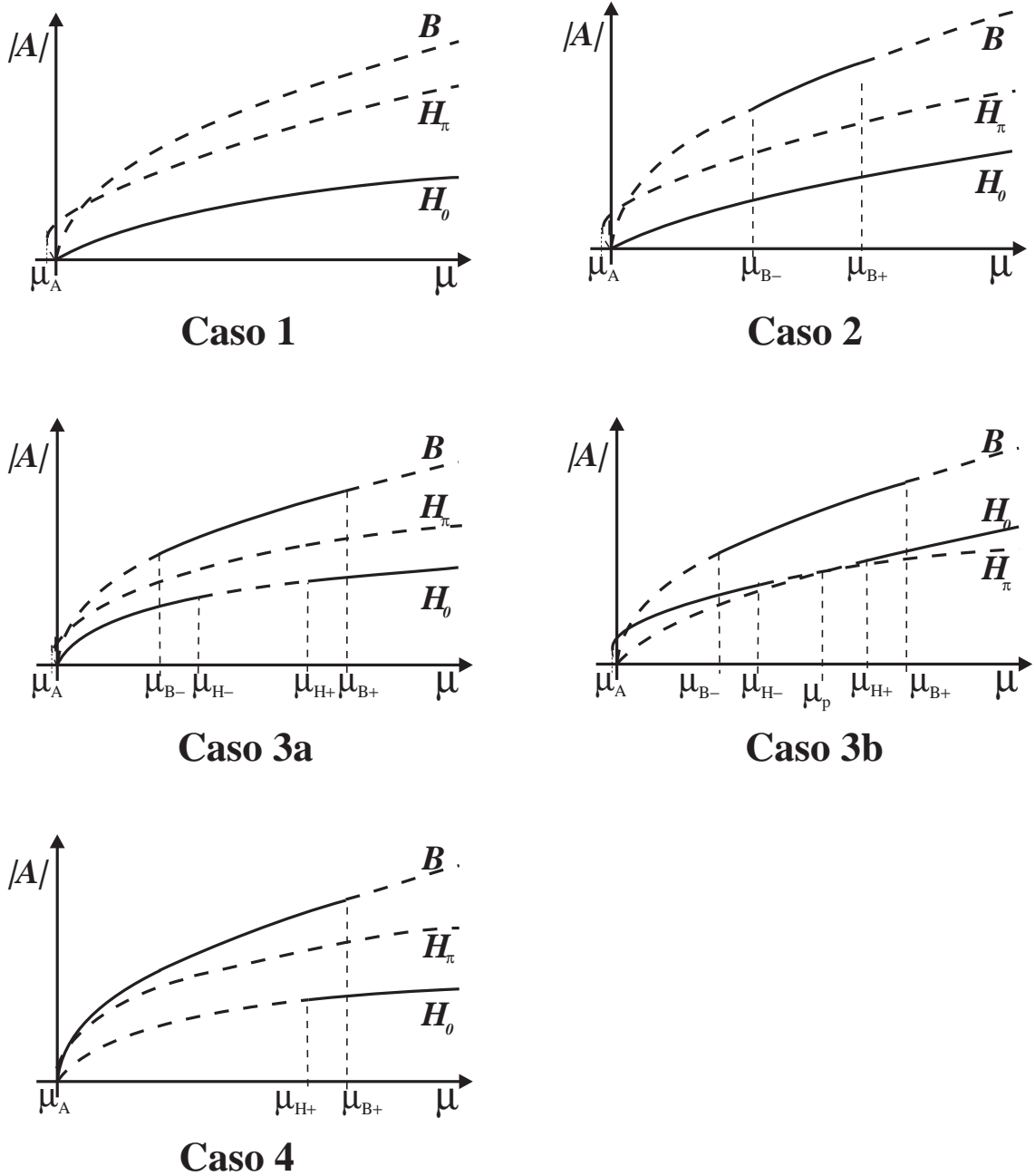


Figura 4.9: Diferentes casos del Brusselator. En línea continua se representa la amplitud de la solución estable.

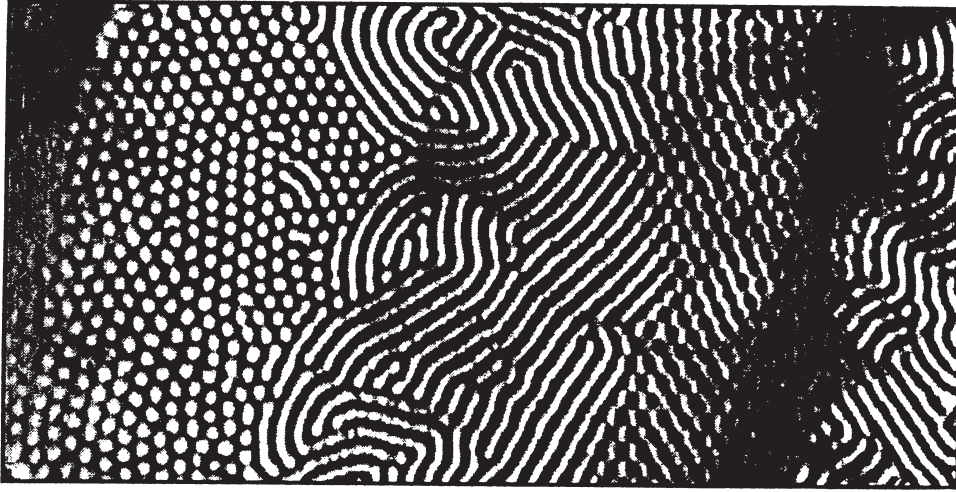


Figura 4.10: Patrones de Turing transitorios obtenidos en un reactor abierto con alimentación en forma de rampa [30], es decir, que el parámetro  $\mu$  crece de derecha a izquierda. Las zonas blancas corresponden a máximos en la concentración de activador ( $I^-$ ). A la derecha de la foto aparecen el estado homogéneo, seguido de los hexágonos  $H_\pi$ . En la región central se tienen las bandas y a la izquierda se tienen los reentrantes  $H_0$ . Corresponde al caso 3b.

Esto ocurre en la región  $A\eta \in (0.5642 - 0.8793)$ . Además, no hay que olvidar que ha de cumplirse de forma adicional la condición (3.17) para que no se produzca la inestabilidad oscilatoria.

Los diagramas de bifurcación en el espacio  $(q, \mu)$  se han recogido en la figura 4.11.

**Caso 2:**  $\frac{(g-h)^2}{4(2g+h)} < v_1 v_0 < \frac{(g-h)^2}{4g}$ .

Al igual que en el caso anterior, los hexágonos son siempre estables, ya que (4.73) no tiene raíces reales. Ahora (4.54) tiene dos raíces reales y las bandas coexisten con los hexágonos en la región definida por:  $\mu_{B-} < \mu < \mu_{B+}$ . (figura 4.12).

Esto ocurre cuando  $A\eta \in (0.8793 - 0.9583)$ .

**Caso 3:**  $v_1 v_0 < \frac{(g-h)^2}{4(2g+h)}$ .

En este caso tanto (4.54) como (4.73) tienen raíces reales, de modo que las bandas son estables si  $\mu_{B-} < \mu < \mu_{B+}$ , mientras que los hexágonos son inestables en la región dada por  $\mu_{H-} < \mu < \mu_{H+}$ . Existen dos regiones separadas de estabilidad, y aparecen los llamados hexágonos reentrantes. Además, puesto que:

$$\mu_B = \frac{gv^2}{(g-h)^2} < \mu_H = \frac{(2g+h)v^2}{(g-h)^2} \quad (4.77)$$

se tiene que  $\mu_{B-} < \mu_{H-} < \mu_{H+} < \mu_{B+}$ , hecho que produce la coexistencia de ambas estructuras y los fenómenos de histéresis en estas regiones. (figura 4.13)

Puesto que ahora el producto  $v_0v_1$  puede ser positivo o negativo (esto no podía ocurrir en los casos anteriores), cabe la posibilidad de que  $v$  cambie de signo al variar el parámetro de control  $\mu$ , produciéndose un cambio en la fase total de los hexágonos (en  $\mu_p$ ). Se pueden distinguir dos casos:

(a) si  $v_0v_1 > 0$ , no hay cambio en la fase total de los hexágonos reentrantes, que se da en la región del espacio de parámetros  $A\eta \in (0.9583 - 1)$ .

(b) si  $v_0v_1 < 0$ , existe un valor del parámetro de control ( $\mu_p$ ) para el que  $v$  cambia de signo. Puesto que además se cumple que  $\mu_{H-} < \mu_p < \mu_{H+}$ , los hexágonos reentrantes tiene fase contraria a la de los primarios. Esto sucede para  $A\eta \in (1 - 2.418)$ . Este es el caso de la fotografía mostrada en la figura 4.10, que ha sido obtenida inyectando los reactivos desde planos no paralelos entre si, es decir, en forma de rampa. De esta forma el parámetro de control –concentración de uno de los reactivos–, varía gradualmente en un plano con  $A = cte$ . La banda oscura de la derecha corresponde al estado estacionario y homogéneo, tras el cual aparecen los hexágonos  $H_\pi$ . En la región central se tienen las bandas y en la izquierda los hexágonos reentrantes  $H_0$ .

**Caso 4: caso particular en que  $v_0 = 0$  (y  $\alpha_2 = 0$ ).**

Se tiene que  $\mu_{H-} = \mu_p = \mu_{B-} = 0$ . Los hexágonos son, al igual que las bandas, supercríticos.

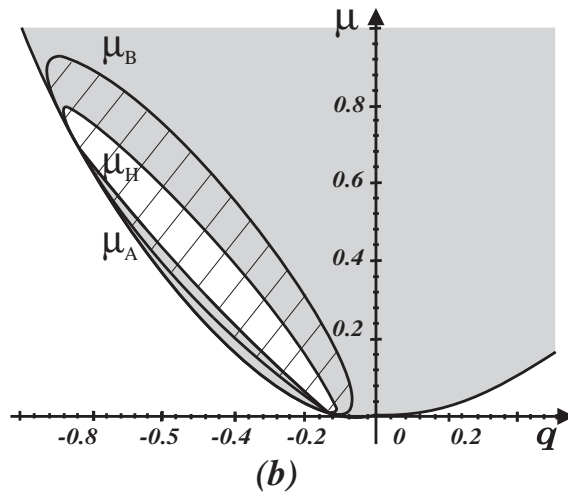
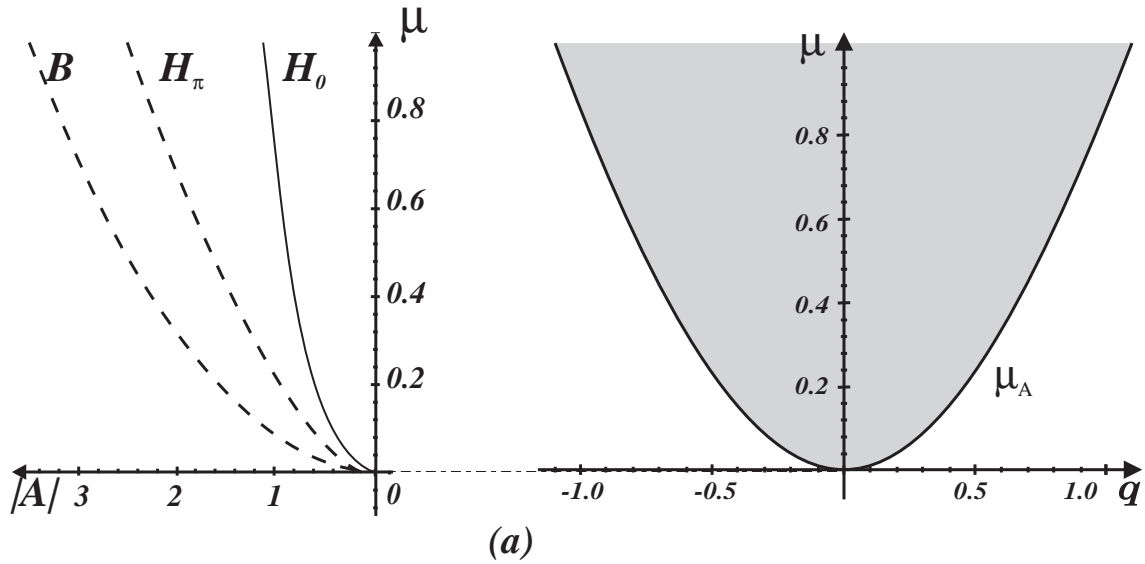


Figura 4.11: Caso 1. Diagramas de inestabilidad de bandas ( $\mu_{B\pm}$ ) y de hexágonos ( $\mu_{H\pm}$ ) para  $A\eta = 0.8$  (a) suponiendo despreciable la contribución de  $\alpha_1$  y  $\alpha_2$ , (b) teniendo en cuenta los coeficientes  $\alpha_1 = 0.22$ ,  $\alpha_2 = -2.4 \cdot 10^{-4}$ . Estos producen la estabilidad de bandas en una región con  $k < k_c$ .

