

Super-réseaux et quasi-cristaux dans les systèmes bistables

Guy DEWEL^a, Mustapha BACHIR^a, Pierre BORCKMANS^a, Stephane MÉTENS^b

^a Service de chimie-physique and Center for Nonlinear Phenomena and Complex Systems, C.P. 231, Université Libre de Bruxelles, 1050 Bruxelles, Belgium

^b Laboratoire de physique théorique de la matière condensée, case postale 7020, université Denis-Diderot, Paris 7, 2, place Jussieu, 75231 Paris cedex 05, France
Courriel : pborckm@ulb.ac.be

(Reçu le 25 janvier 2001, accepté le 16 février 2001)

Résumé. Nous étudions la formation de structures spatiales engendrées par des instabilités diffusives dans des systèmes bistables. On montre que l'interaction entre les différents modes spatiaux issus des deux branches d'états homogènes peut donner naissance à des instabilités paramétriques intrinsèques qui favorisent l'apparition de motifs quasipériodiques stables comme des super-réseaux ou des structures quasi-cristallines. © 2001 Académie des sciences/Éditions scientifiques et médicales Elsevier SAS

instabilité diffusive / bistabilité / sélection des motifs / structures quasipériodiques

Superlattice structures and quasipatterns in bistable systems

Abstract. We describe the formation of spatial structures generated by diffusive instabilities in bistable systems. It is shown that the coupling between the different spatial modes emanating from the two homogeneous states can give rise to self-parametric instabilities favoring the occurrence of resonant quasiperiodic structures such as superlattices or quasipatterns. © 2001 Académie des sciences/Éditions scientifiques et médicales Elsevier SAS

diffusive instability / bistability / pattern selection / quasiperiodic structures

Abridged English version

Diffusive instabilities have proved to be a major pattern forming mechanism in physico-chemical systems [1]. In this framework the experimental realisation of stationary periodic chemical structures in gel reactors presents great interest owing to its potential biological morphogenetic implications [2,3]. Various experimental and numerical works have now also been devoted to the study of the selection of such structures in systems that further exhibit the phenomenon of bistability between homogeneous steady states [4]. Bistability often occurs through two back-to-back saddle node bifurcations linked through their unstable manifold. In this case, Turing instabilities can appear on both the upper and lower homogeneous branches (*figure 1*). In general, the corresponding critical wavenumbers q_c^u and q_c^l are different, generating two critical circles respectively of radius q_c^u and q_c^l , in spatially extended 2D systems. We show that the interaction between these two families of spatial modes can give rise to nontrivial resonant patterns through the coupling with the homogeneous mode activated by the formation of the bistable situation. In a previous work [5], we have studied the formation of stable rhombic patterns that have been observed

Note présentée par Yves POMEAU.

