

Mini-Projet : Ondes progressives et ondes spirales dans des milieux excitables : Belousov-Zhabotinsky

Élèves : Thomas Bellotti / Olivier Levillain
Référent : Laurent Séries

1 Mise en contexte

On s'intéresse dans ce mini-projet à l'analyse et à la simulation d'ondes progressives et d'ondes spirales pour la réaction de Belousov-Zhabotinsky.

Cela permettra notamment de voir comment ce phénomène d'ondes progressives d'adapte à un système plus raide.

Par ailleurs, nous allons utiliser des méthodes dites de *splitting* pour la simulation de ce système. Nous essaierons de voir en quoi ces méthodes peuvent permettre une amélioration du temps de calcul tout en restant fidèle au système.

Dans la suite, nous noterons $a = [\text{Ce(IV)}]$, $b = [\text{HBrO}_2]$ et $c = [\text{Br}^-]$ la concentration des trois espèces prises en compte dans le modèle détaillé par [3] et [4].

Le système peut alors s'écrire :

$$\begin{cases} \partial_t a - D_a \Delta a &= \frac{1}{\mu}(-qa - ab + fc), \\ \partial_t b - D_b \Delta b &= \frac{1}{\epsilon}(qa - ab + b(1 - b)), \\ \partial_t c - D_c \Delta c &= b - c, \end{cases} \quad (1)$$

avec D_a , D_b , D_c les coefficients de diffusion, f positif, q positif et petit et $\mu \ll \epsilon \ll 1$.

On adaptera dans la suite ce système à la dimension de l'espace considéré ou en le simplifiant.

Pour les simulations, on réalisera une intégration quasi-exacte avec une méthode complètement implicite de RADAU5. Les autres simulations seront réalisées avec une méthode de RADAU5 pour la partie réaction et une méthode explicite ROCK4 pour la partie diffusion.

2 Ondes progressives pour la réaction de BZ en 1D

Sachant que le système (1) est très raide, on considère d'abord le système réduit à deux équations, qui s'obtient en éliminant la première équation, suivant les travaux de [5] et on le considère en une dimension d'espace. On obtient ainsi le système suivant :

$$\begin{cases} \partial_t b - D_b \partial_{xx} b &= \frac{1}{\epsilon} \left(b - b^2 + f c \frac{q-b}{q+b} \right), \\ \partial_t c - D_c \partial_{xx} c &= b - c, \end{cases} \quad (2)$$

2.1 Solution de référence

Afin d'avoir une solution à laquelle comparer nos simulations avec méthodes de *splitting*, nous avons réalisé une intégration dite quasi-exacte en utilisant uniquement la méthode implicite d'ordre 5 RADAU5 avec une tolérance de 10^{-9} .

Comme solution initiale, on utilise celle décrite dans les travaux de Max Duarte [2]. Et on prend :

$$t_0 = 0 \quad x_{min} = 0 \quad x_{max} = 4 \quad N_x = 4001 \quad tol = 10^{-9}.$$

On obtient ainsi la propagation suivante pour les temps suivants :

$$T \in \{0, 0.5, 1.0, 1.5, 2.0, 2.5, 3.0, 3.5, 4.0\}.$$

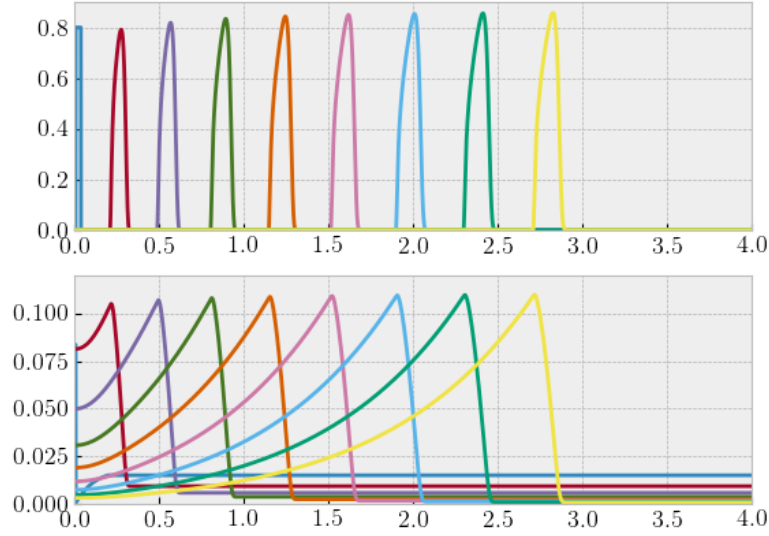


FIGURE 1 – Propagation de référence calculée avec l'intégrateur RADAU5 et une tolérance de 10^{-9} . En haut, la quantité b , en bas la quantité c