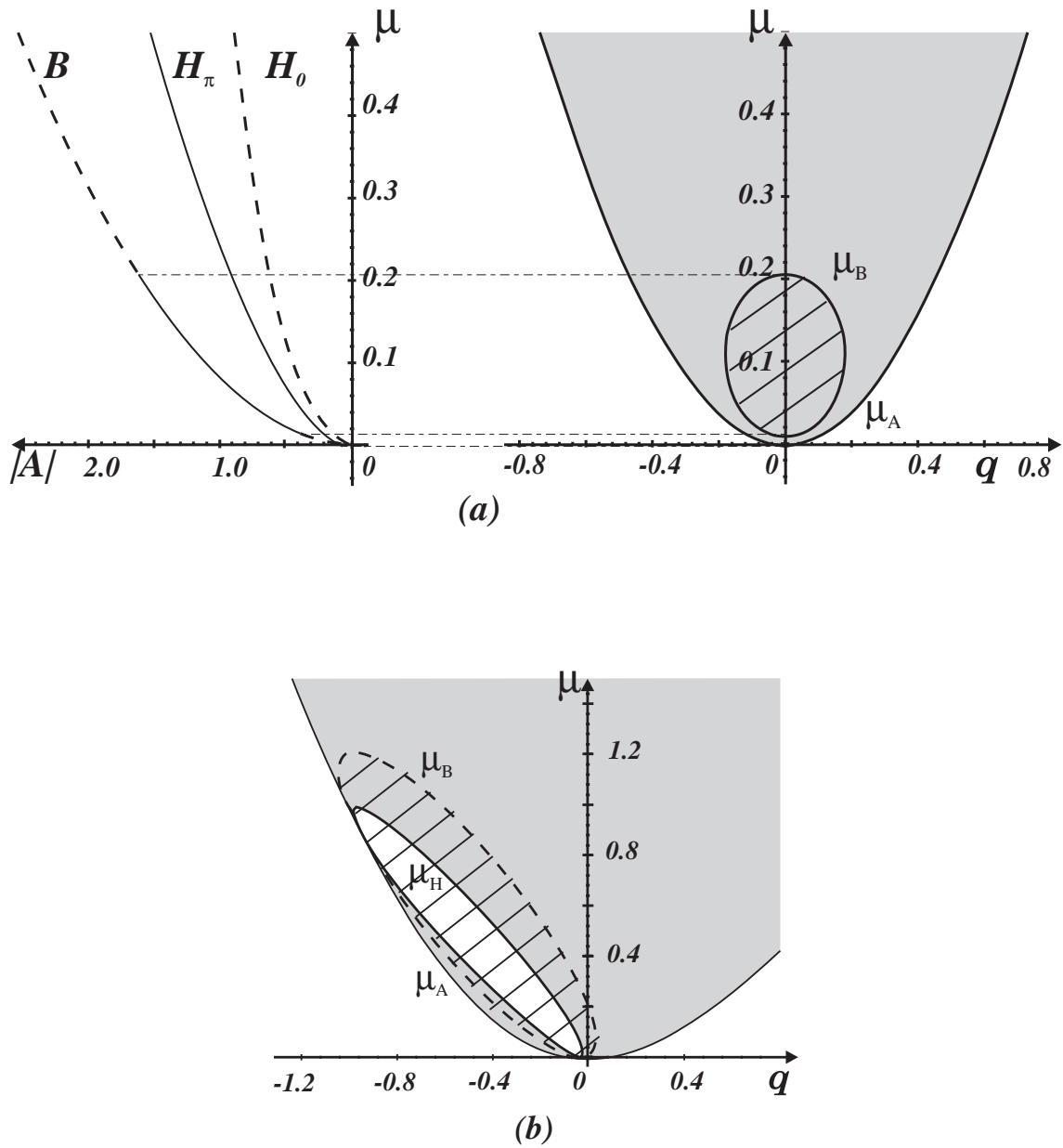
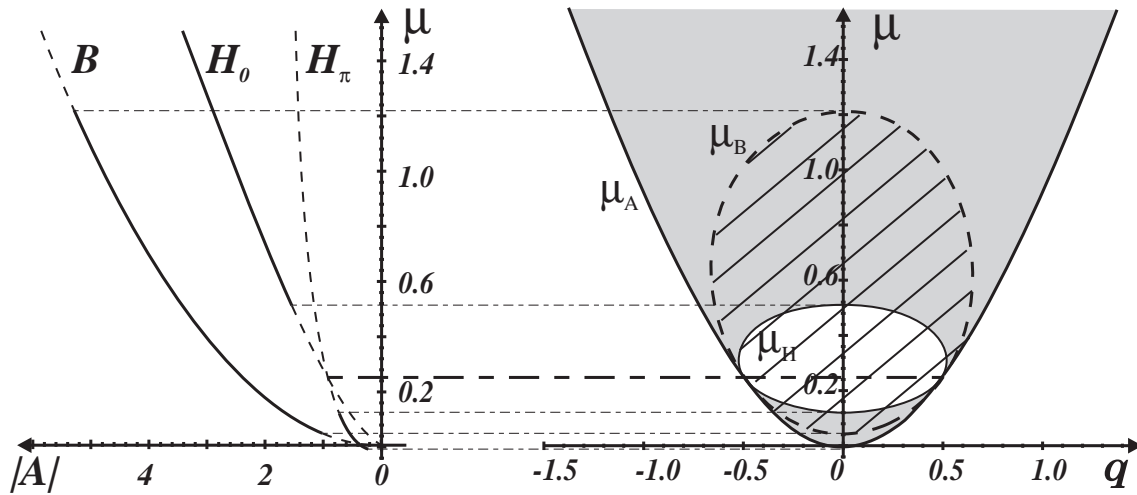
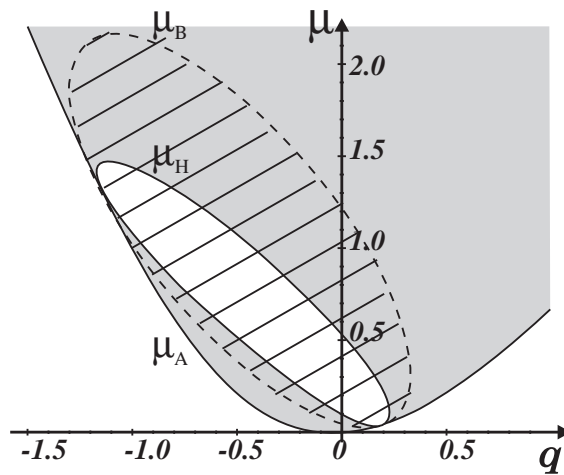


Figura 4.12: Caso 2. Diagramas de estabilidad de amplitud para  $A\eta = 0.92$  (a) para  $\alpha_1 = \alpha_2 = 0$ , (b) teniendo en cuenta que  $\alpha_1 = 0.22$  y  $\alpha_2 = -1.3 \cdot 10^{-4}$ . Al incluir estos términos en el análisis, se producen modificaciones importantes en los umbrales de estabilidad.



(a)



(b)

Figura 4.13: Caso 3b. Diagramas  $A\eta = 1.59$  (a)  $\alpha_1 = \alpha_2 = 0$ , (b)  $\alpha_1 = 0.21$ ,  $\alpha_2 = -2.7 \cdot 10^{-3}$ . los términos espaciales no lineales dan lugar a importantes variaciones en los umbrales y en los números de onda críticos (ahora el número de onda crítico es mayor que el obtenido del análisis lineal).



# Capítulo 5

## Ecuación de la fase

### 5.1 Derivación de las ecuaciones

En el capítulo 4 se ha estudiado la estabilidad de una estructura de bandas o de hexágonos frente a perturbaciones homogéneas o de amplitud. Sin embargo, los patrones a menudo sólo son regulares a pequeña escala, mientras que a escalas espaciales mayores presentan defectos, dislocaciones, fronteras de grano, etc. Las escalas temporales de la dinámica de fase son mucho más lentas que las que conducen a la saturación de las amplitudes (pues son modos marginales con  $\sigma = 0$ ). Derivamos aquí la ecuación lineal de difusión para la fase mediante un análisis perturbativo en torno a las soluciones que halladas en el capítulo anterior, introduciendo perturbaciones inhomogéneas de amplitud y fase.

#### 5.1.1 Caso de bandas: inestabilidades de Eckhaus y zig-zag

Partimos de la ecuación de amplitud obtenida en el capítulo anterior:

$$\partial_t A = \mu A - g|A|^2 A + \left( \partial_X + \frac{1}{2ik_c} \partial_Y^2 \right)^2 A \quad (5.1)$$

donde se ha renormalizado el tiempo y el espacio para eliminar  $\tau_0$  y  $D^T$ .

La solución correspondiente a una estructura de bandas con un número de onda que difiere en  $q$  del crítico es:  $A = B e^{iqx}$ , con  $B = \sqrt{(\mu - q^2)/g}$ . Perturbando esta solución con variaciones dependientes del espacio:

$$A_1 = (B + r) e^{i\phi/B} e^{iqx} \simeq B(1 + r + i\phi) e^{iqx} \quad (5.2)$$

y separando la parte real de la imaginaria en la ecuación de amplitud, se tiene:

$$\partial_t r = -2(\mu - q^2)r - 2q\partial_x \phi + \partial_x^2 r + \frac{q}{k_c} \partial_y^2 r + \frac{1}{k_c} \partial_x \partial_y^2 \phi - \frac{1}{4k_c} \partial_y^4 r \quad (5.3)$$

$$\partial_t \phi = 2q\partial_x r + \partial_x^2 \phi - \frac{1}{k_c} \partial_x \partial_y^2 r - \frac{1}{4k_c} \partial_y^4 \phi \quad (5.4)$$

Puesto que los tiempos de relajación de las perturbaciones de amplitud son mucho más cortos que los correspondientes a la fase (son modos marginales o amortiguados), se puede aplicar la aproximación adiabática  $\partial_t r = 0$ , de manera que, una vez que las amplitudes saturan, su dinámica está esclavizada por la de la fase. Por otro lado, puede suponerse  $\partial_x^2 r \sim 0$  (nos daría términos del orden de  $\partial_x^3 \phi$ ) y lo mismo con todas las derivadas de  $r$  de ese mismo orden ( $\partial_x \partial_y^4 r \sim 0$ ,  $\partial_x^2 \partial_y^2 \phi \sim 0$ ). De la ecuación para la parte real (5.3) se tiene:

$$r = -\frac{q}{\mu - q^2} \partial_x \phi$$

que ser substituida en la ecuación de la parte imaginaria (5.4) nos da:

$$\partial_t \phi = D_{\parallel} \partial_x^2 \phi + D_{-} \partial_y^2 \phi - K \partial_y^4 \phi$$

Esta es una ecuación de difusión para la fase, donde los coeficientes vienen dados por:

$$D_{\parallel} = \left( \frac{\mu - 3q^2}{\mu - q^2} \right), \quad D_{-} = \frac{q}{k_c}, \quad K = \frac{1}{4k_c}$$

El último término puede considerarse despreciable frente al segundo ( $\partial_y^4 \phi \ll \partial_y^2 \phi$ ), de modo que la ecuación lineal de la fase queda:

$$\boxed{\partial_t \phi = D_{\parallel} \partial_x^2 \phi + D_{-} \partial_y^2 \phi} \quad (5.5)$$

Esta ecuación ya fue obtenida para los rollos en convección de R-B.

