## Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования «Балтийский федеральный университет имени Иммануила Канта»

На правах рукописи

Смелов Павел Сергеевич

# ИЗУЧЕНИЕ ДИНАМИЧЕСКИХ РЕЖИМОВ МАЛОЙ СЕТИ ОСЦИЛЛЯТОРОВ, СВЯЗАННЫХ ИМПУЛЬСНОЙ ИНГИБИРУЮЩЕЙ СВЯЗЬЮ С ВРЕМЕННОЙ ЗАДЕРЖКОЙ

01.04.03 - Радиофизика

Диссертация на соискание учёной степени кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:

д. ф. - м. н., профессор Ванаг Владимир Карлович

Калининград 2021

## оглавление

Введение	4
Литературный обзор	11
1. Колебательные системы	11
2. Математические модели реакции Белоусова-Жаботинского	13
3. Практическое применение осцилляторов	15
Глава 1. Динамические режимы четырёх почти одинаковых осцилляторов, связанных импульсной ингибиторной связью с задержкой	21
1.1. Методы моделирования	22
1.1.1. Система ОДУ для химического осциллятора Белоусова-Жаботинского	22
1.1.2. Фазовые осцилляторы и Кривая Переустановки Фаз	23
1.2. Режимы БЖ осцилляторов	25
1.2.1. Однонаправленная связь по кругу	25
1.2.2. Двунаправленная связь по кругу	30
1.2.3. Связь «все со всеми»	33
1.2.4. Сложные режимы	36
1.3. Режимы фазовых осцилляторов	37
1.3.1. Однонаправленная связь по кругу	38
1.3.2. Двунаправленная связь по кругу	39
1.3.3. Связь «все со всеми»	40
1.4. Сравнение результатов разных методов моделирования	41
1.5. Выводы	44
Глава 2. Экспериментальное исследование сети из четырех химических осцилляторов, однонаправленно связанных ингибиторной импульсной связью	45
2.1. Описание экспериментальной установки	45
2.2. Используемая математическая модель	47
2.3. Сравнение результатов эксперимента и численного моделирования. Стабильность режимов	48
2.4. Выводы	51
Глава 3. Применение динамических ритмов 4 связанных осцилляторов для построения «химического компьютера»	ວ 53
3.1. Мультистабильность. Аттракторы	55
3.2. Методы распознавания режимов	58
3.2.1. Распознавание с помощью задержек во времени	58
3.2.2. Определение кластеров по амплитуде сигнала	64
3.2.3. Резонансный подход	67
3.3. Выводы	70

Глава 4. Переключение между стабильными модами в малой сети импульсно связанных химических	
осцилляторов	.72
4.1. Математическая модель	.73
4.2. Экспериментальная установка	.76
4.3. Результаты	.81
4.3.1. Результаты моделирования	.81
4.3.2 Результаты эксперимента	.91
4.4. Выводы	.95
Заключение	.98
Список сокращений и условных обозначений	.99
Список терминов	.99
Список литературы1	102

#### Введение

#### Актуальность темы исследования

Наука о нелинейных физико-химических явлениях (волны, диссипативные структуры, связанные осцилляторы всех типов, динамика сетей) достигла уже такого уровня зрелости, когда наступает время её практического применения. Нейрофизиологи, физики и математикинелинейщики приходят к пониманию, что мозг человека надо рассматривать как динамическую систему, как иерархически организованную динамическую сеть связанных осцилляторов и возбудимых элементов. Но при изучении мозга возникает множество физико-математических вопросов, например, о стабильности и изменчивости ритмов нейросетей, состоящих из возбудимых и осциллирующих клеток с локальными и удаленными импульсными связями с задержками... Как самообразуется и самонастраивается иерархическая структура нейросети? Как и где можно применять нейроподобные сети (логические элементы, элементы электрической цепи, поиск кратчайшего пути...)? Все эти вопросы находятся в центре внимания специалистов по теории нелинейных динамических систем.

Исследование принципов работы нейронной сети головного мозга является одним из крупных современных трендов. Однако биологические системы очень сложны для исследования. В основном для изучения их свойств используются модельные экспериментальные системы, в частности системы связанных химических осцилляторов.

Актуальность темы обусловлена нерешённостью задачи о правилах (законах) функционирования сложных сетей связанных осцилляторов. Также об актуальности темы исследования может говорить большой интерес к ней исследовательских групп по всему миру и постоянное появление новых статей в рецензируемых научных журналах Scopus и Web of Science, которые, в свою очередь, говорят о постоянном развитии науки в этом направлении.

#### Цели и задачи исследования

Целью данного исследования является создание теории функционирования небольших нейроподобных сетей связанных осцилляторов с обратными связями. А именно, изучение влияния топологии связей и их параметров на формирование динамических режимов четырёх почти одинаковых осцилляторов, связанных импульсными ингибирующими и/или активирующими связями с временной задержкой; численное моделирование поведения таких сетей с использованием наиболее простых фазовых осцилляторов и полномасштабных кинетических моделей, основанных на химической автоколебательной реакции Белоусова-Жаботинского (БЖ-осцилляторы). Количество осцилляторов, равное четырём, объясняется возможностью применения таких сетей для имитации динамики четвероногих животных (локомоции) и роботов. Более того, в сетях такого размера существует много динамических режимов при том, что сама сеть является относительно простой как для теоретического, так и экспериментального изучения.

Для достижения поставленной цели и восполнения обнаруженных во время исследований пробелов в теории были решены следующие задачи:

- для трёх типов связи (однонаправленная по кругу, двунаправленная по кругу, связь «все со всеми») с помощью численного моделирования составлены карты областей динамических режимов, границы которых зависят от двух параметров сети: силы связи между осцилляторами  $C_{\rm inh}$  и временной задержки au между спайком в одном осцилляторе и вызываемым им возмущением в другом;

 проведено экспериментальное исследование таких сетей, основываясь на полученных результатах моделирования;

- составлены области существования режимов на параметрической плоскости C<sub>inh</sub> — т в
 зависимости от разброса периодов колебаний осцилляторов (дисперсии) вокруг среднего
 значения периода;

выполнено сравнение результатов экспериментального и теоретического исследований;

- используя полученные данные, разработаны и численно протестированы общие методы и алгоритмы самоанализа текущего режима сети осцилляторов;

- метод распознавания текущего режима сети с помощью задержек был апробирован в натуральном эксперименте;

- на основе способности самоанализа текущего режима сети осцилляторов разработан алгоритм переключения между возможными режимами сети.

#### Научная новизна

Основные результаты, полученные в процессе диссертационного исследования, являются новыми. Впервые составлены максимально подробные диаграммы динамических режимов сети из четырёх почти одинаковых БЖ осцилляторов, связанных импульсной ингибиторной связью с временной задержкой в плоскости  $C_{inh} - \tau$  для трёх видов связи: однонаправленная по кругу, двунаправленная по кругу, связь «все со всеми». Впервые составлены диаграммы областей стабильности основных режимов сети, зависимых от расстройки частот осцилляторов (в данной

работе расстройка частот — это дисперсия собственных периодов колебаний осцилляторов относительно их среднего значения периода). Создана компьютерная программа на языке программирования Pascal для расчёта динамики четырёх связанных импульсной ингибирующей связью БЖ-осцилляторов. Разработаны новые принципы распознавания сетью своего динамического состояния. На основе исследования поведения связанных осцилляторов под воздействием внешних импульсов составлена таблица параметров (фазы возмущаемых осцилляторов, амплитуда и длительность возмущающих импульсов), позволяющих эффективно осуществлять переключение текущего режима сети в желаемый.

#### Теоретическая и практическая значимость работы

Теоретическое исследование нейроподобной сети из четырёх почти одинаковых осцилляторов, импульсно связанных ингибиторной связью с временной задержкой, подкреплённое экспериментальными данными, позволит расширить теорию функционирования небольших сетей связанных осцилляторов с обратными связями. В будущем эти знания должны быть масштабированы на сети с большим количеством осцилляторов.

Разработанные методы построения сетей с когнитивной функцией самостоятельного распознавания и изменения своего текущего динамического состояния лягут в основу создания «химического компьютера» - интеллектуального устройства, способного принимать решения в ответ на внешние стимулы.

#### Методология и методы исследования

Благодаря своим свойствам сети химических осцилляторов являются идеальным объектом для экспериментов (как численных, так и натуральных) по изучению работы нейроподобных сетей, в то время как реальные биологические нейросети слишком сложны и плохо воспроизводимы, а электрические сети не столь пластичны, как химические. Наиболее изученным химическим осциллятором является реакция Белоусова-Жаботинского (БЖ), динамика которой близка к динамике нейронов: БЖ-осциллятор способен давать спайковые (релаксационные) колебания и быть в возбудимом состоянии. Именно по этим причинам в работе применялись сети БЖ-осцилляторов.

Проводилось компьютерное моделирование сетей БЖ осцилляторов. Чтобы открыть главные свойства найденных режимов колебаний и некоторые их особенности, связанные именно с реакцией БЖ, параллельно рассматривалась модель фазовых осцилляторов. При моделировании фазовые осцилляторы имеют преимущество перед химическими в

вычислительной простоте. Для подтверждения или опровержения полученных теоретических данных проводились экспериментальные исследования с БЖ-макроосцилляторами. Для этого была собрана установка, управляемая компьютером с использованием программы LabVIEW через АЦП. Результаты теоретических и экспериментального исследований были сравнены, и получено их хорошее соответствие.

#### Положения, выносимые на защиту

- карты областей динамических режимов сети четырёх осцилляторов, связанных ингибиторной импульсной связью при различных значениях параметров силы связи *C*<sub>inh</sub> и задержки *т* для трёх типов связи: однонаправленная по кругу, двунаправленная по кругу, связь «все со всеми»;
- области стабильности основных режимов сети при различных значениях дисперсии периодов колебаний осцилляторов вокруг среднего значения периода;
- три типа архитектуры сети с блоком распознавания своего текущего динамического состояния: определение режимов с помощью задержек во времени, определение кластеров по амплитуде сигнала, определение режимов с помощью резонансного подхода;
- два метода переключения динамических состояний сети между собой: силовой и специфический;
- 5) таблица параметров переключения динамических режимов сети силовым методом.

#### Степень достоверности и апробация результатов

Представляемые результаты компьютерного моделирования получены с применением современных методов численного счёта теории дифференциальных уравнений, а данные натурального эксперимента - корректным применением апробированных методик экспериментальных исследований. Их достаточная степень достоверности и надёжности обеспечена согласованностью между собой и с результатами работ по предмету исследования, проведённых ранее другими авторами, отмеченными ссылками, а также цитированиями наших работ.

Основные положения работы докладывались и обсуждались на семинарах Центра Нелинейной Химии, а также на международных конференциях: «VIII Международная Конференция: Конструирование Химической сложности» (2015 г., Гарчинг (Мюнхен), Германия); семинар в рамках школы «Non-Equilibrium Collective Dynamics in Condensed Matter and Biological Systems» в Техническом Университете Берлина, (2015 г., Берлин, Германия); «Нелинейные Волны - 2016» (2016 г., Нижний Новгород, Россия); «Х Международная Конференция: Конструирование Химической сложности» (2019 г., Потсдам, Германия).

По теме диссертации было опубликовано 3 тезиса докладов на международных конференциях и 6 статей в научных периодических изданиях. Все издания входят в список рекомендуемых Высшей аттестационной комиссией при министерстве образования и науки Российской Федерации (ВАК РФ) и индексируются базами данных научной периодики Scopus и Web of Science. А также получено свидетельство № 2018611395 о государственной регистрации программы для ЭВМ «Динамика БЖ-макроосцилляторов, связанных ингибиторной связью с задержкой».

Часть результатов, представленных в диссертации, получены при выполнении работ по грантам РНФ (17-12-01123), РФФИ (15-07-01726) и Государственному заданию (4.8448.2017/БЧ).

#### Личный вклад автора

Основные результаты, представленные в диссертации, получены лично автором. Постановка задач и обработка полученных результатов сделаны совместно с научным руководителем. В работах, где фамилия автора диссертации стоит не первой, внесён равный вклад с первым соавтором.

#### Краткое содержание работы

В **Введении** обоснована актуальность исследований, проводимых в рамках данной диссертационной работы, указана цель, поставлены задачи, объяснены научная новизна и теоретическая и практическая значимость представляемой работы, показаны методы исследования, сформулированы положения, выносимые на защиту, описаны степень достоверности и апробация результатов.

В Литературном обзоре представлен обзор научных статей по теме диссертации. Приведены математические модели колебательных систем. Подробно рассмотрены модели автокаталитической реакции Белоусова-Жаботинского, их свойства и различия. Сделан обзор современного состояния теории динамических систем.

В Главе 1 показаны результаты изучения динамических режимов в сетях четырёх почти одинаковых спайковых осцилляторов с импульсной ингибиторной связью. Продемонстрированы две модели для описания каждого осциллятора: модель фазового осциллятора и модель химической реакции Белоусова-Жаботинского. Введена временная

задержка  $\tau$  между спайком в одном осцилляторе и вызываемым им возмущением в другом. Диаграммы всех найденных ритмов для трёх видов связи (однонаправленная связь по кругу, двунаправленная связь по кругу, связь «все со всеми») построены в плоскости  $C_{inh} - \tau$ , где  $C_{inh}$ обозначает силу связи. Показано аналитически и численно, что только четыре ритма стабильны для однонаправленной связи по кругу: «Walk» (W) (ходьба) (фазовый сдвиг между спайками соседних осцилляторов равняется четверти глобального периода T - периода режима сети осцилляторов), «Walk-reverse» (WR) (такой же, как и W, но последовательность спайков обратна направлению связи), противофазные (AP) (любые два соседние осциллятора колеблются противофазно) и синфазные (IP) колебания. В случае двунаправленной связи, добавляется «синфазно-противофазный» режим. При связи «все со всеми» найдены два асимметричных паттерна: двухкластерная («3+1», три осциллятора находятся в синфазе), и трёхкластерная (3Cl, «2+1+1», два соседних осциллятора дают спайк одновременно, а третий и четвертый – со сдвигом T/3 и 2T/3 соответственно) моды. Более сложные ритмы, когда некоторые осцилляторы полностью подавлены или генерируют меньшее количество спайков, чем другие, наблюдаются при больших значениях  $C_{inh}$ .

В Главе 2 описаны экспериментально полученные режимы синхронизации сети из четырех почти одинаковых химических осцилляторов, однонаправленно связанных ингибиторной импульсной связью с временной задержкой т, когда спайк в одном осцилляторе оказывает через время т ингибиторное воздействие на следующий по кругу осциллятор. В качестве осцилляторов использована химическая реакция Белоусова–Жаботинского. Экспериментально подтверждено существование четырех основных режимов: синфазные колебания (IP); антифазный режим (AP); ритм W; ритм WR. Кроме основных режимов найдены режим OS (= Oscillation Suppression), когда как минимум один из четырех осцилляторов подавлен, и «2+1+1» режим. Показано, что обнаруженные экспериментально режимы соответствуют найденным при моделировании.

В Главе 3 рассмотрены главные принципы и функциональные блоки параллельного химического компьютера, а именно (1) генератор (сеть связанных осцилляторов) динамических мод, (2) блок распознавания этих мод («ридер») и (3) блок принятия решений, который анализирует текущую моду, сравнивает её с внешним сигналом и посылает команду генератору мод переключить текущий динамический режим на другой. Три основных метода функционирования блока распознавания предложены и проверены численным моделированием: (а) метод полихронизации, который исследует разницу в фазах осцилляторов генератора; (б) амплитудный метод, который детектирует кластеры генератора, и (в)

резонансный метод, основанный на резонансах между частотами режимов генератора и внутренними частотами подавленных осцилляторов блока (2).

В Главе 4 численно и экспериментально проанализировано переключение между стабильными модами колебаний в сети четырёх БЖ-осцилляторов, связанных в кольцо однонаправленной ингибирующей импульсной связью с временной задержкой. В таких сетях можно найти пять стабильных мод: синфазные, противофазные, W, WR и 3Cl. Переход от одного режима к другому осуществляется короткими внешними импульсами, применёнными к одному или нескольким осцилляторам. Было рассмотрено три типа переключений: (i) силовое переключение, когда фазы осцилляторов начального режима устанавливаются так, чтобы они соответствовали фазам конечного режима; внутренние импульсы сети не играют никакой роли в перестановке фаз; (ii) «специфическое» переключение, когда внешним импульсом меняется фаза только одного осциллятора, что влечёт за собой цепь перестроений фаз других осцилляторов, вследствие связей между ними; (iii) многошаговый с использованием промежуточных мод, которыми могут быть как стабильные, так и нестабильные аттракторы. Все эти способы переключения мод найдены в моделировании и подтверждены в лабораторных экспериментах.

## Литературный обзор

## 1. Колебательные системы

Изучение коллективного поведения связанных осцилляторов является одной из центральных проблем нелинейной динамики, т. к. модели таких систем могут описать множество реальных процессов в физике, биологии, химии и даже в социальных науках. Конечно, моделирование связанных осцилляторов представляет особенный интерес для нейробиологии, где теоретические модели могут помочь описать динамику взаимодействия нейронов и, тем самым, раскрыть тайны функционирования и принципов работы головного мозга.

Существует множество математических моделей, описывающих автоволновые процессы в активной среде. Одной из первых таких моделей была модель Ходжкина-Хаксли. В 1952 году Алан Ходжкин и Эндрю Хаксли в попытках описать нервный сигнал в гигантском аксоне кальмара предложили математическую модель, объясняющую ионные механизмы, лежащие в основе генерирования и распространения потенциалов действия в нейронах [1]. Она включает в себя множество компонентов возбудимой клетки: клеточную мембрану, различные виды ионных каналов, мембранные каналы. Эта модель является одним из важнейших достижений в биофизике и нейрофизиологии 20 века. Об этом может свидетельствовать тот факт, что за её разработку в 1963 году авторам была присуждена Нобелевская премия в области физиологии и медицины.

Позднее были придуманы более простые модели, позволяющие эффективно проводить крупномасштабное моделирование целых групп связанных нейронов, более обще осцилляторов. Например, модель ФитцХью-Нагумо (уравнения (1) и (2)), названная в честь Ричарда ФитцХью, в 1961 году предложившего описание возбудимой системы, и Дзин-Ити Нагумо, создавшего в 1962 году принципиальную электрическую схему, аналогичную модели. Целью создания модели ФитцХью-Нагумо было выявление важных с точки зрения математики свойств возбуждения распространения нервных импульсов, И отделение ИΧ ΟТ электрохимических свойств потоков ионов натрия и калия. Она описывает состояние релаксационного осциллятора во времени, тогда как модель Ходжкина-Хаксли довольно подробно объясняет сам механизм активации и деактивации колеблющегося нейрона. Таким образом, произошло разделение развития математических моделях на две концепции, которые

можно грубо описать так: математическое моделирование поведения возбудимой системы в пространстве и времени и математическое моделирование механизмов, протекающих внутри возбудимой системы.

$$\frac{dv}{dt} = v - \frac{v^3}{3} - w + I_{ext},\tag{1}$$

$$\frac{dw}{dt} = v + a - bw,\tag{2}$$

где v – безразмерная функция, представляющая мембранный потенциал,

*w* – медленная переменная восстановления,

I<sub>ext</sub> – внешний возмущающий сигнал,

*а* и *b* – параметры, *a*, *b* > 0.

При определённых значениях параметров системы *a* и *b* наблюдается ответ по принципу «всё или ничего»: если внешний возмущающий сигнал *I*<sub>ext</sub> превысит определённое пороговое значение, система будет демонстрировать характерный сдвиг в фазовом пространстве, прежде чем переменные вернутся в состояние покоя («отрелаксируют»). Это и есть релаксационные колебания.

В химии бурное изучение связанных осцилляторов началось с середины 70-ых годов [2]. Благодаря открытию советским химиком Борисом Павловичем Белоусовым автоколебательной реакции и спустя десятилетие повторному её «открытию» советским биофизиком Анатолием Марковичем Жаботинским в мире «нелинейщиков» появился важный объект для исследований законов нелинейных систем. Более того, появился очень удобный инструмент для экспериментальной проверки теоретических предсказаний. Это открытие дало гигантский толчок развитию теории динамических систем. Эту реакцию назвали в их честь – реакция Белоусова-Жаботинского (БЖ-реакция). Обычно, БЖ реакция – это окисление малоновой кислоты броматом под воздействием катализатора в кислой среде [3, 4]. Ключевыми интермедиатами реакции являются HBrO<sub>2</sub>, который выступает в качестве активатора автокаталитического роста, и ионы бромида, являющиеся ингибитором автокатализа. В случае ингибиторной связи в качестве ингибитора можно использовать тот же бромид или молекулярный бром (переменная и в моделях). А в случае активаторной связи применяют нитрат серебра (AgNO<sub>3</sub>), который быстро удаляет ингибитор (бромид) из раствора. Здесь стоит отметить, что динамика БЖ-реакции схожа со спайковой динамикой нейрона. Эта химическая реакция открыла широкие горизонты для изучения проблем самоорганизации – теория нелинейной динамики обогащалась результатами исследований по распространению

концентрационных волн в гомогенных средах и по синхронизации связанных химических осцилляторов, в качестве которых использовали проточные реакторы с постоянным перемешиванием (ПРПП). В то время и на протяжении долгих лет связь организовывали в основном за счёт массообмена между реакторами [5]. Хотя электрохимическая связь тоже использовалась [6]. Со временем стали появляться интердисциплинарные научные направления. Так, например, на пересечении нейронаук [7] и нелинейной физической химии лежит проблема понимания и описания динамики сетей диффузионно и импульсно связанных химических осцилляторов [8–10]. В нейросетях синаптические связи между нейронами имеют импульсный характер. В химических системах при изучении связанных осцилляторов лишь относительно недавно были введены ингибиторная и активаторная импульсные связи между ПРПП [11–15]. Ещё одним ключевым моментом нейронных сетей является задержка связи во времени [16], которую также можно реализовать в химических системах [13, 14]. Эти свойства связей особенно важны с точки зрения синаптической (= импульсной) связи в нейронных сетях. Поэтому химические системы, основанные на реакции Белоусова-Жаботинского, идеально подходят для экспериментального моделирования работы нейросетей.

## 2. Математические модели реакции Белоусова-Жаботинского

Для создания модели реакции Белоусова-Жаботинского необходимо знать её химический механизм. В 1974 году Ричардом Филдом (Richard Field), Эндре Кёрэшом (Endre Kőrös) и Ричардом Нойесом (Richard Noyes) был предложен химический механизм, состоящий из десяти реакций (R1 – R10) – механизм Филда-Кёрэша-Нойеса (ФКН, FKN mechanism). Он качественно повторяет ключевые особенности БЖ реакции: автокаталитический рост активатора, торможение автокатализа ингибитором, обратная отрицательная связь.

$$Br^{-} + HOBr + H^{+} \leftrightarrow Br_{2} + H_{2}O \tag{R1}$$

$$Br^{-} + HBrO_2 + H^+ \to 2HOBr \tag{R2}$$

$$Br^{-} + BrO_{3}^{-} + 2H^{+} \rightarrow HOBr + HBrO_{2}$$
(R3)

$$HBrO_2 + HBrO_2 \rightarrow HOBr + BrO_3^- + H^+$$
(R4)

- $HBrO_2 + BrO_3^- + H^+ \leftrightarrow 2BrO_2 + H_2O \tag{R5}$
- $Ce^{3+} + BrO_2 + H^+ \leftrightarrow HBrO_2 + Ce^{4+}$  (R6)
- $Ce^{4+} + BrO_2 + H_2O \rightarrow BrO_3^- + Ce^{3+} + 2H^+$  (R7)

$$Br_2 + MA \to BrMA + H^+ + Br^- \tag{R8}$$

$$Ce^{4+} + MA \to Ce^{3+} + MA^{\bullet} \tag{R9}$$

$$Ce^{4+} + BrMA \to Ce^{3+} + Br^- + MA^{\bullet}$$
(R10)

Упростив его, Ричард Филд и Ричард Нойес вывели упрощённую математическую модель БЖ реакции, получившую название Орегонатор (уравнения (3) – (5)). Название происходит от слияния слов Орегон (учёные работали в Орегонском Университете) и осциллятор. Орегонатор – одна из простейших реалистичных моделей химической динамики колебательной реакции Белоусова-Жаботинского.

$$\frac{dX}{dt} = k_1 A Y - k_2 X Y + k_3 A X - 2k_4 X^2,$$
(3)

$$\frac{dY}{dt} = -k_1 AY - k_2 XY + \frac{1}{2} k_c f BZ,$$
(4)

$$\frac{dZ}{dt} = 2k_3AX - k_cBZ,\tag{5}$$

где X – концентрация активатора,  $([HBrO_2])$ , Y – концентрация ингибитора,  $[Br^-]$ , Z – концентрация катализатора,  $([Ce^{4+}])$ ,  $A - [BrO_3^-]$ ,  $B - [CH_2(COOH)_2]$ ,  $k_c$  – параметр скорости протекания реакции,  $\approx$  0.1-10 M<sup>-1</sup>c<sup>-1</sup> f – стехиометрический коэффициент,  $\approx$  0-3.

Наиболее полный известный реакционный механизм реакции Белоусова-Жаботинского – это механизм Györgyi-Turanyi-Field (GTF). Он представляет собой набор 80 элементарных реакций, которые более точно описывают динамику БЖ реакции, чем механизм ФКН [17]. Но последний, благодаря своей относительной простоте в сравнении с более поздними попытками описать химические процессы протекания реакции, остаётся популярными и по сегодняшний день. На общих принципах механизма ФКН и модели Орегонатор были разработаны более сложные модели, способные лучше представить химию ФКН и понять наблюдаемое поведение реакции БЖ. Сейчас существует несколько математических моделей, которые могут быть использованы для моделирования БЖ-реакции, например, известные модели Орегонатор [18, 19], модель Ванага-Лавровой (VL модель) [20], Ванага-Эпштейна с четырьмя переменными (VE модель) [21] и трёхпеременная ZBKE-модель [22]. В данной работе в качестве базовых были взяты две модели: Ванага-Лавровой [20] и Ванага-Эпштейна [21]. Их системы уравнений будут подробно описаны в главах 1 и 4, соответственно. Эти модели более реалистичны, чем модель Орегонатор. Как и последняя, вывод модели VE основан на детальном ФКН механизме. Но, в отличие от Орегонатора, в модели Ванага-Эпштейна добавлены ограничение автокатализа и быстрая четвёртая переменная u (концентрация бромина,  $[Br_2]$ ). Модель VL является видоизменённой VE [13, 20]: исключается быстрая переменная u и вводится более медленная – v (концентрация броммалоновой кислоты, [BrMA]), которая важна для реализации разных режимов связанных осцилляторов [23].

Для моделирования быстрых переходов между модами удобнее использовать модель Ванага-Эпштейна: благодаря более быстрой переменной *u* (концентрация брома) для перехода между предельными циклами требуется меньше времени и силы внешнего воздействия.

Помимо полномасштабных моделей БЖ-реакции, основанных на элементарных химических реакциях, хорошо известен другой метод изучения импульсно связанных осцилляторов – метод Кривых Переустановки Фаз (КПФ) [24–30]. Кривые Переустановки Фаз – это характерная зависимость сдвига фазы, вызванного внешним почти что дельта-образным возмущением, от фазы осциллятора, в которую это возмущение и произошло. Такие характерные зависимости могут быть подсчитаны численно или измерены экспериментально [31]. Метод КПФ широко используется в биологических системах, например, при работе с сердечными ритмами, циркадными ритмами, нейронами. Недавно он был применён к химическим осцилляторам с импульсной связью [15]. Концепция КПФ позволяет вместо сложных моделей колебаний использовать очень простые (с точки зрения вычислений) фазовые модели, которые, несмотря на свою простоту, отражают наиболее важные свойства оригинальных моделей.

## 3. Практическое применение осцилляторов

Как было сказано ранее, химические осцилляторы, основанные на БЖ реакции, очень схожи с нейронами по динамике и свойствам в рамках теории динамических систем. Сеть связанных химических осцилляторов интересна своей перспективой стать нейроподобной

вычислительной системой. По мере приближения к пределам увеличения производительности вычислительных систем, построенных на кремниевых чипах, всё более актуальнее становится поиск альтернативных вычислительных машин. Более того, интересны новые эффективные архитектуры, отличные от общепринятой архитектуры фон Неймана, для решения определённых задач, например, задачи распознавания образов (или в более широком смысле – сигналов). Самым слабым местом фон Неймановских компьютеров является передача данных между различными узлами системы – так называемое «бутылочное горлышко» архитектуры фон Неймана – одна шина данных для памяти программ и памяти данных ограничивает пропускную способность между центральным процессором и памятью. Поскольку единственная шина в один момент времени может работать только с одним классом памяти, процессор вынужден простаивать, пока необходимые данные переместятся в память или из памяти. Поскольку скорость процессоров и объем памяти растут намного быстрее, чем пропускная способность между ними, узкое место становится всё серьезнее с каждым новым поколением процессоров. Эту проблему можно решить с помощью перспективных оптических технологий, которые могут ускорить скорость обмена между блоками памяти. Фотонное хранилище данных могло бы значительно улучшить производительность в существующих вычислительных архитектурах за счет сокращения задержек, связанных с электрической памятью [32]. Но такое решение никак не ускоряет сами вычисления.