Cette condition initiale permet donc effectivement de faire propager une onde le long des x croissants.

2.2 Méthode de *splitting* et valeur de la vitesse

On simule maintenant la propagation en utilisant le *splitting* de Strang en commençant et en finissant par le problème le plus raide de réaction. Il s'agit notamment d'une donnée initiale discontinue (ce sont des créneaux), qui peut donc engendrer plusieurs problèmes au niveau de la convergence, surtout pour les temps petits.

On prend :

$$t_0 = 0 \quad T = 2.0 \text{ s} \quad x_{min} = 0 \quad x_{max} = 4 \quad N_x = 4001 \quad tol = 10^{-6}.$$

On calcule pour différent pas de temps, à savoir $N_t \in \{51, 101, 201, 501, 1001, 2001\}$. On considère une solution pseudo-exacte de référence en utilisant la méthode RADAU5 avec une tolérance de 10^{-9} . Le choix de tolérance, que ce soit pour la solution numérique ou pour celle de référence, a été fait en fonction du constat suivant : si l'on est trop indulgent à cet égard, le pas de *splitting* utilisé par RADAU5 devient trop petit, en donnant lieu à une erreur.

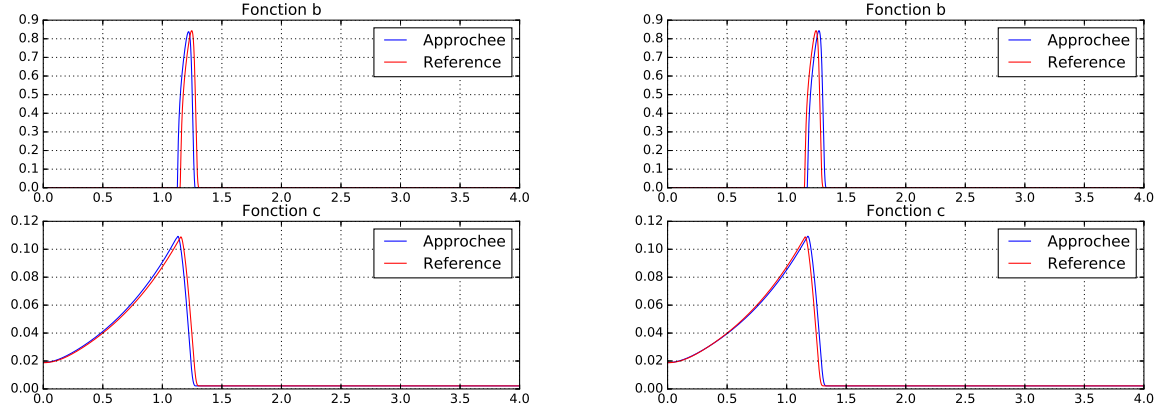


FIGURE 2 – Comparaison entre la solution pseudo-exacte et la solution approché pour $N_t = 51$ (gauche) et $N_t = 101$ (droite).