Para estudiar la estabilidad lineal se supone  $\phi = e^{i\mathbf{Q}\mathbf{r} + \lambda t}$ , y el problema simple de autovalores es:

$$\lambda \phi = -(D_{\parallel} Q_x^2 + D_{-} Q_y^2) \phi \quad (5.6)$$

El sistema de bandas, por tanto es inestable cuando alguno de los coeficientes es negativo:

\*  $Q_y = 0$ ,  $D_{\parallel} < 0 \implies$  *Inestabilidad de Eckhaus*, que tiene lugar para patrones con número de onda suficientemente lejanos del crítico. En este caso aparecen o desaparecen las bandas necesarias para recuperar el número de onda crítico (ver esquema 5.1a).

\*  $Q_x = 0$ ,  $D_{-} < 0 \implies$  *Inestabilidad zig-zag*, que se da cuando la longitud de onda es mayor que su valor crítico; en este caso se produce una torsión en las bandas para aumentar el número de onda efectivo (figura 5.1b).

Estos coeficientes se pueden obtener experimentalmente o mediante simulaciones numéricas sin más que tomar como estado inicial una estructura de bandas con el número de onda adecuado y medir el tiempo de relajación del sistema. En la gráficas 5.3, 5.4, 5.5 y 5.6 se muestran los diagramas de estabilidad de las bandas, en la que se han incluido tanto las inestabilidades de amplitud como las de fase. La curva de la inestabilidad de Eckhaus  $\mu = 3q^2$ , simétrica en cualquier caso, restringe la región de estabilidad de las bandas. Por otro lado, aunque no se indica en estas figuras, para  $q < 0$  se produce la inestabilidad zig-zag.

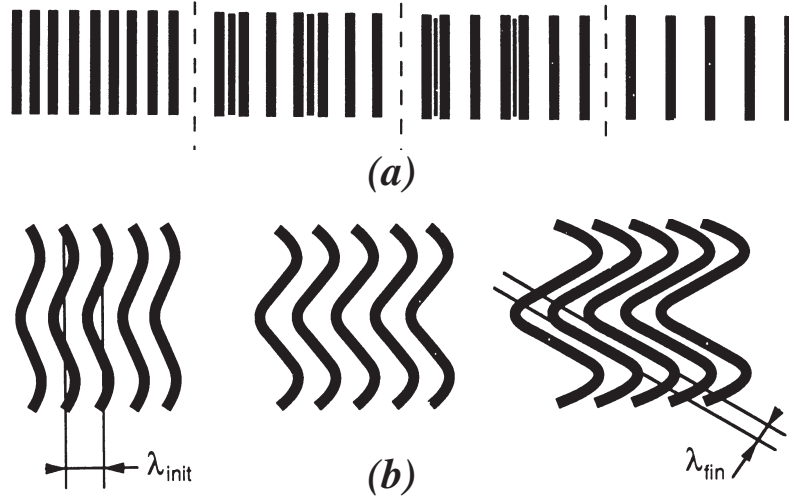


Figura 5.1: Inestabilidades de fase para un patrón de bandas. (a) Inestabilidad de Eckhaus. (b) Inestabilidad Zig-zag. [24]

### 5.1.2 Fase hexagonal

Partimos una vez más de la ecuación de amplitud:

$$\begin{aligned}
 \partial_t A_1 &= \mu A_1 + v \bar{A}_2 \bar{A}_3 - g |A_1|^2 A_1 - h (|A_2|^2 + |A_3|^2) A_1 \\
 &+ i \alpha_1 [\bar{A}_2 \partial_{x_3} \bar{A}_3 + \bar{A}_3 \partial_{x_2} \bar{A}_2] \\
 &+ i \alpha_2 [\bar{A}_2 \partial_{\tau_3} \bar{A}_3 - \bar{A}_3 \partial_{\tau_2} \bar{A}_2] + \partial_{x_1}^2 A_1
 \end{aligned} \tag{5.7}$$

Un patrón completamente perfecto de hexágonos, viene dado por:

$$A_1 = H e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{x}_1}, \quad A_2 = H e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{x}_2}, \quad A_3 = H e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{x}_3} \tag{5.8}$$

donde:

$$H = \frac{|v + 2q\alpha_1| + \sqrt{(v + 2q\alpha_1)^2 + 4(g + 2h)(\mu - q^2)}}{2(g + 2h)} \tag{5.9}$$

es la solución de:  $\mu - q^2 + |v + 2q\alpha_1|H - (g + 2h)H^2 = 0$ . (Se toma el módulo  $|v|$  para tratar conjuntamente tanto la fase para los hexágonos  $H_\pi$  como para los  $H_0$ ). Tomando perturbaciones homogéneas, los autovalores que resultan son:

$$\sigma_1 = (v + 2q\alpha_1)H - 2(g + 2h)H^2 \tag{5.10}$$

$$\sigma_2 = \sigma_3 = -2(v + 2q\alpha_1)H - 2(g - h)H^2 \tag{5.11}$$

$$\sigma_f = -3(v + 2q\alpha_1)H \tag{5.12}$$

$$\sigma_{f2} = \sigma_{f3} = 0 \tag{5.13}$$

Los vectores propios correspondientes son, tanto en el caso de la amplitud como en el de la fase:

$$\vec{v}_1 = \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix} \quad \vec{v}_2 = \begin{pmatrix} 1 \\ -1/2 \\ -1/2 \end{pmatrix} \quad \vec{v}_3 = \begin{pmatrix} 0 \\ \sqrt{3}/2 \\ -\sqrt{3}/2 \end{pmatrix} \quad (5.14)$$

El modo que corresponde a la fase total se amortigua, y por tanto sigue adiabáticamente a los otros dos modos de fase, que son marginales –modos blandos o de Goldstone–, mediante los cuales se rompe la simetría de traslación de las soluciones. Veámoslo desde el punto de vista físico. Dada la solución hexagonal:  $\psi = He^{ikx} + He^{ik(-x/2+\sqrt{3}y/2)} + He^{ik(-x/2-\sqrt{3}y/2)}$ , bajo una traslación en la fase de las amplitudes en cualquiera de esas dos direcciones:

$$\begin{pmatrix} \phi'_1 \\ \phi'_2 \\ \phi'_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \phi_1 \\ \phi_2 \\ \phi_3 \end{pmatrix} + a \begin{pmatrix} 1 \\ -1/2 \\ -1/2 \end{pmatrix} + b \begin{pmatrix} 0 \\ \sqrt{3}/2 \\ -\sqrt{3}/2 \end{pmatrix} \quad (5.15)$$

la nueva función obedece también a las ecuaciones de amplitud:

$$\psi = He^{ikx}e^{i\phi'_1} + He^{ik(-x/2+\sqrt{3}y/2)}e^{i\phi'_2} + He^{ik(-x/2-\sqrt{3}y/2)}e^{i\phi'_3} \quad (5.16)$$

Por tanto, el autovalor cero está ahora infinitamente degenerado, es decir, que podemos movernos de forma continua en el subespacio  $\{\vec{v}_2, \vec{v}_3\}$  y obtendremos soluciones diferentes de las ecuaciones de amplitud. Esto sucede porque al sistema no le “cuesta” cambiar de una solución a otra, ya que en esas direcciones el sistema se encuentra en el límite de la estabilidad. De esta forma, la simetría traslacional de las ecuaciones se rompe, puesto que no se mantiene en las soluciones.

Definiendo  $\Delta x = a/k$  y  $\Delta y = b/k$ , puede verse que en realidad las traslaciones de la fase en esas direcciones son equivalentes a traslaciones espaciales ( $x \rightarrow x + \Delta x$  y  $y \rightarrow y + \Delta y$ ), ya que en la base de Fourier:

$$\begin{pmatrix} A'_1 \\ A'_2 \\ A'_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A_1 e^{ik\Delta x} \\ A_2 e^{ik(-\Delta x/2+\sqrt{3}/2\Delta y)} \\ A_3 e^{ik(-\Delta x/2-\sqrt{3}/2\Delta y)} \end{pmatrix} \simeq \begin{pmatrix} A_1 \\ A_2 \\ A_3 \end{pmatrix} + ikH\Delta x \begin{pmatrix} 1 \\ -1/2 \\ -1/2 \end{pmatrix} + ikH\Delta y \begin{pmatrix} 0 \\ \sqrt{3}/2 \\ -\sqrt{3}/2 \end{pmatrix} \quad (5.17)$$

Las amplitudes quedan invariantes a lo largo de las direcciones de los modos marginales de fase cuando:

$$\Delta x = 2n\lambda \quad (5.18)$$

$$\Delta y = \frac{2n\lambda}{\sqrt{3}} \quad (5.19)$$

tal y como puede verse en la figura 5.2.

Con esta argumentación general, queda justificada la aproximación adiabática que se utiliza a continuación para obtener la ecuación de la fase. Para ello, como en el caso de bandas, se toman perturbaciones inhomogéneas de amplitud y fase:

$$A_i = H(1 + r_i + i\phi_i)e^{iqx_i} \quad i = 1, 2, 3 \quad (5.20)$$

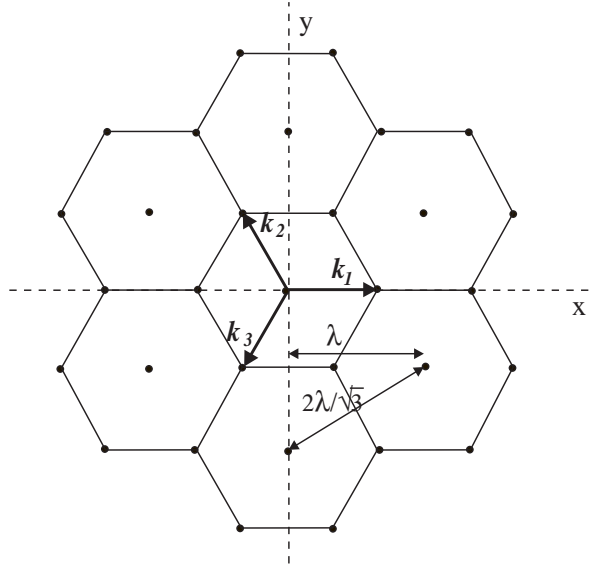


Figura 5.2: Vectores de onda en un patrón hexagonal  $k_i$  y direcciones invariantes bajo traslaciones ( $\lambda$  denota la longitud de onda correspondiente).

Sustituyendo ésto en la ecuación de amplitud y separando parte real e imaginaria :

$$\begin{aligned} \partial_T r_1 &= (\mu - q^2)r_1 + \partial_{x_1}^2 r_1 - 2q \partial_{x_1} \phi_1 + |v + 2q\alpha_1| H(r_2 + r_3) - 2h H^2(r_1 + r_2 + r_3) \\ &- 3g H^2 r_1 + \alpha_1 H(\partial_{x_2} \phi_2 + \partial_{x_3} \phi_3) + \alpha_2 H(\partial_{\tau_3} \phi_3 - \partial_{\tau_2} \phi_2) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \partial_T \phi_1 &= (\mu - q^2)\phi_1 + \partial_{x_1}^2 \phi_1 + 2q \partial_{x_1} r_1 - |v + 2q\alpha_1| H(\phi_2 + \phi_3) - (g + 2h)H^2 \phi_1 \\ &+ \alpha_1 H(\partial_{x_2} r_2 + \partial_{x_3} r_3) + \alpha_2 H(\partial_{\tau_3} r_3 - \partial_{\tau_2} r_2) \end{aligned}$$

(se obtienen ecuaciones análogas para  $r_2, r_3, \phi_2, \phi_3$ , sin más que permutar cíclicamente los subíndices.)