Для решения проблем, с которыми трудно или даже невозможно справиться обычным компьютерам, предлагаются модели квантового компьютера. Такой компьютер для выполнения вычислений использует квантовые явления, такие как суперпозиция и запутанность. Считается, что квантовые компьютеры способны решать определенные вычислительные задачи (например, целочисленная факторизация, которая лежит в основе алгоритма шифрования RSA (аббревиатура от фамилий Rivest, Shamir и Adleman)), значительно быстрее, чем классические компьютеры. Первые абстрактные модели квантового компьютера начали появляться в начале 80-ых годов прошлого века [33–35], но до сих пор полноценный универсальный квантовый компьютер является гипотетическим устройством.

Большое число альтернативных вычислительных систем основано на гомогенных pacпpeдeлённых системах. Это сплошные колебательные среды. В отличие от дискретных cистем, они не состоят из определённых узлов (осцилляторов), а распределены тем или иным образом непрерывно по пространству. Научная группа Эндрю Адамацкого предлагает вычисления на основе столкновений частиц информации, которыми являются «активные элементы» системы, такие как солитоны в оптической системе или волны концентраций в возбудимой

химической среде [36–38]. Если рассматривать распределённую на плоскости реакцию БЖ (тонкий слой раствора или гель), то частицами информации являются возмущения состояния среды – фазовые «волны-фрагменты». Эти волны-фрагменты, перемещаясь в среде взаимодействуют друг с другом, создавая стационарные или динамические структуры – локализации. Когда две или более движущихся локализации сталкиваются, они меняют свои векторы скорости и/или состояния. После столкновения траектории и/или состояния локализаций можно рассматривать в качестве результатов логических операций, осуществленных столкновением. Логическая единица, истина, соответствует наличию локализации, логический ноль, ложь, — отсутствию локализации; логические значения также могут быть представлены конкретным состоянием локализации. Одно из принципиальных преимуществ вычислительной среды на основе коллизий – это то, что среда не имеет архитектуры: нет ничего предопределённого, нет проводов, траектория движения распространяющихся частиц информации можно рассматривать как мгновенный провод. Ежи Горецкий, Иоанна Наталья Горецкая и Эндрю Адамацкий расширяют предложенную идею на дискретные осцилляторы [39]. Контролируя геометрию (формы слоя БЖ, точки инициализации «волн-фрагментов», расположение точечных осцилляторов...) можно создавать различные логические элементы (типа «AND» и «OR»).

Если перейти от рассмотрения пространственной возбудимой среды к точечным осцилляторам, то одним из ярких примеров альтернативных вычислений, предназначенных к определённым задачам, является известная сеть Хопфилда [40, 41]. Это рекуррентная однослойная искусственная нейронная сеть, «нейронами» которой являются элементы с двумя возможными состояниями. Модель была опубликована Джоном Хопфилдом в 1982 году. Схожая модель была предложена Уильямом Литтлом в 1974 году [42]. Сеть представляет собой множество бинарных пороговых ячеек с входами и выходами (нейроны) – нейроны могут принимать только два различных значения, и эти значения определяются тем, превышает ли входной сигнал пороговое значение. Каждая пара нейронов *i* и *j* имеет соединение с весом w<sub>ii</sub> (*w*<sub>*ii*</sub> – элементы матрицы взаимодействия *W*). В таком представлении сеть Хопфилда можно формально описать как полный неориентированный граф. Процесс обучения (или запоминания) – это процесс заполнения памяти образами  $X_m$ , он заключается в нахождении таких весов  $w_{ij}$ , при которых выполнялось бы равенство:  $X_m = W X_m$ . Образ – это вектор состояний всех ячеек сети. После обучения на вход сети подаётся вектор состояний (входной образ), затем в процессе работы её динамика сходится к одному из сохранённых образов (выходной образ). В этом и заключается «ассоциативность»: если подать сети повреждённый

образ – нечто похожее на запомненный ранее образ – её откликом будет восстановленный (вспомненный) оригинальный образ. Таким образом сеть может быть использована в качестве ассоциативной памяти, классификатора, фильтра для коррекции ошибок и помех.

Амбициозной целью многих учёных-нелинейщиков является понимание механизма работы головного мозга, устройства памяти, обработки информации. Среди разных видов сетей осцилляторов именно импульсно связанные осцилляторы с временной задержкой между спайком в одном осцилляторе и импульсным возмущением другого/других осциллятора/-ов, вызванного этим спайком, представляют наибольший интерес, т. к. подобны нейронным сетям [13, 26, 43–48]. Изучению принципов функционирования головного мозга посвящено огромное число работ. Объединение динамики мозга с архитектурой его связей (коннектом) привело к так называемому «диному», который приоткрыл завесу тайны архитектуры мозга, функциональной организации нейронных соединений и роли различных связей в нейронной сети [49, 50]. В общих чертах, коннектом – это представление полной структуры мозга человека в понятиях «сети» (или математического «графа»). Таким образом весь мозг можно описать узлами и рёбрами, представляющими собой отдельно взятые нейроны или области мозга и анатомические соединения между ними (щелевые контакты, синапсы). Иначе говоря, представить в виде сети осцилляторов. Но даже полная карта не позволила понять принципы работы нейросетей, то, как наш мозг познаёт и контактирует с окружающим миром.

Гиорги Бужаки (György Buzsáki) [51] фокусируется на факте, что в мозге должна быть «считывающая система», которая считывает информацию из другой части нейронной сети и посылает сигнал дальше, на интегратор, который собирает информацию о внешних объектах. Бужаки утверждает, что «считывающая система» посылает сигнал дальше, на интегратор, который собирает информацию о внешних объектах. То есть должны существовать три подсистемы: одна генерирует динамические режимы (например, Центральный Генератор Ритмов (ЦГР) [52]), вторая распознаёт их, а третья анализирует реакцию второй. В целом, несколько таких «считывающих систем» и несколько ЦГР могут сосуществовать и работать вместе.

Такой взгляд на архитектуру мозга схож с нашим подходом к развитию «химического компьютера»: системы связанных осцилляторов, которая может выполнять такие функции, как распознавание сигнала (в каком-то смысле - образа), принятие решений или адаптация и «умный» ответ на внешнее воздействие. В наших лабораторных экспериментах в качестве химического осциллятора обычно используется реакция Белоусова-Жаботинского [53, 54]. В качестве ячейки (или реактора) БЖ-реакции выбраны макрореакторы (обыкновенные

проточные реакторы с постоянным перемешиванием) [55] и микрореакторы (нарезанные толщиной 0.51 мм и зажатые между двумя стеклами срезы эластичной резиновой трубочки с внутренним диаметром 0.5 мм) [56]. Для двух связанных почти одинаковых осцилляторов были найдены три регулярных ритма: синфазные осцилляции (IP), противофазные (AP) и затухание осцилляций (так называемая «смерть» осцилляторов) [57].

В настоящее время изучение двух импульсно связанных осцилляторов, основанных на колебательной реакции Белоусова-Жаботинского (БЖ осцилляторы), с временной задержкой практически завершено [14, 15, 20, 58]. В данной работе представлены результаты теоретического и экспериментального изучения сети из четырёх почти одинаковых БЖ осцилляторов с ингибиторной импульсной связью с временной задержкой. Временная задержка *т* между спайком в одном осцилляторе и импульсным возмущением (короткое импульсное введение Br<sup>-</sup> в случае ингибиторной связи, или AgNO<sub>3</sub> – в случае активаторной) другого осциллятора, связанного с первым, приводит к необычному поведению, например, к синфазной синхронизации при ингибиторной связи или к быстрым противофазным колебаниям при активаторной связи (при достаточно больших *т*) [13].

Четыре связанных осциллятора изучались ранее в нескольких работах [24, 45, 67–71, 59– 66]. Используя закон симметрии, Стюарт (Stewart), Коллинс (Collins) и Голубицкий (Golubitsky) показали, что существует четыре основных способа передвижения четвероногих [63, 66, 69], которые может производить ЦГР: ходьба (состоит из четырёх элементов), иноходь (два элемента, поочерёдно переставляются пары ног, расположенные продольно) или прыжок (когда передние ноги движутся синфазно и задние – синфазно, но передние и задние пары ног движутся противофазно), рысь (два элемента, поочерёдно переставляются пары ног, расположенные по диагонали) и подпрыгивание (все четыре ноги движутся синхронно). С точки зрения практического применения теории функционирования сетей связанных осцилляторов интересны данные о мультистабильности – сосуществовании различных динамических режимов при фиксированном наборе параметров системы [72–75], но получающиеся из разных начальных условий (другими слова, сосуществование более одного аттрактора). Ведь рассматривая сеть как некое средство памяти, большее количество аттракторов позволит хранить больше информации. Однако систематическое изучение четырёх осцилляторов, связанных импульсной ингибиторной связью с временной задержкой, отсутствовало, тем более для сетей с разной архитектурой.

Конечно же рассматривают и большие ансамбли осцилляторов (микроосцилляторов). Открытый в начале 2000-х динамический режим коллективного поведения «химера» [76, 77] был

найден экспериментально [78–81]. Химера – динамический режим, при котором часть осцилляторов колеблется когерентно, а часть – беспорядочно. До этого считалось, что в системе могут быть или только синхронизированные осцилляторы, или только несинхронизированные. В теории динамических систем сделано не мало открытий, но она продолжает развиваться.

## Глава 1. Динамические режимы

# четырёх почти одинаковых осцилляторов, связанных импульсной ингибиторной связью с задержкой

В Главе 1 анализируются эффекты временной задержки *т*, силы связи *C*<sub>inh</sub> и связности на формирование ритмов и мультистабильность (другими словами, мультиритмичность) для двух качественно разных моделей осцилляторов: модель химических БЖ-осцилляторов в ПРПП и модель фазовых осцилляторов. Рассмотрены три топологии сети: однонаправленная связь по кругу, взаимная или двунаправленная связь по кругу, «все со всеми», как показано на рисунке 1. Исследовано влияние архитектуры на коллективное поведение импульсно связанных осцилляторов.



Рисунок 1— (А) Однонаправленная связь по кругу, (Б) двунаправленная связь по кругу, (В) связь «все со всеми».

Сравнение результатов, полученных при моделировании фазовых и БЖ осцилляторов, может открыть главные свойства найденных мод и некоторые особенности, характерные для реакции БЖ, или ограничения метода КПФ. Забегая вперёд, приведём пример: релаксационные БЖ осцилляторы в отличие от фазовых могут быть подавлены при сильной связи. Будет показано, что много новых паттернов могут быть найдены вследствие подавления одного или нескольких осцилляторов.

Сеть из четырех осцилляторов привлекает особое внимание по двум причинам: 1) динамические режимы такой сети применимы для понимания динамики четвероногих животных (локомоции) и роботов, 2) это – относительно небольшая сеть, и можно разобраться во всех её динамических режимах и понять роль сил связи и времён задержки при переключении из одного режима в другой.

#### 1.1. Методы моделирования

# 1.1.1. Система ОДУ для химического осциллятора Белоусова-Жаботинского

Для моделирования поведения сети связанных ингибиторной импульсной связью БЖ осцилляторов, использовалась система обыкновенных дифференциальных уравнений из четырёх переменных – модель Ванага-Лавровой (VL-модель) [20]:

$$\frac{dx_i}{dt} = -k_1(h_i)x_iy_i + k_2(h_i)y_i - 2k_3x_i^2 + \frac{k_4(h_i)x_i(c_0 - z_i)}{(c_0 - z_i + c_{min})} - k_0x_i,$$
(6)

$$\frac{dy_i}{dt} = -k_1(h_i)x_iy_i - k_2(h_i)y_i + k_9v_iz_i - k_0y_i + \sum_{j \neq i} C_{ji}P(x_j, \Delta t, \tau_{ji}),$$
(7)

$$\frac{dz_i}{dt} = \frac{2k_4(h_i)x_i(c_0 - z_i)}{(c_0 - z_i + c_{min})} - k_9v_iz_i - k_{10}z_i,\tag{8}$$

$$\frac{dv_i}{dt} = 2k_1(h_i)x_iy_i + k_2(h_i)y_i + k_3x_i^2 - k_9v_iz_i - k_{13}v_i - k_0v_i,$$
(9)

где *i* – индекс осциллятора с 1 по 4,

x – концентрация активатора, ([ $HBrO_2$ ]),

y – концентрация ингибитора, ([ $Br^{-}$ ]),

z – концентрация окисленного состояния катализатора,

*v* – концентрация броммалоновой кислоты, ([*BrMA*]),

 $c_0$  — общая концентрация катализатора (окисленная и восстановленная формы), и  $c_{min}\ll$ 

 $c_0$ .

Моделирование проводилось с целью поиска возможных ритмов колебаний сети. Чтобы удостовериться, что найденные ритмы стабильны, использовались осцилляторы с немного различными периодами, а именно:  $T_1 = 141$  с  $(h_1 = 0.305$  M),  $T_2 = 148$  с  $(h_2 = 0.295$  M),  $T_3 = 142.7$  с  $(h_3 = 0.3025$  M) в  $T_4 = 146.2$  с  $(h_4 = 0.2975$  M), где  $h_i$  – концентрация  $H^+$  в *i*-том осцилляторе.  $[H^+]$  влияет на константы  $k_1(h) = k'_1h$ ,  $k_2(h) = k'_2h^2A$ ,  $k_4(h) = k'_4hA$ .  $A \equiv [NaBrO_3] = 0.25$  М. Другие константы: [MA] = 0.1 М,  $c_0 = 1$  мМ,  $k_0 = 5 \times 10^{-4}$  с<sup>-1</sup>,  $k'_1 = 2 \times 10^6$  М<sup>-2</sup>с<sup>-1</sup>,  $k'_2 = 2$  М<sup>-3</sup>с<sup>-1</sup>,  $k_3 = 3000$  М<sup>-1</sup>с<sup>-1</sup>,  $k'_4 = 42$  М<sup>-2</sup>с<sup>-1</sup>,  $k_9 = 20$  М<sup>-1</sup>с<sup>-1</sup>,  $k_{10} = k'_{10}$ [MA],  $k'_{10} = 0.05$ 

 $M^{-1}c^{-1}$ ,  $k_{13} = 0.004$   $c^{-1}$ ,  $c_{min} = \frac{\sqrt{3k_1k_{10}c_0}}{k_{red}}$ ,  $k_r = 2 \times 10^8$   $M^{-1}c^{-1}$  и  $k_{red} = 5 \times 10^6$   $M^{-1}c^{-1}$ . Прямоугольная функция  $P(s, \Delta t, \tau)$  переключается из значения 0 в 1 через время  $\tau$  (время задержки) после острого спайка переменной s (= x), а затем спустя время  $\Delta t$  (как правило, этот параметр принимался равным 5 с) вновь принимает значение 0;  $\tau_{ji} = \tau$ ; коэффициенты силы связи  $C_{ji} = C_{inh}$ ,  $i \neq j$ . То есть рассматривается одинаковая сила связи между всеми осцилляторами. В случае однонаправленной связи (случай A на рисунке 1)  $C_{12} = C_{23} = C_{34} =$   $C_{41} = C_{inh}$ ; все остальные  $C_{ij} = 0$ . В случае двунаправленной связи (рисунок 1 Б)  $C_{12} = C_{21} =$   $C_{23} = C_{32} = C_{34} = C_{43} = C_{41} = C_{14} = C_{inh}$ ; все остальные  $C_{ij} = 0$ . При связи «все со всеми» (рисунок 1 В)  $C_{ij} = C_{inh}\delta_{ij}$ , где  $\delta_{ij}$  – символ Кронекера. Стоит отметить, что такой подход к организации связи между осцилляторами подобен, в некотором смысле, синаптическим связям нейронов; отдельные сосуды с раствором ингибитора аналогичны везикулам с нейромедиатором.

## 1.1.2. Фазовые осцилляторы и Кривая Переустановки Фаз

В рамках концепции КПФ каждый осциллятор характеризуется только своей фазой  $\varphi_j$ . Фаза описывает позицию системы на предельном цикле в её фазовом пространстве и меняется от нуля до единицы. В отсутствии входящего сигнала фаза растёт равномерно со скоростью  $\frac{d\varphi_j}{dt} = \omega_j$ . Когда фаза достигает значение 1, она становится равной 0, и осциллятор генерирует спайк. Этот спайк вызывает импульс или несколько импульсов (в зависимости от схемы связи), которые подаются на входы других осцилляторов после некоторой задержки во времени  $\tau$ . Когда осциллятор получает импульс в момент t, его фаза мгновенно смещается:  $\varphi(t^{+0}) = \varphi(t_{-0}) - F(\varphi(t_{-0}))$ , где  $F(\varphi)$  – Кривая Переустановки Фазы, символы  $t^{+0}$  и  $t_{-0}$  обозначают моменты времени на мгновение после и за мгновение до получения импульса. Стоит отметить, что в данной работе принято обозначение, согласно которому положительная КПФ подразумевает задержку, а отрицательная – ускорение осциллятора. Предполагается, что после импульсного возмущения осциллятор быстро возвращается на предельный цикл, и единственный эффект от этого – сдвиг фазы. Для ингибирующего [15] импульса КПФ является положительной монотонно возрастающей функцией, которая близка к нулю при φ = 0 и имеет максимум в φ = 1. При моделировании использовалась следующая численная аппроксимация КПФ:

$$F(\varphi) = \mu \varphi^3, \varphi \in [0, 1].$$
 (10)

Безразмерный коэффициент  $\mu$  характеризует степень, с которой импульсы могут сдвинуть фазу осциллятора.

Рассмотрим сеть из четырёх фазовых осцилляторов, описываемую следующим безразмерным уравнением:

$$\frac{d\varphi_j(t)}{dt} = \omega_j - F\left(\varphi_j(t_{-0})\right) \sum_{k=1}^4 a_{kj}\delta(t - t_k^P - \tau).$$
(11)

Здесь  $a_{kj}$  – матрица связности, описывающая схему связи осцилляторов:  $a_{kj}$  = 1, если j– ый осциллятор получает сигнал от k-того, иначе  $a_{kj}$ = 0. Временная задержка между каждой парой соединённых осцилляторов равняется  $\tau$ , и  $t_k^P$  – момент времени, когда k–ый осциллятор выдаёт спайк. Так, сигнал сгенерированный k–ым осциллятором в момент времени  $t_k^P$ , достигает j-ый во время  $t = t_k^P + \tau$  и вызывает смещение фазы. Для удобства вводится отображение  $\Theta(\varphi)$ :

$$\bar{\varphi} = \Theta(\varphi) = \varphi - F(\varphi) = \varphi - \mu \varphi^3.$$
(12)

Когда сигнал доходит до осциллятора, его фаза изменяется согласно этому отображению. Если одновременно поступает n импульсов (n = 2, 3), новая фаза высчитывается последовательным применением функции  $\Theta(\varphi)$ , описанной уравнением (12), для каждого поступившего импульса. Такое предположение гарантирует непрерывную зависимость фазовых траекторий  $\varphi(t)$  от начальных условий [82]. То есть фаза изменяется согласно отображению:

$$\bar{\varphi} = \Theta^n(\varphi). \tag{13}$$

В основном рассматриваются идентичные осцилляторы с собственными частотами  $\omega_j = 1$ . В этом случае их собственные периоды (или нативные, – периоды несвязанных осцилляторов) обозначаются как  $T_0$ . Однако рассматривается и эффект разброса частот.

## 1.2. Режимы БЖ осцилляторов

## 1.2.1. Однонаправленная связь по кругу

Обобщённые результаты для однонаправленной связи (случай A на рисунке 1) представлены на рисунке 2. Рисунок 2A отражает главную диаграмму в плоскости  $C_{inh} - \tau$ , содержащую все зоны различных динамических мод. Рисунки 2Б и 2Г демонстрируют срез главной диаграммы при фиксированном значении  $\tau$  (рисунок 2Б) и фиксированном значении  $C_{inh}$  (рисунок 2Г) в форме зависимостей глобального периода осцилляций T от  $C_{inh}$  и  $\tau$ , соответственно. Дополнительно на рисунке 3 представлена зависимость T от  $\tau$  при различных  $C_{inh}$ . На рисунке 2В для сравнения отображены результаты, полученные методом КПФ.



Рисунок 2 – (A) Диаграмма в плоскости C<sub>inh</sub> – τ со всеми найденными ритмами для однонаправленной связи по кольцу (случай A на Рисунке 1). Режим W – ниже линии 7 и выше линии 2; AP – ниже 5 и выше 1; IP выше линии 4; WR – между кривыми 3 и 6. Надписи типа «AP/W» или «AP/WR/IP» обозначают области би- и тристабильности соответственно. (Б) Срез диаграммы (A) при фиксированном значении τ = 60 с в виде зависимости периода осцилляций от силы связи C<sub>inh</sub>. Сложные режимы, C, представлены в виде зависимости соотношений N<sub>i</sub>/N<sub>i+1</sub> (правая ось) от C<sub>inh</sub>, где N<sub>i</sub> – количество спайков i-

того осциллятора за один полный период (при условии  $N_i < N_{i+1}$ ). (В) Зависимость  $T/T_0$  от  $\tau/T_0$ , полученная методом КПФ. (Г) Срез диаграммы (А) при  $C_{inh} = 2 \times 10^{-6}$  М  $c^{-1}$  в виде зависимости Т от т. Вертикальные стрелки в (Б) и (Г) обозначают резкий переход между различными режимами при плавном изменении одного из параметров  $C_{inh}$  или т. Символы: окружность – синфазные колебания (IP); ромб – противофазные (АР), плюс – режим W; минус – WR; треугольник – сложные режимы (С); крестик – OS; звёздочка – режим, похожий на W, но интервалы между соседними спайками меняются во времени случайным образом. Треугольники в (Г) означают трёхкластерный ритм (3Cl = «2+1+1»).



Рисунок 3 – Срез диаграммы (А) на Рисунке 2 при  $C_{inh} =$  (А)  $5 \times 10^{-5}$  и (Б)  $1.7 \times 10^{-4}$  М  $c^{-1}$  в виде зависимости периода осцилляций T от временной задержки т. Обозначения такие же, как и на Рисунке 2.

Сначала рассмотрим так называемые «регулярные» ритмы, в которых каждый осциллятор производит ровно один спайк за один полный период системы. Существует четыре таких ритма при однонаправленной связи: синфазные колебания (IP – In-Phase), противофазные (AP – Anti-Phase), когда любые соседние осцилляторы имеют сдвиг по фазе, равный половине глобального периода T, режим ходьба (W – «Walk»), когда осцилляторы дают спайки один за другим в направлении связи со сдвигом фазы между соседними осцилляторами равным T/4, и обратная ходьба (WR – Walk-reverse), режим, обратный W, когда осцилляторы колеблются по очереди со сдвигом фазы T/4, но последовательность спайков обратна направлению связи. Примеры этих мод показаны на рисунке 4А – Г соответственно. На плоскости  $C_{inh} - \tau$  можно увидеть две разные области с режимом AP и две – с W: при больших  $C_{inh}$  и  $\tau$  и при маленьких (верхний правый и нижний левый углы соответственно).

Рисунок 2В иллюстрирует, что расстояние (разница в задержке  $\tau$ ) между любыми двумя соседними ветвями зависимостей T от  $\tau$  равняется T/4. Примерно такая же разница может наблюдаться и на Рисунок 2Г для БЖ-осцилляторов при решении уравнений (6) - (9). Последовательность динамических мод, изображённая на Рисунок 2В, при возрастании  $\tau$  (W, AP, WR, IP, и снова W, AP, WR, IP и т. д.) может быть частично объяснена с точки зрения фазовых сдвигов между соседними спайками. Для мод AP, WR, IP и W эти сдвиги равняются T/2, T/4, 0 и -T/4 соответственно. Разница в сдвигах между любыми парами соседних режимов равняется

T/4. Точно такой же сдвиг наблюдается между двумя соседними ветками:  $\tau$ -сдвиг(AP-W) =  $\tau$ -сдвиг(WR-AP) =  $\tau$ -сдвиг(IP-WR) =  $\tau$ -сдвиг(W-IP) = T/4.

На рисунке 2 Б можно видеть, что нельзя попасть в режим осциллирования AP из какихлибо отличных от него начальных условий, постепенно меняя значения параметра  $C_{inh}$ . Точно так же, как и режим W при малых значениях силы связи не может быть получен плавным изменением  $\tau$  (рисунок 2 Г). Рисунок 3 показывает, что ни одна ветвь режима AP (при малых и больших значениях  $\tau$ ) также не может быть достигнута изменением  $\tau$ . Только подходящие начальные условия или подходящее возмущение могут переключить систему в эти режимы. Следовательно, эти моды могут рассматриваться как изолы - изолированные ветви стационарных состояний системы [83]. В это же время, режим IP можно получить медленным изменением любого из этих двух параметра.

Также на рисунке 2 Б видно, что с возрастанием  $C_{inh}$  (в области средних значений  $C_{inh}$ ) период T мод IP, W и AP уменьшается. Это выглядит странно, т. к. ингибирующий сигнал должен увеличивать период из-за ингибирования автокатализа [член  $k_1 xy$  в уравнении (6)]. Однако БЖреакция – нелинейная реакция. Вброс Br<sup>–</sup> приводит к увеличению Br<sub>2</sub>, что, в свою очередь, приводит к увеличению BrMA [член  $k_2y$  в уравнении (9)], которая и ускоряет уменьшение окисленной формы катализатора, z [член  $k_9vz$  в уравнении (8)], и тем самым уменьшает период T. Баланс между процессами укорачивания и растяжения периода T ответственен за немонотонную зависимость T от  $C_{inh}$ .

Есть много зон бимодальности, где присутствуют два разных режима, и даже есть несколько зон тримодальности с тремя режимами. Например, (рисунки 2 A и 2 Б) IP, W и AP сосуществуют в относительно большом диапазоне  $\tau$  и  $C_{inh}$ ; также могут сосуществовать ритмы AP, WR и IP (рисунок 3 A). С другой стороны, рисунок 3 демонстрирует тот факт, что моды WR и W могут сосуществовать при одинаковых наборах параметров (рисунок 3 A при  $C_{inh} = 5 \times 10^{-5}$  Mc<sup>-1</sup> и  $\tau = 50-55$  с) и не могут сосуществовать при других значениях параметров (рисунок 3 Б при  $C_{inh} = 1.7 \times 10^{-4}$  Mc<sup>-1</sup>).

На рисунке 2 А, Б и Г присутствуют области необычного динамического поведения (отмечены звёздочками и чёрными треугольниками). Переход в эти режимы осуществляется плавно, медленным изменением параметров. При этом нет резкого изменения периода осцилляций и не наблюдаются резкие изменения в их поведении. Тем не менее, наблюдаемые паттерны различны. Например, похожий на хаотичный режим W, получаемый при плавном увеличении *C*<sub>inb</sub>, рисунок 2 В, характеризуется непредсказуемостью интервалов между

спайками. И эта хаотичность возрастает с увеличением *C*<sub>inh</sub>, пока мода не перейдёт в сложную. Это – пример надкритической бифуркации.

Другой пример надкритической бифуркации – переход режима WR в трёхкластерный (3Cl, = «2+1+1», два соседних осциллятора дают спайк одновременно, а третий и четвертый – со сдвигом *T*/3 и 2*T*/3 соответственно) (рисунок 2 Г). С уменьшением *τ* сокращается время между спайками двух соседних осцилляторов. Начиная с некоторого значения параметра два осциллятора начинают давать спайки синхронно (рисунок 4 Д). Если продолжать уменьшать *τ*, 3Cl режим становится нестабильным, начинает «разваливаться» (рисунок 4 Е), и кажется, что начинает переходить в четырёхкластерный (4Cl или Splay). Ни один из осцилляторов не синфазен с каким-либо другим, но последовательность спайков отлична от режимов W или WR. При ещё меньших значениях *т* происходит субкритический переход в противофазный режим.

В добавок к регулярным (W, AP, WR, IP) найдены различные сложные режимы (C). Мода называется сложной, если все четыре осциллятора производят спайки и количество спайков  $N_i$  каждого осциллятора за полный период T различно или  $N_i > 1$  (например,  $N_i = 2$ ). В описанных выше регулярных режимах  $N_i = 1$ . Сложные режимы с разными  $N_i$  в каком-то смысле напоминают резонансы n:m, найденные для двух связанных осцилляторов с разными частотами [20, 31]. На самом деле, возмущающий сигнал большой амплитуды уменьшает частоту осциллирования. Это приводит к асимметрии, т. к. только один из двух почти одинаковых осцилляторов уменьшает частоту. Примеры сложных режимов представлены на рисунке 4 Ж и К. При относительно маленьких  $C_{inh}$  (но достаточно больших, чтобы находиться в регионе Срежимов) возникают периодические моды (рисунок 4 Ж). Количество спайков в одном полном периоде:  $N_1 = 3$ ,  $N_2 = 2$ ,  $N_3 = 3$  и  $N_4 = 2$ . В этой зоне наблюдается очень много различных комбинаций  $N_i$ . Но можно вывести основное правило: соотношение  $N_i/N_{i+1}$  уменьшается с возрастанием силы связи (рисунок 2 Б).