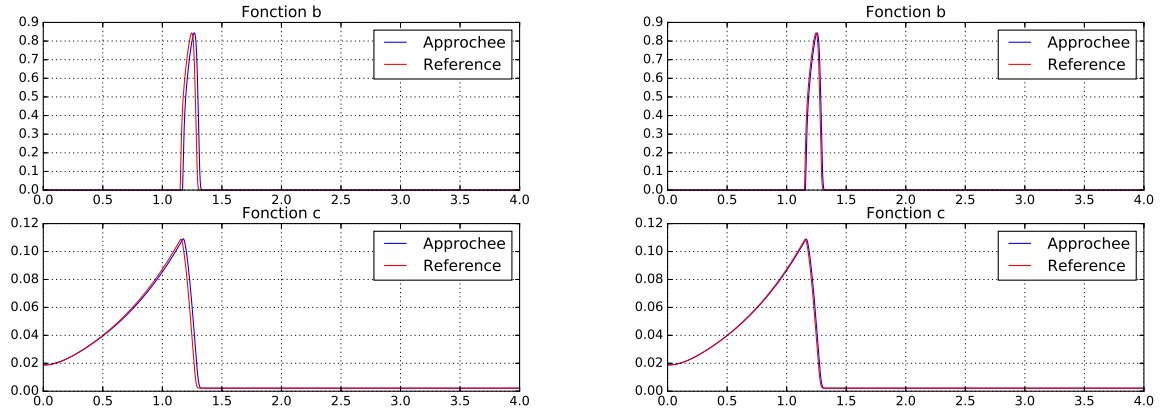


FIGURE 3 – Comparaison entre la solution pseudo-exacte et la solution approché pour $N_t = 201$ (gauche) et $N_t = 501$ (droite).

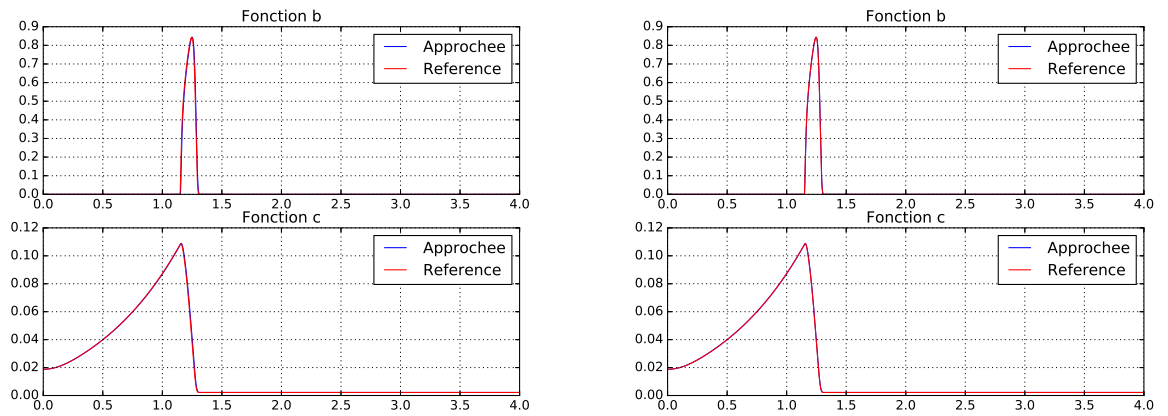


FIGURE 4 – Comparaison entre la solution pseudo-exacte et la solution approché pour $N_t = 1001$ (gauche) et $N_t = 2001$ (droite).

Les résultats du calculs sont affichés en figure 2, 3 et 4.

On voit un changement de comportement assez important en figure 3, car en passant de $N_t = 201$ à $N_t = 501$, la solution devient beaucoup plus précise par rapport à celle de référence.

Par conséquent, on voit bien l'intérêt d'analyser ce qui se passe en choisissant $N_t \in [201, 501]$.

Pour plus de précisions, on prend désormais :

$$N_t \in \{51, 101, 201, 251, 301, 351, 401, 451, 501, 1001, 2001, 3501, 5001, 10001\}$$

avec toujours les mêmes paramètres de tolérance et de temps final, et on trace l'évolution de la vitesse de l'onde en fonction du pas de temps.

L'objectif de cette démarche est de trouver précisément à partir de quel pas de temps de *splitting* il n'est plus possible de calculer correctement la vitesse de propagation de l'onde.

Pour déterminer cette vitesse, nous avons utilisé l'amplitude du déplacement de la crête de la quantité b par rapport au temps écoulé. La condition initiale sur b étant un créneau, nous avons étudié l'évolution pour des temps très courts du système. Pour des temps de l'ordre de $T \in [0.001, 0.005]$, nous observons que le créneau se lisse et que c'est le milieu du créneau qui devient ensuite la crête qui se déplace.