in the experiments on the chlorite–iodide–malonic acid reaction [6]. In this note we rather consider quasiperiodic structures, either superlattices with order on two disparate length scales or quasipatterns which have rotational symmetry but are spatially aperiodic [7]. Such structures have been obtained previously through the Faraday instability forced with two frequencies [8,9], or the dispersive instability in nonlinear optics [10], or else a combination of the Bénard and Faraday instabilities [11]. Contrary to the reaction–diffusion case, in these parametric instabilities, the dynamical component plays an important role in the selection mechanism as it imposes further resonance conditions on the frequencies [12], besides that on the wavenumbers. Reaction–diffusion systems generically present quadratic nonlinearities (bimolecular reactions). These terms then induce resonant couplings between three different spatial modes. One can distinguish two types of such triads: the equilateral triangles, associated with the ubiquitous hexagonal patterns, arising from either the upper or lower instabilities, and the two isosceles triangles, which combine spatial modes issuing from the two instabilities to produce rhombic patterns. These triangles, furthermore provide the building blocks for the construction of more complex quasiperiodic structures. In this framework we have identified a series of stable generic patterns. In Fourier space they are characterized by 18 wavevectors disposed on the two critical circles that form, as shown in (*figure 2*), an equilateral triangle decorated by isosceles triangles. Varying the summit angle of the vectors in the isosceles triangles, one generates a sequence of superlattice structures (*figure 3*). For $\theta < \pi/3$, the corresponding Fourier spectrum presents two stars: one of 6 vectors symmetrically arranged on the circle of radius q_c^u and another containing 12 vectors on the other critical circle of radius q_c^l in such a way as to favor resonant interactions between both sets of modes. When $\theta > \pi/3$ the situation is inverted. For $\theta = \pi/6$ a long lived quasicrystalline structure is observed that eventually goes into an hexagonal pattern (*figure 4*). As usual for resonant patterns, their stability is determined by the relative strength of the quadratic and cubic mode interactions in the amplitude equations. The sum of the phases of modes intervening in triangles adjusts to favor the selection of resonant structures. Furthermore, in reaction–diffusion systems the cubic self-coupling is smaller than the intermode coupling thereby finally promoting the formation of stripes [13]. Because of the important role played by the homogeneous mode the selection mechanism for quasiperiodic structures presented here never reduces to scenarios deduced previously in the study of artificial models [14, 15]. The results derived from the coupled nonlinear amplitude equations for the spatial modes, including the contributions of the homogeneous mode related to bistability, have been tested by numerically integrating an asymmetric variant of the FitzHugh-Nagumo model (equations (2) and (3)) in regions of parameter space where the homogeneous steady states are destabilized by differential diffusion. Similar results have also been obtained with other reactive systems. For instance, if one includes mechano–chemical effects, one may produce a dispersion curve with two minima. This model then gives rise to super-lattices analogue to those observed on some reptilian skins [16]. Previously analyzed quasiperiodic patterns in reaction–diffusion systems presenting a sole Turing bifurcation [17] were the result of the existence of interference between the wavenumber related to the instability and the characteristic, but artificial, lattice constant introduced to perform the equivariant bifurcation theory. As a conclusion, we have shown that asymmetric reaction–diffusion systems exhibit the two essential ingredients for the formation of superlattices or quasicrystalline structures: quadratic nonlinear mode couplings allowing strong resonances and two natural wavelengths associated with the two existing diffusive instabilities. Because of the intrinsic character of these wavelengths, the origin of the complex structures we have obtained differs radically from the previously studied examples [8–11].

L'instabilité diffusive qui résulte du couplage entre une cinétique chimique autocatalytique et un processus de diffusion différentiel fournit un mécanisme important de formation de motifs intrinsèques dans les systèmes physico-chimiques [1]. Dans ce cadre, la réalisation expérimentale de structures de Turing

Figure 1. États stationnaires homogènes du modèle de FitzHugh-Nagumo (FHN) (cf. équations (2) et (3)) dans la région de bistabilité. La concentration de l'activateur est représentée en fonction du paramètre de bifurcation a . Les seuils des instabilités de Turing sur les deux branches du bistable sont dénotés par a_u^T et a_l^T .

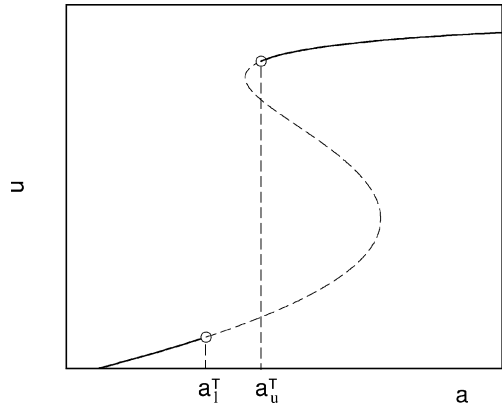


Figure 1. Homogeneous steady states of the FHN model (cf. equations (2) and (3)) in the bistability domain. The concentration of the activator is plotted versus the bifurcation parameter a . The thresholds of the Turing instabilities on the two homogeneous branches of the system are denoted by a_u^T and a_l^T .