Рисунок 4 – Примеры режимов для однонаправленной связи. Спайк осциллятора обозначен вертикальной чертой. На вертикальной оси отмечены номера осцилляторов. (А) Режим IP (один кластер);  $\tau = 60$  с,  $C_{inh} = 1.5 \times 10^{-4}$  M c<sup>-1</sup>; T = 127.3 с. (Б) Ритм АР (два кластера);  $\tau = 10$  с,  $C_{inh} = 1.5 \times 10^{-4}$  M c<sup>-1</sup>; T = 153.2 с. (В) WR (четыре кластера);  $\tau = 20$  с,  $C_{inh} = 1.0 \times 10^{-4}$  M c<sup>-1</sup>; T = 113.3 с. (Г) W (четыре кластера);  $\tau = 10$  с,  $C_{inh} = 2 \times 10^{-6}$  M c<sup>-1</sup>; T = 162.9 с. (Д) «2+1+1» (три кластера);  $\tau = 45$  с,  $C_{inh} = 2 \times 10^{-6}$  M c<sup>-1</sup>; T = 143.4 с. (Ж) сложный периодический режим «2/3»;  $\tau = 30$  с,  $C_{inh} = 3 \times 10^{-4}$  M c<sup>-1</sup>; T = 261 с,  $N_2/N_3 = 2/3$  ( $N_2 = N_4$ ,  $N_1 = N_3$ ). (И) реальная кинетика концентрации активатора режима OS; осцилляторы 2 и 4 задавлены;  $\tau = 15$  с,  $C_{inh} = 7 \times 10^{-4}$  M c<sup>-1</sup>; T = 140.4 с. (К) сложный нерегулярный режим;  $\tau = 15$  с,  $C_{inh} = 5 \times 10^{-4}$  M c<sup>-1</sup>.

При относительно больших значениях  $C_{inh}$  из зоны сложных динамических режимов спайки диагональных осцилляторов (допустим, 2 и 4) становятся нерегулярными, как видно на рисунке 4 И, в то время как осцилляторы 1 и 3 дают спайки регулярно. В каком-то смысле такое поведение может быть названо «химерой» [60, 78]. При дальнейшем увеличении силы связи диагональная пара полностью подавляется. Так, С-режим переходит в OS (Oscillation Suppression), когда хотя бы один осциллятор подавлен. Вообще, в рассматриваемой сети может быть три вида ритмов OS: подавлен один осциллятор, два или три. Пример режима OS продемонстрирован на рисунке 4 К: два диагональных осциллятора 1 и 3 осциллируют независимо с их нативными периодами  $T_1$  и  $T_3$ . Так как периоды любых двух осцилляторов сети различаются (ввиду различных значений рассматриваемых параметров  $h_i$ ), сдвиг фазы между ними медленно изменяется во времени.

## 1.2.2. Двунаправленная связь по кругу

Обобщённые результаты по двунаправленной связи (случай Б на рисунке 1) изображены на рисунке 5. Рисунок 5 А представляет главную диаграмму найденных режимов на плоскости  $C_{\rm inh} - \tau$ , на рисунке 5 Б и Г показаны срезы главной диаграммы в форме зависимости глобального периода колебаний от силы связи  $C_{\rm inh}$  и временной задержки  $\tau$  соответственно. Рисунок 5 В демонстрирует результаты, полученные методом КПФ.

Как можно видеть на рисунке 5, наблюдаются четыре регулярных режима: W, AP, IP и IPAP (синфазно-противофазный). Стоит отметить, что при данном типе связи нет различий между режимами W и WR, т. к. нет определённого направления. Новый ритм IPAP представлен на рисунке 6 А. Это двухкластерный режим, который похож на иноходь или скачок в определениях видов походки четвероногих: два соседних осциллятора находятся в синфазе, как и другие два, но сами пары осциллируют противофазно. В случае БЖ-осцилляторов была найдена только одна ветвь режима IPAP. При рассмотрение фазовых - две ветви (рисунок 5 В) в диапазоне  $\tau < T_0$ .



Рисунок 5 – (A) Диаграмма всех найденных режимов для двунаправленной связи по кругу (случай (Б) на рисунке 1) в плоскости C<sub>inh</sub> — τ. Вертикальная линия 1 разделяет режимы C и OS; регион моды IPAP обозначен точечной линией 6; пунктирные кривые без номеров делят плоскость на четыре области: AP, IP, C и OS для случая двух связанных осцилляторов. (Б) Срез

диаграммы (А) при фиксированном значении  $\tau = 10$  с в виде зависимости периода осцилляций Т от силы связи  $C_{inh}$ . Сложные режимы, С (треугольники), представлены как зависимость отношений  $N_i/N_{i+1}$  (правая ось) от  $C_{inh}$ , где  $N_i$  и  $N_{i+1}$  – количество спайков двух соседних осцилляторов за один полный период (при условии, что  $N_i < N_{i+1}$ ). (В) Зависимость  $T/T_0$  от  $\tau/T_0$  для фазовых осцилляторов. (Г) Срез диаграммы (А) при фиксированном значении  $C_{inh} = 1 \times 10^{-5}$  M c<sup>-1</sup> в виде зависимости T от  $\tau$ . Вертикальные стрелки в (Б) и (Г) означают резкие переходы между различными режимами при плавном изменении одного из параметров  $C_{inh}$  или  $\tau$ . Символы такие же, как и на рисунке 2; квадраты обозначают новый режим IPAP (синфазно-противофазные осцилляции), пример его динамики приведён на Рисунке 6А.



Рисунок 6 – Примеры режимов для двунаправленной связи. (A) Ритм IPAP;  $\tau = 40 c$ ,  $C_{inh} = 1 \times 10^{-5} M c^{-1}$ . (b) Трёхкластерная мода (3Cl);  $\tau = 10 c$ ,  $C_{inh} = 5 \times 10^{-7} M c^{-1}$ . (b) Сложный периодический режим;  $\tau = 10 c$ ,  $C_{inh} = 8 \times 10^{-5} M c^{-1}$ ; T = 335 c,  $N_2/N_3 = 2/3$  ( $N_1 = N_3$ ), осцилляторы 2 и 4 синфазны. (Г) Сложный периодический ритм;  $\tau = 10 c$ ,  $C_{inh} = 2 \times 10^{-4} M c^{-1}$ ; T = 183 c,  $N_i/N_{i+1} = 1/2$ , осцилляторы 1 и 3 синфазны, 2 и 4 - в противофазе,  $T_{1,3} = 91.5 c$ ,  $T_{2,4} = 183 c$ .

Как можно видеть на рисунке Рисунок 5 Б, трёхкластерная мода появляется надкритически из АР или субкритически из W путём уменьшения или увеличения силы связи, соответственно. Пример кинетики показан на рисунке 6 Б: два диагональных осциллятора 1 и 3 образуют кластер, в то время как остальные колеблются раздельно. Возникновение 3Cl режима из АР подобно возникновению первого из WR в случае однонаправленной связи (рисунок Рисунок 2 Г). Разница только в том, что спайки сливаются при WR и расходятся при АР.

Наблюдаются две ветви режима W (рисунок 5 В и Г) в диапазоне  $\tau < T_0$ . Предполагается, что вторая ветвь (при больших  $\tau$ ) является ветвью режима WR в случае однонаправленной связи. Эта гипотеза подтверждается тем, что  $\tau$ -сдвиг между ветвями W, равный  $T_0/2$ , соответствует сдвигу между WR и W в однонаправленной связи. Точно так же  $\tau$ -сдвиги между AP и IP равны при обоих типах связи.

Ветвь IPAP лежит посередине между двумя ветвями W; *τ*-сдвиг между ними равен *T*<sub>0</sub>/4. В некотором смысле паттерн IPAP может рассматриваться в качестве суперпозиции двух противоположно направленных волн: W и WR.

И симуляция системы ОДЕ, и КПФ-метод (рисунок 5 Б, В, Г) показывают, что режим АР и одна из ветвей IPAP очень близки друг к другу. Причиной этому может быть то, что они оба являются двухкластерными ритмами.

Последовательность изменения режимов W-AP-IPAP-W-IP-IPAP (полученную увеличением  $\tau$ ) для двунаправленной связи можно сравнить с последовательностью W-AP-WR-IP для однонаправленной. Фрагменты «W-AP» и «W-IP» одинаковы для обеих последовательностей (с учётом эквивалентности мод W и WR при двунаправленной связи). Новый режим IPAP заключен между этими двумя фрагментами. При моделировании фазовых осцилляторов ветвь режима AP смещена по шкале  $\tau$  относительно W на  $T_0/10$ , как и IP относительно W (рисунок 5 В). Для БЖ-осцилляторов эти сдвиги больше.

Режим Сплей (S, Splay) (общее название мод, когда осцилляторы вспыхивают один за другим с равным временным интервалом) не может быть получен плавным изменением какоголибо параметра (рисунок 5 Б и Г). Только определённые начальные условия или специальное воздействие могут переключить систему в этот режим. То есть режим W можно рассматривать как изолу.

Как и в случае однонаправленной связи, для случая взаимной связи в системе может существовать несколько решений при одних и тех же значениях параметров. Бистабильность обнаруживается практически везде. Есть только две зоны с моностабильностью: с режимом AP и режимом IP (рисунок 5 A). Есть узкие области, где могут быть найдены сразу четыре решения при одинаковых параметрах: режимы AP, IPAP, IP и C на рисунке 5 Б и AP, IPAP, IP и W на рисунке 5 Г.

Для сравнения на рисунке 5 А изображены линии с короткими штрихами, разграничивающие режимы OS, C, чистый IP и зону бистабильности AP/IP, для двух связанных осцилляторов [13]. В случае с четырьмя осцилляторами эти границы смещены влево, на меньшие значения *C*<sub>inh</sub> (*C*<sub>inh</sub> примерно в два раза меньше при одинаковых значениях *т*). Возможно, это вызвано в два раза большим количеством входящих сигналов от других осцилляторов.

Примеры сложных режимов, появляющихся при больших значениях  $C_{inh}$  изображены на рисунке 6 В и Г. На относительно маленьких (для моды С) значениях (рисунок 6 В)  $N_i/N_{i+1} = 2/3$ . С увеличением параметра соотношение частот уменьшается. Например, на рисунке 6 Г $N_i/N_{i+1} = 1/2$  и период у осцилляторов 2 и 4 в два раза, чем у 1 и 3. Осцилляторы в этих диагональных парах синфазны, но сами пары находятся в противофазе. В случае однонаправленной связи не были найдены сложные режимы хотя бы с одной синфазной парой осцилляторов.

С дальнейшим увеличением силы связи периоды двух диагональных осцилляторов растягиваются. И только при приближении к значениям  $C_{
m inh}$ , при которых сеть переходит в режим OS, меняется динамика диагональных осцилляторов. Период колебаний пары

диагональных осцилляторов близок нативным, колебания второй пары практически полностью затухают — лишь изредка они выдают спайки. Но через некоторое время подавленная пара оживает и начинает осциллировать регулярно, первая пара, наоборот, практически умирает.

В режиме OS два диагональных осциллятора полностью подавлены, остальные два колеблются с нативными периодами, как и в случае с однонаправленной связью.

## 1.2.3. Связь «все со всеми»

В случае связи «все со всеми» (рисунок 1 В) существует пять регулярных ритмов (рисунок 7): W, 3Cl (= «2+1+1»), AP (=IPAP), «3+1» (двухкластерный режим, когда один кластер состоит из трёх синфазных осцилляторов и одного, находящегося в противофазе с первыми тремя) и IP. При рассматриваемой схеме связи нельзя определить очерёдность спайков: нет никакой разницы между последовательностью спайков, например, 1, 2, 3 и 4 и последовательностью, пересортированной в произвольном порядке, например, 1, 3, 4 и 2. Поэтому режим AP тождественен IPAP, режим W может быть назван S. Появляются два новых режима – трёхкластерный (3Cl) (пример можно увидеть на рисунке 6 Б) и двухкластерный (2Cl) «3+1» (рисунок 8 Б). Они являются асимметричными и появляются субкритически, когда параметр ( $\tau$ или  $C_{inh}$ ) меняется плавно. Несмотря на то, что эти моды упоминались и ранее, они названы новыми при рассматриваемой топологии сети потому, что они представляют собой отдельные самостоятельные ветви ритмов сети осцилляторов.



Рисунок 7 – Связь «все со всеми» (случай В на рисунке 1). (А) Главная диаграмма найденных ритмов на плоскости  $C_{inh} - \tau$ . Регион ритмов IP (= «1Cl») расположен между серыми линиями 1; зона AP – между чёрными пунктирными кривыми 3; кластеры «3+1» - между жирными кривыми 2; зона 3Cl-паттернов (= «2+1+1») обозначена между точечными кривыми 4; режимы W (или сплей) лежат ниже тонкой линии 5. (Б) Срез диаграммы (А) при фиксированном значении т=5 с в виде зависимости периода осцилляций T от силы связи  $C_{inh}$ . Двухкластерный режим «3+1» отмечен кругами. Новый сложный режим  $C_1$  отмечен светлыми треугольниками, 3Cl – чёрными, W («1+1+1+1») – плюсами. (В) Зависимость  $T/T_0$  от  $\tau/T_0$  для фазовых осцилляторов. (Г) Срез диаграммы (А) при фиксированном значении  $C_{inh} = 2 \times 10^{-5}$  M с<sup>-1</sup> в виде зависимости периода осцилляций T от т. Стрелки в (Б) и (Г) означают резкие переходы между различными режимами при плавном изменении одного из параметров  $C_{inh}$  или т. Круглая стрелка на (Б) показывает переход из режима «3+1» в «2+2» (= AP).

Ветви обоих двухкластерных режимов (АР и «3+1») очень близки друг к другу (рисунок 7 Б-Г). Последовательность ритмов W-3Cl-AP-«3+1», возникающая с увеличением  $\tau$  или  $C_{inh}$ , аналогична последовательности при использовании метода КПФ. Вторые ветви W и 3Clрежимов, возникающие при моделирования идентичных фазовых осцилляторов (рисунок 7 В), при моделировании БЖ-осцилляторов с малой расстройкой частот не наблюдаются (рисунок 7 А и Д). Однако, если исследовать идентичные осцилляторы, эти вторые ветви могут быть найдены в очень узкой зоне (не показана на рисунке 7) при малой силе связи (около  $1-2 \times 10^{-6}$  M c<sup>-1</sup>). Синфазный режим довольно стабилен в симуляциях обоих видов осцилляторов, но он не может

быть найден при  $\tau < 5$  в случае использования ОДУ для описания осцилляторов с разбросом собственных периодов.

Основные режимы для всех типов связи: W, AP и IP.  $\tau$ -сдвиг между первыми ветвями AP и W равен  $T_0/4$ , между IP и AP -  $T_0/2$  (рисунок 7 В), как и в случае двунаправленной связи.

Увеличение значений  $\tau$  или  $C_{\rm inh}$  приводит к уменьшению количества кластеров в режиме: 4Cl (= W)  $\rightarrow$  3Cl  $\rightarrow$  2Cl (= AP, «3+1»)  $\rightarrow$  1Cl (= IP) (рисунок 7 Б и В), по крайней мере для  $\tau < T/2$ . Однако моделирование фазовых осцилляторов с заданными кривыми переустановки фазы показывает, что последовательность паттернов повторяется с периодичностью  $T_0$ . Это означает, что число кластеров возрастает при больших  $\tau$  ( $\tau > T_0$ ) (рисунок 7 В).

Три- и бистабильность не являются редким явлением. Моностабильность в основном находится для W (малые значения  $\tau$  и  $C_{inh}$ , рисунок 7 A) или для IP (большие значения  $\tau$  и  $C_{inh}$ , рисунок 7 A).

Сложные режимы представляют собой много различных комбинаций количества спайков  $N_i$ . Например, рисунок 8 А показывает режим, при котором три осциллятора всегда синфазны, а один (номер 2) имеет удвоенный период и даёт спайки синфазно с остальными в два раза реже. Такой режим можно назвать «3+1/2». Через отношение частот такой паттерн характеризуется так:  $N_i/N_{i+1} = 1/2$ . Другой сложный режим, представленный на рисунке 8 В, так:  $N_i/N_{i+1} = 1/3$ . Его можно назвать «3+2/3».



Рисунок 8 – Примеры режимов для связи «все со всеми». (А) Сложный ритм «3+1/2» или  $C_1$ ,  $\tau = 5$  с,  $C_{inh} = 9 \times 10^{-5}$  M  $c^{-1}$ ,  $N_2/N_3 = 1/2$ . (Б) Ритм «3+1»,  $\tau = 5$  с,  $C_{inh} = 2.5 \times 10^{-5}$  М  $c^{-1}$ . (В) Сложные осцилляции,  $\tau = 5$  с,  $C_{inh} = 7 \times 10^{-5}$  М  $c^{-1}$ ,  $N_2/N_3 = 2/3$ ; (Г) OS-режим, осцилляторы 1, 3 и 4 синфазны, 2 – подавлен,  $\tau = 5$  с,  $C_{inh} = 1.5 \times 10^{-4}$  М  $c^{-1}$ . (Д) Сложный OS режим: осцилляторы 2 и 4 подавлены, 1 осциллирует регулярно с T = 85.1 с; серые итриховые линии означают малоамплитудные спайки осциллятора 3. (Е) Более сложный режим OS, осцилляторы 1 и 4 подавлены, 2 и 3 дают серию спайков по очереди,  $\tau = 5$  с,  $C_{inh} = 5 \times 10^{-4}$  М  $c^{-1}$ .

ОS-моды, когда хотя бы один осциллятор подавлен, представлены на рисунке 8 Г-Е. На рисунке 8 Г показаны синфазные периодические спайки осцилляторов 1, 3 и 4. При больших  $C_{inh}$  (а иногда при других  $\tau$ ) могут быть найдены OS-ритмы, где подавлены два ( $C_{inh} = 4 \times 10^{-4}$  M c<sup>-1</sup>) или даже три осциллятора ( $C_{inh} = 7 \times 10^{-4}$  M c<sup>-1</sup>). Рисунок 8 Д и Е демонстрируют более сложные OS-режимы. На первом только осциллятор 1 выдаёт регулярные спайки, в то время как осциллятор 3 генерирует высоко- и малоамплитудные синфазные спайки каждые четыре спайка осциллятора 1. На втором рисунке (при немного меньших  $C_{inh}$ ) наблюдаются чередующиеся серии спайков осцилляторов 2 и 3. Количество последовательных спайков в серии зависит от силы связи. Похожий динамический режим получен для двунаправленной связи, но в том случае чередующиеся серии спайков выдавали пары диагональных осцилляторов, не одиночные осцилляторы.

#### 1.2.4. Сложные режимы

Сложные режимы или, лучше сказать, «сложные режимы 1» возникают при достаточно больших значениях  $C_{\rm inh}$ , в зоне «С» сложных режимов (рисунки 2 А, 5 А и 7 А). Второй тип сложных режимов, сложные режимы 2, можно найти при много меньших *C*<sub>inb</sub>, в узких областях внутри зон регулярных режимов, где появляется тристабильность. Например, в случае связи «все со всеми» внутри области, обозначенного тремя режимами «IP/«3+1»/AP» на рисунке 7 А, из специально подобранных начальных условий, отличных от наблюдаемых в этой области регулярных режимов IP, «3+1» и АР, был найден режим (рисунок 9 А), который в некотором смысле похож на замкнутую гетероклиническую орбиту [84]. В приведённом примере использовались начальные условия между режимами «3+1» и W. Такой режим может быть описан несколькими нестабильными кластерами, сформированными синфазными осцилляторами, и малым числом осцилляторов, которые переходят из одного кластера в другой. На рисунке 9 А осциллятор 2 поочерёдно даёт синфазные спайки с осцилляторами 4, 1, 3, 4, 1 и т. д. Если рассматривать осцилляторы 1, 3 и 4 в качестве кластеров, состоящих из одного осциллятора, такой режим похож на периодический переход осциллятора 2 из одного кластера в другой. Скорее всего, это мнимая схожесть потому, что отсутствует фазовая траектория типа «седло».


Рисунок 9 – Сложные режимы. (А) и (Б) Связь «все со всеми». Начальные условия между «3+1» и W. (А)  $\tau = 28.1 \text{ c}$ ,  $C_{inh} = 2 \times 10^{-5} \text{ M c}^{-1}$ ; T = 578 c,  $N_1: N_2: N_3: N_4 = 4: 3: 4: 4$ . (Б)  $\tau = 30 \text{ c}$ ,  $C_{inh} = 2 \times 10^{-5} \text{ M c}^{-1}$ ; T = 296, 2 c,  $N_i: N_j = 2: 2$ . Осциляторы 2 и 4 синфазны. (В) Двунаправленная связь по кольцу,  $\tau = 23 \text{ c}$ ,  $C_{inh} = 3,5 \times 10^{-5} \text{ M c}^{-1}$ ; T = 384.5 c,  $N_1: N_2: N_3: N_4 = 2: 3: 2: 3$ . Осциляторы 1 и 3 синфазны. Начальные условия – ритм «3+1».

Ещё один пример сложного режима 2, представленный на рисунке 9 Б, можно найти, если медленно изменять один из параметров  $\tau$  или  $C_{inh}$ . В рассматриваемом примере осцилляторы 2 и 4 всегда синфазны, но полный период состоит из двух спайков каждого осциллятора,  $N_i/N_j = 2/2$ . Должна быть узкая область на фазовом пространстве, где должны существовать «необычные» орбиты, отличные от стабильных режимов (как IP, AP и «3+1»). Возможно, что необходимым условием для существования таких «необычных» орбит является возможность сосуществования хотя бы трёх разных стабильных орбит, т. е. тристабильность.

Для проверки этой идеи проверялось существование «необычных» орбит при двунаправленной связи по кругу в области AP/IPAP/IP (рисунок 5 A). Такая орбита нашлась при использовании начальных условий, равных нестабильному (в данной области) режиму «3+1». Пример кинетики найденного режима представлен на рисунке 9 В. Вопрос «сколько таких «необычных» сложных режимов 2 может быть получено при других начальных условиях и параметрах» остаётся открытым. Сложные режимы 2 не были найдены для однонаправленной связи по кругу.

#### 1.3. Режимы фазовых осцилляторов

#### 1.3.1. Однонаправленная связь по кругу

При однонаправленной связи каждый осциллятор получает импульс только от одного своего соседа. Для периодических режимов это означает, что за период T осциллятор получит только один импульс. Пусть разница во времени (лаг) между спайками j-го и (j + 1) осцилляторов равна  $\Delta_j$ . Тогда, в момент прихода импульса на (j + 1)-осциллятор (j-тый даёт спайк первым), его фаза равна  $\varphi_j = \tau - \Delta_j$ . Период осциллятора увеличивается на величину  $F(\varphi_j)$  и равняется:

$$T = 1 + F(\tau - \Delta_j). \tag{14}$$

Монотонность  $F(\varphi)$  подразумевает равенство всех  $\Delta_j$ , т. е.  $\Delta_j = \Delta$ , таким образом, возможны только эквидистантные режимы. Ввиду того, что фазовый сдвиг между спайками соседних осцилляторов должен быть кратным периоду, возможны четыре различных режима: (a)  $\Delta = 0$ , соответствует синфазным осцилляциям; (б)  $\Delta = T/4$ , соответствует режиму W; (с)  $\Delta = T/2$ , аналог противофазного режима AP; (д)  $\Delta = 3T/4$ , сопоставим с WR.

Таким образом, каждый режим можно описать формулой:  $\Delta = kT$ , где  $k \in (0; 1/4; 1/2; 3/4)$ . Соответствующую каждому k ветвь режимов на плоскости  $\tau - T$  можно определить из уравнений (14) и (10):

$$\tau = kT + \sqrt[3]{\frac{T-1}{\mu}},\tag{15}$$

где  $T \in [1; 1 + \mu]$ . Формы ветвей соответствуют всем четырём режимам, т. к. каждый режим с k > 0 может быть получен из IP смещением ветви на kT вдоль оси  $\tau$ . Стоит отметить, что уравнение (15) описывает только одну ветвь для каждого режима. Однако известно, что каждый периодический режим с периодом T, наблюдаемый при задержке  $\tau$ , снова проявляется при большей задержке  $\tau' = \tau + nT$ , где n – натуральное число [85]. Это соображение позволяет получить бесконечно многое число ветвей всех четырёх режимов. Полученные ветви режимов по методу КПФ изображены на рисунке 2 В. Все они соответствуют устойчивым периодическим режимам сети.

#### 1.3.2. Двунаправленная связь по кругу

Относительно синфазного режима, в случае двунаправленной связи по кругу каждый осциллятор одновременно получает два импульса от двух своих соседей. Для малых задержек,  $\tau < 1$ , фаза  $\varphi$  каждого осциллятора в момент прихода импульса равна  $\tau$  (или  $\tau/T_0$ , но  $T_0 = 1$ ). Это позволяет определить период режима IP из уравнений (10) и (13):

$$T = \tau + 1 - \Theta^2(\tau) = 1 + \mu\tau^3 + \mu(\tau - \mu\tau^3)^3.$$
 (16)

Можно показать, что режим IP устойчив для любых значений  $\tau$ . Вводится малое возмущение в режим IP так, чтобы была малая разница фаз осцилляторов:  $\delta_{jk} = \varphi_j - \varphi_k \ll 1$ . На первой стадии рассмотрим динамику диагональных осцилляторов, например, 1 и 3. Важно, что они по-прежнему одновременно получают импульсы от других двух (2 и 4). В момент получения импульса их фазы перестраиваются:  $\varphi_1 \rightarrow \Theta(\varphi_1)$  и  $\varphi_3 \rightarrow \Theta(\varphi_3)$ . Т. к. фазы очень близки, но не идентичны, их разница меняется:  $\delta_{13} \rightarrow \Theta(\varphi_1) - \Theta(\varphi_3) \cong \Theta'(\varphi_1)\delta_{13}$ , где  $\Theta'(\varphi)$ является производной функции  $\Theta(\varphi)$ . Т. к.  $0 < \Theta'(\varphi) < 1$  для всех  $\varphi$ , отображение является сжимающим, и  $\delta_{13}$  сходится к 0. Точно так же разница фаз осцилляторов 2 и 4 сходится к 0. Таким образом, пары диагональных осцилляторов формируют синфазные кластеры: осцилляторы 1 и 3 образуют первый кластер, 2 и 4 – второй.

На второй стадии рассмотрим динамику двух кластеров. Пусть первый кластер опережает второй, и их разница фаз равна  $\delta_{12}$ . Тогда второй кластер получит импульсы от первого раньше, чем первый от второго. После происшествия этих событий, новая разница фаз высчитывается по формуле:

$$\delta_{12} \to \Theta^2(\varphi + \delta_{12}) - \Theta^2(\varphi - \delta_{12}) - \delta_{12} \approx (2f(\varphi) - 1)\delta_{12}, \tag{17}$$

где  $f(\varphi) = d(\Theta^2(\varphi))/d\varphi$ . Ввиду того, что  $0 < f(\varphi) < 1$  для всех  $\varphi$ , отображение является сжимающим, и разница фаз между кластерами стремится к 0. Это значит, все осцилляторы синхронизируются, и режим IP стабилен для условных временных задержек ( $\tau < 1$ ).

Ветви IP-режима для  $\tau > 1$  можно рассматривать как повторное появление ветвей при  $\tau < 1$ , т. к. решение с периодом T, найденное для  $\tau$ , вновь появляется при  $\tau' = \tau + nT^{48}$ .

Интересно, что ветви для IPAP и IP имеют одинаковую форму. Объяснением для этого может служить то, что период моды IPAP удовлетворяет уравнению:

$$\frac{T}{2} = \tau + 1 - \Theta^2 \left(\frac{T}{2} + \tau\right),\tag{18}$$

и если T удовлетворяет уравнению (16) в  $\tau$ , оно также удовлетворяет и (18) в  $\tau' = \tau - T/2$ . Таким образом, режим IPAP можно получить из синфазного смещением последнего на T/2 по оси  $\tau$ .