On peut ainsi calculer la vitesse de propagation de l'onde et cela donne :

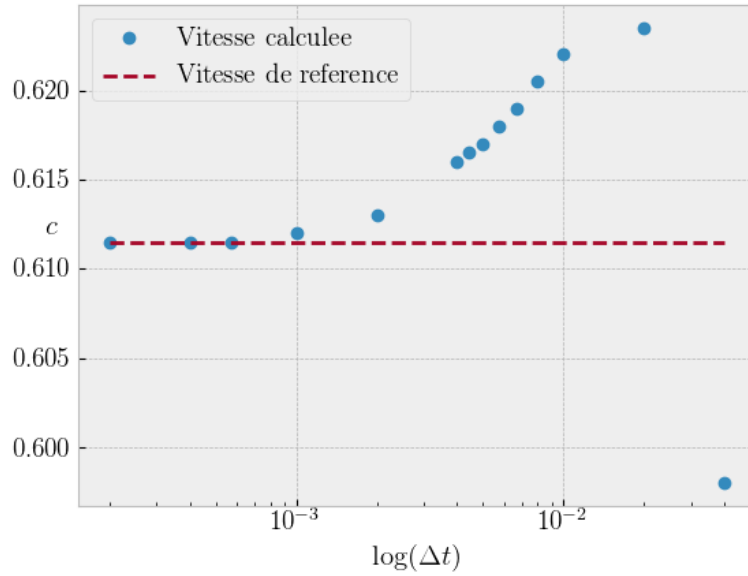


FIGURE 5 – Vitesse de l'onde calculée en fonction du pas de temps

On remarque donc un net décrochage pour $\Delta t_{splitting} > 4 \cdot 10^{-3}$ ce qui correspond à $N_t = 501$. Cependant, de manière plus fine, on remarque qu'une erreur sur la vitesse émerge dès $\Delta t_{splitting} > 10^{-3}$, c'est-à-dire pour $N_t \leq 2001$.

2.3 Diagrammes d'ordre

On s'intéresse à l'ordre de la méthode de *splitting* employée. On s'attend à une erreur globale qui a asymptotiquement un ordre 2, quand on considère une erreur de *splitting* pure. Comme les autres méthodes sont d'ordre 4 et 5, on garde la tolérance à 10^{-6} pour effectuer le calcul d'erreur.

En effectuant toujours les simulations pour

$$N_t \in \{51, 101, 201, 251, 301, 351, 401, 451, 501, 1001, 2001, 3501, 5001, 10001\}$$

on obtient le diagramme d'ordre suivant :

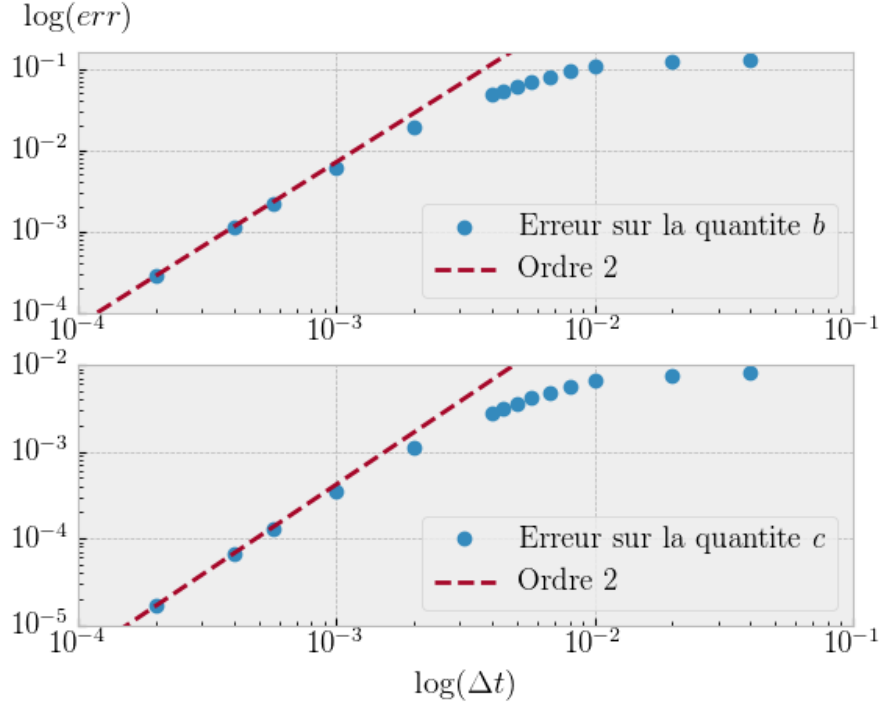


FIGURE 6 – Diagramme d'ordre pour le schéma de Strang appliqué au cas de Belousov-Zhobotinsky

On observe, comme prévu, que la méthode a un ordre asymptotique de 2 par rapport au pas de temps de *splitting*.