stationnaires dans des réacteurs gel a suscité un très grand intérêt motivé par l'importance potentielle de ce phénomène en morphogénèse [2,3]. Plus récemment, plusieurs travaux expérimentaux et numériques ont considéré la formation de structures diffusives dans des systèmes qui présentent également le phénomène de bistabilité entre états stationnaires homogènes (ESH) [4]. Dans ce cas, des instabilités de Turing peuvent apparaître sur chacune des branches du bistable et les nombres d'onde correspondant (q_c^u et q_c^l) sont en général différents. Comme le montre la *figure 1*, le seuil de cette instabilité s'approche le plus de la limite d'hystérèse dont la courbure est la plus grande. Par conséquent, les nombres d'onde critiques correspondant (q_c^u et q_c^l) sont en général différents dans les systèmes bistables asymétriques.

Dans cette Note, nous montrons que l'interaction entre ces deux familles de modes peut donner naissance à des structures résonnantes non triviales. Nous avons décrit précédemment [5] la formation de structures rhombiques qui ont été observées dans les expériences sur la réaction chlorite-iodure-acide malonique [6]. Nous nous intéressons ici plus particulièrement à des motifs plus complexes comme les structures en super-réseaux qui présentent un ordre spatial à deux échelles de longueurs différentes ou encore des structures quasi-cristallines qui ne sont pas périodiques dans l'espace mais présentent un ordre orientationnel [7]. De telles structures dynamiques ont été observées dans les expériences sur l'instabilité de Faraday à deux fréquences [8,9]; l'instabilité dispersive en optique nonlinéaire [10] ou encore une combinaison entre les instabilités de Bénard et de Faraday [11]. Dans ces instabilités paramétriques, la composante dynamique joue un rôle important dans le mécanisme de sélection en imposant une condition supplémentaire de résonance sur les fréquences [12]. Nous déterminons ci-dessous les conditions qui favorisent l'apparition de tels motifs quasipériodiques stationnaires dans les systèmes chimiques bistables.

Les instabilités diffusives apparaissant sur chacun des ESH interagissent généralement avec les bifurcations noeud-col homogènes qui déterminent les limites du domaine bistable. Il faut donc tenir compte du mode homogène qui devient marginalement stable aux limites d'hystérèse afin d'obtenir une description globale du développement des structures dans de tels modèles bistables [4]. Dans les systèmes spatialement étendus, l'isotropie du réacteur entraîne l'existence de deux cercles de vecteurs d'onde critiques, respectivement de rayon q_c^u et q_c^l . Le vecteur de concentration c peut alors s'écrire sous la forme :

$$c(\mathbf{r}, t) = e_1 A_0(t) + e_2 \sum_j^{m_l} A_j(t) \exp[i\mathbf{q}_j^l \cdot \mathbf{r}] + e_3 \sum_k^{m_u} B_k(t) \exp[i\mathbf{q}_k^u \cdot \mathbf{r}] \quad (1)$$

où A_0 est l'amplitude du mode homogène et $|\mathbf{q}_j^l| = q_c^l$ et $|\mathbf{q}_k^u| = q_c^u$. Les coefficients e_i sont les vecteurs propres de la matrice Jacobienne correspondante. Dans cette description, les structures sont donc caractérisées par deux étoiles de vecteurs, une sur chacun des cercles critiques. En appliquant la procédure

standard, on peut dériver à partir d'un modèle donné des équations d'amplitude décrivant la compétition entre ces modes [5].

De manière générale, les systèmes chimiques présentent des nonlinéarités quadratiques résultant de réactions bimoléculaires (autocatalyse quadratique). Ces termes engendrent alors dans les équations d'amplitude des couplages entre trois modes différents. On peut distinguer deux types de triades résonnantes : (i) les triangles équilatéraux : $q_1^i + q_2^i + q_3^i = 0$ ($i = u$ ou l) qui sont associés aux structures hexagonales; (ii) les triangles isocèles $q_1^i + q_2^j + q_3^j = 0$ ($i = u; j = l$ ou $i = l$ et $j = u$) qui sont à l'origine de la formation des rhombes précités. Ces triangles fournissent alors les briques élémentaires pour la construction de structures plus complexes. Dans ce cadre, nous avons par exemple identifié une série