Teniendo en cuenta que  $\mu - q^2 = (g + 2h)H^2 - |v + 2\alpha_1 q|H$  y sustituyendo:

$$\partial_{\tau_2} = \frac{-2\sqrt{3}}{3} \partial_{x_3} - \frac{\sqrt{3}}{3} \partial_{x_2}, \quad \partial_{\tau_3} = \frac{2\sqrt{3}}{3} \partial_{x_2} + \frac{\sqrt{3}}{3} \partial_{x_3} \quad (5.21)$$

las ecuaciones anteriores quedan en la forma:

$$\begin{aligned} \partial_T r_1 &= \partial_{x_1}^2 r_1 - 2q \partial_{x_1} \phi_1 + |v + 2q\alpha_1| H(r_2 + r_3 - r_1) - 2h H^2(r_2 + r_3) - 2g H^2 r_1 \\ &+ (\alpha_1 + \frac{\sqrt{3}}{3}\alpha_2) H(\partial_{x_2} \phi_2 + \partial_{x_3} \phi_3) + \frac{2\sqrt{3}}{3}\alpha_2 H(\partial_{\tau_3} \phi_3 - \partial_{\tau_2} \phi_2) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \partial_T \phi_1 &= \partial_{x_1}^2 \phi_1 + 2q \partial_{x_1} r_1 - |v + 2q\alpha_1| H(\phi_1 + \phi_2 + \phi_3) + (\alpha_1 + \frac{\sqrt{3}}{3}\alpha_2) H(\partial_{x_2} r_2 + \partial_{x_3} r_3) \\ &+ \frac{2\sqrt{3}}{3}\alpha_2 H(\partial_{x_2} r_3 + \partial_{x_3} r_2) \end{aligned}$$

Al igual que en el caso de bandas se aplica la reducción a la variedad central para eliminar las amplitudes, ya que tal como se ha demostrado anteriormente, sus variaciones son mucho más rápidas que las de la fase y pueden considerarse constantes durante una oscilación de la fase ( $\partial_T r_i = 0$ ). Por otro lado, la fase total  $\Phi$  es un modo amortiguado (decae monótonamente hacia 0 o  $\pi$ ) y por tanto también puede eliminarse de las ecuaciones,  $\partial_T \Phi = 0$ , de manera que únicamente quedan dos fases independientes:

$$\begin{aligned}\phi_x &= -(\phi_1 + \phi_2) \\ \phi_y &= \frac{1}{\sqrt{3}}(\phi_2 - \phi_3)\end{aligned}\quad (5.22)$$

que cumplen la ecuación:

$$\boxed{\partial_T \vec{\phi} = D_l \nabla^2 \vec{\phi} + (D_l - D_t) \nabla (\nabla \cdot \vec{\phi})}$$
 (5.23)

donde los coeficientes difusivos son:

$$D_t = \frac{1}{4} - \frac{q^2}{2u} + \frac{H^2}{8u}(\alpha_1 - \sqrt{3}\alpha_2)^2$$
 (5.24)

$$\begin{aligned}D_l &= \frac{3}{4} - \frac{q^2(4u+w)}{2uw} + \frac{H^2}{8u}(\alpha_1 - \sqrt{3}\alpha_2)^2 - \frac{\alpha_1 H^2}{w}(\alpha_1 + \sqrt{3}\alpha_2) \\ &+ \frac{qH}{w}(3\alpha_1 + \sqrt{3}\alpha_2)\end{aligned}$$
 (5.25)

$u, w > 0$  cuando los hexágonos son estables frente a perturbaciones de amplitud y vienen dadas por las expresiones:

$$u = (g-h)H^2 + |v+2\alpha_1 q|H > 0$$
 (5.26)

$$w = 2(g+2h)H^2 - |v+2\alpha_1 q|H > 0$$
 (5.27)

En el apéndice B se puede encontrar el análisis detallado para el caso en que  $\alpha_1 = \alpha_2 = 0$  [31].

Para hacer el análisis lineal de la estabilidad para la fase análogo al de las amplitudes, se parte de la ecuación de la fase en forma matricial:

$$\begin{pmatrix} \dot{\phi}_x \\ \dot{\phi}_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} D_t \nabla^2 + (D_l - D_t) \partial_x^2 & (D_l - D_t) \partial_{xy} \\ (D_l - D_t) \partial_{xy} & D_t \nabla^2 + (D_l - D_t) \partial_y^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \phi_x \\ \phi_y \end{pmatrix}$$
 (5.28)

Suponiendo que la solución es de la forma  $\vec{\phi} = \vec{\phi}_0 e^{i\mathbf{Q}\cdot\mathbf{r} + \sigma t}$ , se obtiene la relación de dispersión:

$$\sigma^2 + \sigma(D_l + D_t)Q^2 + D_l D_t Q^4 = 0$$
 (5.29)

cuyas raíces, correspondientes a las tasas de crecimiento de las perturbaciones, son:

$$\sigma = -D_l Q^2 \quad \sigma = -D_t Q^2$$
 (5.30)

Para que el sistema hexagonal sea estable frente a perturbaciones de fase, estos dos autovalores deben ser negativos. Por tanto, las curvas  $D_l = 0$  y  $D_t = 0$  delimitan la estabilidad de la estructura hexagonal frente a perturbaciones de fase.

Si  $\phi_l$  y  $\phi_t$  son los autovectores, éstos satisfacen las ecuaciones:

$$\partial_t \vec{\phi}_l = -D_l \nabla^2 \vec{\phi}_l \quad \partial_t \vec{\phi}_t = -D_t \nabla^2 \vec{\phi}_t \quad (5.31)$$

y además:

$$\nabla \times \vec{\phi}_l = 0 \quad \nabla \cdot \vec{\phi}_t = 0 \quad (5.32)$$

Se puede hacer una analogía entre la ecuación de la fase de una estructura hexagonal (ec.(5.23)) y la ecuación de ondas en un sólido elástico. La velocidad de las ondas longitudinales es equivalente al coeficiente  $D_l$  y la de las ondas trasversales corresponde a  $D_t$  [32].

En las figuras que siguen a continuación se muestran los diagramas de inestabilidad en distintas situaciones. Las regiones de estabilidad para los hexágonos corresponden a las zonas sombreadas, mientras que las de bandas aparecen rayadas. En trazo continuo se dibujan las curvas de inestabilidad de amplitud, ya obtenidas en el capítulo anterior, y en línea discontinua las de fase. Para clarificar el papel que juegan los términos espaciales no lineales se han representado las curvas tanto si suponemos que  $\alpha_1, \alpha_2$  son cero, como si tenemos en cuenta su contribución. En el primer caso, todas las curvas son simétricas respecto al eje  $\mu$ , simetría que pierden al considerarse los términos no lineales. Las regiones de estabilidad de los hexágonos  $H_0$  se inclinan hacia el cuadrante  $q > 0$ , a la vez que las correspondientes a bandas y hexágonos  $H_\pi$  lo hacen hacia la parte negativa (por ser  $\alpha_1 > 0$  en el Bruselator). Distinguimos los casos 1, 2 y 3 del capítulo anterior (véase la figura 4.9):

**Caso 1:** Los términos en  $\alpha_i$  estabilizan bandas con un número de onda menor que el crítico (sufren inestabilidad zig-zag), a la vez que los hexágonos  $H_0$  son estables para números de onda mayores que los que predice el análisis con  $\alpha_i = 0$ .

**Caso 2:** El rango en el que las bandas son estables aumenta considerablemente al tener en cuenta los términos espaciales, a la vez que las curvas pierden su simetría  $q \rightarrow -q$ .

**Caso 3a:** Aparecen hexágonos reentrantes con fase total cero. La región en que los  $H_0$  iniciales son estables corresponde a un rango muy próximo al umbral, que no se aprecia en las gráficas. En este caso hay un claro predominio de los hexágonos  $H_0$ , a pesar de que cerca del umbral coexisten con la estructura de bandas.

**Caso 3b:** Es el caso en que aparecen los tres patrones:  $H_\pi$ , bandas y  $H_0$ . Para los hexágonos iniciales  $H_\pi$  y para bandas, las regiones de estabilidad se inclinan hacia  $q < 0$  al tener en cuenta la contribución de  $\alpha_i$ , mientras que para los reentrantes sucede lo contrario.

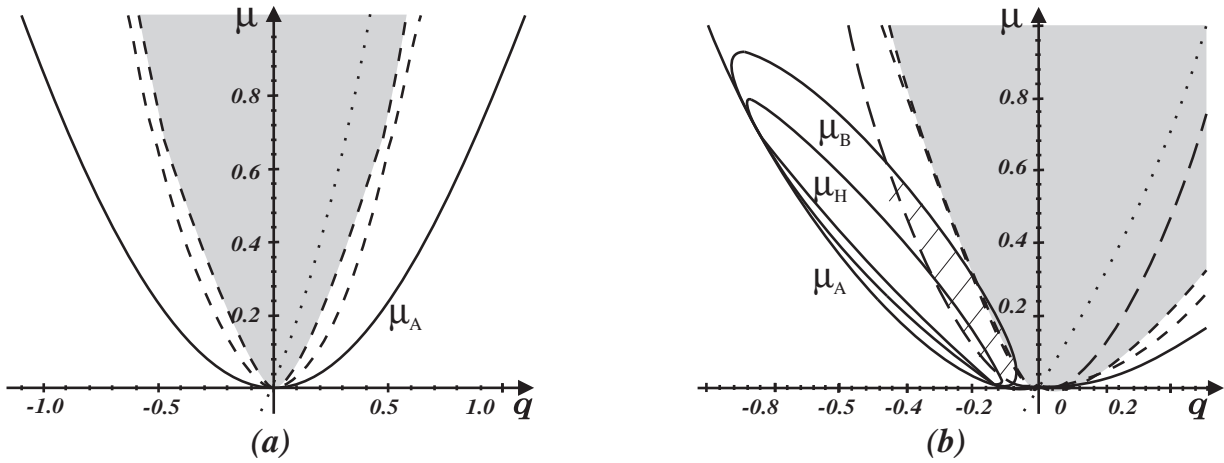


Figura 5.3: Caso 1. Diagramas  $A\eta = 0.8$  (a) suponiendo  $\alpha_1 = \alpha_2 = 0$ , (b) con  $\alpha_1 = 0.22$ ,  $\alpha_2 = -2.4 \cdot 10^{-4}$ . Se aprecia que estos términos producen la estabilización de bandas con números de onda menores que el crítico en una región que no aparece en la figura (a).

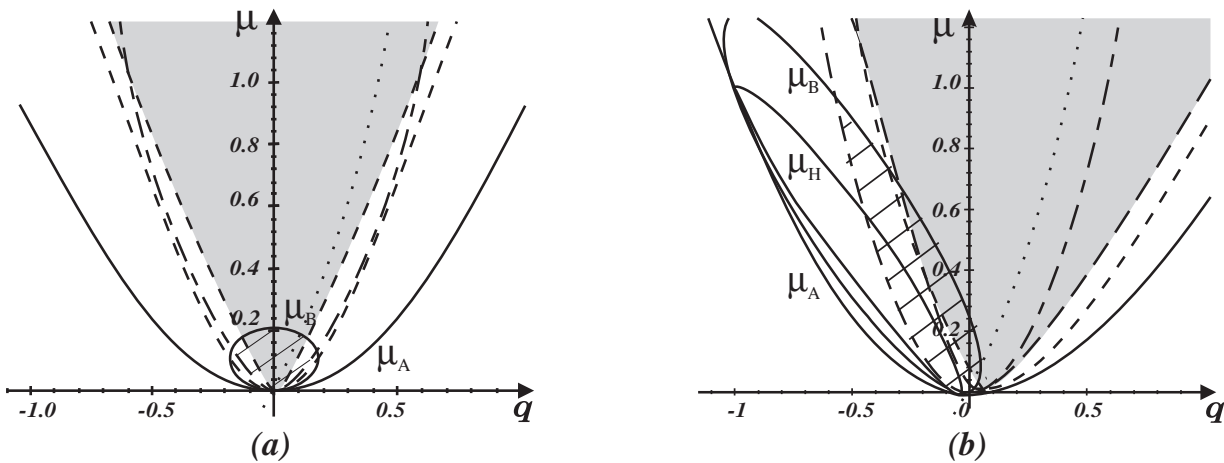


Figura 5.4: Caso 2. Diagramas  $A\eta = 0.92$  (a) suponiendo  $\alpha_1 = \alpha_2 = 0$ , (b) teniendo en cuenta  $\alpha_1 = 0.22$ ,  $\alpha_2 = -1.3 \cdot 10^{-4}$ . Para  $\alpha_1, \alpha_2 \neq 0$ , la región de estabilidad de bandas se ve drásticamente modificada, inclinándose hacia el cuadrante de  $q < 0$ , y perdurando más allá del valor obtenido en la figura simétrica.