#### 1.3.3. Связь «все со всеми»

При связи «все со всеми» в случае синфазного режима каждый осциллятор получает одновременные импульсы от остальных трёх в фазу  $\varphi = \tau$ . Тогда для  $\tau < 1$  периодрежима будет определяться (согласно уравнению (13)):

$$T = \tau + 1 - \Theta^3(\tau). \tag{19}$$

Можно показать, что режим IP стабилен для произвольных задержек. Для доказательства, вводится малое возмущение в режим IP. Сначала только в один осциллятор, например, в 1, а остальные три остаются синфазными. Пусть осциллятор 1 опережает остальные и имеет разницу в фазе с остальными  $\delta > 0$ . Тогда эта разница через один период будет равна:

$$\delta \to \Theta \left( \Theta (\Theta (\tau + \delta)) \right) - \Theta \left( \Theta (\Theta (\tau + \delta) + \delta) \right) \approx$$
  
$$\Theta' \left( \Theta (\Theta (\tau)) \right) \Theta' (\Theta (\tau)) \Theta' (\tau) \delta = \frac{d}{d\tau} [\Theta^3 (\tau)].$$
 (20)

Неравенство  $d[\Theta^3(\varphi)]/d\varphi < 1$  (или  $d[\Theta^3(\tau)]/d\tau < 1$ ) справедливо для всех  $\varphi$  (или  $\tau$ ). Следовательно отображение является сжимающим для всех  $\tau$ . Это означает затухание возмущения и возврат выбившегося осциллятора в синфазные колебания с остальными. Точно так же можно показать, что подобная расфазировка и двух, и трёх осцилляторов из системы сходится к нулю. Таим образом, режим IP стабилен для всех задержек  $\tau$ .

#### 1.4. Сравнение результатов разных методов моделирования

Систематически изучены режимы четырёх почти идентичных химических осцилляторов с импульсной ингибирующей связью с временной задержкой при разных топологиях связи. Применены два подхода: модель реакции Белоусова-Жаботинского (система ОДУ из четырёх переменных) и модель фазового осциллятора (метод Кривых Переустановки Фаз). Во-первых, стоит подчеркнуть, что различные регулярные режимы и очерёдность их возникновения при изменении параметров *т* или *C*<sub>inh</sub>, найденные первым и вторым способами, хорошо согласуются между собой. Это означает, что результат надёжен и обобщён, т. к. фазовая модель – абстракция, не привязанная к природе самих осцилляций. Сложные и OS-режимы, найденные для БЖосцилляторов при большой силе связи, расширяют знания о динамических режимах импульсно связанных осцилляторов, лежащие за границами модели фазовых осцилляторов.

Сравнивая регулярные режимы, полученные моделированием ОДУ и КПФ, можно увидеть, что зоны существования мод фазовых осцилляторов немного больше, по сравнению с соответствующими зонами БЖ-осцилляторов. Причина этого в том, что последние применялись с малым разбросом собственных частот в то время, как фазовые осцилляторы были одинаковые. Использование разницы в собственных частотах может служить инструментом для отбрасывания нестабильных решений систем ОДУ. Наблюдаемое уменьшение стабильных зон должно появиться и при применении метода КПФ, если ввести малые возмущения при моделировании. Это предположение было проверено для W-моды при двунаправленной связи. Результаты представлены на рисунке 10 А: диапазон параметра  $\tau$ , при котором существует режим W, уменьшается, а затем и вовсе исчезает с возрастанием дисперсии собственных частот – параметра  $\varepsilon$ . Компьютерный эксперимент подтверждает, что нельзя получить режим W путём медленного изменения параметров  $\tau$  или  $C_{inh}$  при двунаправленной связи (рисунок 5 Б и В).



Рисунок 10 – (А) Зоны стабильности режима W фазовых осцилляторов для случая двунаправленной связи по кругу. Частоты осцилляторов: 1 + ε, 1 – ε, 1 + ε/2 и 1 – ε/2, где ε – параметр расфазировки; μ = 0.1. (Б) Зоны бистабильностимежду режимами AP и IP для однонаправленной связи по кругу (между точечной кривой 1), двунаправленной кольцевой (между жирными кривыми 2) и при связи «все со всеми» (между штриховыми линиями 3). Зона 1 содержит моду WR, зона 2 – IPAP, зона 3 – «3+1».

Малая расстройка частот, возможно, схожа с малоамплитудным шумом, т. к. дисперсию вокруг средней частоты можно рассматривать, как постоянный шум. И дисперсия, и шум вносят малые возмущения в систему. Такие возмущения должны разрушать менее устойчивые режимы.

В рамках концепции локомоции четвероногих можно утверждать, что при разных типах связи между элементами сети могут быть найдены все основные способы передвижения: ходьба (сопоставимая с четырёхкластерным режимом S), лёгкий галоп (аналог трёхкластерной моды), иноходь и прыжок (эквивалентные паттерну IPAP), рысь (то же самое, что и AP). Стоит упомянуть, что режим IPAP не существует для однонаправленной связи.

Найденные режимы W и WR при однонаправленной активирующей связи (прямая связь, «feed-forward loops») [86], так же могут быть найдены и при рассмотренной однонаправленной по кругу ингибирующей связи. С помощью параметра временной задержки au можно управлять направлением распространения спайков.

Даже с одинаковыми осцилляторами и с одинаковой связью система четырёх импульсно связанных осцилляторов способна генерировать при одинаковых параметрах как минимум четыре различных режима (если не брать в расчёт перестановки осцилляторов). Аналогичные результаты были получены для сети из m ячеек. Было показано, что такая сеть должна содержать n-кластерные решения, где  $n \le m$  [62]. Если сравнивать информационную ёмкость нашей сети с ёмкостью известной сети Хопфилда, она способна хранить  $n/2 \log_2 n$  решений, где n -количество бинарных ячеек [40, 87]. То есть для рассматриваемого случая четырёх осцилляторов – только один паттерн. Всего (с разными параметрами  $\tau$  или  $C_{inh}$  и тремя типами связи) рассмотренная система способна генерировать восемь регулярных режимов (W, WR, AP, IPAP, «3+1», IP, 3Cl и 4Cl), большое количество сложных режимов и режим OS. Подбором  $\tau$  или  $C_{inh}$ 

можно построить систему, способную распознавать паттерны. Количество регулярных режимов увеличивается с ростом числа связей в системе. Для однонаправленной связи по кругу найдены четыре режима (W, AP, WR, IP); новый режим (IPAP) возникает в случае двунаправленной связи; при связи «все со всеми» появляются ещё два асимметричных режима — 3Cl и «3+1». Асимметричные моды возникают только когда нельзя как-то идентифицировать осцилляторы в пространстве, как, например, при связи «все со всеми». Режим 3Cl нельзя было предсказать исходя из найденных паттернов для двух связанны осцилляторов, основными режимами которых являются IP и AP. Другие моды сети из четырёх осцилляторов такие, как IPAP, AP, AP и даже «3+1», можно разложить на две пары синфазных и/или противофазных осцилляторов – другими словами эти режимы можно представить двумя сетями из двух осцилляторов. Даже из двух осцилляторов) на случай четырёх осцилляторов.

Сравнивая режимы, найденные для разных типов связи, было бы правильным сравнить области самых распространённых режимов: IP и AP. На рисунке 10 Б представлены узкие области, в которых эти режимы пересекаются. Направо (налево) от этих областей находится зона стабильного IP (AP), в то время как AP (IP) в той же зоне нестабилен. При однонаправленной связи в добавок к режимам IP и AP этот регион включает в себя WR; при двунаправленной – IPAP; и при связи «все со всеми» область пересечения содержит режим «3+1». Вообще, как видно из рисунка Рисунок 10Б, можно сделать вывод, что эти регионы ведут себя «согласованно» – они сдвигаются к меньшим значениям *С*<sub>inh</sub> с увеличением количества связей в сети. Зона сложных режимов 2 для связи «все со всеми» отмечена вертикальным чёрным прямоугольником, для двунаправленной – горизонтальным серым овалом.

Сложные режимы 2 не найдены методом КПФ. Можно предположить, что для их существования требуется наличие нескольких переменных (хотя бы двух, например, ингибитор и активатор) на разных временных шкалах. Эти динамические режимы должны быть изучены более подробно.

Наблюдается одно новое свойство в рассматриваемой системе – повторяемость одного и того же динамического режима в разных областях параметров  $\tau$  или  $C_{inh}$ , не только при  $\tau + nT$ , где n – натуральное число, но и даже при  $\tau < T$ . Например, при рассмотрении фазовых осцилляторов в случае связи «все со всеми» можно наблюдать три ветви режима W, две ветви трёхкластерного режима и две – АР в разных областях  $\tau$  (рисунок 7 В). Аналогичные результаты получены и для БЖ-осцилляторов (рисунок 5 Г).

43

#### 1.5. Выводы

Паттерны, полученные в сети с импульсной связью, можно сравнить с паттернами при диффузионной связи. Но у импульсной связи есть две особенности: (i) синфазные осцилляторы влияют друг на друга (даже при  $\tau = 0$ , если  $F(0) \neq 0$ ) в отличие от диффузионной связи, которая действует только в условии разности концентраций, (ii) даже очень сильная импульсная ингибирующая связь не может подавить все осцилляторы и привести систему к стационарным паттернам (к структурам «Тьюринга»); подавленный осциллятор не влияет ни на какой другой. Первая особенность может привести систему с ингибирующей импульсной связью к стабильным синфазным осцилляциям, в то время как при диффузионной связь особенности, сильная импульсная ингибирующая связь в сети химических осцилляторов приводит систему к состоянию сложных колебаний или, когда часть осцилляторов подавлена, а сильная диффузионная связь – к стационарным структурам Тьюринга [89, 90].

Тип ингибиторной связи «все со всеми» аналогичен Отрицательной Глобальной Связи (OFC, Global Negative Feedback). В гомогенных распределённых БЖ-системах при увеличении коэффициента g (аналог силы связи  $C_{inh}$ ) OFC приводит к следующей последовательности паттернов: однофазный кластер (=IP-мода)  $\rightarrow$  2-фазный кластер (=AP-мода)  $\rightarrow$  3-фазный кластер (=3Cl-мода)  $\rightarrow$  хаос (=возможно сложные режимы)  $\rightarrow$  4-фазный кластер (=W-мода)  $\rightarrow$ локализованные кластеры (=OS-мода) [91]. В рассматриваемой системе с импульсной ингибирующей связью наблюдается иная последовательность паттернов при возрастании  $C_{inh}$ : W  $\rightarrow$  3Cl  $\rightarrow$  AP (и «3+1»)  $\rightarrow$  IP  $\rightarrow$  сложные режимы  $\rightarrow$  OS. Исключая сложные и OS-режимы, эти две последовательности обратны.

Наконец, сеть из импульсно связанных почти одинаковых осцилляторов можно рассматривать в качестве «преобразователя частот». С постепенным изменением пары параметров  $\tau$  и  $C_{inh}$  период T регулярных ритмов меняется в довольно широком диапазоне: от 85 с до 175 с (при параметрах, использованных при моделировании БЖ-осцилляторов). Намного большие изменения периода, хотя и дискретные, наблюдаются в случае сложных режимов.

## Глава 2. Экспериментальное исследование сети из четырех химических осцилляторов, однонаправленно связанных ингибиторной импульсной связью

Как и любой теоретический результат, данные компьютерного моделирования, полученные в ходе изучения динамических режимов сети четырёх осцилляторов, связанных импульсной ингибиторной связью с задержкой, требуют экспериментального подтверждения. В Главе 2 представлены результаты экспериментального исследования такой сети с однонаправленными импульсными связями по кругу и поиска всех динамических режимов, предсказанных компьютерными вычислениями. В качестве осцилляторов использовались ПРПП с БЖ реакцией [3, 92]. Для этого была собрана установка, которая управляется компьютером с LabVIEW АЦП. использованием программы через Результаты теоретических И экспериментального исследований были сравнены, и получено их удовлетворительное соответствие. А именно экспериментально подтверждено существование четырех основных режимов синхронизации: синфазные колебания (IP); антифазный режим (AP); режим «ходьба» (W); режим «обратная ходьба» (WR). Кроме основных режимов найдены режим OS, и «2+1+1» режим. Показано, что обнаруженные экспериментально режимы соответствуют найденным при моделировании.

#### 2.1. Описание экспериментальной установки

Блок-схема установки для четырех импульсно связанных химических осцилляторов представлена на рисунке 11. Аналогичная установка, но для двух импульсно связанных осцилляторов, использовалась ранее [14]. Исходные реагенты БЖ-реакции: малоновая кислота (*MA*) (Sigma-Aldrich), бромат (*NaBrO*<sub>3</sub>) (Sigma-Aldrich), катализатор ферроин (PanReac) и серная кислота (PanReac) использовались без предварительной очистки и готовились в виде двух растворов А1 ( $H_2SO_4$  и *NaBrO*<sub>3</sub>) и А2 (МА и ферроина). В растворе А1: [ $H_2SO_4$ ] = 0.6 М и [*NaBrO*<sub>3</sub>] = 0.5 М, а в растворе А2: [*MA*] = 0.2 М и [ферроин] = 2 мМ.



Рисунок 11 — Блок-схема экспериментальной установки. Белые стрелки показывают направление движения данных, черные — направление движения растворов.

Растворы А1 и А2 непрерывно подавались в реакторы R1, R2, R3 и R4 с помощью перистальтических насосов P5 и P6 (Minipuls 3, Gilson) по одинаковым тефлоновым трубочкам и с одинаковыми скоростями. В качестве реакторов R1, R2, R3 и R4 использовались стандартные 50 стеклянные бюксы объемом мл. Наполняемость бюксов реакционной смесью контролировалась вакуумными насосами AsP1 и AsP2 (Aspirator Pump, SKU 35031, Cole-Parmer), которые откачивали реакционную смесь, если ее объем превышал  $V_0 = 26$  мл. Растворы в реакторах R1 - R4 полностью обновлялись за 55 мин (=  $k_0^{-1}$ ) и постоянно перемешивались магнитными мешалками (720 оборотов в минуту). Реакция проводилась при комнатной температуре (~23°С). Начальные концентрации реагентов в реакторах R1 – R4, если бы растворы А1 и А2 не вступали в реакцию, были бы равны:  $[H_2SO_4]_0 = 0.3$  М,  $[NaBrO_3]_0 = 0.25$  М,  $[MA]_0 = 0.2$  $0.1 \,\mathrm{M}\,\mathrm{u}\,\left[\phi \mathrm{eppouh}\right]_0 = 1 \,\mathrm{MM}.$ 

Колебания регистрировались по потенциалам Pt-электродов (использовался комбинированный электрод Double-Junction ORP Electrode, SKU EW-27013-41, Cole-Parmer, состоящий из платинового электрода и хлор-серебряного электрода сравнения), которые изменялись, как правило, в диапазоне от 0.85 до 1.05 В. Сигнал от Pt-электродов поступал на входы аналого-цифрового преобразователя АЦП (NI USB –6216, National Instruments), который был соединен с компьютером ПК. Обработка входных сигналов осуществлялась программой разработанной в среде визуального программирования LabView 12.0. Она позволяет управлять экспериментом в режиме реального времени: считывать входные сигналы АЦП, обрабатывать полученную информацию по заданному алгоритму и генерировать выходные сигналы (которые

подавались в рассматриваемом эксперименте на перистальтические насосы P1 - P4) через то же АЦП.

С помощью этого программно-аппаратного комплекса осуществлялась ингибиторная импульсная связь между реакторами с заранее определенной силой связи  $C_{inh}$  и временем задержки  $\tau$ . В ответ на спайк, который регистрировался по превышению потенциалом Pt-электрода некоего порогового значения E = 1 В (более наглядная информация в экспериментальных данных, представленных ниже) в реакторе  $R_j$  (j = 1, 2, 3, 4), через время  $\tau$  перистальтическим насосом  $P_i$ , управляемым ПК через АЦП, производился вброс раствора ингибитора (NaBr) из резервуара АЗ в реактор  $R_i$  (i = 2, 3, 4, 1) соответственно. Длительность вброса  $\Delta t$  менялась от 2.5 до 5 с, что регулировало количество молей,  $C_{inh}\Delta t$ , введенных в реактор за один импульс. Для однонаправленной связи по кругу i = j + 1, если j = 4, то i = 1. Задержка  $\tau$  изменялась программно в широком диапазоне. Сила связи  $C_{inh}$  задается скоростью подачи ингибитора в реактор  $R_i$ , ( $v_{in}$ ) и концентрацией ингибитора в резервуаре АЗ, [NaBr] $_0$ :  $C_{inh} = [NaBr]_0 v_{in}/V_0$ . Обычно использовалась [NaBr] $_0 = 0.15$  М и  $v_{in} = 0.0056$  мл/с. Собственные периоды  $T_{i0}$  изолированных осцилляторов измерялись независимо для определения «идентичности» БЖ-осцилляторов. Оказалось, что  $T_{i0}$  варьируется от 43 до 53 с при используемых концентрациях (одинаковых для всех реакторов).

#### 2.2. Используемая математическая модель

Для моделирования эксперимента применялись выведенные ранее уравнения (6) - (9), описывающие БЖ-реакцию в проточном реакторе [20, 48]. При моделировании колебаний в разных реакторах использовались немного различающиеся значения h, которые отличались от h = 0.3 М не более, чем на 8.3%. Это делалось для имитации экспериментально наблюдаемых различных частот колебаний изолированных реакторов, даже несмотря на то, что во все реакторы постоянно вводились одни и те же растворы.

Для интегрирования системы ОДУ использовалась программа FlexPDE, в которой временной шаг интегрирования менялся автоматически для поддержания точности счета до  $10^{-3}$  (ERRLIM = 1E-3). Также была написана собственная программа для численного интегрирования с использованием пятиэтапного метода Рунге–Кутта четвертого порядка (метод Рунге–Кутта–Мерсона). Благодаря простоте используемого метода удалось достичь многократного ускорения счета численного эксперимента.

### 2.3. Сравнение результатов эксперимента и численного моделирования. Стабильность режимов

Полученная ранее теоретическая диаграмма [48], показывающая, в какой области на плоскости  $C_{\rm inh} - \tau$  должен находиться тот или иной режим (рисунок 12), помогала руководствоваться при нахождении различных режимов синхронизации. Так как в эксперименте реализуются несколько отличные от теоретических периоды колебаний, то сравнение проводилось качественно. Вначале было определено значение  $C_{\rm inh}^{\rm cr}$ , при котором наступает подавление колебаний хотя бы в одном реакторе (так называемый режим OS). Пример такого режима, возникающего при большой силе связи, представлен на рисунке 13 А. Этому значению  $C_{\rm inh}^{\rm cr}$  ( $\cong 0.43$  мМ/с) была сопоставлена граница области OS (которая не зависит от  $\tau$ ) на теоретической диаграмме. Далее была выбрана  $C_{\rm inh} \approx C_{\rm inh}^{\rm cr}/13$  мМ/с, так как при таких значениях  $C_{\rm inh}$  диаграмма предсказывает возможность найти все основные режимы, меняя лишь  $\tau$ , что удобно с практической точки зрения.



Рисунок 12 – Диаграмма динамических режимов для четырех почти одинаковых БЖ-осцилляторов, однонаправленно связанных по кругу ингибиторной импульсной связью. Зоны, ограниченные серыми линиями, получены при моделировании системы (6) - (9) с расстройкой собственных частот осцилляторов не более 2.5% (см. рисунок 2). Вертикальная штрихованная полоса с символами «квадрат», «треугольник», «круг», «плюс» и «ромб» обозначает режимы колебаний при разбросе частот до 12%. Символы маркируют экспериментальные данные, а штриховка – моделированные при Cinh = 0.07 мM/с. Обозначения режимов: квадрат и точки – режим WR; треугольник и диагональный штрих – режим «2+1+1»; круг и вертикальный штрих – режим IP; плюс и обратный диагональный штрих – режим W; ромб и горизонтальный штрих – режим AP.

Полученные экспериментальные результаты представлены на рисунке 13. При малых au (au=2 с) обнаруживается четкий режим WR (рисунок 13 Б). При 10 с < au<20 с режим WR может

сосуществовать с режимом «2+1+1» (рисунок 13 В). Появление того или иного режима зависит от предыстории системы (начальных условий). Экспериментально наблюдались и переходные состояния между режимами WR и «2+1+1». Если в режиме WR временной интервал между любыми соседними спайками равен T/4, а в режиме «2+1+1» два осциллятора (например, 3 и 2) дают спайк синфазно, то в наблюдаемом переходном режиме временной интервал между осцилляторами 1 и 4 меньше, чем временные интервалы между другими соседними парами осцилляторов.

Система переключается в синфазный режим IP при увеличении  $\tau$  до 30 с (рисунок 13 Г). При еще больших значениях  $\tau$  (в диапазоне от 40 до 60 с, рисунок 13 Д) синфазный режим сменяется режимом «ходьба» (W). Это хорошо соотносится с теоретической диаграммой, хотя практически в каждой точке на ней может реализовываться несколько динамических режимов. Реализация того или иного режима зависит от предыстории системы и стабильности режимов. Противофазный режим АР не был найден в ожидаемых областях (при малых значениях au) ни при выбранном C<sub>inh</sub>, ни при меньших значениях этого параметра, хотя модель (диаграмма на рисунке 12) предсказывает его существование для почти одинаковых осцилляторов, частоты которых отличаются на 2 – 3%. Чтобы понять, почему АР режим не обнаруживается там, где он предсказан теоретически, численно была проанализирована стабильность всех динамических режимов (AP, W, WR, «2+1+1» и IP) в зависимости от разности собственных частот всех четырех осцилляторов, так как в эксперименте эти частоты могли отличаться на ~10%, несмотря на то, что во все реакторы поступал один и тот же реакционный раствор. Такое различие в собственных частотах, которое может быть обусловлено различием в интенсивностях перемешивания [93] или небольшим различием в скоростях подачи реагентов в реакторы (из-за неидентичности силиконовых трубочек в перистальтических насосах), приводит, например, к тому, что режим WR на рисунке 13 Б или режим IP на рисунке 13 Г выглядит не идеально: различные интервалы между спайками на рисунке 13 Б и не совсем одновременные спайки на рисунке 13 Г.

При моделировании для имитации разных частот использовались слегка различные значения  $h_i$ , которые задавались следующим образом:  $h_1 = h_0 + \varepsilon$ ,  $h_2 = h_0 + \varepsilon/2$ ,  $h_3 = h_0 - \varepsilon$ ,  $h_4 = h_0 - \varepsilon/2$  при  $h_0 = 0.3$  М и величине  $\varepsilon$ , варьируемой в диапазоне от 0 до 0.025, что приводит к соответствующему (почти линейному) изменению периода колебаний  $T_i$ : чем больше  $h_i$ , тем меньше  $T_{i0}$  ( $T \cong -693.56h + 353$ ). При  $\varepsilon = 0.025$  максимальный и минимальный периоды  $T_3 = 163.5$  и  $T_1 = 128.7$ . Результат анализа стабильности исходных начальных режимов АР, W, WR, «2+1+1» и IP в зависимости от  $\varepsilon$  и  $\tau$  при  $C_{inh} = 0.07$  мM/с (что примерно соответствует силе связи, используемой в эксперименте) представлен на рисунке 14. При малых

 $\tau/T_0$  режим АР неустойчив и переходит в режим WR (рисунок 14 А) с ростом  $\varepsilon$ . Режим W также неустойчив при малых  $\tau/T_0$  (рисунок 14 Б). Устойчивым оказывается режим WR при малых  $\tau$ (рисунок 14 В), который и наблюдается в эксперименте. Для начального состояния «2+1+1» (рисунок 14 Г), режим АР также неустойчив почти при всех  $\tau$ , кроме узкой зоны при очень малых  $\tau$ . В эксперименте начальное состояние «2+1+1» специально не создавалось. Устойчивость режима IP (рисунок 14 Д) схожа с устойчивостью противофазного режима. При малых  $\tau/T_0$  и малых  $\varepsilon$  существует небольшая зона АР колебаний. С ростом  $\varepsilon$  режим IP переходит в WR, а затем в режим «2+1+1». Режим АР появляется только при больших  $\varepsilon$ . Таким образом, для большинства начальных состояний при малых  $\tau$  и больших  $\varepsilon$  наиболее устойчивым оказывается режим WR. Это соответственно объясняет, почему не удалось найти режим АР при малых  $\tau$ .



Рисунок 13 – Кинетика четырех импульсно, ингибиторно и однонаправленно связанных по кругу БЖ-осцилляторов; (а) режим «OS», осциллятор 2 подавлен,  $\tau = 5$  с,  $C_{inh} = 0.431$ 

мМ/с; (б) режим «обратная ходьба» (WR), τ = 2 с;
(в) режим «2+1+1», τ = 5 с; (г) синфазный режим (IP), τ = 30
с; (д) режим W, τ = 50 с. Сила связи C<sub>inh</sub> = 0.0323 мМ/с (бд), Δt = 5 с. Цифры над спайками обозначают номера осцилляторов.



Рисунок 14 – Области стабильности всех динамических режимов на плоскости  $\varepsilon - \tau/T_0$  (где  $\varepsilon$  – величина, характеризующая разброс периодов колебаний осцилляторов вокруг среднего периода  $T_0$ ) для начальных состояний: (а) АР, (б) W, (в) WR, (г) «2+1+1», (д) IP. Линиями/символами пунктир/треугольники, сплошная/квадраты, тире/круги и «пунктир с точкой» обозначены границы областей стабильности для мод W, АР, WR и «2+1+1» соответственно; C<sub>inh</sub> = 0.07 мM/с.

С другой стороны, при больших  $au/T_0$  (ближе к единице) режим АР оказывается относительно устойчив (рисунок 14 А, В, Г и Д), если исходное состояние отличается от режима W (рисунок 14 Б). Так, например, режим WR или IP переходит в AP при больших  $\tau/T_0$  (рисунок 14 В и Д). Таким образом, моделирование показывает, что режим АР следует искать в эксперименте при больших  $\tau/T_0$ . На рисунке 15 А показан экспериментально обнаруженный нами режим АР при  $\tau/T_0 \cong 0.9$ . Небольшая расфазировка пиков в синфазных парах объясняется существенным различием собственных периодов ( $T_{10} = 47$  с,  $T_{20} = 41$  с,  $T_{30} = 40$  с,  $T_{40} = 40$  с). Такая же расфазировка наблюдается и при численном счёте для  $\varepsilon = 0.0075$  (рисунок 15 Б). Сравнивая стабильности режимов, представленных на рисунке 14, и экспериментальные данные, представленные на рисунке 13, можно видеть, что в эксперименте наблюдается биритмичность: сосуществование режимов WR и «2+1+1» при малых au. Проведенный ранее теоретический анализ [48] не выявил этой биритмичности: при небольших  $\varepsilon$  переход из WR в «2+1+1» происходит плавно (надкритический переход). Сравнение областей стабильности мод WR и «2+1+1» на рисунке 14 В и Г показывает, что эти области перекрываются при больших arepsilon и малых  $\tau/T_0$ , и, следовательно, наблюдаемая в эксперименте биритмичность действительно существует именно при этих величинах  $\varepsilon$  и  $\tau/T_0$ .



Рисунок 15 – Режимы АР: (a) в эксперименте ( $C_{inh} = 0.0323 \text{ мM/c}$ ,  $\tau = 38 \text{ c}$ ,  $\Delta t = 2.5 \text{ c}$ ,  $T_{10} = 47 \text{ c}$ ,  $T_{20} = 41 \text{ c}$ ,  $T_{30} = 40 \text{ c}$ ,  $T_{40} = 40 \text{ c}$ ), (б) в численном моделировании ( $\varepsilon = 0.0075$ ;  $T_{10} = 139.5 \text{ c}$ ,  $T_{20} = 142 \text{ c}$ ,  $T_{30} = 150 \text{ c}$ ,  $T_{40} = 147 \text{ c}$ ,  $C_{inh} = 7 \times 10^{-5} \text{ M/c}$ ,  $\tau = 120 \text{ c}$ ,  $\Delta t = 5 \text{ c}$ ;  $\tau/T_0 \cong 0.9$ ).

#### 2.4. Выводы

Таким образом, экспериментально доказано существование всех динамических режимов, предсказанных ранее теоретически в [48]: WR, IP, W, AP и «2+1+1». Корректировку в

теоретическую диаграмму (рисунок 12) вносит зависимость режимов от естественного разброса собственных периодов осцилляторов, который неизбежно присутствует в эксперименте даже в том случае, когда предпринимаются попытки сделать все осцилляторы одинаковыми. Проведённый нами анализ стабильности всех режимов синхронизации вносит коррективы в полученную ранее диаграмму [48] и хорошо совпадает с экспериментальными данными, суммированными на рисунке 12.

# Глава 3. Применение динамических ритмов четырёх связанных осцилляторов для построения «химического компьютера»

До этого момента БЖ-реакция рассматривалась только в одном состоянии – колебательном. В Главе 3 БЖ-реакция используется уже в двух состояниях: и в колебательном, и в возбудимом стационарном состоянии. Для микрокапель, наполненных всеми компонентами БЖ реакции, иногда будет использоваться термин «химический нейрон».

Для конструирования сети БЖ-ячеек, подобной (в некотором смысле) нейронной сети, была применена импульсная связь между БЖ-ячейками с временной задержкой [13, 15] вместо привычной диффузионной связи. Несколько почти идентичных БЖ-осцилляторов с ингибирующей и активирующей импульсной связью с временной задержкой могут производить много различных динамических мод [47, 48]. Как и в биологии, будем называть эту сеть осцилляторов – ЦГР. Согласно идее Бужаки о существовании «ридера», должен быть некий анализирующий блок (группа дополнительных БЖ-элементов), способный различать различные моды ЦГР и посылать соответствующий им сигнал другому блоку химического компьютера, который можно назвать «логическим» или блоком «принятия решений» (ПР).