On souhaitait ensuite mettre en une lumière une éventuelle différence entre les deux formulations de Strang. En effet si on note \mathcal{D} l'opération de diffusion et \mathcal{R} celle de réaction, en notant $\mathbf{U} = \begin{pmatrix} b \\ c \end{pmatrix}$, alors on a :

$$\partial_t \mathbf{U} = \mathcal{D}(\mathbf{U}) + \mathcal{R}(\mathbf{U}) \quad (3)$$

La méthode de *splitting* consiste donc à faire successivement la résolution du système de diffusion seul et la résolution du système de réaction seul. Plus précisément, la méthode de Strang utilisé jusqu'à maintenant consistait à faire, en notant $\mathfrak{D}_t(\mathbf{U})$ l'intégration du système de diffusion sur le vecteur \mathbf{U} pour un temps t et $\mathfrak{R}_t(\mathbf{U})$ celle du système de réaction :

$$\mathbf{U}^{n+1} = \mathfrak{R}_{1/2\Delta t}(\mathfrak{D}_{\Delta t}(\mathfrak{R}_{1/2\Delta t}(\mathbf{U}^n))) \quad (4)$$

Comme énoncé plus haut, nous commençons et finissons par la partie la plus raide, à savoir la réaction.

Nous avons réalisé en comparaison l'intégration du système en utilisant l'autre formule de Strang :

$$\mathbf{U}^{n+1} = \mathfrak{D}_{1/2\Delta t}(\mathfrak{R}_{\Delta t}(\mathfrak{D}_{1/2\Delta t}(\mathbf{U}^n))) \quad (5)$$

et on obtient le diagramme d'ordre suivant :

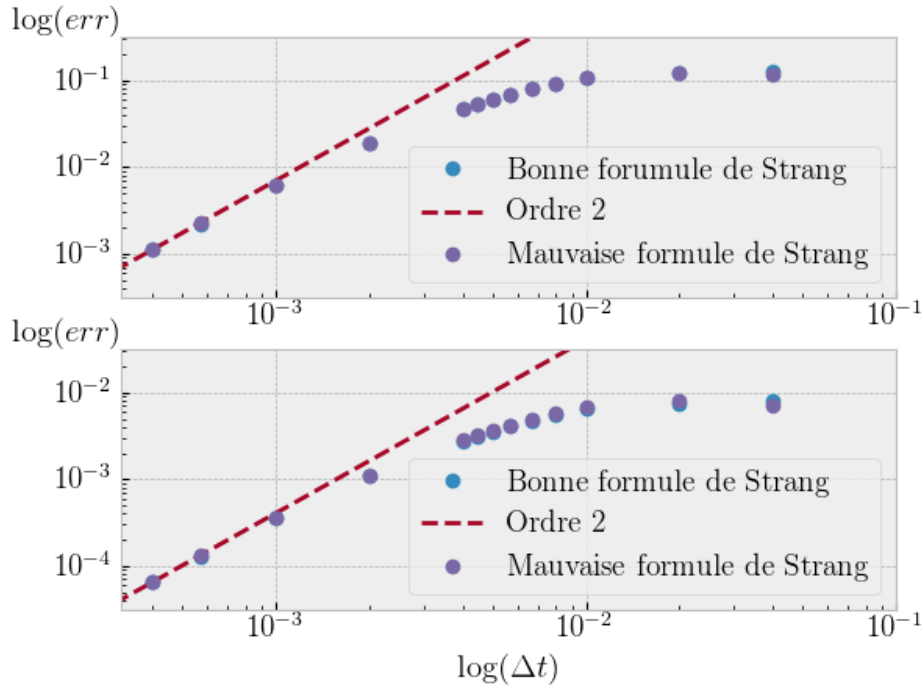


FIGURE 7 – Diagramme d'ordre pour les deux schémas de Strang

On distingue difficilement les deux diagrammes car ils sont très semblables. Nous nous attendions à une perte d'ordre dans le cadre de la seconde formulation de Strang car dans le cas où les deux parties ont des raideurs distinctes, terminer par la moins raide engendre une perte d'ordre.