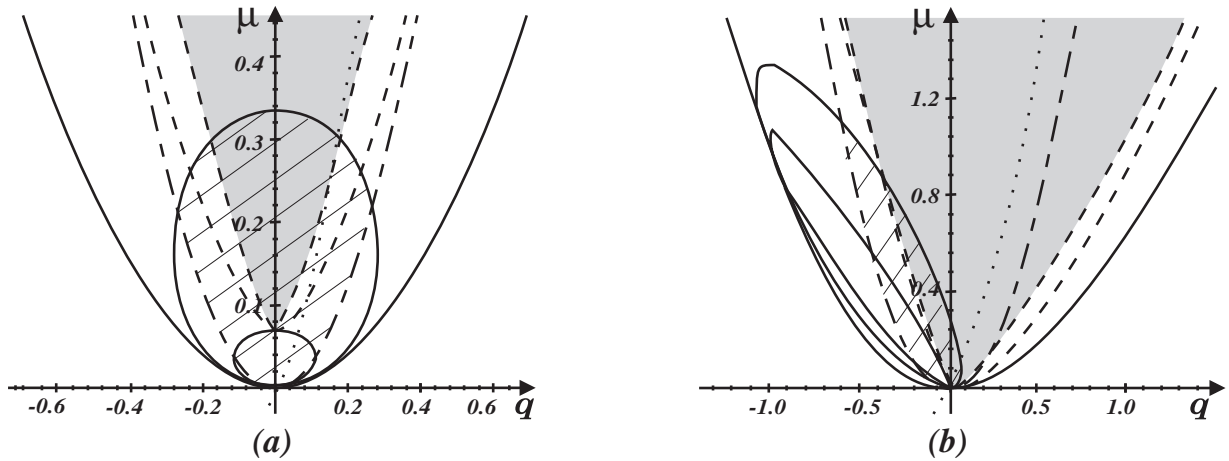


Figura 5.5: Caso 3a. Diagramas  $A\eta = 0.98$  (a) suponiendo  $\alpha_1 = \alpha_2 = 0$ , aunque en el diagrama sea inapreciable, existe una región muy próxima al mínimo de  $\mu_A$  en la que los hexágonos son estables; (b) teniendo en cuenta que  $\alpha_1 = 0.22$ ,  $\alpha_2 = -4 \cdot 10^{-5}$ , la región de los hexágonos reentrantes se inclina hacia  $q > 0$  y la de bandas hacia  $q < 0$ .

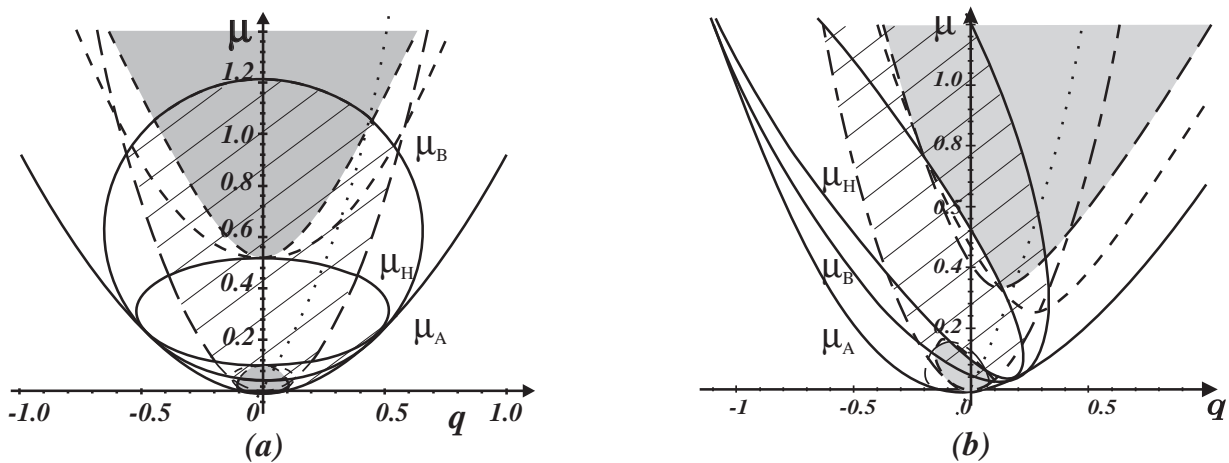


Figura 5.6: Caso 3b. Diagramas  $A\eta = 1.59$  (a) suponiendo  $\alpha_1 = \alpha_2 = 0$ , (b)  $\alpha_1 = 0.21$ ,  $\alpha_2 = -2.7 \cdot 10^{-3}$ . El rango del parámetro de control en el que las bandas son estables se modifica considerablemente para  $\alpha_1, \alpha_2 \neq 0$  al igual que en los casos anteriores.



# Capítulo 6

## Conclusiones

En este trabajo hemos realizado un análisis exhaustivo de las inestabilidades de Turing que se producen en el Bruselator. Hemos hallado las ecuaciones de amplitud para el caso hexagonal y para la solución de bandas. En ambos casos se han completado las ecuaciones obtenidas en los trabajos de A. De Wit [13] con nuevos términos espaciales no lineales, que por razones de simetría, pueden aparecer al mismo orden. A partir de ellas hemos estudiado la estabilidad relativa de las soluciones para diferentes valores de los parámetros del sistema, obteniendo en algunos casos coexistencia de bandas con hexágonos y fenómenos de histéresis. El caso más interesante es aquél en el que aparecen los hexágonos reentrantes, que han sido observados experimentalmente en la reacción CIMA.

Los términos espaciales permiten la estabilidad de patrones con números de onda diferentes del crítico y hemos estudiado el rango en que las diferentes soluciones son estables. Los nuevos términos no lineales producen una importante corrección en los umbrales de las inestabilidades secundarias, así como una modificación del número de onda crítico de las estructuras de Turing. Incluso en algunos casos, estos términos hacen aparecer regiones de estabilidad para algunas soluciones.

Se ha estudiado además la estabilidad frente a perturbaciones inhomogéneas, hallándose la ecuación de difusión para la fase a partir de un análisis débilmente no lineal. Es ahí donde tienen mayor relevancia los nuevos términos espaciales, responsables de las modulaciones en la estructura. Dicha ecuación es bien conocida para el caso de bandas, pero no ha sido discutida con tanto detalle en el caso de hexágonos. Aunque la forma de esta ecuación puede deducirse también por argumentos de simetría [33], los coeficientes deben hallarse en cada sistema particular. A partir de ellos se han obtenido los diagramas de estabilidad de fase para distintos valores de los parámetros, en los que puede verse cómo las inestabilidades de fase restringen las regiones de estabilidad. Aparecen pequeños dominios en los que una solución –bandas– que es inestable para el número de onda crítico presenta una región de estabilidad para  $k < k_c$ , cerrada e inmersa en la región en que otra solución –hexágonos– es estable. De esta forma podrían explicarse variaciones en los umbrales de estabilidad, así como modificaciones en los números de onda en las diferentes estructuras observadas en los experimentos.

En definitiva, el resultado más importante de este trabajo consiste en haber completado las ecuaciones de amplitud y fase para la inestabilidad de Turing en el Bruselator y los corres-

pondientes diagramas de estabilidad. Todos estos resultados permanecen a la espera de ser comprobados mediante simulaciones numéricas, tanto de las ecuaciones del Bruselator como de las ecuaciones de amplitud, con el fin de corroborar la eficacia de las técnicas analíticas desarrolladas en este trabajo.

Queda pendiente también extender el análisis a los hexágonos no equiláteros hallados experimentalmente, y a la dinámica de los defectos penta–hepta en patrones hexagonales.

También en un futuro abordaremos la extensión de estos resultados a la inestabilidad de Hopf para obtener los coeficientes de la ecuación Ginzburg–Landau compleja y, lo que puede resultar más interesante, al acoplamiento Turing–Hopf, observado en algunos trabajos experimentales.

# Apéndice A

## Inestabilidades en un sistema reacción–difusión

### A.1 Condiciones en un modelo general de dos variables

La evolución espacio–temporal de un sistema reacción–difusión se representa matemáticamente mediante un conjunto de ecuaciones diferenciales en derivadas parciales acopladas. La cinética de reacción de los diferentes componentes puede incluirse en las ecuaciones como una función, en general no lineal, de las concentraciones, mientras que la difusión aparece, como es natural, en forma de término difusivo.

Puede obtenerse fácilmente la forma general para un sistema químico de un solo componente que sufre reacción y difusión. Consideremos un volumen  $V$  en el que se tiene el campo de concentración  $c(\mathbf{x}, t)$  de dicho componente. La ecuación de conservación de la masa impone que la variación total de esta especie ha de ser igual al flujo de materia que atraviesa su superficie  $S$  más la cantidad que se genera en su interior, es decir:

$$\frac{\partial}{\partial t} \int_V c(\mathbf{x}, t) dv = - \int_S \mathbf{J} \cdot d\mathbf{s} + \int_V f(\mathbf{x}, t) dv$$

donde  $\mathbf{J}$  es el flujo de materia y  $f$  da cuenta de las fuentes o sumideros de la especie química en el volumen, es decir, representa la cinética de reacción. Aplicando el teorema de la divergencia se obtiene la ecuación –en forma diferencial– que gobierna la evolución del sistema:

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{J} = f(c, \mathbf{x}, t)$$

En procesos típicos de difusión, el flujo viene dado por la ley de Fick:

$$\mathbf{J} = -D\nabla c$$

Si suponemos que el coeficiente  $D$  es constante, la ecuación anterior se reduce a:

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D\nabla^2 c + f(c, \mathbf{x}, t)$$

Este esquema se generaliza fácilmente a varias especies químicas, de forma que un sistema reacción-difusión de  $N$  componentes queda descrito por un conjunto de  $N$  ecuaciones no lineales en derivadas parciales acopladas:

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} = D_i \nabla^2 c_i + f_i(c_1, \dots, c_N; \mathbf{x}, t), \quad i = 1, N$$

donde  $f_i$  son, en general, funciones no lineales de las concentraciones que incluyen la cinética de reacción y  $D_i$  son los coeficientes difusivos.

El modelo más simple que presenta estructuras de Turing lo constituye un sistema de ecuaciones para dos variables dinámicas [4], [34], cada una asociada a un mecanismo de activación o inhibición:

$$\begin{aligned} \frac{\partial X}{\partial t} &= f(X, Y; \vec{\mu}) + D_x \nabla^2 X \\ \frac{\partial Y}{\partial t} &= g(X, Y; \vec{\mu}) + D_y \nabla^2 Y \end{aligned} \quad (\text{A.1})$$

donde ahora  $\vec{\mu}$  denota un conjunto de parámetros tales como constantes de reacción y concentraciones de otras especies químicas, en particular la concentración de los reactivos que mantienen al sistema fuera del equilibrio. Mediante una renormalización de las variables espaciales se consigue simplificar el sistema, eliminando uno de los coeficientes de difusión. Entonces se tiene:

$$\begin{aligned} \frac{\partial X}{\partial t} &= f(X, Y; \vec{\mu}) + \nabla^2 X \\ \frac{\partial Y}{\partial t} &= g(X, Y; \vec{\mu}) + D \nabla^2 Y \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

donde sólo interviene el cociente  $D = D_y/D_x$ .