Блок-схема химического компьютера представлена на рисунке 16. Импульсно связанные по кругу осцилляторы 1, 2, 3 и 4 генерируют различные режимы ЦГР. Если брать во внимание перестановки осцилляторов тогда каждый режим (кроме одного полностью симметричного) разделяется на под-режимы. Каждый осциллятор блока (или модуля) ЦГР посылает активирующие импульсы каждому из N возбудимым элементам анализирующего блока A. Модуль А может работать по-разному: например, либо только одна возбудимая ячейка, либо целый набор определённых ячеек из блока А должны возбуждаться соответствующими подритмами, на которые они «настроены». Все остальные элементы А должны оставаться в стационарном состоянии, другими слова, быть неактивными. Блок А, в свою очередь, посылает информацию о состоянии ЦГР следующему, модулю принятия решений (ПР), который также принимает внешний сигнал S. Сравнивая сигнал S и сигнал блока A, модуль ПР должен решить, что делать с текущим динамическим режимом ЦГР. Одним из возможных результатов этого решения может быть переключение из текущего состояния ЦГР в другое. Блок ПР должен состоять из связанных осцилляторов и/или возбудимых ячеек. Обратная связь от ЦГР через блоки А и ПР на самого же себя должна создавать условия для адаптивного поведения всего химического компьютера. В этой обратной связи могут быть применены логические функции.



Рисунок 16 — Иерархическая сеть связанных осцилляторов, представляющая основные блоки «химического компьютера». Импульсно связанные спайковые осцилляторы 1-4 (круги) представляют собой ЦГР. Возбудимые ячейки блока A (от 1 до N, в квадратах) есть элементы, анализирующие динамические режимы ЦГР. ПР — блок принятия решений. Внешний сигнал S анализируется блоком ПР. Осцилляторы ЦГР соединены со всеми ячейками A-блока односторонней возбуждающей связью. Чтобы сделать схему более легкой для восприятия, изображены связи только между первой A-ячейкой и осцилляторами

ЦГР.

Описанный химический компьютер и принципы его работы полностью отличаются от сети Хопфилда [40] и от вычислений с помощью химических волн [36, 38, 94]: в отличие от предлагаемых другими авторами методов и принципов в рассматриваемом случае динамические моды ЦГР и переключение между ними являются ключевыми компонентами компьютера. Работая с относительно малыми сетями, мы полагаем, что принципы их функционирования масштабируемы и могут быть применены к большим сетям [95].

В данной главе численно исследуются различные методы функционирования анализирующего блока, названного нами «А», который должен различать разные моды ЦГР. Любой динамический режим (включая режимы ЦГР) можно охарактеризовать фазами, амплитудой и частотой колебаний. Соответственно разработаны три метода, основанные на: (а) разности фаз между осцилляторами ЦГР, (б) суммарной амплитуде осцилляторов в кластерах и (в) резонансах, которые чувствительны к частоте. В качестве ЦГР используются четыре осциллятора с импульсной связью типа «каждый с каждым» и анализируются пять регулярных ритмов, найденные в такой сети (рисунок 17) [47, 48]. Первый из них – симметричный синфазный режим (IP), изображённый на рисунке 17 А. Для этого режима не может быть под-ритмов. На рисунке 17 Б показана «3+1»-мода. У «3+1» моды существует четыре под-режима. Режим АР (другой пример двухкластерного паттерна) представлен двумя под-ритмами на рисунке 17 В и Г. Перестановками можно получить всего 3 под-ритма. Хотя они и имеют абсолютно одинаковую

динамику, А-блок должен быть способен различать их. Режим «2+1+1» (трёхкластерный), в котором два осциллятора синхронны, а фазы двух других смещены на T/3 и 2T/3 (или – T/3), где T – глобальный период этого режима, представлен на рисунке 17 Д. Экспериментально этот режим был найден совсем недавно [96, 97]. В [96] он называется минимальной химерой. Наконец, S-мода, где фазы всех осцилляторов смещены во времени на T/4, показана на рисунке 17 Е. В данном режиме каждый осциллятор может рассматриваться как кластер. Если учитывать перестановки осцилляторов, то можно насчитать двенадцать подрежимов моды «2+1+1» и шесть – моды S.

Блок А должен информировать модуль ПР о каждом из регулярных режимов без ошибок.



Рисунок 17 — Регулярные моды сети четырёх связанных осцилляторов: (A) IP, (Б) «3+1», (B) IPAP или AP (2,3+1,4), (Г) AP, (Д) «1+1+2», (Е) W. Временной отрезок всех графиков равен 400 с.

#### 3.1. Мультистабильность. Аттракторы

Для моделирования реакции БЖ во всех осциллирующих ячейках ЦГР и связей между ними применялась система ОДУ (6) - (9), с параметром h = 0.3 М. Анализирующий блок должен состоять не из осциллирующих, а из возбудимых ячеек. Для подавления колебаний, чтобы осцилляторы оставались в стационарном (но возбудимом) состоянии, можно поддерживать необходимую концентрацию ингибитора. В натуральных экспериментах этого эффекта можно добиться, например, постоянным притоком ингибитора в реактор или засветкой фоточувствительных реагентов. В моделировании динамика реакции в возбудимых ячейках

анализирующего блока (А-ячейки) описывалась немного модифицированной системой (6) - (9) (в уравнении (7) убрана ингибиторная импульсная связь между ячейками блока, добавлен постоянный приток ингибитора, скорость которого выражается произведением  $k_0 y_0$ ):

$$\frac{dy_m}{dt} = -k_1(h)x_my_m - k_2(h)y_m + k_9v_mz_m - k_0(y_m - y_0) \equiv F(x_m, y_m, z_m, v_m),$$
(21)

где m = 1, 2, ..., N (номера А-ячеек), параметры h и  $y_0$  применялись для регулирования стационарного состояния БЖ-осцилляторов.

Между ЦГР и А-блоком используется однонаправленная активирующая импульсная связь с временной задержкой. Для её установления в уравнение (21) был добавлен член  $k_{diff}[Ag_m]y_m$ :

$$\frac{dy_m}{dt} = F(x_m, y_m, z_m, v_m) - \boldsymbol{k_{diff}}[\boldsymbol{A}\boldsymbol{g}_m]\boldsymbol{y}_m,$$
(22)

и в систему введена пятая переменная  $[Ag_m]$  (концентрация ионов серебра), скорость изменения которой описывается следующим уравнением:

$$\frac{d[Ag_m]}{dt} = \sum_i [C_{ex}P(x_i, \tau_{im}, \Delta t)] - k_{diff}[Ag_m]y_m,$$
(23)

где *i* = 1, 2, 3, 4 (номера осцилляторов ЦГР),

 $au_{im}$  = временная задержка между спайком в *i*-том осцилляторе и импульсным возмущением *m*-той ячейки. Ионы серебра вступают в реакцию с ионами бромида очень быстро (в модели скорость регулируется константой  $k_{diff} = 10^8$  M<sup>-1</sup> c<sup>-1</sup>), что уменьшает  $y_m$  в *m*-той ячейке. Все элементы блока А находятся в возбудимом стационарном состоянии, что достигается ненулевым параметром  $y_0$ .

Значение  $y_0$  должно быть достаточно большим для подавления колебаний. Другими словами, достаточным, чтобы сдвинуть систему в регион до бифуркации Хопфа. Параметры бифуркации Хопфа найдены линейным анализом стабильности системы (рисунок 18), описывающей А-ячейки (система из уравнений (6), (21), (8) и (9)). При используемых параметрах системы значение  $y_0$ , при котором наступает бифуркация Хопфа, равняется  $y_0^{\rm H}$  ( $\cong$ 1.3331 М). При  $y_m > y_0^{\rm H}$  колебания подавляются. Разница между значением  $y_{\rm SS}$  [значение переменной y, когда

система находится в стационаром состоянии (СС)] и критическим значением  $y_{SS}^{\rm H}$  ( $\cong$  8.58 мкМ), при котором СС становятся нестабильным, т. е. когда  $y_0 = y_0^{\rm H}$ , определяет минимальную амплитуду  $C_{\rm ex}^{\rm min}$  входящего возбуждающего импульса, который вызывает спайк А-ячейки при заданном параметре  $y_0$ . В таблице 1 представлены значения для  $y_{SS}$  и  $C_{\rm ex}^{\rm min}$ , которые можно рассматривать как функции от  $y_0$ . Самая правая колонка демонстрирует, что разница ( $y_{SS} - y_{SS}^{\rm H}$ ) практически равна введённой за один импульс концентрации активатора ( $[Ag^+]$ ),  $C_{\rm ex}^{\rm min} \Delta t$ , если  $y_0$  достаточно далёк от  $y_0^{\rm H}$  (более 20%). Чтобы установить разные пороги возбудимости для разных ячеек анализирующего блока, можно рассматривать m разных значений  $y_0^{(m)}$  – для каждой ячейки.



Рисунок 18 — Типичная зависимость наибольших собственных значений λ от у₀ для линеаризированной системы (6), (21), (8) и (9). Толстая кривая представляет Re(λ), пунктирная — Im(λ). h = 0.3 M. Все остальные параметры системы (6), (21), (8) и (9) даны в тексте.

В некоторых случаях требуется подавить нежелательные колебания А-ячеек, для этого последние могут быть соединены ингибирующей связью друг с другом. Тогда уравнение (22) должно быть изменено:

$$\frac{dy_m}{dt} = F(x_m, y_m, z_m, v_m) - k_{diff} [Ag_m] y_m + \sum_{n \neq m} \left[ C_{\text{inh}}^{(A)} P(x_n, \tau, \Delta t) \right].$$
(24)

Периодические внешние импульсные сигналы генерируются функцией  $P(S(t), \tau, \Delta t)$ , где

$$S(t) = H(\sin(\omega t) - 0.99).$$
 (25)

$$H(x)$$
 — функция Хэвисайда. Значение  $au$  не важно в данном случае, потому что только период (=  $2\pi/\omega$ ) и ширина импульса (=  $\Delta t$ ) имеют значение при периодических возмущениях.

Таблица 1. Зависимость стационарного состояния  $y_{ss}$  и минимальная амплитуда  $C_{ex}^{min}$  единичного входящего возбуждающего импульса от  $y_0$ . Амплитуда  $C_{ex}^{min}$  должна быть достаточной, чтобы вызвать спайк в возбудимой БЖ-ячейке, описанной уравнениями (6), (21), (8) и (9), (22) и (23), при условии, что длительнорсть импульса  $\Delta t = 5$  с. При выбранных параметрах и h = 0.3 М,  $y_0^H \cong 1.3331$  мМ и  $y_{SS}^H \cong 8.58$  мкМ. Данные в столбце « $(y_{SS} - y_{SS}^H)/(C_{ex}^{min}\Delta t)$ » посчитаны из значений столбцов  $y_{SS}$  и  $C_{ex}^{min}$ .

у <sub>0</sub> (мМ)	У <sub>SS</sub> (мкМ)	C <sup>min</sup> <sub>ex</sub> M c⁻¹	$(y_{\rm SS} - y_{\rm SS}^{\rm H})/(C_{\rm ex}^{\rm min}\Delta t)$
1.336	8.59	$1.08 \times 10^{-7}$	0.019
1.4	8.91	$1.79 \times 10^{-7}$	0.37
1.7	10.52	$6.10 \times 10^{-7}$	0.64
2.0	12.5	$1.07 \times 10^{-6}$	0.73
3.0	18.2	$2.58 \times 10^{-6}$	0.75
4.0	23.7	$4.03 \times 10^{-6}$	0.76
6.0	35.0	$6.81 \times 10^{-6}$	0.78
8.0	46.2	$9.53 \times 10^{-6}$	0.79
20.0	113	$2.55 \times 10^{-5}$	0.82

#### 3.2. Методы распознавания режимов

#### 3.2.1. Распознавание с помощью задержек во времени

Первый метод распознавания мод основан на фазовом сдвиге между разными осцилляторами ЦГР и на гипотезе полихронизации [98, 99], которая утверждает, что два импульса от двух нейронов, генерирующих спайки в различные моменты времени, могут прийти на третий нейрон одновременно, если временная задержка  $\Delta t_d$  между этими двумя спайками и разница в расстоянии  $\Delta l$  между третьим нейроном и каждым из этих двух связана формулой  $\Delta l/\Delta t_d = v$ , где v – скорость распространения импульса по аксону. Таким образом, для удовлетворительного функционирования рассматриваемого метода должны быть соблюдены два условия: (i) А-ячейки настроены так, что только четыре одновременных импульса, пришедших на ячейку, могут вызвать спайк в ней; (ii) временные задержки  $\tau_d^{(i)}$  между моментом

спайка в *i*-ом осцилляторе ЦГР и моментом прихода импульса на *m*-ую ячейку блока А выбраны (настроены) так, что все четыре импульса от ЦГР-осцилляторов приходят одновременно только на одну А-ячейку, отвечающую соответствующему динамическому ритму ЦГР. Такие идеи напоминают методы счёта в сетях спайковых нейронов с разными временами задержек для разных информационных путей [100].

В качестве примера рассмотрим режим АР, когда осцилляторы 1 и 3 синфазны (первый кластер) и осцилляторы 2 и 4 синфазны (второй кластер), а сами кластеры осциллируют противофазно с глобальным периодом *T*. Тогда временные задержки между осцилляторами ЦГР и соответствующей А-ячейкой следующие:  $\tau_d^{(1)} = \tau_s$ ,  $\tau_d^{(2)} = \tau_s + T/2$ ,  $\tau_d^{(3)} = \tau_s$ ,  $\tau_d^{(4)} = \tau_s + T/2$ , где время  $\tau_s$  – малая произвольная величина (например,  $\tau_s = 0.1T$ ). В данном случае все четыре импульса, сгенерированные четырьмя спайками в ЦГР, приходят на выбранную А-ячейку одновременно и вызывают спайк.

Как было сказано выше, у ЦГР всего есть 26 различных режимов, если учитывать перестановки. Соответственно должно быть как минимум 26 ячеек в А-блоке, если каждая ячейка представляет один режим, или 26 уникальных комбинаций А-ячеек, обозначающих определённый режим.

Для первого варианта требуется найти такой уникальный набор временных задержек, при котором в ответ на определённый режим ЦГР возбуждалась бы только одна А-ячейка. В таблице 2 представлены подходящие каждому динамическому режиму временные задержки. Все Аячейки (с 1 по 26) настроены на соответствующие моды ЦГР благодаря подходящему набору  $\tau_d^{(i)}$ . Временные задержки  $\tau_d^{(i)}$  определяются глобальным периодом T и фазовыми сдвигами между кластерами. Все А-ячейки имеют одинаковый порог возбудимости, определяемый  $y_0$ . В моделировании было использовано значение  $y_0 = 4.0$  мМ, однако и другие значения могут быть использованы. Для использованного значения  $y_0$  полная амплитуда четырёх одновременных активирующих импульсов (сумма четырёх),  $C_{\rm ex}^{\rm min}$ , должна превышать 4.03 мкМ с<sup>-1</sup> (строка 6 в таблице 1). В то же время сумма трёх одновременных импульсов не должна превышать 4.03 мкМ с<sup>-1</sup>. Таким образом, для однонаправленного импульса от ЦГР в А-ячейку использовалась сила связи  $C_{\rm ex} \cong 1.3$  мкМ с<sup>-1</sup>, которая больше 4.03/4 мкМ с<sup>-1</sup> и меньше 4.03/3 мкМ с<sup>-1</sup>.

Режим ЦГР	А-ячейка	$ au_{ extsf{d}}^{(1)}$	$ au_{ m d}^{(2)}$	$ au_{ m d}^{(3)}$	$ au_{ extsf{d}}^{(4)}$
IP	1	$ au_{s}$	$ au_{s}$	$ au_{s}$	$ au_{s}$
AP $(1,3+2,4)$	2	$ au_{s}$	$\tau_{\rm s}+T/2$	$ au_{s}$	$\tau_{\rm s}+T/2$
AP $(1,2+3,4)$	3	$ au_{ m s}$	$ au_{ m s}$	$\tau_{\rm s}+T/2$	$\tau_{\rm s} + T/2$
AP $(1,4+2,3)$	4	$ au_{ m s}$	$\tau_{\rm s}+T/2$	$\tau_{\rm s}+T/2$	$ au_{ m s}$
1,2,3 + 4	5	$ au_{ m s}$	$ au_{ m s}$	$ au_{s}$	$\tau_{\rm s} + T/2.2$
1,2,4 + 3	6	$ au_{ m s}$	$ au_{ m s}$	$\tau_{\rm s}+T/2.2$	$ au_{ m s}$
1,3,4 + 2	7	$ au_{ m s}$	$\tau_{\rm s}+T/2.2$	$ au_{ m s}$	$ au_{ m s}$
1,3,4 + 2	8	$\tau_{\rm s}+T/2.2$	$ au_{ m s}$	$ au_{s}$	$ au_{s}$
1,2 + 3 + 4	9	$\tau_{\rm s} + 2  T / 3$	$\tau_{\rm s}+2T/3$	$\tau_{\rm s}+T/3$	$ au_{s}$
1 + 2,3 + 4	10	$\tau_{\rm s}+2T/3$	$\tau_{\rm s}+T/3$	$\tau_{\rm s}+T/3$	$ au_{s}$
1 + 2 + 3,4	11	$\tau_{\rm s}+2T/3$	$\tau_{\rm s}+T/3$	$ au_{ m s}$	$ au_{s}$
1,4 + 2 + 3	12	$\tau_{\rm s}+2T/3$	$\tau_{\rm s}+T/3$	$ au_{s}$	$\tau_{\rm s} + 2T/3$
1 + 2,4 + 3	13	$\tau_{\rm s}+2T/3$	$\tau_{\rm s}+T/3$	$ au_{s}$	$\tau_{\rm s} + T/3$
1,3 + 2 + 4	14	$\tau_{\rm s}+2T/3$	$\tau_{\rm s}+T/3$	$\tau_{\rm s} + 2T/3$	$ au_{ m s}$
1,2 + 4 + 3	15	$\tau_{\rm s}+2T/3$	$\tau_{\rm s}+2T/3$	$ au_{ m s}$	$\tau_{\rm s}+T/3$
1 + 4 + 2,3	16	$\tau_{\rm s}+T/3$	$\tau_{\rm s}+2T/3$	$\tau_{\rm s} + 2T/3$	$ au_{ m s}$
1 + 3,4 + 2	17	$ au_{ m s}$	$\tau_{\rm s}+T/3$	$\tau_{\rm s} + 2T/3$	$\tau_{\rm s} + 2T/3$
1,4 + 3 + 2	18	$\tau_{\rm s}+2T/3$	$ au_{ m s}$	$\tau_{\rm s} + T/3$	$\tau_{\rm s} + 2T/3$
1 + 3 + 2,4	19	$\tau_{\rm s}+T/3$	$\tau_{\rm s}+2T/3$	$ au_{ m s}$	$\tau_{\rm s} + 2T/3$
1,3 + 4 + 2	20	$\tau_{\rm s}+2T/3$	$ au_{ m s}$	$\tau_{\rm s} + 2T/3$	$\tau_{\rm s}+T/3$
S (1, 2, 3, 4)	21	$\tau_{\rm s} + 3T/4$	$\tau_{\rm s}+T/2$	$\tau_{\rm s} + T/4$	$ au_{s}$
S (1, 2, 4, 3)	22	$\tau_{\rm s} + 3T/4$	$\tau_{\rm s} + T/2$	$ au_{s}$	$\tau_{\rm s} + T/4$
S (1, 3, 4, 2)	23	$\tau_{\rm s} + 3T/4$	$ au_{ m s}$	$\tau_{\rm s}+T/2$	$\tau_{\rm s} + T/4$
S (1, 3, 2, 4)	24	$\tau_{\rm s} + 3 T/4$	$\tau_{\rm s} + T/4$	$\tau_{\rm s}+T/2$	$ au_{ m s}$
S (1, 4, 2, 3)	25	$\tau_{\rm s} + 3T/4$	$\tau_{\rm s} + T/4$	$ au_{ m s}$	$\tau_{\rm s}+T/2$
S (1, 4, 3, 2)	26	$\tau_{\rm s} + 3T/4$	$ au_{s}$	$\tau_{\rm s} + T/4$	$\tau_{\rm s} + T/2$

Таблица 2. Временные задержки  $au_d^{(i)}$ возмущающих импульсов от i-того осциллятора ЦГР, приходящих на A-ячейки. Временной сдвиг  $au_s$  — произвольное малое значение ( $\cong$  0.17).

Чтобы различать режимы с учётом перестановок, в таблице 2 вводится новое обозначение «(n, m + k, l)», «(n, m, l + k)» или «(n, m + l + k)». В этих обозначениях такие комбинации, как «n, m, l» или «n, m» обозначают тройки или двойки соответственно, где индексы осцилляторов (n, m, k и l) могут принимать любые различные целочисленные значения с 1 по 4. Знак «+» обозначает комбинацию двух или трёх кластеров, отделённых во времени некоторым фазовым сдвигом. Обозначения типа (1,3 + 2,4) (с запятыми) и «2 + 1 + 1» (без запятых) представляют разную информацию: в первом случае указаны индексы осцилляторов в кластерах, во втором же указывается количество осцилляторов в кластерах. Новое обозначение более информативно.

Для асимметрических двухкластерных режимов «(n, m, l + k)» разность между временными задержками  $\tau_{\rm d}^{(i)}$  равняется T/2.2, а для симметричного АР-режима - T/2.

Компьютерное моделирование всех мод ЦГР с временными задержками из таблицы 2 подтверждает возбуждение только одной А-ячейки в ответ на текущий динамический режим ЦГР. Пример детектирования паттерна АР (1,3 + 2,4) ячейкой А-блока представлен на рисунке 19. Использованные в этом случае временные задержки показаны в таблице 2 (вторая А-ячейка). Как видно на рисунке 19 А, вторая А-ячейка генерирует спайк (точечная линия) после получения четырёх импульсов, отмеченных серой вертикальной линией. Только эта ячейка получает все четыре импульса одновременно. Ни одна другая ячейка блока А не активна.



Рисунок 19 – Определение противофазного (AP, «1,3 + 2,4») режима ЦГР А-ячейкой при  $C_{inh} = 7 \times 10^{-5}$  М,  $\tau = 1$  с,  $y_0 =$  мМ,  $C_{ex} = 1.3 \times 10^{-6}$  М и  $\tau_d^{(1)} = \tau_d^{(3)}$ ,  $\tau_d^{(2)} = \tau_d^{(4)} = \tau_s + T/2$ . (А) Спайки осцилляторов ЦГР (толстые линии) и один спайк А-ячейки (точечная линия); номера над спайками указывают на индексы осцилляторов. Вертикальная серая линия (между спайками осцилляторов 1, 3 и спайком ячейка А-блока) отмечает момент времени, когда все четыре импульса приходят на А-ячейку. Вертикальные стрелки в (Б) отмечают то же событие. (Б) Динамика ингибитора у ячейки А-блока.

Следует отметить, что частота вызванных в ячейке спайков в два раза меньше частоты режима AP в ЦГР, который и вызывает эти спайки, посылая импульсы. На рисунке 19 Б продемонстрирован и объяснён этот феномен. После спайка в A-ячейке концентрация ингибитора y сначала уменьшается практически до нуля, затем быстро возрастает (до 0.2 мМ) и снова медленно уменьшается. К моменту, когда в A-ячейку приходят следующие четыре импульса (отмечены стрелками на рисунке 19 Б), ингибитора y всё ещё остаётся слишком много чтобы эти импульсы смогли вызвать в ней спайк. В рамках задачи распознавания режимов разные частоты спайковой активности не важны, потому что достаточно знать какая из A-ячеек находится в осциллирующем состоянии. Но если потребуется уравнять частоты ЦГР и блока A, это можно легко сделать, изменив параметры A-ячеек: например, уменьшив  $c_0$  и/или увеличив [*MA*] и *h*.

В реальных лабораторных экспериментах периоды всех осцилляторов ЦГР немного разнятся (разброс периодов составляет до 5%) [97]. По этой причине было решено проверить как малая дисперсия частот осцилляторов ЦГР влияет на ответ А-ячеек. Влияние «шума» или дисперсии некоторых параметров на динамику сети связанных осцилляторов [101] лежит за рамками рассматриваемой проблемы, поэтому просто будет показано, что проблема дисперсии важна, на примере функционирования А-ячейки, настроенной на распознавание режима IP, в условиях разброса частот.

Чтобы сделать нативные периоды  $T_{i0}$  немного разными, применялись немного разные параметры  $h_i$  (i = 1, 2, 3, 4), а именно:  $h_1 = h_0 + \varepsilon$ ,  $h_2 = h_0 + \varepsilon/2$ ,  $h_3 = h_0 - \varepsilon$ ,  $h_4 = h_0 - \varepsilon/2$ , при  $h_0 = 0.3$  М и  $\varepsilon = 0.01$  М. Нативные периоды  $T_0$  БЖ-осцилляторов (уравнения (6), (21), (8) и (9)) почти линейно зависят от h,  $T_0 \cong ah + b$ , где a = -693.56 сМ<sup>-1</sup> и b = 353 с [47, 97]. Такая дисперсия  $T_{i0}$  приводит (в примере с режимом IP) к тому, что «синхронные» спайки на самом деле не совсем синхронны, между ними появляются малые интервалы времени, около 1-2 с при среднем  $T_0 \cong 144$  с. При стандартной длительности импульсов  $\Delta t = 5$  с даже малая асинхронность спайков ведёт к тому, что полной амплитуды четырёх импульсов не достаточно для активации А-ячейки (строка 1 таблицы 3), которая была бы активирована в случае идентичных ЦГР-осцилляторов.

62

Таблица 3. Реакция анализирующей ячейки, настроенной на определение моды IP, при различных значениях  $C_{ex}$  и длительности возбуждающих импульсов  $\Delta t$ , при условии, что разброс частот коррелирует с h ( $\epsilon$  = 0.01 M) осцилляторов ЦГР. Параметры связи в ЦГР:  $C_{inh}$  = 2 × 10<sup>-5</sup> M c<sup>-1</sup>,  $\tau$  = 30 c.

С <sub>ех</sub> (мкМ/с)	$\Delta t$ (c)	С <sub>ех</sub> Δ <i>t</i> (мкМ)	спайк
1.3	5	6.5	-
1.3	7.2	9.36	—
1.3	7.3	9.49	+
1.69	5	8.45	_
1.742	5	8.71	+
13	0.5	6.5	+

Чтобы найти возможные пути решения данной проблемы, менялись значения  $C_{\rm ex}$  и  $\Delta t$ активирующих импульсов. Результат представлен в таблице 3. Как видно, существует два варианта активации А-ячейки: увеличение  $\Delta t$  при постоянном значении  $C_{\rm ex}$  (= 1.3 мкМ с<sup>-1</sup>), либо увеличение  $C_{\rm ex}$  при  $\Delta t$  = 5 с, в условиях, что произведение  $C_{\rm ex}\Delta t$  превышает некоторое критическое значение. Стоит вспомнить, что  $C_{\rm ex}\Delta t$  – количество введённого активатора. Существуют даже такие малые значения  $\Delta t$  и большие значения  $C_{\rm ex}$ , что становится возможна активация А-ячейки (последняя строка в таблице 3) при том же количестве  $C_{\rm ex}\Delta t$ , как в строке 1 в таблице 3 ( $\Delta t$  = 5 с), когда А-ячейка не могла быть активирована.

Теория полихронизации [99] хорошо работает для двух импульсов, одновременно приходящих в нейрон. Вероятность события, что три или даже четыре импульса одновременно придут в нейрон мала и уменьшается с числом импульсов, особенно, если нейроны произвольно разбросаны в пространстве. Для режимов IP, AP и даже 3Cl-мод ЦГР, состоящего из четырёх осцилляторов, эта вероятность, будучи маленькой, всё равно не нулевая. Однако она может быть равна нулю для моды S если, как предполагалось в начале раздела, скорость v распространения импульса вдоль аксонов постоянна и все аксоны могут быть рассмотрены как прямые сегменты. Рассматривая геометрическую точку O, удалённую от четырёх вершин  $V_i$  пирамиды на расстояния l,  $l + v\tau$ ,  $l + 2v\tau$ ,  $l + 3v\tau$ , где  $\tau \cong T/4$ . Геометрическое место точек, удалённых от вершин на расстояние l и  $l + v\tau$  есть пересечение двух сфер с радиусами l и  $l + v\tau$ , соответственно. Очевидно, что это месторасположение – двумерная окружность. То же справедливо и для других двух вершин пирамиды. Рассматриваемая точка O должна лежать на пересечении двух двумерных окружностей. Но они могут не пересекаться в трёхмерном пространстве. Таким образом, рассматриваемая точка (иными словами А-ячейка, настроенная на детектирование режима S) может и не существовать геометрически.