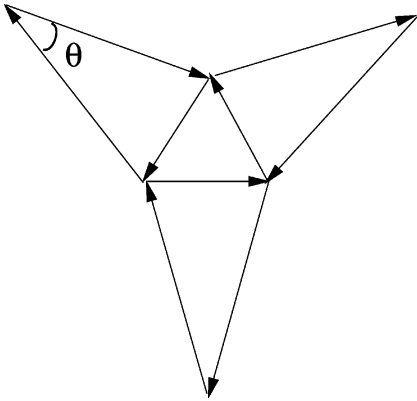
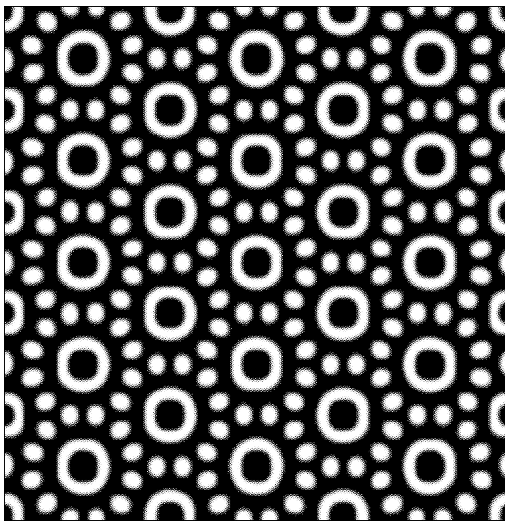
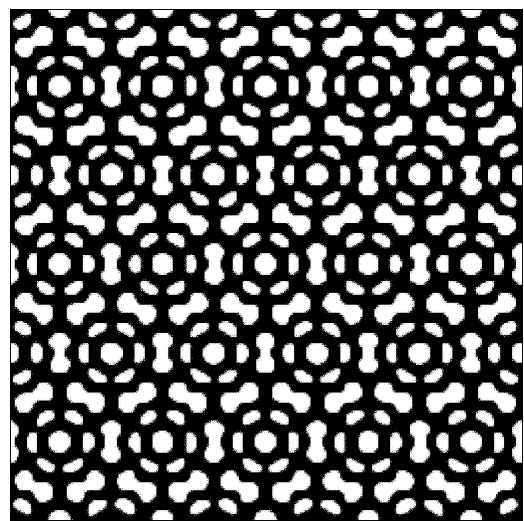


Figure 2. Combinaisons résonnantes de vecteurs critiques différents donnant naissance dans l'espace réel à une séquence de structures en super-réseaux lorsqu'on fait varier le rapport entre les deux longueurs caractéristiques.

Figure 2. Resonant combination of different critical wavevectors giving rise in real space to a sequence of superlattice patterns when the ratio between the characteristic lengths is varied.



(a)



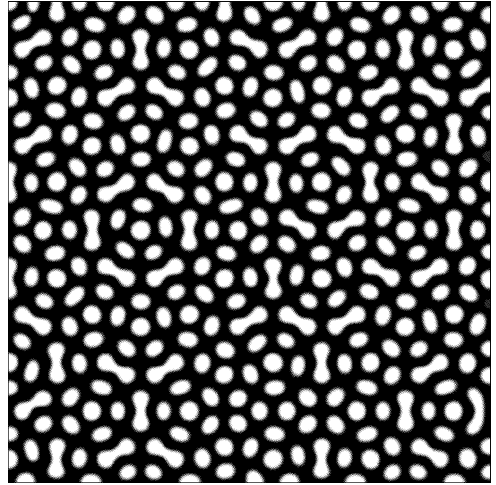
(b)

Figure 3. Exemples de structures en super-réseaux obtenues en résolvant numériquement le modèle FHN. Comme dans la figure 2, elles sont caractérisées par neuf paires de vecteurs critiques différents : (a) l'angle θ entre les deux côtés égaux des triangles isocèles est inférieur à $\pi/3$; (b) l'angle θ est supérieur à $\pi/3$.