Bajo la hipótesis de  $\vec{\mu} = \text{cte}$ <sup>1</sup>, el estado estacionario y homogéneo  $\mathbf{u}_s = (X_s, Y_s)^T$  para el sistema (A.2), se obtiene como solución de:

$$f(X, Y; \vec{\mu}) = g(X, Y; \vec{\mu}) = 0 \quad (\text{A.3})$$

La variación de alguno de los parámetros del sistema puede producir una bifurcación, de forma que este estado deja de ser estable y es reemplazado por otra solución. Se suele tomar como parámetro de control la concentración de alguno de los reactivos que alimentan al sistema por ser más fáciles de cambiar que los coeficientes de difusión.

---

<sup>1</sup>Nótese que los patrones de Turing son *estructuras disipativas* y que, por tanto, es necesario un aporte continuo de energía para que no desaparezcan. En los experimentos actuales, el sistema es alimentado desde los bordes de forma que se establecen gradientes en las concentraciones de estas especies, hecho por el que  $\vec{\mu}$  no es constante, sino variable en la dirección del gradiente. En un trabajo recientemente publicado [35], se realiza numéricamente el análisis de estabilidad lineal en el caso realista en que  $\vec{\mu} = \vec{\mu}(z)$ . En el presente trabajo se toma como primera aproximación el caso en que esos parámetros son constantes, teniendo en cuenta el hecho de que los patrones son visibles en regiones muy estrechas del reactor en las que podemos suponer que sus variaciones son despreciables.

La estabilidad lineal de este estado se estudia a partir de un análisis de perturbaciones de la forma:

$$\mathbf{u} = \mathbf{u}_s + \sum_k \delta \mathbf{u}_k e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} e^{\lambda_k t} \quad (\text{A.4})$$

donde  $\mathbf{u} = (X, Y)^T$  es el vector de concentraciones,  $\delta \mathbf{u}_k = (x, y)^T$  es la perturbación asociada a un modo con número de onda  $k$  y que tiene una tasa de crecimiento  $\lambda_k$ . El problema lineal de autovalores que resulta es:

$$\begin{pmatrix} f_x - k^2 & f_y \\ g_x & g_y - Dk^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x \\ y \end{pmatrix} = \lambda_k \begin{pmatrix} x \\ y \end{pmatrix} \quad (\text{A.5})$$

donde:

$$f_x = \left. \frac{\partial f}{\partial X} \right|_s, \quad f_y = \left. \frac{\partial f}{\partial Y} \right|_s, \quad g_x = \left. \frac{\partial g}{\partial X} \right|_s, \quad g_y = \left. \frac{\partial g}{\partial Y} \right|_s \quad (\text{A.6})$$

Para que ese sistema tenga solución no trivial,  $\det(A - \lambda_k I) = 0$ , donde  $A$  es la matriz jacobiana que aparece en la ecuación (A.5), para la cual, en general, existen dos raíces:

$$\lambda_k^\pm = \frac{\tau \pm \sqrt{\tau^2 - 4\Delta}}{2}, \quad \tau = f_x + g_y - (1 + D)k^2, \quad \Delta = f_x g_y - f_y g_x - (Df_x + g_y)k^2 + Dk^4 \quad (\text{A.7})$$

Esta es, en realidad, la ecuación de dispersión que liga el parámetro de crecimiento de las perturbaciones con su número de onda. De ella podemos obtener las condiciones para que el estado estacionario y homogéneo sufra una *inestabilidad de Turing*:

(i) El estado de referencia ha de ser estable frente a perturbaciones homogéneas ( $k = 0$ ), es decir, linealmente estable en ausencia de difusión. Esto se traduce en que  $Re(\lambda_k^\pm) < 0$ . Cuando los autovalores son imaginarios, la condición es:

$$\boxed{\lambda_0^+ + \lambda_0^- = f_x + g_y < 0} \quad (\text{A.8})$$

Si son reales hay que añadir la condición:

$$\boxed{\lambda_0^+ \lambda_0^- = f_x g_y - f_y g_x > 0} \quad (\text{A.9})$$

(ii) El estado de base debe ser inestable frente a perturbaciones inhomogéneas, para lo cual al menos una de las raíces ha de ser positiva para algún valor  $k \neq 0$ . Consideremos en primer lugar la suma de los dos autovalores:

$$\lambda_k^+ + \lambda_k^- = f_x + g_y - (1 + D)k^2$$

que tiene signo negativo por la condición (A.8), y por tanto al menos la parte real de una de las raíces debe ser negativa. Para que el sistema bifurque a un estado heterogéneo, la otra debe ser positiva para algún valor de  $k$  y, por tanto, el producto de raíces debe ser negativo:

$$\lambda_k^+ \lambda_k^- = (f_x g_y - f_y g_x) - (Df_x + g_y)k^2 + Dk^4 \equiv F(k^2) < 0$$

Puesto que por la condición (A.9) el primer término es positivo, se debe cumplir:

$$\boxed{(Df_x + g_y) > 0} \quad (\text{A.10})$$

Teniendo en cuenta (A.8), (A.9) y esta condición, se deduce que  $f_x$  y  $g_y$  tienen signos opuestos, lo que significa que sólo una de las especies, el activador, es autocatalítica. Igualmente se tiene  $f_y \cdot g_x < 0$ . Además para que el estado estacionario y homogéneo sufra una inestabilidad es necesario que los coeficientes de difusión sean distintos:  $D \neq 1$ . Si suponemos que  $f_x > 0$ , es decir, si  $X$  es el activador e  $Y$  el inhibidor, ha de cumplirse que  $D_y > D_x$ .

Por otro lado, se puede demostrar fácilmente que  $F(k^2)$  tiene un mínimo y que además:

$$F(0) = f_x g_y - f_y g_x > 0$$

Por tanto, para que  $F(k^2) < 0$  en algún rango de  $k$ , dicha función debe tener raíces reales:

$$k_{\pm}^2 = \frac{Df_x + g_y \pm \sqrt{(Df_x + g_y)^2 - 4D(f_x g_y - f_y g_x)}}{2}$$

lo que exige que:

$$\boxed{(Df_x + g_y)^2 - 4D(f_x g_y - f_y g_x) \geq 0} \quad (\text{A.11})$$

En tal caso el estado de base es inestable frente a perturbaciones con números de onda en el rango  $k_- < k < k_+$ , conduciendo a un estado estacionario heterogéneo, denominado estructura de Turing. Como veremos en la sección siguiente para un ejemplo concreto, las condiciones (A.8), (A.9), (A.10) y (A.11) nos dan el punto de bifurcación.

Por otro lado, a partir de un razonamiento similar, se obtienen las condiciones para la *inestabilidad oscilatoria o de Hopf*:

(i) Las raíces han de ser complejas conjugadas, entonces ha de cumplirse:

$$g(k^2) \equiv \tau^2 - 4\Delta = (D-1)^2 k^4 + 2k^2(D-1)(f_x - g_y) + (f_x - g_y)^2 + 4g_x f_y < 0$$

y puesto que, como se demuestra fácilmente, esta función tiene un mínimo en  $k = 0$ , la condición anterior se traduce en:

$$\boxed{(f_x - g_y)^2 + 4g_x f_y < 0} \quad (\text{A.12})$$

(ii) La parte real además debe ser positiva para algún rango de  $k$ :

$$Re(\lambda_k) = -\frac{(D+1)k^2 - (f_x + g_y)}{2} < 0$$

que se cumple únicamente cuando:

$$\boxed{(f_x + g_y) > 0} \quad (\text{A.13})$$

Entonces, las condiciones (A.12) y (A.13) se cumplen cuando:

$$0 < k^2 < \frac{(f_x + g_y)}{D+1}$$

Nótese que para un sistema en  $2D$ , la bifurcación de Hopf siempre produce un estado homogéneo ( $k = 0$ ); sin embargo, en  $3D$  ya puede dar lugar a estados heterogéneos oscilantes ( $k \neq 0$ ), es decir, ondas viajeras.



## A.2 Modelos reacción-difusión

Para ver el significado físico de estas condiciones, apliquémoslas a algunos modelos simples. En primer lugar repasamos la forma general de los modelos que presentan inestabilidad de Turing. Si linealizamos el sistema (A.2) en torno al estado estacionario y homogéneo, se tiene:

$$\begin{aligned}\frac{\partial x}{\partial t} &= f_x x + f_y y + \nabla^2 x \\ \frac{\partial y}{\partial t} &= g_x x + g_y y + D\nabla^2 y\end{aligned}$$

y ya que las condiciones (A.8) y (A.9) imponen que  $f_x g_y < 0$  y  $f_y g_x < 0$  (tienen signos opuestos), el problema lineal se puede escribir de forma más clara:

$$\begin{aligned}\frac{\partial x}{\partial t} &= a_{11}x - \eta a_{12}y + \nabla^2 x \\ \frac{\partial y}{\partial t} &= \eta a_{21}x - a_{22}y + D\nabla^2 y\end{aligned}\tag{A.14}$$

donde  $y$  es la especie que controla el proceso inhibitor y  $x$  es el activador. Ahora  $a_{ij} > 0$  y  $\eta = \pm 1$  dependiendo del modelo:

**Modelos activador-inhibidor:** En este caso, el inhibidor es uno de los productos del activador, a la vez que inhibe su formación. Corresponde, por tanto, al caso  $\eta = +1$ . Un ejemplo estudiado por Dufiet et al. [36] es el que viene descrito por las ecuaciones:

$$\begin{aligned}\frac{\partial u}{\partial t} &= u - \alpha v + \gamma uv - u^3 + \nabla^2 u \\ \frac{\partial v}{\partial t} &= u - \beta v + D\nabla^2 v\end{aligned}\tag{A.15}$$

La especie activadora es  $u$  y el inhibidor  $v$ . Este modelo no está basado en ninguna reacción química real, sino que ha sido construido a partir de las ecuaciones lineales, añadiendo el menor número de términos posible para obtener estructuras hexagonales: el término cúbico, responsable de la saturación de las perturbaciones de la especie activadora  $u$ , y el cuadrático que rompe la simetría  $(u, v) \rightarrow (-u, -v)$ . Si hacemos un análisis de estabilidad lineal del estado estacionario y homogéneo  $u = v = 0$ , el sistema resultante queda:

$$\begin{aligned}\frac{\partial u}{\partial t} &= u - \alpha v + \nabla^2 u \\ \frac{\partial v}{\partial t} &= u - \beta v + D\nabla^2 v\end{aligned}$$

de modo que:  $f_x = 1$ ,  $f_y = -\alpha$ ,  $g_x = 1$  y  $g_y = -\beta$ .

Las condiciones de inestabilidad de Turing encontradas para el caso general quedan para este modelo de la forma:

$$\begin{aligned}1 - \beta &< 0, & -\beta + \alpha &> 0 \\ D - \beta &> 0, & (D - \beta)^2 - 4D(-\beta + \alpha) &> 0\end{aligned}$$

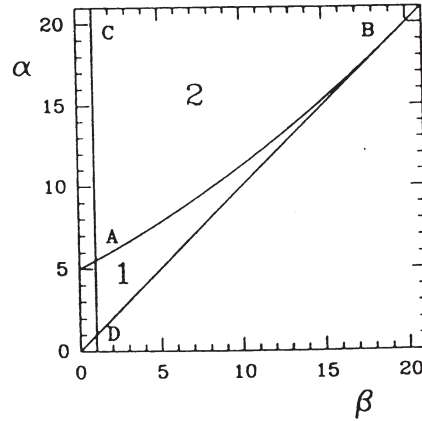


Figura A.1: Diagrama de bifurcaciones para  $D = 20$ . La región (1) corresponde al espacio de Turing. En la zona (2) el estado estacionario resulta estable ( $\beta > 1$ ). La curva AB señala el límite de la bifurcación de Turing ( $\beta < 20$ ) y CD el de la bifurcación de Hopf ( $\alpha > 1$ ). [36]

de donde podemos obtener el punto de bifurcación:

$$\alpha_c = \frac{(\beta + D)^2}{4D}, \quad k_c = \frac{D - \beta}{2D}$$

Análogamente, para la bifurcación de Hopf se tiene:

$$(1 + \beta)^2 - 4\alpha < 0 \quad 1 - \beta > 0$$

**Modelos de agotamiento del sustrato:** En este caso las dos variables dinámicas son las concentraciones del activador y del sustrato. Estos dos componentes reaccionan en el bucle de autocatálisis. Es claro que  $\eta = -1$ , de manera que los máximos y mínimos de ambas especies van en contrafase.