Cependant, comme nous avons considéré jusqu'à présent le système à deux équations, la raideur de la partie réaction n'est pour l'instant pas complètement atteinte. Ainsi, les deux parties réaction et diffusion n'ont pas des raideurs si différentes que ça l'une de l'autre et ceci explique que les erreurs dues au *splitting* soient si semblables.

2.4 Avantages de cette stratégie

Si on réalise l'intégration de tout le système (réaction et diffusion) avec une méthode RADAU5 avec une tolérance fixée, cela prend le même temps qu'avec la méthode de *splitting* avec la même tolérance pour $\Delta t_{splitting} \simeq 0.003$ et 2 équations et est nettement plus précis.

Cependant, procéder de cette manière ne fonctionne qu'en programmation séquentielle puisqu'à chaque pas de temps, il faut prendre les 2 ou 3 variables de tous les points de discrétisation spatiale en compte pour ensuite résoudre le système non linéaire total.

Ainsi, le véritable avantage de cette méthode se révèle dans la possibilité de la paralléliser.

Plus précisément, l'intégration de la partie réaction dans le cas avec *splitting* repose sur N_x intégrations point par point avec RADAU5 en résolvant un système non-linéaire de taille 2 ou 3. Il n'y a que l'intégration de la partie diffusion qui rassemble toutes les variables, mais celle-ci se fait avec une méthode explicite, donc ne nécessite pas la résolution d'un système.

Pour pouvoir quantifier précisément le temps pouvant être gagné en parallélisant, on a mesuré

les proportions du temps passé par cet intégrateur sur les intégrations avec RADAU5 (parallélisable) et sur les intégrations avec ROCK4 (non parallélisable). On obtient alors la figure suivante.

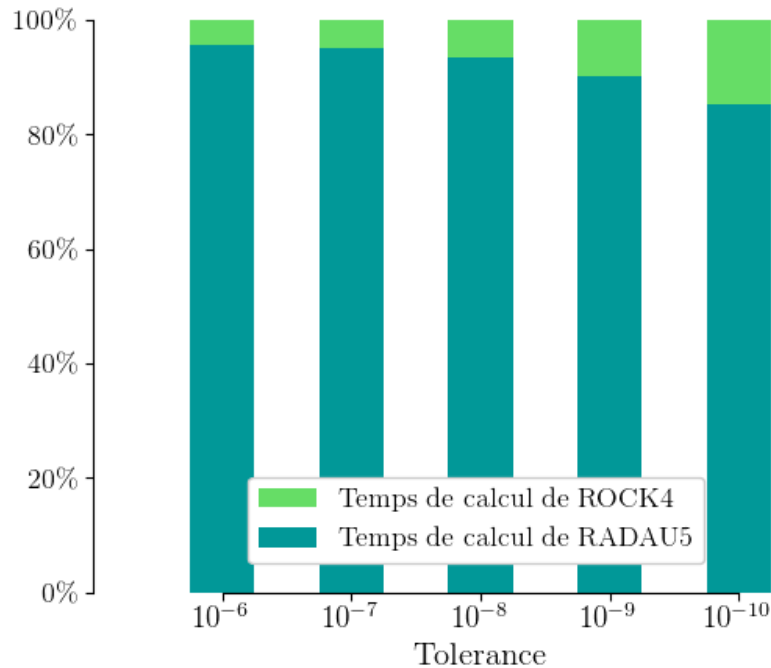


FIGURE 8 – Proportions de temps de calcul entre ROCK4 et RADAU5 pour différentes tolérances

On observe que la proportion de temps passé à intégrer la partie non parallélisable (ROCK4) croît quand la tolérance devient plus stricte. Cependant, cela reste toujours sous les 20%.