Для решения этой проблемы в будущих экспериментах необходимо вводить промежуточные возбудимые ячейки (интернейроны), преобразующие прямой путь между ЦГРосцилляторами и А-ячейками в извилистый, таким образом увеличивая расстояния и временные задержки.

#### 3.2.2. Определение кластеров по амплитуде сигнала

Второй метод распознавания режимов ячейками анализирующего блока основан на суммировании активирующих импульсов от осцилляторов ЦГР при условии, что импульс, сгенерированный спайком ЦГР-осциллятора достигает А-ячейку (с которой связан осциллятор) моментально (без задержек) или с одинаковыми (или почти одинаковыми) временными задержками для всех осцилляторов ЦГР и А-ячеек. Есть три типа суммирования импульсов от осцилляторов: (i) суммирование всех четырёх (как в предыдущем случае, но без учёта временных задержек), (ii) суммирование трёх импульсов от любой тройки осцилляторов ЦГР и (iii) суммирование двух импульсов от любых пар осцилляторов ЦГР.

Для случая (i) такое суммирование имеет место быть, если только сделать пороги возбуждения А-ячеек разными. А именно, первая, вторая и третья ячейки должны быть возбудимы только при четырёх, трёх или двух одновременных импульсов, соответственно. Четвёртая А-ячейка должна иметь минимальный порог, который может быть преодолён одним импульсом. Пороги этих ячеек могут быть названы 4P, 3P, 2P и 1P соответственно. Такие разные значения порогов можно достичь используя разные значения параметра  $y_0$ :  $y_0^{(1)} = 8$  мМ,  $y_0^{(2)} =$ 6 мМ,  $y_0^{(3)} = 4$  мМ,  $y_0^{(4)} = 2$  мМ (также есть данные в таблице 1). В случае (ii) все пороги одинаковые и соответствуют трём импульсам (3P) в то время как в случае (iii) все пороги

Ответы всех А-ячеек, описанных выше, представлены в таблице 4 для случая (i), в таблице 5 для (ii) и в таблице 6 для (iii). Знаки «+» и «-» в этих таблицах означают, что спайки в соответствующей А-ячейке генерируются или нет. Как видно из таблицы 4 суммирование четырёх импульсов четырьмя А-ячейками с различными порогами возбуждения может определить режим IP (четыре активные ячейки), 2CI-моды типа «1+3» (три активные ячейки) и S- моды (одна активная ячейка). Режимы АР и 3СІ типа «1+1+2» выглядят идентично (две активные ячейки), что является недостатком данного метода. Другой недостаток – невозможность отличить перестановки мод «1+3» (четыре перестановки) и S (шесть перестановок) (все перестановки представлены в таблице 2).

Таблица 4. Суммирование одновременных импульсов от всех четырёх осцилляторов ЦГР при условии, что пороги срабатывания четырёх анализирующих ячеек равны: «4 импульса», «3 импульса», «2 импульса», «1 импульс», соответственно.

Режим ЦГР	4P	3P	2P	1P	Количество активных А-ячеек
IP (1Cl)	+	+	+	+	4
«1+3» (2Cl)	-	+	+	+	3
AP (2Cl)		—	+	+	2
«1+1+2» (3Cl)	_	_	+	+	2
S (4Cl)	_	_	_	+	1

Суммирование трёх импульсов в случае (ii) поможет различать все четыре перестановки в режимах «1+3». Как видно по таблице 5 разные режимы «1+3» активируют разные А-ячейки (одна ячейка на каждый режим).

Таблица 5. Суммирование одновременных импульсов от всех возможных четырёх групп по три осциллятора ЦГР при условии, что пороги срабатывания всех четырёх анализирующихх ячеек такого типа равны «З импульса». А-ячейка «k, l, m» принимает импульсы от осцилляторов k, l и m, соответственно.

Режим ЦГР	А-ячейка (1,2,3)	А-ячейка (1,3,4)	А-ячейка (2,3,4)	А-ячейка (1,2,4)	Количество активных А-ячеек
IP	+	+	+	+	4
1,2,3 + 4	+	—	—	_	1
1,2,4 + 3	_	—	—	+	1
1,3,4 + 2	_	+	—	_	1
2,3,4 + 1	_	_	+	_	1
S и 2Cl моды	_	—	—	—	0

Суммирование двух импульсов от каждой пары четырёх осцилляторов ЦГР в случае (iii) очень эффективно, как видно по таблице 6. Режим АР активирует две А-ячейки, а 3Cl моды только одну. В добавок все перестановки режимов АР и «1+3» активируют разные наборы А-ячеек. Различаются шесть перестановок из двенадцати режимов «1+1+2» (3Cl). Не могут быть определены перестановки, в которых меняются местами кластеры из одиночных осцилляторов, например, «1+3+24» и «3+1+24».

Таблица 6. Суммирование одновременных импульсов от всех возможных пар осцилляторов ЦГР при условии, что пороги срабатывания всех шести анализирующихх ячеек равны «2 импульса». А-ячейка «i, j» принимает импульсы от осцилляторов i и j, соответственно.

Режим ЦГР	А-ячейка (1,2)	А-ячейка (1,3)	А-ячейка (1,4)	А-ячейка (2,3)	А-ячейка (2,4)	А-ячейка (3,4)	Количество активных А-ячеек
IP	+	+	+	+	+	+	6
1,2,3 + 4	+	+	-	+	-	-	3
1,2,4 + 3	+	-	+	-	+	-	3
1,3,4 + 2	-	+	+	-	-	+	3
2,3,4 + 1	-	-	-	+	+	+	3
1,2 + 3,4	+	-	-	-	-	+	2
1,3 + 2,4	-	+	_	_	+	_	2
1,4 + 2,3	-	_	+	+	_	_	2
1 + 2 + 3,4	-	_	_	_	_	+	1
1 + 3 + 2,4	-	-	-	-	+	-	1
2 + 3 + 1,4	-	-	+	-	-	-	1
1 + 4 + 2,3	-	-	-	+	-	-	1
2 + 4 + 1,3	-	+	-	-	-	-	1
3 + 4 + 1,2	+	_	_	_	_	_	1
S	-	_	_	_	_	_	0

Различные перестановки паттерна S не могут быть определены амплитудным методом. В этом случае должен использоваться метод временных задержек.

#### 3.2.3. Резонансный подход

Временные промежутки между спайками ЦГР,  $\Delta$  (или лаг  $\Delta$ ), сильно зависят от динамического режима ЦГР. Для IP, AP и S режимов  $\Delta$  равняется примерно  $T_0$ ,  $T_0/2$  и  $T_0/4$ , соответственно. В добавок лаг  $\Delta$  зависит от силы связи  $C_{inh}$  и временной задержки  $\tau$  [47, 48]. В некотором смысле ЦГР можно рассматривать в качестве «преобразователя частот» или «генератора частот». Можно использовать это свойство для конструирования специальных А-ячеек, способных отвечать резонансно на определённые частоты.

Этот метод основан на поведении стационарного состояния устойчивого фокуса, который может реагировать на внешнее воздействие только если это возмущения превышает определённый порог (находиться в возбудимом состоянии). Динамика системы (6), (21), (8) и (9) в ответ на малое возмущение её стационарного состояния описывается следующим уравнением (например, для переменной *y*):

$$y - y_{\rm SS} = y_{\rm ini} \cos(\omega_0 t) \,\mathrm{e}^{2.3\,\mathrm{Re}(\lambda)t},\tag{26}$$

## где $y_{\rm ini}$ – начальное значение y сразу после малого импульсного возмущения, $\omega_0 = { m Im}(\lambda),$

Im( $\lambda$ ) и Re( $\lambda$ ) – мнимая и действительная части наибольшего собственного значения  $\lambda$  линеаризованной системы (6), (21), (8) и (9) (рисунок 18), Re( $\lambda$ ) < 0.

Типичная динамика системы (6), (21), (8) и (9) в ответ на малое возмущение устойчивого фокуса представлена на рисунке 20 А, Б.

Если внешний периодический импульсный сигнал  $C_{ex} \times P(S, \tau, \Delta t)$  (см. уравнение (26)) имеет частоту  $\omega$ , близкую к  $\omega_0$ , то должен наблюдаться резонанс. Другими словами спайк должен быть вызван относительно малой амплитудой  $C_{ex}$  (но большей некоторой критической величины  $C_{ex}^{cr}$ ) после серии импульсных возмущений. На рисунке 20 В, Г представлена динамика возбудимой А-ячейки при  $C_{ex} < C_{ex}^{cr}$ . Как видно, система отклоняется от СС при первом импульсе, но затем выходит на стабильную траекторию рядом с СС, похожую в некотором смысле на аттрактор. На рисунке 20 Д, Е, когда  $C_{\text{ex}}^{\text{cr}} < C_{\text{ex}}$ , траектория системы в фазовом пространстве покидает бассейн аттрактора СС и генерирует высокоамплитудный спайк. После этого спайка система пытается вернуться в СС, но периодическое возмущение вызовет новый спайк после нескольких периодов внешнего сигнала.



Рисунок 20 – Кинетика возбудимой А-ячейки (А, В, Д) и соответствующие фазовые портреты (Б, Г, Е) при однократном малом возмущении (А, Б) и периодическом импульсном возмущении  $C_{ex} \times P(S, \tau, \Delta t)$ : (В, Г) при  $C_{ex} < C_{ex}^{cr}$  и (Д, Е) при  $C_{ex} > C_{ex}^{cr}$ . Периодические импульсы Р = P(S,  $\tau, \Delta t$ ) показаны на панелях (В, Д) (правая ось); S = H(sin( $\omega t$ ) – 0.99), H(x) – функция Хэвисайда. Параметры системы (6), (21), (8) и (9), (22) и (23): h = 0.371757 М,  $y_0$  = 1.7743 мМ,  $\omega$  = 0.052 c<sup>-1</sup>,  $C_{ex}$  = (А, Б) 0, (В, Г) 1.3 × 10<sup>-8</sup> M c<sup>-1</sup>, (Д, Е) 1.65 × 10<sup>-8</sup> M c<sup>-1</sup>; x<sub>ini</sub> = (А, Б) 1.2x<sub>ss</sub>; (B-E) x<sub>ss</sub>; x<sub>ss</sub> = 2.3055 × 10<sup>-7</sup> M; y<sub>ini</sub> = y<sub>ss</sub> = 8.68402 × 10<sup>-6</sup> M; z<sub>ini</sub> = z<sub>ss</sub> = 1.14411 × 10<sup>-4</sup> M; v<sub>ini</sub> = v<sub>ss</sub> = 5.270125 × 10<sup>-4</sup> M; Im( $\lambda$ )  $\cong$  0.0538 c<sup>-1</sup>; Im( $\lambda$ )/Re( $\lambda$ )  $\cong$  -22.2.

Значение  $C_{\text{ex}}^{\text{cr}}$  строго зависит от  $\omega$  и параметров системы, другими словами, от близости системы к бифуркации Хопфа и от соотношения  $\text{Im}(\lambda)/\text{Re}(\lambda)$ . Типичная зависимость  $C_{\text{ex}}^{\text{cr}}$  от  $\omega$  для трёх разных значений  $\omega_0$  [= Im( $\lambda$ )] и примерно постоянном соотношении Im( $\lambda$ )/Re( $\lambda$ ) ( $\cong$  21.6)

представлены на рисунке 21. Как и предполагалось (потому что эти кривые аналогичны языкам Арнольда), каждая кривая имеет минимум в  $\omega \cong \omega_0$ . В добавок, локальный минимум наблюдается на рисунке 21 при  $\omega \cong 2\omega_0$  (для кривых 1 и 2),  $\omega \cong \omega_0/2$  и  $\omega \cong \omega_0/3$  (для кривой 3).

Для того, чтобы три А-ячейки могли детектировать режимы IP, AP и S блока ЦГР, следует настроить их частоты  $\omega_0$  на частоты этих режимов. Три кривые  $C_{\rm ex}^{\rm cr}(\omega)$ , представленные на рисунке 21, составлены для рассматриваемых А-ячеек: настроенных на частоты  $\omega_0^{(m)} = 2\pi n/T_m$ , где m = n = 1 для режима IP, m = n = 2 для AP и m = 3 и n = 4 для S,  $T_m$  – глобальный период соответствующего режима, полученного при следующих параметрах ЦГР: h = 0.3 M,  $C_{\rm inh} = 2 \times 10^{-5}$  M c<sup>-1</sup> и  $\tau = 40$  с для моды IP; h = 0.3 M,  $C_{\rm inh} = 2 \times 10^{-5}$  M c<sup>-1</sup> и  $\tau = 1$  с для моды AP; h = 0.29 M,  $C_{\rm inh} = 10^{-4}$  M c<sup>-1</sup> и  $\tau = 60$  с для моды S. Для этих режимов  $\omega_0^{(1)} = 0.0506$  c<sup>-1</sup>,  $\omega_0^{(2)} = 0.0962$  c<sup>-1</sup> и  $\omega_0^{(3)} = 0.2349$  c<sup>-1</sup>. Стоит отметить, что частоты  $\omega_0^{(m)}$  очень близки (почти равны) значениям Im( $\lambda$ ) и частоте минимума соответствующей кривой на рисунке 21.



Рисунок 21 – Ответная реакция трёх А-ячеек на внешний периодический импульсный сигнал  $C_{ex} \times P(\omega)$  с частотой  $\omega$  и амплитудой  $C_{ex}$ . Три регулярных режима (IP, AP и сплей) могут быть распознаны тремя ячейками анализирующего блока с кривыми отклика 1, 2 и 3, соответственно. Если  $C_{ex} < C_{ex}^{cr}$ , А-ячейка остаётся в окрестности стационарного состояния. Параметры А-ячеек и соответствующие собственные значения линеаризованной системы (6), (21), (8) и (9): h/M = (кривая 1) 0.3588, (кривая 2) 0.4966, (кривая 3) 0.8623; y<sub>0</sub>/M = (1) 0.001697, (2) 0.002567, (3) 0.005429; Im( $\lambda$ ) = (1) 0.05053, (2) 0.09044, (3) 0.24571; Im( $\lambda$ )/Re( $\lambda$ ) = (1) 21.55, (2) 21.56, (3) 21.74. Ось « $\omega$ » - логарифмическая.

В нашем компьютерном моделировании все три А-ячейки (А1 для режима IP, А2 для AP и A3 для S) получают активирующие импульсы от четырёх осцилляторов ЦГР сразу после спайков в этих осцилляторах (без временных задержек). Амплитуда  $C_{\rm ex}^{(m)}$  этих импульсов выбрана следующим образом: для ячейки A1  $C_{\rm ex}^{(1)}$  немного больше минимального значения  $C_{\rm ex}^{\rm cr}/4$  для

кривой 1 при  $\omega_0^{(1)} \cong 0.05 \text{ c}^{-1}$ , но меньше  $C_{\text{ex}}^{\text{cr}}/4$  остальных кривых при том же значении  $\omega$ ;  $C_{\text{ex}}^{(1)} \cong 6$  нМ с<sup>-1</sup>. Для А2  $C_{\text{ex}}^{(2)}$  больше минимального значения  $C_{\text{ex}}^{\text{cr}}/2$  для кривой 2 при  $\omega_0^{(2)} \cong 0.095 \text{ c}^{-1}$ , но меньше  $C_{\text{ex}}^{\text{cr}}/2$  остальных кривых при том же значении  $\omega$ ;  $C_{\text{ex}}^{(2)} \cong 25$  нМ с<sup>-1</sup>. Для АЗ  $C_{\text{ex}}^{(3)} > C_{\text{ex}}^{\text{cr}}$  для кривой 3 при  $\omega_0^{(3)} \cong 0.23 \text{ c}^{-1}$ , но меньше  $C_{\text{ex}}^{\text{cr}}$  остальных кривых при той же частоте;  $C_{\text{ex}}^{(3)} \cong 29$  нМ с<sup>-1</sup>. Моделирование показало, что только одна А-ячейка активируется в ответ на соответствующий ей динамический режим.

Значения резонансных частот  $\omega_0^{(m)}$  и минимальные значения  $C_{\text{ex}}^{\text{cr}}$  при этой частоте могут быть настроены в широком диапазоне, что достигается изменением таких параметров А-ячейки, как  $y_0$  и/или h: чем больше соотношение  $\text{Im}(\lambda)/\text{Re}(\lambda)$ , тем меньше минимальное значение  $C_{\text{ex}}^{\text{cr}}$ и тем более явный резонанс. Частоты отвечающей А-ячейки зависят от амплитуды  $C_{\text{ex}}^{(m)}$ : чем больше  $C_{\text{ex}}^{(m)}$ , тем больше частота, варьирующаяся в нашем случае в пределах  $(0.2 - 0.5)\omega_0^{(i)}$ .

#### 3.3. Выводы

Между внешними сигналами и «сердцем» нейроподобной сети, ЦГР, были помещены две подсистемы: анализирующий блок («ридер») и блок принятия решений. Эти две подсистемы разделяют окружающую среду (внешние сигналы) и реагирующую на неё систему. Мы считаем, что такая архитектура нейронной сети (включающая в себя обратные связи) способствует умному (адаптивному) поведению всего организма (нейронной сети).

Рассмотрены три метода распознавания режимов: резонансный, с помощью задержек во времени и амплитудный метод для определения кластеров. Все эти подходы могут быть скомбинированы и работать вместе, компенсируя недостатки друг друга, или выполнять разные задачи. Например, резонансный метод может определять паттерны с разными частотами, используя всего несколько А-ячеек, но не может различать перестановки осцилляторов или паттерны с близкими частотами, как, например, АР и «3+1». С другой стороны, амплитудный метод требует большего количества А-ячеек. В самом «чувствительном» варианте этого метода, когда А-ячейки принимают сигналы от пар осцилляторов, две активные ячейки отвечают за режим АР, три – за режимы «3+1», все шесть активных ячеек обозначают IP. Если построить блок принятия решений таким образом, что он сможет распознавать различные моды по комбинациям активных А-ячеек, то не надо никаких дополнительных усовершенствований анализирующего блока. Но если ПР-блок работает правильно только в случае, когда в ответ на определённый режим активируется одна А-ячейка, тогда требуется добавить «фильтр» или дополнительный слой А-ячеек для решения этой проблемы. Очевидно, что это можно сделать многими способами, в том числе и применением дополнительных ингибирующих связей между А-ячейками или добавлением других А-ячеек в следующем слое, собирающем сигналы от Аячеек первого слоя. Это больше инженерная проблема, которую можно решить после конструирования блока ПР.

Рассмотренные методы распознавания динамических режимов можно с лёгкостью расширить на варианты ЦГР с пятью, шестью и более осцилляторами. Функциональная организация больших сетей может быть основана на знании малых сетей [49].

## Глава 4. Переключение между стабильными модами в малой сети импульсно связанных химических осцилляторов

В Главе 4 рассматривается малая сеть четырёх почти идентичных химических осцилляторов с однонаправленной ингибирующей импульсной связью (рисунок 22 A). Эта сеть, как уже известно, способна генерировать четыре стабильных симметричных режима (рисунок 22 Б-Д): IP, AP, W и WR; и несколько асимметричных мод, например, 3Cl [48, 97, 102]. Количество мод в такой системе достаточно для изучения разных типов переключений между ними. В качестве химических осцилляторов используются хорошо изученные БЖ-осцилляторы, т. к. проводится не только численный анализ переключений между режимами, но и проверка полученных теоретических результатов в лабораторных экспериментах.



Рисунок 22 – (а) Сеть четырёх связанных осцилляторов с однонаправленной импульсной связью; (б)-(д) Четыре стабильные моды сети (а): (б) синфаза, (в) противофаза, (г) обратная ходьба (WR) и (е) ходьба; абсцисса в (б)-(е) – относительное время, ордината – представляет четыре осциллятора. Малые вертикальные чёрточки означают спайки осцилляторов.

Аналогичные однонаправленные сети с четырьмя осцилляторами (как на рисунке 22 А), связанными импульсной ингибирующей связью, изучались ранее численно с моделью бёрстовых нейронов [45]. В этой статье было продемонстрировано несколько переключений режимов, например, W -> AP -> W или IPAP -> AP -> IPAP, где IPAP, напомню, – режим, в котором осцилляторы №1 и №2 синфазны, как и №3 и №4, но пары (№1 + №2) и (№3 + №4) – противофазны. Все эти переключения вызываются коротким внешним стимулом, применённым только к одному осциллятору. Аналогичный тип переключений был проанализирован в случае сети импульсно связанных фазовых осцилляторов [103]. Мы называем такой тип переключений «специфический», т. к. это переключение, инициируемое внешним возмущением, состоит из определенного каскада спайков и внутренних импульсов, вызванных этими спайками [104].
В дополнение продемонстрирован более эффективный тип переключений, который мы называем «силовым» или «принудительным». Для такого переключения возмущаются несколько осцилляторов (обычно одновременно) и устанавливаются их новые фазы таким образом, чтобы они практически совпадали с фазами осцилляторов желаемого конечного режима.

Третий тип переключений, рассмотренный нами, - это сложные переходы через промежуточные моды, которые могут быть как стабильными, так и нестабильными. Если через один и тот же динамический режим можно реализовать переключения нескольких мод, то такой режим можно назвать «хабом».

Далее в главе 4 описываются применённая модель БЖ-реакции, связанные ОДУ для сети импульсно связанных БЖ-осцилляторов и экспериментальная установка; представляются результаты моделирования и экспериментов и их качественное сравнение.

## 4.1. Математическая модель

Для моделирования сети четырёх БЖ осцилляторов использовалась четырёхпеременная модель Ванага-Эпштейна [21], дополненная условиями внутренних импульсных связей,  $C_{\rm inh}P(x_{i-1},\tau)$ , и внешних переключающих импульсов,  $C_i^{(\rm ext)}P(t_{i1},t_{i2})$ :

$$\frac{\mathrm{d}x_i}{\mathrm{d}t} = X(x_i, y_i, z_i),\tag{27}$$

$$\frac{\mathrm{d}y_i}{\mathrm{d}t} = Y(x_i, y_i, z_i, u_i) + C_{\mathrm{inh}} P(x_{i-1}, \tau) + C_i^{\mathrm{ext}} P(t_{i1}, t_{i2}), \tag{28}$$

$$\frac{\mathrm{d}z_i}{\mathrm{d}t} = Z(x_i, z_i),\tag{29}$$

$$\frac{\mathrm{d}u_i}{\mathrm{d}t} = U(x_i, y_i, u_i),\tag{30}$$

где  $x = [HBrO_2],$   $y = [Br^-],$  z = [окисленная форма катализатора], $u = [Br_2],$ 

$$\begin{aligned} X(x_i, y_i, z_i) &= -k_{1i} x_i y_i + k_{2i} y_i - 2k_3 x_i^2 + \frac{k_{4i} x_i (c_0 - z_i)}{(c_0 - z_i + c_{min})} - k_0 x_i, \\ Y(x_i, y_i, z_i, u_i) &= -3k_{1i} x_i y_i - 2k_{2i} y_i + k_3 x_i^2 + k_7 u_i + k_9 z_i - k_0 y_i, \\ Z(x_i, z_i) &= \frac{2k_{4i} x_i (c_0 - z_i)}{(c_0 - z_i + c_{min})} - k_9 z_i - k_{10} z_i, \\ U(x_i, y_i, u_i) &= 2k_{1i} x_i y_i + k_{2i} y_i + k_3 x_i^2 - k_7 u_i - k_0 u_i, \end{aligned}$$

где  $c_0 = 1$  мМ, общая концентрация катализатора,

константы  $k_i$  представляют собой объединение параметров:

 $A = [BrO_3^{-}] = 0.25$  М,  $h = [H^+] = 0,3$  М и [малоновая кислота] = [MA] = 0.1 М.

Все параметры системы:  $k_{1i} = k'_1 h_i$ ,  $k'_1 = 2 \times 10^6 \text{ M}^{-2} \text{c}^{-1}$ ,  $k_{2i} = k'_2 h_i^2 A$ ,  $k'_2 = 2 \text{ M}^{-3} \text{c}^{-1}$ ,  $k_3 = 3000 \text{ M}^{-1} \text{c}^{-1}$ ,  $k_{4i} = k'_4 h_i A$ ,  $k'_4 = 42 \text{ M}^{-2} \text{ c}^{-1}$ ,  $k'_7 = 29 \text{ M}^{-1} \text{ c}^{-1}$ ,  $k'_9 = 0.12 \text{ M}^{-1} \text{ c}^{-1}$ ,  $k_7 = k'_7 [MA]$ ,  $k_9 = k'_9 [MA]$ ,  $k_{10} = k'_{10} [MA]$ ,  $k'_{10} = 0.05 \text{ M}^{-1} \text{ c}^{-1}$ ,  $c_{min} = \frac{\sqrt{3k_r k_{10} c_0}}{k_{red}}$ ,  $k_r = 2 \times 10^8 \text{ M}^{-1} \text{c}^{-1}$ ,  $k_{red} = 5 \times 10^6 \text{ M}^{-1} \text{c}^{-1}$ ,  $k_0 = 5 \times 10^{-4} \text{ c}^{-1}$ .

Использовались почти идентичные осцилляторы с немного разными собственными периодами осцилляций:  $T_1^{(0)} = 188.2 \text{ c}, T_2^{(0)} = 193.8 \text{ c}, T_3^{(0)} = 189.6 \text{ c}, T_4^{(0)} = 192.4 \text{ c},$  чего можно добиться немного разными значениями параметра  $h: h_i = h + \varepsilon_i, \varepsilon_1 = \varepsilon, \varepsilon_2 = -\varepsilon, \varepsilon_3 = \varepsilon/2$ ,  $\varepsilon_4 = -\varepsilon/2$ , и  $\varepsilon = 0.005$  М.

Функция  $P(x_i, \tau)$  в уравнении (28) – прямоугольная функция, она принимает значение «1» через  $\tau$  секунд после появления острого спайка x и снова переключается в «0» через время  $\Delta t$  ( $\Delta t = 5 \text{ с в нашем случае}$ ); функция  $P(x_i, \tau)$  используется для импульсной связи осцилляторов в сети. Если  $i = 1 \text{ в } P(x_{i-1}, \tau)$ , тогда i - 1 = 4, что соответствует однонаправленной связи по кругу. Константа  $C_{inh}(= 7 \times 10^{-5} \text{ Mc}^{-1})$  – сила связи, измеряемая в единицах  $\text{Mc}^{-1}$ ; использовалась одинаковая сила связи между всеми осцилляторами. Функция  $P(t_{i1}, t_{i2})$  – тоже прямоугольная функция, переключающаяся из «0» в «1» в момент времени  $t = t_{i1}$  и обратно в  $t = t_{i2}, t_{i2} - t_{i1} = 5 \text{ c}$ ; эта функция применяется для короткого внешнего возмущения с целью переключений между модами. Стоит отметить, что такое возмущение имеет ингибирующий характер, но возбуждающее возмущение тоже возможно. Константа  $C_i^{(ext)}$ , сила (амплитуда) внешних ингибирующих импульсов, принимает значения в очень широком диапазоне: между  $1 \times 10^{-5} \text{ Mc}^{-1}$  и 0.4 Mc<sup>-1</sup>.

Предположим, имеется реактор R объёма  $V_0$  и некий сосуд, например, шприц, с ингибитором концентрации  $[In]_0$ . В течение одного короткого (длительностью  $\Delta t$ ) импульса инъекции ингибитора из шприца в реактор с постоянной скоростью введения  $v_{\rm in}$  (мл/с) концентрация ингибитора в реакторе R возрастает на  $[In]_0 v_{in} \Delta t / V_0$ . Если проинтегрировать функцию  $C_{inh}P(x_{i-1},\tau)$  на временном интервале  $\Delta t$  (= длительность импульса), получится увеличение концентрации y в системе (27) - (30), равное  $C_{inh}\Delta t$ . Таким образом можно выразить силу связи  $C_{inh}$  через физические характеристики:  $C_{inh} = [In]_0 v_{in} / V_0$ . То же можно сделать и с  $C_i^{(ext)}$ .

Для моделирования системы использовалась программа FlexPDE 6 с допуском (ERRLIM), равным 0,002.

Кривая Переустановки Фаз модели (27) - (30), которая является сдвигом фазы  $\Delta\phi$  как функция фазы  $\phi$  возмущения при некоторой постоянной амплитуде  $C_p$  этого возмущения, представлена на рисунке 23 А. Сдвиг фазы  $\Delta\phi$  определяется как  $\Delta\phi = (T_p - T_0)/T_0$ , где  $T_0$ собственный период, а  $T_p$  – интервал между соседними спайками сразу после возмущения в момент фазы  $\phi$ . В наших обозначениях общий период равен 1, а не  $2\pi$ . Функция КП $\Phi(\phi)$ является монотонно растущей функцией  $\phi$ , которая близка к нулю при  $\phi = 0$  и имеет максимальное значение при  $\phi \cong 1$ . Следует отметить, что КП $\Phi(0)$  должно быть равно КП $\Phi(1)$ , но диапазон  $\phi$  вблизи  $\phi = 1$ , где максимальное значение КП $\Phi$  соединяется с нулём, очень узкий, и мы пренебрегаем им. Таким образом,  $d(K\Pi\Phi)/d\phi > 0$  и  $d^2(K\Pi\Phi)/d\phi^2 > 0$ . Фаза  $\phi =$ 0, как и  $\phi = 1$ , соответствует спайку. На рисунке 23 Б представлены линии постоянных фазовых сдвигов  $\Delta\phi$ , полученных при разных значениях  $C_p$  и  $\phi$ . Используя эти линии и функции PRC, можно определить параметры для получения желаемого сдвига фазы возмущаемого осциллятора. Как можно увидеть на рисунке 23, система (27) - (30) более чувствительна при  $\phi$ , близких к 1. Поэтому внешний импульс обычно применялся при больших значениях  $\phi$ .