Pertenece a este grupo el modelo de Schnackenberg, analizado por Dufiet et al. [37], cuya secuencia de reacción es:



Si suponemos que las concentraciones de  $A$  y  $B$  son aproximadamente constantes, la evolución del sistema puede describirse con un PDE de dos variables:

$$\begin{aligned} \frac{\partial x}{\partial t} &= \gamma(a - x + x^2 y) + \nabla^2 x \\ \frac{\partial y}{\partial t} &= \gamma(b - x^2 y) + d\nabla^2 y \end{aligned} \tag{A.17}$$

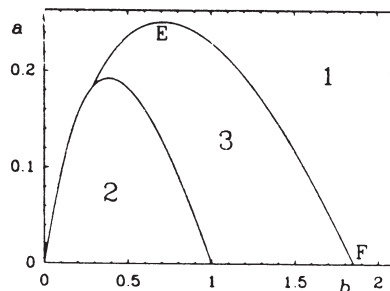


Figura A.2: Espacio de parámetros  $(a, b)$  Región 1: estado estacionario y uniforme; región 2: estado oscilatorio; región 3: patrones de Turing. [37]

La especie activadora es de nuevo  $u$ , con un bucle de autocatálisis dado por el término  $u^2v$ . La saturación se produce por agotamiento de la especie  $v$ . También en este caso debe cumplirse que  $D_y > D_x$  para que la estructura espacial sea estable.

Aplicando las condiciones generales a este modelo, se tiene la región del espacio de parámetros para la que aparecen patrones de Turing, delimitada por:

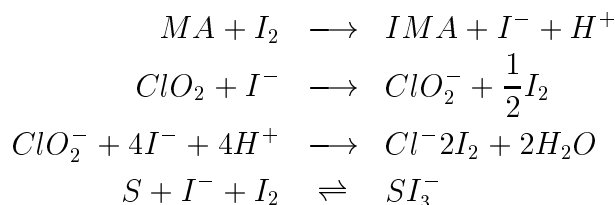
$$\begin{aligned} 0 < b - a < (a + b)^3, \quad D(b - a) > (a + b)^3, \\ [D(b - a) - (a + b)^3]^2 > 4D(a + b)^4 \end{aligned} \quad (\text{A.18})$$

que está representada en la figura A.2.

Este modelo es en realidad una variante simplificada del Bruselator, modelo en el que hemos centrado el presente trabajo.

### A.3 Modelo realista LRE

Lengyel, Epstein y Rabai [19], [20] propusieron un modelo teórico (LRE) para la reacción CDIMA (chlorine dioxide–iodine–malonic acid) más cercano a su cinética de reacción y, por tanto, con un comportamiento dinámico más próximo al observado experimentalmente. Este modelo consiste en reducir la cinética compleja a tan solo tres reacciones químicas para las especies  $I_2$ ,  $ClO_2$ ,  $I^-$ ,  $ClO_2^-$ ,  $H^+$  y el ácido malónico (MA), más una cuarta para el indicador  $SI_3^-$ :



Si los ritmos de estas reacciones son  $r_1$ ,  $r_2$ ,  $r_3$  y  $r_4$  respectivamente, las ecuaciones de evolución para las concentraciones son:

$$\frac{\partial[MA]}{\partial t} = -r_1 + D_{MA}\nabla^2[MA]$$

$$\begin{aligned}
\frac{\partial[I_2]}{\partial t} &= -r_1 + \frac{1}{2}r_2 + 2r_3 - r_4 + D_{I_2}\nabla^2[I_2] \\
\frac{\partial[ClO_2]}{\partial t} &= -r_2 + D_{ClO_2}\nabla^2[ClO_2] \\
\frac{\partial[I^-]}{\partial t} &= r_1 - r_2 - 4r_3 - r_4 + D_{I^-}\nabla^2[I^-] \\
\frac{\partial[ClO_2^-]}{\partial t} &= r_2 - r_3 + D_{ClO_2^-}\nabla^2[ClO_2^-] \\
\frac{\partial[SI_3^-]}{\partial t} &= r_4 \\
\frac{\partial[H^+]}{\partial t} &= r_1 - 4r_3 + D_{H^+}\nabla^2[H^+]
\end{aligned}$$

Lengyel et al. [19] simularon el comportamiento de las concentraciones  $[MA]$ ,  $[I_2]$ ,  $[ClO_2]$ ,  $[I^-]$  y  $[ClO_2^-]$ , demostrando que las concentraciones de las especies intermedias,  $[I^-]$  y  $[ClO_2^-]$ , varían en varios órdenes de magnitud durante una oscilación de las otras tres. Además la contribución de  $[H^+]$  es relativamente pequeña y puede despreciarse, así como las pequeñas variaciones que sufre la concentración del indicador  $[SI_3^-]$ . Todo esto permite reducir el problema a un sistema de dos ecuaciones para las especies dinámicas, el activador  $[I^-]$  (reductor) y el inhibidor  $[ClO_2^-]$  (oxidante):

$$\sigma \frac{\partial x}{\partial t} = k_1 - k_2 x - \frac{4k_3 xy}{h + x^2} + D_x \nabla^2 x \quad (\text{A.19})$$

$$\sigma \frac{\partial y}{\partial t} = k_2 x - \frac{k_3 xy}{h + x^2} + D_y \nabla^2 y \quad (\text{A.20})$$

Este modelo ha sido tratado por distintos autores. Destacamos el último trabajo de Setayeshgar y Cross [35], en el que realizaron el análisis lineal teniendo en cuenta los gradientes en las concentraciones y Mosekilde et al. [38] que estudiaron el acoplamiento Turing-Hopf y los hexágonos reentrantes.

# Apéndice B

## Ecuación de la fase hexagonal

Para encontrar la ecuación lineal para la fase se aplica el método de la reducción a la variedad central a las ecuaciones de amplitud (5.7) obtenidas en el capítulo 4, introduciendo perturbaciones inhomogéneas en una solución hexagonal [31], [27] (no se incluyen los términos espaciales no lineales, para simplificar el desarrollo, aunque con éstos sería completamente análogo):

$$A_i = H(1 + r_i + i\phi_i)e^{iqx_i} \quad i = 1, 2, 3 \quad (\text{B.1})$$

Sustituyendo en las ecuaciones de amplitud (5.7) y quedándonos con la parte lineal se tiene:

$$\begin{aligned} \partial_T r_1 + i\partial_T \phi_1 &= \mu r_1 + i\mu\phi_1 - q^2 r_1 - iq^2 \phi_1 + 2iq\partial_{x_1} r_1 - 2q\partial_{x_1} \phi_1 + \partial_{x_1}^2 r_1 + i\partial_{x_1}^2 \phi_1 \\ &+ |v|H(r_2 + r_3) - i|v|H(\phi_2 + \phi_3) - 3gH^2 r_1 - igH^2 \phi_1 \\ &- 2H^2(r_1 + r_2 + r_3) - 2ihH^2 \phi_1 \end{aligned} \quad (\text{B.2})$$

que puede separarse en parte real e imaginaria:

$$\begin{aligned} \partial_T r_1 &= (\mu - q^2)r_1 + \partial_{x_1}^2 r_1 - 2q\partial_{x_1} \phi_1 + |v|H(r_2 + r_3) - 3gH^2 r_1 \\ &- 2hH^2(r_1 + r_2 + r_3) \end{aligned} \quad (\text{B.3})$$

$$\begin{aligned} \partial_T \phi_1 &= (\mu - q^2)\phi_1 + \partial_{x_1}^2 \phi_1 + 2q\partial_{x_1} r_1 - |v|H(\phi_2 + \phi_3) \\ &- (g + 2h)H^2 \phi_1 \end{aligned} \quad (\text{B.4})$$

Si tenemos en cuenta que  $\mu - q^2 + |v|H - (g + 2h)H^2 = 0$  queda:

$$\partial_T r_1 = \partial_{x_1}^2 r_1 - 2q\partial_{x_1} \phi_1 + |v|H(r_2 + r_3 - r_1) - 2hH^2(r_2 + r_3) - 2gH^2 r_1 \quad (\text{B.5})$$

$$\partial_T \phi_1 = \partial_{x_1}^2 \phi_1 + 2q\partial_{x_1} r_1 - |v|H(\phi_1 + \phi_2 + \phi_3) \quad (\text{B.6})$$

Para eliminar las amplitudes de la ecuación de la fase utilizamos la aproximación adiabática, que tiene en cuenta que las variaciones en las amplitudes son mucho más rápidas que las de fase y, por tanto, aquéllas quedan esclavizadas por éstas. En tal caso, podemos suponer que  $\partial_T r_i = 0$  y que los términos  $\partial_{x_1} r_i$  -que nos darían derivadas  $\partial_x^3 \phi_i$ - son despreciables. Las ecuaciones se pueden escribir entonces como:

$$\frac{2q}{H} \begin{pmatrix} \partial_{x_1} \phi_1 \\ \partial_{x_2} \phi_2 \\ \partial_{x_3} \phi_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} a & b & b \\ b & a & b \\ b & b & a \end{pmatrix} \begin{pmatrix} r_1 \\ r_2 \\ r_3 \end{pmatrix} \quad (\text{B.7})$$

donde  $a = -|v| - 2gH$  y  $b = |v| - 2hH$ .

Invirtiendo la matriz se obtienen las amplitudes en función de las fases:

$$r_1 = \frac{2q}{H} \frac{1}{a^2 + ba - 2b^2} [(a+b)\partial_{x_1}\phi_1 - b(\partial_{x_2}\phi_2 + \partial_{x_3}\phi_3)] \quad (\text{B.8})$$

que sustituidas en (B.4) dan:

$$\begin{aligned} \partial_T \phi_1 &= \partial_{x_1}^2 \phi_1 - |v|H(\phi_1 + \phi_2 + \phi_3) \\ &+ \frac{4q^2}{H} \frac{1}{a^2 + ba - 2b^2} [(a+b)\partial_{x_1}^2 \phi_1 - b(\partial_{x_1 x_2} \phi_2 + \partial_{x_1 x_3} \phi_3)] \end{aligned} \quad (\text{B.9})$$

(Para las fases  $\phi_2$  y  $\phi_3$  se tienen ecuaciones análogas sin más que permutar cíclicamente los subíndices. )

Definimos la fase total como  $\Phi = \phi_1 + \phi_2 + \phi_3$ , cuya ecuación de evolución se obtiene sumando las anteriores:

$$\begin{aligned} \partial_T \Phi &= \partial_{x_1}^2 \phi_1 + \partial_{x_2}^2 \phi_2 + \partial_{x_3}^2 \phi_3 - 3|v|H\Phi \\ &+ \frac{4q^2}{H} \frac{1}{a^2 + ba - 2b^2} [(a+b)(\partial_{x_1}^2 \phi_1 + \partial_{x_2}^2 \phi_2 + \partial_{x_3}^2 \phi_3) \\ &- b(\partial_{x_1 x_2}(\phi_2 + \phi_3) + \partial_{x_1 x_3}(\phi_1 + \phi_3) + \partial_{x_2 x_3}(\phi_2 + \phi_3))] \end{aligned} \quad (\text{B.10})$$