Ainsi on peut en conclure qu'il est possible de paralléliser plus de 80% du calcul (voire plus si on ne garde pas des tolérances absurdement grandes de 10^{-10}).

Tout l'avantage de cette méthode de *splitting* réside dans cette remarque puisqu'elle la rend ainsi viable dans des processus industriels et dans des calculs à très grande échelle, comme des calculs sur des volumes tridimensionnels.

2.5 Système à 3 équations

Les intégrations du système à 3 équations, même en 1D, prenaient trop de temps pour les effectuer systématiquement. Ainsi, nous n'avons pas pu mener d'études semblables au système à 2 équations. On constate ces difficultés lors de la résolution de ce système, qui présente une grande raideur. Cela se voit en comparant une solution dite de référence obtenue par la méthode de RADAU5 avec celle issue du splitting de Strang.

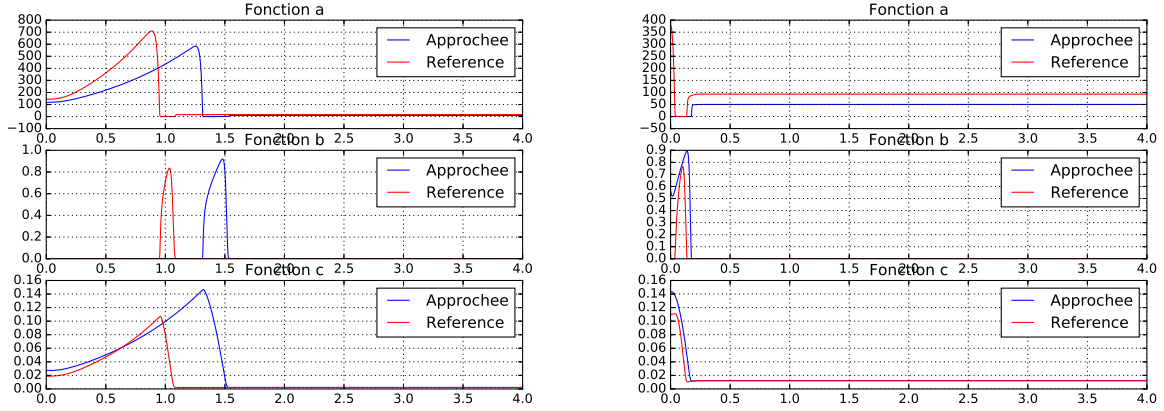


FIGURE 9 – Comparaison entre la solution pseudo-exacte et la solution approché pour le système à trois équations. A gauche, simulation avec $T = 2$ s et $N_t = 2001$ et a droite avec $T = 0.2$ s et $N_t = 51$.

On remarque que dans le deux cas la vitesse de propagation obtenue par splitting n'est pas du tout la même que l'on trouve pour la solution de référence, et on assiste à une déformation du front de l'onde.

Cela est le signe qu'il y a certainement un problème avec ce type de simulation, que ce soit une erreur dans le code ou un manque de précision de la méthode employée.

Références

- [1] S. Descombes, T. Dumont, and M. Massot. Operator splitting for stiff nonlinear reaction-diffusion systems : Order reduction and application to spiral waves. *Pattern and Waves*, pages 386–482, 2003.
- [2] Max Pedro Duarte. *Méthodes numériques adaptives pour la simulation de la dynamique de fronts de réaction multi-échelle en temps et en espace*. PhD thesis, 2011. Thèse de doctorat dirigée par Massot, Marc Energétique et mathématiques appliquées Châtenay-Malabry, Ecole centrale de Paris 2011.
- [3] R.J. Field, E. Koros, and R.M. Noyes. Oscillations in chemical systems. ii. Thorough analysis of temporal oscillation in the bromate-cerium-malonic acid system. *Journal of the American Chemical Society*, 94(25) :8649–8664, 1972.
- [4] P. Gray and S.K. Scott. *Chemical Oscillations and Instabilities*. Oxford University Press, 1994.
- [5] W. Jahnke, W.E. Skaggs, and A.T. Winfree. Chemical Vortex Dynamics in the Belousov-Zhabotinsky Reaction and in the Two-Variable Oregonator model. *The Journal of Physical Chemistry*, 93(2) :740–749, 1989.