Рисунок 23 – (а) КПФ для модели (1) – (4) для разных амплитуд  $C_p$  одного импульсного возмущения осциллятора в фазу  $\phi$ ;  $C_p$  (M c<sup>-1</sup>) = (1) 10<sup>-4</sup>, (2) 10<sup>-3</sup>, (3) 0.016, (4) 0.4. Длительность импульсного возмущения  $\Delta t$  = 5 с. Параметры модели (1) – (4): h = 0.3 M, A = 0.25 M, [MA] = 0.1 M,  $c_0$  = 0.001 M,  $k_0$  = 5 × 10<sup>-4</sup> c<sup>-1</sup>. (6) Кривые 1 – 7 отвечают фазовым сдвигам  $\Delta \phi$  = 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6 и 0.7 соответственно, если описанный уравнениями (27) - (30) осциллятор возмущён в момент фазы  $\phi$  амплитудой  $C_p$  для соответствующей кривой.

## 4.2. Экспериментальная установка

Блок-схема экспериментальной установки с четырьмя реакторами представлена на рисунке 24. Подобная установка была использована нами ранее [97]. Она спроектирована для изучения динамики четырёх БЖ осцилляторов, соединённых импульсно через ингибитор, позволяет сдвигать их фазы внешними импульсами, и описывается уравнениями (27) - (30). Изготовленные нами реакторы R1, R2, R3 и R4 объёмом  $V_0 = 0.75$  мл постоянно подпитываются с помощью шприцевых помп (75900-55, Cole-Parmer) растворами из шприцов A1 и A2 с одинаковой постоянной скоростью. Шприцы A1 и A2 имеют объём 5 мл и соединяются с реакторами Тефлоновыми трубочками с внутренним диаметром 0.8 мм (PTFE Tubing, Dolomite). Реакторы R1-R4 сделаны из обрезанных стеклянных бутылочек с внутренним диаметром 9.6 мм, тефлоновых трубочек, плоских стеклянных пластин и эпоксидной смолы. Так как они герметичны, постоянное подпитывание реакторов свежим раствором выдавливает излишнюю уже использованную смесь. Компоненты реакции в реакторах постоянно перемешиваются магнитными мешалками на скорости 450 об./мин. БЖ реакция проходила про комнатной температуре ( $\cong 23$  °C).



Рисунок 24 – Блок-схема экспериментальной установки для четырёх импульсно-связанных БЖ осцилляторов. R1-R4 – ПРПП с БЖ реакцией и магнитными мешалками; A1 и A2 – шприцы со растворами компонентов БЖ реакции для подпитки реактора R1; A3 – шприц с раствором бромида для ингибирующей импульсной связи и переключения мод. Аналогичные шприцы (не показаны) соединены со всеми остальными реакторами R2-R4. Всеми шприцами оперируют шприцевые помпы. Шприцевая помпа, отвечающая за шприц A3, управляется АЦП. «PC» – персональный компьютер. Белые стрелки обозначают направление данных, чёрные – направление растворов. «W» – бутылка для отходов. L1-L4 – зелёные лазеры с λ = 532 нм; PD1-PD4 – фотодиоды. IF1-IF4 – интерференционные фильтры с максимумом пропускаемого света при λ = 534 нм. Остальные объяснения даны в тексте.

Раствор реакции в реакторах R1-R4 в зависимости от эксперимента полностью обновлялся за 19.6 минут ( $k_0 = 8.5 \times 10^{-4} c^{-1}$ ) или за 41.7 минут ( $k_0 = 4 \times 10^{-4} c^{-1}$ ). Стоит отметить, что малые значения  $k_0$  (в диапазоне между  $10^{-4}$  и  $10^{-3} c^{-1}$ ) дают практически одинаковые результаты при моделировании (почти одинаковые периоды осцилляций, КПФ, зоны стабильности четырёх основных режимов на рисунке 22). Однако для получения трёхкластерного (3Cl) режима (подробнее об этом будет сказано в результатах моделирования) в эксперименте лучше иметь относительно большой разброс частот в нашей сети четырёх «идентичных» БЖ осцилляторов. Выяснилось, что этот разброс возрастает с  $k_0$ . Таким образом, в экспериментах с трёхкластерными модами использовался параметр  $k_0 = 8.5 \times 10^{-4} c^{-1}$ .

Для регистрации динамики БЖ реакции в реакторах R1-R4 применялись лазерные светодиоды с длиной волны  $\lambda = 532$  нм, попадающей в пик поглощения катализатора ферроина, (CPS532, Thorlabs) в качестве источника анализирующего света и фотодиодные (PD) приёмники (Photodiode Receiver Module, Edmund Optics). Анализирующий зелёный свет от лазеров проходил сквозь реактор с БЖ раствором (оптический путь равен 9.6 мм) и затем сквозь интерференционный фильтр (IF). Интерференционные фильтры (IF1-IF4) с шириной пропускания  $\Delta\lambda$  равной 25 нм при  $\lambda_{\rm max} = 534$  нм установлены перед фотодиодами для защиты от окружающего света. Осцилляции и особенно острые спайки реакции регистрируются фотоприёмниками, сигналы которых обычно колеблются от 0 до 10 В, когда состояние катализатора меняется из восстановленной формы в окисленную и обратно. Так как оптическая плотность БЖ раствора в восстановленной форме очень большая при  $\lambda = 532$  нм и при выбранной концентрации ферроина, наблюдаемые острые спайки соответствуют той части автокатализа, когда ферроин трансформируется в ферриин, в свою окисленную форму. Фотодиодные приёмники подключены к входам АЦП (DAQ, NI USB-6343), который в свою очередь соединён с компьютером (РС). Входящие на АЦП сигналы обрабатывались программой, написанной в LabVIEW 12.0. Программа позволяет контролировать эксперимент в реальном времени: можно получать сигналы от фотодиодных приёмников, обрабатывать их по заданному алгоритму и генерировать выходные сигналы для управления шприцевыми помпами SP1-SP4, которые контролировали шприцы типа АЗ с раствором ингибитора NaBr.

Блок-схема алгоритма написанной программы представлена на рисунке 25. Четыре линии в каждом модуле сверху-вниз соответствуют осцилляторам №1-№4 соответственно. Каждая линия во всех модулях работает независимо от других. Входы (выходы) каждого модуля – слева (справа).



Рисунок 25 – Блок схема программы, написанной в среде LabView, для однонаправленной ингибиторной импульсной связи с временной задержкой и внешних импульсов. Аналоговые сигналы от фотодиодных приёмников, PD1-PD4, оцифровываются в сигналы E1-E4, соответственно. Модуль «Регистрации спайков» определяет превышение сигналом Е фотоприёмника порогового значения E<sub>th</sub> = 8 V и работает в качестве триггера следующего модуля. «1/0» означает цифровые линии.

78

Модуль «Таймер τ» отвечает за временную задержку т между операциями модулей «Регистрации спайков» и «Таймер Δt». Модуль «Таймер Δt» отвечает за длительность Δt внутреннего ввода ингибитора, в то время как «Модуль Δt<sup>(ext)</sup>» - за длительность Δt<sup>(ext)</sup> внешнего импульсного ввода. SP1-SP4 – цифровые входы для управления шприцевыми помпами со шприцами типа A3. «Виртуальные кнопки» используются для ручного управления внешними импульсами. Логическая «1» постоянный сигнал, который можно подать на вход требуемого канала модуля «Модуль Δt<sup>(ext)</sup>» нажатием соответствующей виртуальной кнопки.

Аналоговые сигналы от четырёх фотодиодных приёмников, PD1-PD4, считывающих состояние БЖ смеси в реакторах, приводятся к численным значениям E1-E4, соответственно. «Анализатор превышения порога» определяет превышение значения *E* фотодиодного приёмника порогового значения  $E_{th} = 8$  В и работает в качестве триггера для следующего модуля. «1/0» обозначает цифровую линию. Модуль «Таймер  $\tau$ » ответственен за временную задержку  $\tau$  между операциями модулей «Анализатор превышения порога» и «Таймер  $\Delta t$ ». Работой шприцевых помп управляют блоки «Таймер  $\Delta t$ » и «Таймер  $\Delta t^{(ext)}$ », отвечающие за длительность внутренних и внешних связей,  $\Delta t$  и  $\Delta t^{(ext)}$ , соответственно. SP1-SP4 цифровые входы шприцевых помп типа A3. Нормально разомкнутые «виртуальные кнопки» используются для ручного контроля внешних импульсов. Логическая «1» - постоянный сигнал, который можно подать на вход необходимого канала модуля «Таймер  $\Delta t^{(ext)}$ » с помощью соответствующей «виртуальной кнопки».

Четыре линии данных (канала) в каждом модуле сверху-вниз соответствуют осцилляторам №1-№4, соответственно. Каждая линия работает независимо от других. Рассмотрим алгоритм работы программы на примере *j*-го осциллятора (*j* = 1, 2, 3, 4) и соответствующего ему *j*-го канала. Сигнал *E<sub>j</sub>* от PD<sub>*j*</sub> приходит на вход «анализатора превышения порога». Если *E<sub>j</sub>* превышает пороговое значение  $E_{th} = 8$  В, модуль выдаёт логическую «1», в ином случае – логический «0». Модуль «Таймер  $\tau$ » начинает свою работу (отсчёт  $\tau$  секунд) только в случае, если на его вход подаётся логическая «1». Во время отсчёта «Таймер  $\tau$ » не воспринимает входящие сигналы. Когда счётчик достигает значения  $\tau$  секунд, на *j*-ом выходе таймера появляется «1». Как только входное значение следующего блока «Таймер  $\Delta t$ » изменяется с «0» на «1», этот модуль начинает отсчитывать  $\Delta t$  секунд. В течение этого времени на *j*-ом выходе блока «Таймер  $\Delta t$ » присутствует логическая «1», а *j*-ый вход перестаёт принимать входящие сигналы. Так как используется однонаправленная связь по кругу, *j*-ый выход «Таймер  $\Delta t^{(ext)}$ » предназначен для создания коротких внешних импульсов, контролируемых «виртуальными кнопками». Если на *j*-ом канале закрыть ключ (нажать кнопку), что эквивалентно установке

логической «1» на *j*-ом входе модуля «Таймер  $\Delta t^{(\mathrm{ext})}$ », этот модуль начинает работать так же, как блок «Таймер  $\Delta t$ », но со своим параметром длительности импульса  $\Delta t^{(\mathrm{ext})}$ .

С помощью этих оборудования (рисунок 24) и программного обеспечения (рисунок 25) применялась ингибиторная импульсная связь между осцилляторами с предопределённой силой связи  $C_{inh}$  и временной задержкой  $\tau$ . В ответ на острый спайк в реакторе  $R_i$  (j = 1, 2, 3, 4), детектируемый модулем «Анализатор превышения порога», после временной задержки au после спайка шприцевая помпа SP<sub>i+1</sub> (AL4000-220, WPI), управляемая компьютером и АЦП, вводит небольшое количество раствора ингибитора (NaBr) из шприца типа АЗ (5 mL, Hamilton) в реактор  $R_{i+1}$ . Для однонаправленной связи по кругу и j = 4: j + 1 = 1. Длительность  $\Delta t$  ввода равнялась 3 с для всех экспериментов;  $C_{\rm inh}\Delta t$  – увеличение концентрации ингибитора в реакторе после одиночного импульсного ввода ингибитора. Временная задержка au регулируется в программе и может варьироваться в широком диапазоне. Сила связи C<sub>inh</sub> определяется скоростью ввода ингибитора  $v_{\rm in}$  в реактор  $R_i$  и концентрацией ингибитора в шприце АЗ,  $[{\rm NaBr}]_0$ ;  $C_{\rm inh} =$  $[NaBr]_0 v_{in}/V_0$ , как описано выше. Обычно использовались  $[NaBr]_0 = 0.001$  М и  $v_{in} =$ (0.0015 – 0.0071) мл с<sup>-1</sup>. Эти параметры постоянны для каждого отдельного эксперимента. Периоды  $T_i^{(0)}$  изолированных осцилляторов измерялись отдельно, чтобы определить «одинаковость» БЖ осцилляторов. Оказалось, что при используемых концентрациях (с учётом, что во всех реакторах были одни и те же концентрации БЖ реагентов)  $T_i^{(0)}$  варьировались от 80 до 90 с.

Для переходов между модами изменялась фаза одного или нескольких осцилляторов одним или несколькими короткими внешними импульсами. Для этих импульсов применялись шприцевые помпы  $SP_j$  и шприцы A3 с такими же концентрациями  $[NaBr]_0$  и такой же скоростью введения ингибитора  $v_{in}$ , как и для установления внутренних связей. Количество введённого ингибитора за один «внешний импульс»,  $[Br]_p$ , равняется  $C_i^{(ext)} \Delta t^{(ext)} \equiv C_{inh} \Delta t^{(ext)} = \Delta t^{(ext)} [NaBr]_0 v_{in}/V_0$ , где  $v_{in}$  может меняться от эксперимента к эксперименту, но в рамках одного эксперимента – константна, в то время, как  $\Delta t^{(ext)}$  может меняться от 2 с до 6 с. Если необходимо сместить фазу осциллятора  $R_j$ , вручную (нажимая виртуальную кнопку, рисунок 25) включается помпа  $SP_j$  во время, когда осциллятор наиболее восприимчив к ингибирующему возмущению. Так как используются одни и те же шприцы А3 и для внутренних импульсов, и для внешних, необходимо подчеркнуть, что временные промежутки, когда шприцы А3 и соответствующие помпы  $SP_i$  использовались для разных задач, не пересекались. Использование

отдельных шприцевых помп (и, соответственно, отдельных шприцов) для внешних и внутренних импульсов может и лучше, но тогда пришлось бы использовать четыре дополнительные помпы.

Начальные реагенты БЖ реакции: малоновая кислота (MA) (Sigma Aldrich), натрия бромат (NaBrO<sub>3</sub>) (Sigma Aldrich), катализатор ферроин (PanReac) и серная кислота (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>) (PanReac) использовались без предварительной очистки для приготовления двух растворов для наполнения шприцов A1 и A2. Раствор «A1» содержал [H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>] = 0.6 M и [NaBrO<sub>3</sub>] = 0.5 M, «A2» содержал [MA] = 0.2 M и [ferroin] = 2 мМ. Начальные концентрации реагентов в реакторах R1-R4 (если бы растворы «A1» и «A2» не реагировали друг с другом): [H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>]<sub>0</sub> = 0.3 M, [NaBrO<sub>3</sub>]<sub>0</sub> = 0.25 M, [MA]<sub>0</sub> = 0.1 M и [ferroin]<sub>0</sub> = 1 мМ.

## 4.3. Результаты

## 4.3.1. Результаты моделирования

Переключение между различными режимами может происходить только в мультистабильных системах. Для модели (27) - (30) мультистабильность возникает при разных значениях временной задержки  $\tau$  и силы связи  $C_{inh}$  (подробно в Главе 1 - 1.2. Режимы). Так как в данной главе используется модель VE вместо модели VL, как в Главе 1, пришлось построить новую параметрическую диаграмму в плоскости  $C_{inh} - \tau$ , чтобы определить области стабильности для четырёх основных мод: IP, AP, W, WR. Срез диаграммы при фиксированном значении  $C_{inh}$  представлен на рисунке 26 в форме зависимости  $T/T_0$  от  $\tau$ . Кроме четырёх основных мод: IP, AP, W, WR. Срез диаграммы при фиксированном значении  $C_{inh}$  представлен на рисунке 26 в форме зависимости  $T/T_0$  от  $\tau$ . Кроме четырёх основных мод на рисунке 26 А при  $\varepsilon = 0$ , существует трёхкластерная мода (3CI) при  $\varepsilon$ , отличных от нуля (рисунок 26 Б), когда два соседних осциллятора почти синфазны, а другие два колеблются по одиночке. Все кластеры разделены во времени на треть периода. Мода 3CI стабильна, если значение разброса частот,  $\varepsilon$ , достаточно большое [97], примерно когда  $\varepsilon > 0.004$  М. В экспериментах такая разница в собственных периодах вполне возможна даже для «идентичных» осцилляторов. Если все осцилляторы имеют одинаковый период  $T_0$  (идентичные осцилляторы), то мода 3CI нестабильна. Стоит отметить также, что области стабильности четырёх основных мод намного меньше при  $\varepsilon = 0.005$  М [рисунок 26 Б], чем при  $\varepsilon = 0$  М [рисунок 26 А].

Таким образом, моделируются переходы между основными модами тремя разными способами, как описано ниже.



Рисунок 26 – Зависимость соотношений T/T<sub>0</sub> (T<sub>0</sub> = 191 с) от временной задержки τ для четырёх основных режимов IP, AP, WR и W и дополнительного «3Cl» при C<sub>inh</sub> = 7 × 10<sup>-5</sup> M c<sup>-1</sup> и ε =(a) 0 и (б) 0.005. Противофазная мода имеет две ветви. Для 3Cl режима (штриховая линия в (б)) два соседних осциллятора синфазны, например, №1 и №2.

#### А. Силовое переключение

В случае силового переключения фазы осцилляторов выставляются внешним возмущением в желаемом порядке, который соответствует относительным фазам конечного ритма. Это достигается возмущениями осцилляторов импульсами с разными специально подобранными амплитудами. Такой подход даёт результат незамедлительно, другими словами система колеблется в новом ритме уже сразу после воздействия импульсами. Этот метод позволяет нам реализовать все переходы межу базовыми модами, кроме перехода от W к WR и наоборот, т. к. эти моды не сосуществуют при фиксированном наборе параметров (см. рисунок 26). Ниже представлены переходы между всеми основными модами.

Синфазный режим может быть переключен в противофазный смещением фаз двух диагональных осцилляторов, например, №1 и №3, как показано на рисунке 27 А. Подходящие внешние импульсы с одинаковыми амплитудами  $C^{(ext)}$ , приложенные в определённую фазу  $\phi$  (= 0.88) согласно КПФ, представленным на рисунке 27, смещают фазы осцилляторов на  $\Delta \phi$  = 0.5, что приводит к режиму АР. Обратите внимание на то, что фаза  $\phi$ , в которую были сделаны внешние возмущения, может быть больше или меньше значения 0.88, так как аттрактор моды АР достаточно широк. Вычислить амплитуду  $C^{(ext)}$  на основе КПФ, представленных на рисунке 23, очень просто. Сначала определяем требуемое смещение  $\Delta \phi$ , в рассматриваемом случае равное 0.5. Затем, смотрим на кривую 5 на рисунке 23 Б, соответствующей  $\Delta \phi$  = 0.5, и находим,

82

что  $C_{\rm p} \cong 0.01 \ {\rm Mc}^{-1}$  при  $\phi$  = 0.88. Следует иметь в виду, что внешнее возмущение применяется после импульсов внутренней связи, другими словами, сдвигается не устойчивый предельный цикл, а возмущенный. Таким образом, амплитуда  $C^{({\rm ext})}$  должна быть слегка подкорректирована.



Рисунок 27 – Пространственно-временные графики для переходов из синфазных колебаний четырёх БЖ осцилляторов с однонаправленной ингибиторной импульсной связью, описываемых моделью (27) - (30). Маленькие вертикальные чёрточки обозначают моменты зажигания осцилляторов (спайков), а пустые круги – моменты импульсов от соседних осцилляторов, которые устанавливают импульсную связь. Направленные вниз красные стрелки обозначают внешние ингибирующие импульсы для переключения мод. (А) переключение IP → AP, (Б) переключение IP → W и (B) переход IP → WR. Параметры:  $C_{inh} = 7 \times 10^{-5} M c^{-1}$ ,  $\Delta t = \Delta t^{(ext)} = 5 c$ ;  $\tau/c = (A)$  и (Б) 150, (B) 100; фазы внешних импульсов  $\phi = (A)$ -(B) 0.88. Амплитуды внешних импульсов (M c<sup>-1</sup>): (A)  $C_1^{(ext)} = C_3^{(ext)} = 2 \times 10^{-2}$ , (Б)  $C_1^{(ext)} = 1 \times 10^{-3}$ ,  $C_2^{(ext)} = 1 \times 10^{-2}$ ,  $C_3^{(ext)} = 0.4$ , (B)  $C_1^{(ext)} = 0.4$ ,  $C_2^{(ext)} = 6 \times 10^{-3}$ ,  $C_3^{(ext)} = 6 \times 10^{-4}$ .

В случае перехода IP  $\rightarrow$  W (рисунок 27 Б) необходимо сдвинуть фазы трёх осцилляторов, а фаза четвёртого будет служить в качестве опорной фазы для сравнения. В этом случае амплитуды всех трёх импульсов, приложенных в одну и ту же фазу  $\phi \approx 0.88$ , сильно отличаются:  $C_2^{(ext)}/C_1^{(ext)} = 10$  и  $C_3^{(ext)}/C_2^{(ext)} = 40$ . Аналогичный переход IP  $\rightarrow$  WR требует обратные соотношения амплитуд:  $C_2^{(ext)}/C_1^{(ext)} = 0.06$  и  $C_3^{(ext)}/C_2^{(ext)} = 0.1$ .

Теперь рассмотрим переходы из моды АР. Переключение АР  $\rightarrow$  IP на рисунок 28 Б подразумевает изменение фаз двух диагональных осцилляторов на  $\Delta \phi = 0.5$ . Как видно из рисунка осциллятор №1 получает внешний импульс во время  $t \cong 312$  с и затем внутренний импульс от осциллятора №4 в  $t \cong 387$  с. Таким образом, настоящий сдвиг фазы  $\Delta \phi$  осциллятора №4 в  $t \cong 387$  с. Таким образом, настоящий сдвиг фазы  $\Delta \phi$  осциллятора №4 в  $t \cong 387$  с. Таким образом, настоящий сдвиг фазы  $\Delta \phi$  осциллятора №1 больше, чем подсчитанный с помощью КПФ на рисунке 23 А. Следовательно, надо оценивать необходимый сдвиг фазы  $\Delta \phi$ , принимая во внимание последующие внутренние импульсы. Давайте исследуем сдвиг первого осциллятора, к которому применяется внешнее возмущение

амплитудой  $C_1^{(\text{ext})} = 0.001 \text{ M c}^{-1}$ . Согласно рисунку 23 Б такое возмущение должно давать сдвиг  $\Delta \phi \cong 0.36$ , и следующий смещённый спайк должен появиться в  $t \cong 404$  с (период осцилляций до возмущения  $T_0 = 192$  с, следующий межспайковый интервал для  $\Delta \phi = 0.36$  должен быть равен  $T_0(1 + 0.36) \cong 261$  с. Зная время предыдущего спайка t = 143 с, следующий спайк должен появиться в  $t \cong 143 + 261 = 404$  с). Однако внутренний ингибирующий импульс от осциллятора #4 приходит в  $t \cong 387$  с, т. е. до ожидаемого спайка, тем самым расширяя межспайковый интервал на дополнительный сдвиг  $\Delta \phi (\cong 0.15)$  при  $C_p = 7 \times 10^{-5} \text{ M c}^{-1}$  и  $\phi \cong 0.93$ ). Так как значение дополнительного сдвига  $\Delta \phi (\cong 0.15)$  примерно равно 40 с, появление спайка стоит ожидать в  $t \cong 444$  с (404 с + 40 с). На деле этот спайк наблюдается в  $t \cong 443$  с. То же самое происходит и с осциллятором #3. Как видно на рисунке 28 А фазы всех четырёх осцилляторов сразу после внешних импульсов ни совсем синфазны. Но после двух-трёх периодов осциллирования они становятся ближе друг к другу и в итоге получается режим IP.



Рисунок 28 – Пространственно-временные графики для переходов из противофазных колебаний четырёх БЖ осцилляторов с однонаправленной ингибиторной импульсной связью. Символы такие же, как и на рисунке 27. (А) АР → IP переход, (Б) АР → W переход и (В) переход АР → WR. Параметры:  $C_{inh} = 7 \times 10^{-5} M c^{-1}$ ,  $\Delta t = \Delta t^{(ext)} = 5 c$ ;  $\tau/c = (A) u$  (Б) 150, (B) 50; фазы внешних импульсов  $\phi = (A) u$  (Б) 0.89, (В) 0.74. Амплитуды внешних импульсов ( $M c^{-1}$ ): (A)  $C_1^{(ext)} = C_3^{(ext)} = 1 \times 10^{-3}$ , (Б)  $C_2^{(ext)} = 8 \times 10^{-2}$ ,  $C_3^{(ext)} = 1 \times 10^{-2}$ ,  $C_4^{(ext)} = 1 \times 10^{-2}$ ,  $C_4^{(ext)} = 1 \times 10^{-4}$ , (B)  $C_2^{(ext)} = 1 \times 10^{-4}$ ,  $C_3^{(ext)} = 1 \times 10^{-2}$ ,  $C_4^{(ext)} = 0.4$ .

Для перехода АР → W (рисунок 28 Б) необходимо три внешних импульса, сделанных примерно в одинаковую фазу каждого осциллятора (= 0.89), но в разные моменты времени, т. к. фазы осцилляторов #2 и #3 различны (осцилляторы #2 и #4 синфазны). Фаза первого осциллятора служит реперной точкой. Чтобы получить переход осцилляторы #3 и #4 получают два импульса

(внешний и внутренний), в то время, как осциллятор #2 получает даже три импульса до своего следующего спайка. В связи с этим к выбору амплитуды ударов необходимо подходить деликатно. Стоит отметить, что соотношение  $C_2^{(\text{ext})}/C_4^{(\text{ext})}$  (= 800) очень большое. Примерно такое же объяснение можно дать для перехода АР  $\rightarrow$  WR (см. рисунок 28 В).

Переход из мод W и WR показан на рисунке 29. Для переключения системы из моды W в IP (см. рисунок 29 A) необходимо применить три разных внешних импульса, чтобы сдвинуть фазу  $\phi_1$  осциллятора #1 на  $\Delta \phi \cong 0.75$ , фазу  $\phi_2$  осциллятора #2 на  $\Delta \phi \cong 0.5$  и фазу  $\phi_3$  осциллятора #3 на  $\Delta \phi \cong 0.25$ . Амплитуды возмущений можно посчитать, использую данные из рисунка 23. Внутренние импульсы тоже должны учитываться, при выборе силы внешнего удара.



Рисунок 29 – Пространственно-временные графики для переходов из мод W [(A) и (Б)] и WR [(B) и (Г)]. Символы такие же, как и на рисунке 27. (A) W → IP переход, (Б) W → AP переход, (В) переход WR → IP и (Г) WR → AP. Параметры:  $C_{inh} = 7 \times 10^{-5} M c^{-1}$ ,  $\Delta t = \Delta t^{(ext)} = 5 c$ ;  $\tau/c = (A) u$  (Б) 150, (B) 100, (Г) 55; фазы внешних импульсов  $\phi = (A) 0.9$ , (Б) 0.88, (B) u (Г) 0.77. Амплитуды внешних импульсов (M  $c^{-1}$ ): (A)  $C_1^{(ext)} = 0.4$ ,  $C_2^{(ext)} = 1 \times 10^{-2}$ ,  $C_3^{(ext)} = 1 \times 10^{-3}$ , (Б)  $C_1^{(ext)} = 4 \times 10^{-2}$ ,  $C_2^{(ext)} = 0.1$ ,  $C_4^{(ext)} = 1 \times 10^{-4}$ , (B)  $C_1^{(ext)} = 4 \times 10^{-4}$ ,  $C_2^{(ext)} = 6 \times 10^{-3}$ ,  $C_3^{(ext)} = 0.4$ , (Г)  $C_1^{(ext)} = 1 \times 10^{-3}$ ,  $C_3^{(ext)} = 0.2$ ,  $C_4^{(ext)} = 1 \times 10^{-2}$ .

Переход из моды W (= четыре синглтона) в моду AP (= двухкластерная мода) представлен на рисунке 29 Б. В этом случае третий осциллятор служит в качестве реперного, а фазы остальных осцилляторов должны быть смещены на 0.5, 0.75 и 0.25 соответственно. Это значит, что амплитуда четвёртого импульса (применённого к осциллятору #4) самая маленькая,  $C_4^{(ext)} = 1 \times$   $10^{-4}$  M c<sup>-1</sup>, в то время, как второй импульс – самый большой,  $C_2^{(\text{ext})} = 0.1$  M c<sup>-1</sup>. Значения амплитуд  $C_i^{(\text{ext})}$  подсчитаны из данных рисунка 23. Такая же логика применяется в случае переходов WR  $\rightarrow$  IP (рисунок 29 B) и WR  $\rightarrow$  AP (рисунок 29 Г).