Figure 3. Examples of superlattice patterns obtained by solving numerically the FHN model. As in figure 2, they are characterized by nine pairs of different critical wavevectors: (a) the angle between the two equal sides of the isosceles triangles is smaller than $\pi/3$; (b) θ is larger than $\pi/3$.

Figure 4. Structure quasi-cristalline à grande durée de vie obtenue en intégrant numériquement le modèle de FHN. Dans l'espace de Fourier, elle est caractérisée par deux étoiles, l'une de six vecteurs de longueur q_c^u , l'autre de douze vecteurs q_c^l répartis de manière symétrique sur les deux cercles critiques.

Figure 4. Long-lived quasipatterns obtained by integrating numerically the FHN model. In Fourier space, it is characterized by two stars of wavevectors: one of six vectors of length q_c^u and the other of twelve vectors q_c^l symmetrically distributed on the two critical circles.



de motifs stables qui présentent un caractère générique. Dans l'espace de Fourier, ils sont caractérisés par 18 vecteurs critiques qui peuvent former comme dans la *figure 2*, un triangle équilatéral décoré par des triangles isocèles. En faisant varier l'angle θ entre les deux côtés égaux des triangles isocèles, on engendre une séquence de structures en super-réseaux (cf. *figures 3a* et *3b*). Lorsque θ est inférieur à $\pi/3$, le spectre de Fourier correspondant présente deux étoiles ; une de 6 vecteurs répartis symétriquement sur le cercle de rayon q_c^u et une autre de 12 vecteurs de rayon q_c^l orientée de telle manière à favoriser les interactions résonnantes entre ces deux familles. La situation est inversée lorsque $\theta > \pi/3$. En $\theta = \pi/6$, on observe une structure quasicristalline instable (*figure 4*) qui présente un temps de vie très long avant de transiter vers une structure de symétrie hexagonale. La stabilité de ces motifs est déterminée par l'importance relative des couplages quadratiques et cubiques apparaissant dans les équations d'amplitude. En effet, la somme des phases des modes formant les triangles s'ajuste de manière à sélectionner les structures résonnantes. D'autre part, dans les systèmes de réaction-diffusion, le couplage cubique entre modes différents est généralement plus grand que le couplage diagonal (interaction non-distributive) ; ce qui favorise l'apparition de bandes [13]. Parce que le mode homogène y joue un rôle important, ce mécanisme de sélection de structures quasipériodiques ne peut se ramener aux scénarios déduits précédemment de l'étude de modèles artificiels [14,15].

Les images présentées dans la *figure 3* ont été obtenues en intégrant numériquement une variante du modèle de FitzHugh-Nagumo définie par les équations suivantes :

$$\partial_t u = u - u^3 + \beta uv - v + \nabla^2 u \quad (2)$$

$$\partial_t v = \epsilon [\gamma u - v - a] + d \nabla^2 v \quad (3)$$

où $d = D_v/D_u$ et $\epsilon = \tau_u/\tau_v$ sont respectivement le rapport des coefficients de diffusion et des temps de relaxation de l'activateur u et de l'inhibiteur v . Les paramètres de contrôle a , γ (> 0) et β (> 0) ont été choisis de manière à produire un système bistable dont les ESH sont déstabilisés par un processus de diffusion différentielle. Des résultats semblables ont également été obtenus dans d'autres modèles de réaction-diffusion. En incluant par exemple les effets mécano-chimiques dans un modèle qui présente une instabilité diffusive, on peut engendrer une courbe de dispersion qui présente deux minima différents ; une simulation numérique de ce modèle produit alors des motifs en super-réseaux analogues à ceux observés sur la peau de certains reptiles [16].