Como la fase total es un modo amortiguado se le aplica la aproximación adiabática,  $\partial_T \Phi = 0$ , y se tiene una ligadura para las fases, de modo que dos de ellas son libres (modos marginales) y la tercera debe seguir a las otras dos. Podemos eliminar  $\phi_1 = \Phi - (\phi_2 + \phi_3)$  de la ecuación anterior, que queda:

$$\begin{aligned} \Phi &= \frac{1}{3|v|H} [\partial_{x_2}^2 \phi_2 + \partial_{x_3}^2 \phi_3 - \partial_{x_1}^2 (\phi_2 + \phi_3)] + \frac{4q^2}{3|v|H^2(a^2 + ba - 2b^2)} \\ &\cdot [(a+b)(\partial_{x_2}^2 \phi_2 + \partial_{x_3}^2 \phi_3 - \partial_{x_1}^2 (\phi_2 + \phi_3)) - b(\partial_{x_2 x_3}(\phi_2 + \phi_3) - \partial_{x_1 x_2} \phi_3 - \partial_{x_1 x_3} \phi_2)] \end{aligned}$$

donde se han despreciado las derivadas  $\partial_x \Phi$  que darían derivadas cuartas de  $\phi_2$  y  $\phi_3$ . Sustituyendo esta expresión y eliminando  $\phi_1$  de las ecuaciones (B.9) se tiene que la evolución para  $\phi_2 \pm \phi_3$  viene dada por:

$$\begin{aligned} \partial_T(\phi_2 + \phi_3) &= \frac{4q^2}{3H(a^2 + ba - 2b^2)} \left\{ (a+b) [\partial_{x_2}^2 \phi_2 + \partial_{x_3}^2 \phi_3 + 2\partial_{x_1}^2 (\phi_2 + \phi_3)] \right. \\ &- b[\partial_{x_2 x_3}(\phi_2 + \phi_3) - \partial_{x_1 x_2}(\phi_3 + 3\phi_2) - \partial_{x_1 x_3}(\phi_2 + 3\phi_3)] \left. \right\} \\ &+ \frac{1}{3}\partial_{x_2}^2 \phi_2 + \frac{1}{3}\partial_{x_3}^2 \phi_3 + \frac{2}{3}\partial_{x_1}^2 (\phi_2 + \phi_3) \end{aligned} \quad (\text{B.11})$$

$$\begin{aligned} \partial_T(\phi_2 - \phi_3) &= \frac{4q^2}{3H(a^2 + ba - 2b^2)} \left\{ (a+b) [\partial_{x_2}^2 \phi_2 - \partial_{x_3}^2 \phi_3] \right. \\ &- b[\partial_{x_2 x_3}(\phi_3 - \phi_2) - \partial_{x_1 x_2}(\phi_2 + \phi_3) - \partial_{x_1 x_3}(\phi_2 + \phi_3)] \left. \right\} \\ &+ \partial_{x_2}^2 \phi_2 - \partial_{x_3}^2 \phi_3 \end{aligned} \quad (\text{B.12})$$

Expresando las derivadas direccionales en función de las variables espaciales  $x, y$ :

$$\partial_{x_1} = \partial_x \quad (\text{B.13})$$

$$\partial_{x_2} = \frac{-1}{2}\partial_x + \frac{\sqrt{3}}{2}\partial_y \quad (\text{B.14})$$

$$\partial_{x_3} = \frac{-1}{2}\partial_x - \frac{\sqrt{3}}{2}\partial_y \quad (\text{B.15})$$

y simplificando las ecuaciones anteriores, se tiene:

$$\begin{aligned} \partial_T(\phi_2 + \phi_3) &= \left\{ \frac{q^2}{H(a-b)}(\partial_x + \partial_y) + \frac{2q^2}{H(a+2b)}\partial_x^2 + \frac{1}{4}(3\partial_x^2 + \partial_y^2) \right\} (\phi_2 + \phi_3) \\ &\quad - \frac{1}{2\sqrt{3}} \left( 1 + \frac{4q^2}{H(a+2b)} \right) \partial_{xy}(\phi_2 - \phi_3) \end{aligned} \quad (\text{B.16})$$

$$\begin{aligned} \partial_T(\phi_2 - \phi_3) &= \left\{ \frac{q^2}{H(a-b)}(\partial_x + \partial_y) + \frac{2q^2}{H(a+2b)}\partial_y^2 + \frac{1}{4}(\partial_x^2 + 3\partial_y^2) \right\} (\phi_2 - \phi_3) \\ &\quad - \frac{\sqrt{3}}{2} \left( 1 + \frac{4q^2}{H(a+2b)} \right) \partial_{xy}(\phi_2 - \phi_3) \end{aligned} \quad (\text{B.17})$$

De las expresiones (4.69) y (4.70):

$$H(a-b) = -2u \quad (\text{B.18})$$

$$H(a+2b) = -2w \quad (\text{B.19})$$

que son negativos cuando los hexágonos son estables frente a perturbaciones de amplitud.

Si definimos unas nuevas fases:

$$\phi_x = -(\phi_2 + \phi_3) \quad (\text{B.20})$$

$$\phi_y = \frac{1}{\sqrt{3}}(\phi_2 - \phi_3) \quad (\text{B.21})$$

su evolución esta dada por las ecuaciones:

$$\partial_T \phi_x = \left\{ \left( \frac{-q^2}{2u} + \frac{1}{4} \right) \nabla^2 + \frac{1}{2} \left( 1 - \frac{4q^2}{w} \right) \partial_x^2 \right\} \phi_x + \frac{1}{2} \left( 1 - \frac{4q^2}{w} \right) \partial_{xy} \phi_y \quad (\text{B.22})$$

$$\partial_T \phi_y = \left\{ \left( \frac{-q^2}{2u} + \frac{1}{4} \right) \nabla^2 + \frac{1}{2} \left( 1 - \frac{4q^2}{w} \right) \partial_x^2 \right\} \phi_y + \frac{1}{2} \left( 1 - \frac{4q^2}{w} \right) \partial_{xy} \phi_x \quad (\text{B.23})$$

que en forma matricial se escribe como:

$$\partial_T \begin{pmatrix} \left( \frac{-q^2}{2u} + \frac{1}{4} \right) \nabla^2 + \frac{1}{2} \left( 1 - \frac{4q^2}{w} \right) \partial_x^2 & \frac{1}{2} \left( 1 - \frac{4q^2}{w} \right) \partial_{xy} \\ \frac{1}{2} \left( 1 - \frac{4q^2}{w} \right) \partial_{xy} & \left( \frac{-q^2}{2u} + \frac{1}{4} \right) \nabla^2 + \frac{1}{2} \left( 1 - \frac{4q^2}{w} \right) \partial_y^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \phi_x \\ \phi_y \end{pmatrix} \quad (\text{B.24})$$

o con la notación vectorial:

$$\boxed{\partial_T \vec{\phi} = D_l \nabla^2 \vec{\phi} + (D_l - D_t) \nabla(\nabla \cdot \vec{\phi})} \quad (\text{B.25})$$

donde los coeficientes de difusión son:

$$D_t = \frac{-q^2}{2u} + \frac{1}{4} \quad (\text{B.26})$$

$$D_l = \frac{3}{4} - \frac{q^2(4u + w)}{2uw} \quad (\text{B.27})$$



# Bibliografía

- [1] H. Poincare, *Science et Méthode*, Flammarion, París (1908).
- [2] E.N. Lorenz, *J. Atmos. Sci.*, **20** (1963) 130.
- [3] H. Bénard, *Rev. Gen. Sciences Pures & Appl.*, **11** (1900) 1261.
- [4] A. Turing, *Philos. Trans. R. Soc. B*, **237** (1952) 37.
- [5] V. Castets, E. Dulos, J. Boissonade, P. De Kepper, *Phys. Rev. Lett.*, **64** (1990) 2953.
- [6] H. Meinhardt, A. Gierer, *Lec. Math. Life Sci.*, **14** (1981) 1.
- [7] H. Meinhardt, A. Gierer, *Rep. Prog. Phys.*, **55** (1992) 797.
- [8] J.J. Perraud, A. De Wit, E. Dulos, P. De Kepper, G. Dewel, P. Borckmans *Phys. Rev. Lett.*, **71** (1993) 1272.
- [9] B. Rudovics, E. Dulos, P. De Kepper, *Physica Scripta*, **T67** (1996) 43.
- [10] A. De Wit, D. Lima, G. Dewel, P. Borckmans, *Phys. Rev. E*, **54** (1996) 261.
- [11] A.B. Rovinsky, *J. Phys. Chem.*, **91** (1987) 4606.
- [12] S.H. Strogatz, *Nonlinear Dynamics and Chaos*, Addison–Wesley, Reading (1994).
- [13] A. De Wit, *Brisure de symétrie spatiale et dynamique spatio-temporelle dans les systèmes réaction–diffusion*, Thèse doctoral, Université Libre de Bruxelles (1993).
- [14] J.J. Perraud, K. Agladze, E. Dulos, P. De Kepper, *Physica A*, **188** (1992) 1.
- [15] K. Agladze, E. Dulos, P. De Kepper, *J. Chem. Phys.*, **96** (1992) 2400.
- [16] K.J. Lee, W.D. McCormick, H.L. Swinney, Z. Noszticzius *J. Chem. Phys.*, **96** (1992) 4048.
- [17] G. Heidemann, M. Bode, H. G. Purwins, *Phys. Lett. A*, **177** (1993) 225.
- [18] G.H. Gunaratne, Q. Ouyang, H.L. Swinney, *Phys. Rev. E*, **50** (1994) 2802.
- [19] I. Lengyel, G. Rabai, I.R. Epstein, *J. Am. Chem. Soc.*, **112** (1990) 4606.

- 
- [20] I. Lengyel, G. Rabai, I.R. Epstein, *J. Am. Chem. Soc.*, **112** (1990) 9104.
- [21] G. Nicolis, I. Prigogine, *J. Chem. Phys.*, **48** (1968) 1665.
- [22] G. Nicolis, I. Prigogine, *Self-Organization in Nonequilibrium System*, John Wiley, New York (1977).
- [23] A.C. Newell, J.A. Whitehead, *J. Fluid Mech.*, **38** (1969) 279.
- [24] P. Manneville, *Dissipative Structures and Weak Turbulence*, Academic Press, San Diego (1990).
- [25] F. H. Busse, R.M. Clever, *J. Fluid Mech.*, **91** (1979) 319.
- [26] B. Echebarria, C. Pérez-García, *Europhys. Lett.*, **43** (1998) 35.
- [27] B. Echebarria, *Inestabilidades termocapilares en una capa de fluido*, Tesis doctoral, Universidad de Navarra (1998).
- [28] Q. Ouyang, H.L. Swinney, *Nature*, **352** (1991) 610.
- [29] M. Assenheimer, V. Steinberg, *Phys. Rev. Lett.*, **76** (1996) 756.
- [30] E. Dulos, P. Davies, B. Rudovics, P. De Kepper, *Physica D*, **98** (1996) 53.
- [31] R. Hoyle, *Appl. Math. Lett.*, **9** (1995) 81.
- [32] L.D. Landau, E.M. Lifshitz, *Teoría de la elasticidad*, Ed. Reverté, Barcelona (1969).
- [33] S. Zaleski, *Stabilité et modes de diffusion des structures hors d'équilibre*. Thèse 3ème Cycle, Université de Paris VI (1980).
- [34] J.D. Murray, *Mathematical Biology*, Springer Verlag, Berlin (1989).
- [35] S. Setayeshgar, M.C. Cross, *Phys. Rev E*, (1998) 4485.
- [36] V. Dufiet, J. Boissonade, *Phys. Rev. E*, **53** (1996) 4883.
- [37] V. Dufiet, J. Boissonade, *Physica A*, **188** (1992) 158.
- [38] E. Mosekilde, F. Larsen, G. Dewel, P. Borckmans, *Inter. J. of Bif. and Chaos*, **8** (1998) 1003.