En conclusion, nous avons montré que les systèmes bistables asymétriques possèdent les deux ingrédients essentiels à la formation de super-réseaux et de structures quasi-cristallines : à savoir la présence de nonlinéarités quadratiques favorisant l'apparition de triades résonnantes et l'existence de deux nombres

d'onde critiques différents associés aux deux instabilités diffusives apparaissant sur les ESH. Certains auteurs ont appliqué la théorie équivariante des bifurcations à l'étude des structures quasi-périodiques induites par une seule bifurcation de Turing (λ_c) [17]. Dans ce formalisme, on cherche les solutions structurées sur un réseau bidimensionnel. La longueur d'onde de ce réseau est choisie ($\lambda \neq \lambda_c$) de manière à pouvoir accueillir des structures de symétrie donnée. La deuxième longueur est donc dans ce cas introduite de manière artificielle.

Les structures complexes décrites dans cette note sont engendrées par des instabilités paramétriques intrinsèques contrairement aux exemples étudiés en optique nonlinéaire ou dans le cas de l'instabilité de Faraday où c'est le forçage périodique extérieur qui fixe les deux longueurs caractéristiques.

Remerciements. G.D. et P.B. sont chercheurs qualifiés auprès du F.N.R.S (Belgique). M.B. remercie la direction de l'enseignement supérieur (Maroc) et la fondation Universitaire D. et A. Van Buuren (Belgique) pour leur soutien financier.

Références bibliographiques

- [1] Walgraef D., Spatio-Temporal Pattern Formation, Springer, Berlin, 1996.
- [2] Castets V., Dulos E., Boissonade J., De Kepper P., Experimental evidence of a sustained standing Turing-type nonequilibrium chemical pattern, *Phys. Rev. Lett.* 64 (1990) 2953–2956.
- [3] Ouyang Q., Swinney H.L., Transition from a uniform state to hexagonal and striped Turing patterns, *Nature* 352 (1991) 610–612.
- [4] Métens S., Dewel G., Borckmans P., Engelhardt, Pattern selection in bistable systems, *Europhys. Lett.* 37 (1997) 109–114.
- [5] Bachir M., Métens S., Borckmans P., Dewel G., Formation of rhombic and superlattice patterns in bistable systems, *Europhys. Lett.* 54 (2001).
- [6] Ouyang Q., Gunaratne G.H., Swinney H.L., Rhombic patterns, *Chaos* 3 (1993) 707–711.
- [7] Malomed B.A., Nepomnyashchii A.A., Tribelskii M.I., Two-dimensional quasiperiodic structures in nonequilibrium systems, *Sov. Phys. JETP* 69 (1982) 388–396.
- [8] Edwards W.S., Fauve S., Structure quasicristalline engendrée par instabilité paramétrique, *C. R. Acad. Sci. Paris, Série II* 315 (1992) 417–420.
- [9] Kudrolli A., Pier B., Gollub J.P., Superlattice in surface waves, *Physica D* 123 (1998) 99–111.
- [10] Pampaloni E., Residori S., Soria S., Arecchi F.T., Phase locking in nonlinear optical patterns, *Phys. Rev. Lett.* 78 (1997) 1042–1045.
- [11] Rogers J.L., Schatz M.F., Superlattice patterns in vertically oscillated Rayleigh–Bénard convection, *Phys. Rev. Lett.* 85 (2000) 4281–4284.
- [12] Musslimani Z.H., Pismen L.M., Dynamic quasicristalline patterns, *Phys. Rev. E* 62 (2000) 389–396.
- [13] Newell A.C., Pomeau Y., Turbulent crystals in macroscopic systems, *J. Phys. A Math. Gen.* 26 (1993) L429–L434.
- [14] Frish T., Sonnino G., Two-dimensional pentagonal structures in dissipative systems, *Phys. Rev. E* 51 (1995) 1169–1171.
- [15] Lifshitz R., Petrich D., Theoretical model for Faraday waves with multiple frequency forcing, *Phys. Rev. Lett.* 79 (1997) 1261–1264.
- [16] Show L.J., Murray J.D., Analysis of a model for complex skin patterns, *SIAM J. Appl. Math.* 50 (1990) 628–648.
- [17] Judd S.L., Silber M., Simple and superlattice Turing patterns in reaction–diffusion systems, *Physica D* 136 (2000) 45–65.