### Б. «Специфическое» переключение

Переключение называется «специфическим», если даже одно внешнее импульсное возмущение вызывает специфический каскад событий, спайков и внутренних импульсов, вызванных этими спайками, в результате чего система переключается в новый режим. Например, как показано на рисунке 30 A, мода AP может быть переключена в моду W всего лишь одним внешним ударом. После сдвига фазы осциллятора #1 возникает нестабильный режим 3Cl, который медленно (в течение нескольких периодов осцилляций) трансформируется в стабильный режим W. Во время этого перехода внутренние импульсы от осциллятора #1 приходят на осциллятор #2 в большие значения фазы *ф*, тем самым растягивая межспайковый интервал и сдвигая фазы спайков. Осциллятор #2, в свою очередь, сдвигает осциллятор #3, что в итоге и приводит к моде W.



Рисунок 30 – Пространственно-временные графики для специфических переключений. (A) AP → W, (Б) WR → IP, (B) AP → WR, (Г) IP → WR и (Д) IP → W. Символы такие же, как и на рисунке 27. Параметры:  $C_{inh} = 7 \times 10^{-5} \text{ M c}^{-1}$ ,  $\Delta t = \Delta t^{(ext)} = 5 \text{ c}$ ;  $\tau/c = (A) 150$ , (Б) 100, (В) 50, (Г) 60 и (Д) 150; фазы внешних импульсов  $\phi = (A) 0.89$ , (Б) 0.77, (В) 0.83, (Г) 0.84 и (Д) 0.93; амплитуды внешних импульсов (M c<sup>-1</sup>): (A)  $C_1^{(ext)} = 1 \times 10^{-3}$ , (Б)  $C_3^{(ext)} = C_4^{(ext)} = 5 \times 10^{-3}$ , (В) - (Д)  $C_2^{(ext)} = 1 \times 10^{-4}$ .

Ещё один интересный переход – это WR  $\rightarrow$  IP (рисунок 30 Б). В этом случае применяются два внешних импульса, в то время, как аналогичный силовой переход требует три импульса (рисунок 29 В). Т. е. такой переход можно рассматривать как «специфический» или промежуточный случай. Внешний ингибирующий импульс, применённый к осциллятору #4, сдвигает его спайк и последовательно сдвигает момент времени, когда импульс, сгенерированный осциллятором #4, приходит на осциллятор #1. Это ведёт к раннему спайку осциллятора #1 ( $t \cong 583.5$  с), т. к. он получает импульс от четвёртого только после собственного спайка. Импульсы, приходящие на осциллятор в малые фазы  $\phi$ , такие, как импульсы от четвёртого на первый осциллятор, не растягивают период значительно (смотреть КПФ на рисунке 23). В результате спайки осцилляторов #1 и #2 появляются почти в один и тот же момент времени, когда осциллятор #4 даёт спайк. Конечным режимом должен быть режим IP, если

время спайков третьего осциллятора совпадёт с временем остальных осцилляторов. На рисунке 30 Б амплитуда (или фаза) внешнего импульса, применённого к третьему осциллятору, немного больше, чем необходимо, и спайк осциллятора #3 возникает немного позднее спайков остальных осцилляторов. Но, к счастью, аттрактор моды IP достаточно широк при выбранных параметрах, и результирующий режим – IP.

Специфическое переключение AP  $\rightarrow$  WR показано на рисунке 30 В. Слабый внешний удар, применённый к осциллятору #2, растягивает его период и ведёт к тому, что внутренний импульс от осциллятора #2 приходит на #3 после его спайка (в промежуток между *t* = 300 с и *t* = 350 с). А это, в свою очередь, приводит к раннему спайку осциллятора #3 и разделению фаз спайков осцилляторов #1 и #3. При выбранных параметрах система (27) - (30) имеет только два стабильных аттрактора: AP и WR. Описанный слабый внешний удар выбивает систему из аттрактора AP в аттрактор WR. После нескольких периодов колебаний, система эволюционирует до хорошо определяемого режима WR.

Ещё одно специфическое переключение IP  $\rightarrow$  WR показано на рисунке 30 Г. Довольно слабый внешний импульс сдвигает осциллятор #2 вперёд, в результате внутренний импульс от него приходит на третий при большей фазе  $\phi$  (около t = 450 с), удлиняя его период. После нескольких периодов система сходится к режиму WR.

Не исключено, что можно найти больше специфических переходов, например, IP → W (см. рисунок 30 Д). Но некоторые переключения не могут быть реализованы через одно внешнее возмущение в рамках модели (27) - (30), например, W → IP или 3Cl → IP. В общем, можно сказать, что специфические переходы непредсказуемы и происходят случайно.

#### В. Переключения в и из 3Cl моды

Несмотря на то, что мода 3Cl не стабильна для полностью одинаковых осцилляторов, мы довольно часто наблюдаем её в наших экспериментах, так как БЖ осцилляторы в «идентичных» реакторах не полностью идентичны. То же наблюдается и в используемой модели (27) - (30) с немного различными значениями  $h_i$  для разных осцилляторов. Выяснилось, что 3Cl мода может быть получена из любого основного режима силовым методом. Некоторые переходы в и из 3Cl моды, показанные на рисунке 31, могут быть реализованы и специфическим переключением с помощью только одного внешнего удара. Стоит напомнить, что количество кластеров в режимах IP, AP, 3Cl и W (или WR) равняется 1, 2, 3 и 4, соответственно, если один осциллятор рассматривать, как синглтон, другими словами, как кластер из одного осциллятора. Самые лёгкие переключения это те, при которых количество кластеров меняется на один. Именно они

показаны на рисунке 31: 3Cl  $\rightarrow$  WR на рисунке 31 A, WR  $\rightarrow$  3Cl на рисунке 31 Б и AP  $\rightarrow$  3Cl на рисунке 31 В. В случае переходов 3Cl  $\rightarrow$  WR и WR  $\rightarrow$  3Cl нет практической разницы между силовым и специфическим переключениями, так как внешний импульс, который ведёт к переключению, можно рассматривать и как силовой ввиду того, что меняется фаза только одного осциллятора (который синфазен с другим). Силовое переключение AP  $\rightarrow$  3Cl представлено на рисунке 31 Г. В отличие от специфического метода, это переключение Tpeбует два внешних импульса. В добавок, обратный переход 3Cl  $\rightarrow$  AP, сделанный силовым методом, показан на рисунке 31 Д. Стоит обратить внимание на то, что сдвигаются одни и те же осцилляторы №1 и №2 как и в случае обратного переключения, но с противоположными значениями  $C_1^{(ext)}$  и  $C_2^{(ext)}$ . Изменения в относительных фазах осцилляторов №1 и №2 ведут к изменению относительных фаз осцилляторов №3 и №4.



Рисунок 31 – Пространственно-временные графики для переключений в и из 3Cl моды в модели (27) - (30). (A) 3Cl  $\rightarrow$  AP, (Б) WR  $\rightarrow$  3Cl, (B) специфический AP  $\rightarrow$  3Cl, (Г) силовой AP  $\rightarrow$  3Cl и (Д) 3Cl  $\rightarrow$  AP. Символы такие же, как и на рисунке 27. Параметры:  $C_{inh} = 7 \times 10^{-5} \text{ M c}^{-1}$ ,  $\Delta t = \Delta t^{(ext)} = 5 \text{ c}$ ;  $\tau/c = (A) u$  (Б) 50, (B) - (Д) 40; фазы внешних импульсов  $\phi = (A) 0.78$ , (Б) 0.88, (B) 0.84, (Г) 0.9 и (Д) 0.88; амплитуды внешних импульсов (M c<sup>-1</sup>): (A)  $C_1^{(ext)} = 1 \times 10^{-4}$ , (Б)  $C_2^{(ext)} = 1 \times 10^{-5}$ , (B)  $C_2^{(ext)} = 2 \times 10^{-3}$ , (Г)  $C_1^{(ext)} = 1 \times 10^{-4}$ ,  $C_2^{(ext)} = 1 \times 10^{-4}$ .

Используя рисунок 31 Б удобно объяснить механизм стабилизации 3Cl моды при достаточно больших *ε*. Давайте рассмотрим осцилляторы №1 и №2 после внешнего импульса (в интервале между *t* = 300 с и *t* = 500 с. Мы видим, что эти осцилляторы синфазны в то время, как импульсы от осцилляторов №4 и №1 приходят в абсолютно разные фазы: в  $\phi \cong 0.58$  осциллятора №1 и в  $\phi \cong 0.26$  осциллятора №2. КПФ на рисунке 23 даёт нам для них разные сдвиги фаз:  $\Delta \phi \cong$ 0 для  $\phi$   $\cong$  0.26 и  $\Delta\phi$   $\cong$  0.1 для  $\phi$   $\cong$  0.58. Если бы нативные периоды осцилляторов №1 и №2 были идентичны, они не смогли бы колебаться синфазно. Чтобы компенсировать даже большую разницу в фазовых сдвигах осциллятор №2 должен быть самым медленным (с самым большим собственным периодом  $T_2^{(0)}$ ), а осциллятор №1 должен быть самым быстрым (с самым маленьким нативным периодом  $T_1^{(0)}$ ). Это - как раз наш случай:  $T_1^{(0)} = 188.2$  с,  $T_2^{(0)} = 193.8$ с,  $T_3^{(0)} = 189.6$  с и  $T_4^{(0)} = 192.4$  с. Можно сделать вывод, что среди двух синфазных осцилляторов в 3СІ режиме один осциллятор должен быть самым медленным, а второй – должен быть или №1 или №3, другими словами – соседним. Выбор между осцилляторами №1 и №3 определяется временной задержкой au и/или тонкостями внешнего возмущающего импульса. На рисунке 31 можно видеть, что все пары синфазных осцилляторов 3СI моды состоят из осцилляторов №1 и №2 или №2 и №3.

Как видно из рисунка 26 Б моды 3СІ и W не сосуществуют, как и моды 3СІ и IP. Так что переходы из 3СІ в IP или W (и наоборот) не могут быть найдены.

#### Г. Переключения через промежуточные моды

В случаях, когда переключение между двумя модами трудно реализуемо, можно использовать промежуточные моды и переходы в и из них. Такой подход можно реализовать и с помощью силового и с помощью специфического переключений. Главная идея переключений через промежуточные моды – пытаться менять число кластеров в режимах, уменьшая или увеличивая их число на один. Рассмотрим гипотетический переход IP  $\rightarrow$  WR. Последовательность промежуточных переходов может выглядеть так: IP  $\rightarrow$  AP  $\rightarrow$  3Cl  $\rightarrow$  WR. Сначала один кластер делится на два (рисунок 27 A), переключение из моды IP в AP. Затем можно реализовать переход AP  $\rightarrow$  3Cl (рисунок 31 B). И, наконец, пара синфазных осцилляторов в 3Cl моде разделяется в переходе 3Cl  $\rightarrow$  WR (рисунок 31 A). Можно реализовать даже более сложный переход между режимами W и WR, например, через следующую последовательность: W  $\rightarrow$  3Cl  $\rightarrow$  AP  $\rightarrow$  3Cl  $\rightarrow$  WR, если на каком-нибудь шаге последовательности поменять параметры системы, например, временную задержку  $\tau$ .

# 4.3.2 Результаты эксперимента

Чтобы проверить результаты моделирования, проведена серия экспериментов и получены предсказанные переходы между модами с помощью разных типов переключений.

#### А. Силовые переключения

В данном разделе представлено всего два перехода, осуществлённые силовым методом. В этом методе и этих экспериментах делается попытка переустановить фазы всех осцилляторов (кроме одного или двух, являющихся реперными точками) так, чтобы они соответствовали фазам финальных (желаемых) мод. В разных экспериментах используются разные продолжительности внешних ингибирующих импульсов  $\Delta t_i^{(ext)}$ , чтобы варьировать силу возмущения.

Переходы IP → AP и WR → IP представлены на рисунке 32. На рисунке 32 A продемонстрирован пример кинетики осциллятора №1, записанной фотодиодным приёмником. Трансформация этой кинетики в маленькие вертикальные чёрточки, которые обозначают спайки первого осциллятора, показана на рисунке 32 Б. В переходе IP → AP (рисунок 32 Б) два диагональных осциллятора, например, №1 и №3, могут оставаться невозмущёнными, относительно которых будет вычисляться сдвиг фаз остальных осцилляторов, в то время, как фазы двух других диагональных, №2 и №4, должны быть смещены внешних импульсом примерно на пол периода. Возмущение с  $[Br]_p = C_{inh}\Delta t_i^{(ext)} = 3.18 \times 10^{-5}$  M, применённое при больших  $\phi$  ( $\cong$  0.93), достаточно для этого. Противофазный режим устанавливается сразу после импульсного возмущения. Это переключение можно сравнить с аналогичным теоретическим переключением на рисунке 27 А.



Рисунок 32 – Кинетика переходов силовым методом между модами, полученная в экспериментах. (А) динамика катализатора в реакторе R1, записанная приёмником PD1. Спайки в (А) соответствуют спайкам осциллятора №1 в (Б). Красная точечная линия отображает порог  $E_{th} = 8$  В. (Б) переход IP  $\rightarrow$  AP, (В) WR  $\rightarrow$  IP. Символы такие же, как и на рисунке 27. Параметры:  $k_0 = 4 \times 10^{-4} \text{ c}^{-1}$ ,  $\Delta t = 3 \text{ c}$ , (Б)  $C_{inh} = 1.06 \times 10^{-5} \text{ M c}^{-1}$ ,  $\tau = 15 \text{ c}$ , фазы внешних импульсов:  $\phi_2^{(ext)} = \phi_4^{(ext)} = 0.93$ ,  $\Delta t_2^{(ext)} = \Delta t_4^{(ext)} = 3 \text{ c}$ ; (В)  $C_{inh} = 1.48 \times 10^{-5} \text{ M c}^{-1}$ ,  $\tau = 50 \text{ c}$ , фазы внешних импульсов:  $\phi_1^{(ext)} = 0.82$ ,  $\Delta t_1^{(ext)} = 2 \text{ c}$ ,  $\phi_2^{(ext)} = 0.85$ ,  $\Delta t_2^{(ext)} = 3 \text{ c}$ ,  $\phi_3^{(ext)} = 0.89$ ,  $\Delta t_3^{(ext)} = 4.5 \text{ c}$ .

В переходе WR → IP (рисунок 32 В) четвёртый осциллятор служит осциллятором, относительно которого вычисляется сдвиг фаз других осцилляторов, и остаётся невозмущённым. Сила ударов, применённых к осцилляторам №1, №2 и №3 должна возрастать с индексом осцилляторов. Это условие достигается, используя разные длительности внешних импульсов:  $\Delta t_i^{(ext)} = 2 c, 3 c u 4.5 c для i = 1, 2 u 3, соответственно, при почти одинаковых фазах <math>\phi_i^{(ext)}$  внешних возмущений:  $\phi_1^{(ext)} \cong 0.82$ ,  $\phi_2^{(ext)} \cong 0.85$ ,  $\phi_3^{(ext)} \cong 0.89$ . Этот переход, WR → IP, можно сравнить с теоретическим на рисунке 29 В.

#### Б. Специфическое переключение

Переход IP  $\rightarrow$  WR, полученный одним внешним импульсом, и обратный переход WR  $\rightarrow$  IP, полученный двумя внешними ударами (специфическими), показаны на рисунке 33 A и 33 Б, соответственно. Компьютерное моделирование показало, что «специфические» переключения сопровождаются каскадом событий. Такие каскады можно наблюдать и в экспериментах. Переключение IP  $\rightarrow$  WR (рисунок 33 A) достигается одним импульсным возмущением осциллятора №4. После этого импульса фазы всех осциллятора №1 ингибируют осциллятор №2 во временном интервале между двумя последовательными спайками. После этого решающего события режим осциллирования довольно быстро сходится к моде WR. Аналогичное

переключение, найденное при моделировании системы (27) - (30), можно увидеть на рисунке 30 (Г).



Рисунок 33 – Экспериментальная кинетика переходов специфическим методом между модами: (A) IP → WR, (Б) WR → IP. Символы такие же, как и на рисунке 27. Параметры:  $k_0 = 4 \times 10^{-4} \text{ c}^{-1}$ ,  $\Delta t = 3 \text{ c}$ ,  $C_{inh} = 2.22 \times 10^{-5} \text{ M c}^{-1}$ ,  $\tau = 50 \text{ c}$ , фазы внешних импульсов: (A)  $\phi_4^{(ext)} = 0.85$ ,  $\Delta t_4^{(ext)} = 4 \text{ c}$ ; (Б)  $\phi_3^{(ext)} = 0.9 \text{ c}$ ,  $\phi_4^{(ext)} = 0.85$ ,  $\Delta t_4^{(ext)} = 4 \text{ c}$ .

Переход WR  $\rightarrow$  IP, представленный на рисунке 33 Б, похож на силовое переключение WR  $\rightarrow$  IP на рисунке 32 В, где использовались три импульса. Однако мы называем рассматриваемое переключение специфическим, так как применяли всего два импульса. Внешние ингибирующие импульсы, применённые к осцилляторам №3 и №4 в фазы  $\phi_3^{(ext)} = 0.90$  и  $\phi_4^{(ext)} = 0.85$ , соответственно, сдвигают их спайки на  $\Delta \phi_3 = 0.29$  и  $\Delta \phi_4 = 0.24$ . В результате осциллятор №3 становится почти синфазным с осциллятором №2 ( $t \cong 7120$  с). Также, можно видеть, что осциллятор №1 почти синфазен с №2 и №3. Это происходит из-за подходящего смещения фазы осциллятора №4 на  $\Delta \phi_4 = 0.24$  и соответствующего (последующего) сдвига внутренних импульсов от осциллятора №4 на осциллятор №1. Этот сдвиг приводит к ситуации, когда спайк осциллятора №1 (в  $t \cong 7115$  с) появляется до внутреннего импульса от осциллятора №4 и этот импульс не увеличивает межспайковый интервал, как это происходило раньше. Конфигурация/порядок спайков сразу после внешнего возмущения сходится к моде IP. Это переключение может быть более красивым, если немного увеличить амплитуду импульсного возмущения четвёртого осциллятора.

#### В. Переключение в и из трёхкластерной (3Cl) моды

В условиях реального эксперимента сложно получить небольшие различия в периодах «идентичных» осцилляторов. Поэтому 3СІ режим легко реализуется при определённых параметрах системы, и можно реализовать переключения в и из 3СІ. На рисунке 34 представлены такие переключения, сделанные одним внешним импульсом, другими словами, все эти переключения являются специфическими. Переходы  $3CI \rightarrow WR$ ,  $WR \rightarrow 3CI$  и  $AP \rightarrow 3CI$  показаны на рисунке 34 A-B соответственно.



Рисунок 34 – Кинетика, полученная в эксперименте, переходов в и из 3Cl моды: (A) 3Cl → WR, (Б) WR → 3Cl, (В) AP → 3Cl. Символы такие же, как и на рисунке 27. Параметры:  $k_0 = 8.5 \times 10^{-4} \text{ c}^{-1}$ ,  $\Delta t = 3 c$ , (A)  $C_{inh} = 7.2 \times 10^{-6} \text{ M c}^{-1}$ ,  $\tau = 20 c$ , фазы внешних импульсов:  $\phi_3^{(ext)} = 0.31$ ,  $\Delta t_3^{(ext)} = 3 c$ ; (Б)  $C_{inh} = 3.7 \times 10^{-6} \text{ M c}^{-1}$ ,  $\tau = 30 c$ , фазы внешних импульсов:  $\phi_4^{(ext)} = 0.88$ ,  $\Delta t_4^{(ext)} = 6 c$ ; (B)  $C_{inh} = 9.6 \times 10^{-6} \text{ M c}^{-1}$ ,  $\tau = 7 c$ , фазы внешних импульсов:  $\phi_2^{(ext)} = 0.78$ ,  $\Delta t_2^{(ext)} = 5 c$ .

Динамика экспериментального (рисунок 34 A) и теоретического (рисунок 31 A) переключения 3Cl  $\rightarrow$  WR почти идентичны. Внешний импульс применён к одному из двух синфазных осцилляторов, который разбивает этот кластер и ведёт к моде WR с четырьмя синглтонами. Обратный переход WR  $\rightarrow$  3Cl (рисунок 34 Б) возникает с тем же количеством введённого ингибитора [Br]<sub>p</sub> =  $2.2 \times 10^{-5}$  M. Динамика этого перехода схожа с динамикой теоретического переключения WR  $\rightarrow$  3Cl, показанного на рисунке 31 Б.

Специфическое переключение AP  $\rightarrow$  3Cl (рисунок 34 B) достигается одним импульсным возмущением осциллятора №2, как и в случае теоретического переключения, показанного на рисунке 31 В. Внутренний импульс от осциллятора №2 приходит на осциллятор №3 с запозданием (в *t*  $\cong$  12 000 с) и поэтому осциллятор №3 даёт спайк до него. Последующая связь между осцилляторами постепенно выстраивает их фазы в стабильный 3Cl режим. Стоит отметить, что в финальной 3Cl моде в теоретическом переключении на рисунке 31 В осцилляторы №2 и №3 синфазны, в то время, как в экспериментальном переключении синфазны осцилляторы №1 и №4. Эти отличия можно объяснить тем фактом, что самые медленные осцилляторы в моделировании и в эксперименте разные. Стоит напомнить, что в 3Cl моде в паре синфазных осцилляторов должен присутствовать самый медленный осциллятор из всех четырёх.

## 4.4. Выводы

Теоретически переход между любыми двумя устойчивыми модами некоторой нелинейной системы может быть достигнут путем перемещения системы с одной фазовой траектории, принадлежащей аттрактору первой моды, на другую фазовую траекторию, принадлежащую аттрактору второй моды. Однако мы не знаем границ между аттракторами различных динамических мод, которые могут быть очень сложными, например, фрактальными границами [105], в системах со многими переменными, как в нашей системе с 16 основными переменными (без учёта переменных, ответственных за внутренние и внешние импульсы). Дополнительные трудности связаны с тем, что можно изменять значения только одного типа переменных, скажем, ингибитора, если используются ингибирующие связи. В рассматриваемом случае этот факт означает, что все остальные 12 переменных остаются неизменными в момент возмущения. Поэтому для успешного переключения между режимами мы должны использовать очень надежный метод, который работает во всех (или почти во всех) случаях.

В настоящей работе впервые продемонстрировано, что «силовой» метод переключения обеспечивает адресные переходы между любыми двумя режимами рассматриваемой системы при условии, что эти режимы сосуществуют при выбранных параметрах (см. рисунок 26 Б). Например, моды W и WR существуют при разных значениях  $\tau$  и никогда не сосуществуют при одном и том же  $\tau$ . Преимущество силового переключения перед специфическим – это надёжный переход между любыми двумя сосуществующими модами. Кроме того, силовое переключение является более предсказуемым, и амплитуды возмущающих систему импульсов могут быть рассчитаны по данным из КПФ. Мы считаем, что «силовой» метод переключения может быть использован для разработки химического компьютера [106, 107].

Все переходы, представленные в этой работе, суммированы в Таблице 7, что облегчает поиск одинаковых или аналогичных теоретических и экспериментальных переходов на разных рисунках для их сравнения. Обратите внимание, что существуют определенные переходы (см. серые ячейки в Таблице 7), которые не могут быть достигнуты, поскольку начальный и конечный режимы не сосуществуют при выбранных параметрах системы (27) - (30). Таблица 7. Обзор всех рисунков переключений, найденных в системе (27) - (30) (рисунки 27 - 31) и в эксперименте (рисунки 32 -34). Буква «S» обозначает специфические переключения. Ячейки, в которых переключение невозможно при выбранных параметрах системы (27) - (30), закрашены серым цветом. Левая колонка соответствует начальным режимам, а первый ряд – конечным модам переключений. Номера рисунков с экспериментальными переключениями обозначены жирным шрифтом.

	IP	AP	3CI	W	WR
IP		Рис. 27 А <b>Рис. 32 Б</b>		Рис. 27 Б S Рис. 30 Д	Рис. 27 В S Рис. 30 Г <b>S Рис. 33 A</b>
AP	Рис. 28 А		S Рис. 31 В S Рис. 31 Г <b>S Рис. 34 В</b>	Рис. 28 Б S Рис. 30 A	Рис. 28 В S Рис. 30 В
3CI		Рис. 31 Д			S Рис. 31 A S Рис. 34 A
W	Рис. 29 А	Рис. 29 Б			
WR	Рис. 29 В S Рис. 30 Б <b>Рис. 32 В</b> S Рис. 33 Б	Рис. 29 Г	S Рис. 31 Б <mark>S Рис. 34 Б</mark>		

Как уже упоминалось во введении, существует много разных моделей реакции БЖ. Среди этих моделей модель VE является наиболее удобной для моделирования переходов между модами. Если сравнить промоделированные и экспериментально полученные переходы между модами, то видно, что они качественно совпадают, но амплитуды внешних импульсов, используемых для переключения в натуральных экспериментах, отличаются от теоретических. Другие модели, которые были кратко протестированы (например, модель VL [20]), могут дать лучшие результаты с точки зрения амплитуд возмущения, но худшие результаты в смысле моделирования некоторых конкретных переходов, особенно тех, для которых периоды начальной и конечной мод отличаются значительно. Таким образом, результат моделирования следует использовать в качестве руководства для переключения, но не в качестве строгого требования.

Чтобы перестроить фазы осцилляторов используются ингибирующие внешние импульсы. Этот выбор объясняется технической причиной, поскольку в этом случае можно использовать одни и те же шприцы типа АЗ и одинаковые шприцевые помпы (рисунок Рисунок 24) как для внешних импульсов, так и для импульсов внутренней связи. Однако возбуждающие внешние импульсы могут быть более удобными, если важна точность новых фаз. Действительно, в случае возбуждающих импульсов достаточно большой амплитуды момент импульса совпадает с моментом спайка возмущенного генератора, т. е. спайк возникает сразу же после активирующего возмущения. Нет необходимости рассчитывать фазовые сдвиги для таких возмущений. Уравнения (27) и (28) нашей модели должны быть изменены следующим образом:

$$\frac{\mathrm{d}x_i}{\mathrm{d}t} = X(x_i, y_i, z_i) + C_i^{(\mathrm{ext})} P(t_{i1}, t_{i2}), \tag{31}$$

$$\frac{dy_i}{dt} = Y(x_i, y_i, z_i, u_i) + C_{inh} P(x_{i-1}, \tau),$$
(32)

где  $C_i^{(\text{ext})}$  – амплитуда возбуждающего импульса (например, короткая инъекция раствора AgNO<sub>3</sub> [13]). Но основной принцип фазовых сдвигов силовым методом, согласно которому измененные фазы должны соответствовать фазам конечной моды, остается неизменным.

В сетях с большим количеством осцилляторов и аттракторов (например, с ингибиторной связью «все-со-всеми») переключение между различными модами может быть более сложным из-за необходимости повышенной точности импульсных возмущений для установления желаемой моды. Для таких систем хаб-моды и другие промежуточные моды должны играть важную роль в переключениях. В больших сетях должны быть тщательно изучены роль частотной дисперсии и влияние изменения силы связи на устойчивость различных мод.

## Заключение

Систематически изучены динамические режимы сети из четырёх спайковых осцилляторов, импульсно связанных ингибиторной связью с временной задержкой – сделаны последовательные шаги от наблюдения за сетью до управления ею (составлены подробные карты областей динамических режимов для сетей с разной топологией, на этой базе предложены методы распознавания режимов, что, в свою очередь, позволило переключать состояния сети). Полученные данные легли в основу дальнейшего развития идеи спайкового химического компьютера. Каждая часть проделанной работы способствовала созданию самостоятельно функционирующей динамической системы — нейроподобной сети [108]. Особенно важен тот факт, что каждый теоретический шаг проверен и подтверждён в экспериментах. Так, информация о динамических режимах на параметрической диаграмме в плоскости  $C_{inh} - \tau$  позволила использовать свойство мультистабильности и предложить два способа переключения системы из одного колебательного режима в другой: силовой и специфический. Кроме того, для возможности самостоятельного выполнения этого свойства системе необходимо «знать» своё текущее состояние. Для решения этой задачи были разработаны три метода распознавания динамических режимов: с помощью задержек во времени, определение кластеров по амплитуде сигнала и резонансный подход. Всё это позволило смоделировать автономную сеть, адаптирующуюся к внешнему воздействию [109], и протестировать её экспериментально [108], собрав воедино все «кирпичики».

### Список терминов

Аналого-Цифровой Преобразователь: Устройство, преобразующее аналоговый сигнал в цифровой.

аттрактор: Компактное подмножество фазового пространства динамической системы, все траектории из некоторой окрестности которого стремятся к нему при времени, стремящемся к бесконечности.

бёрстовый нейрон: Нейрон, генерирующий спайки пачками.

**би-, три- стабильность:** Сосуществование двух (трёх) аттракторов при каком-либо одном и том же наборе параметров. Реализация того или иного аттрактора зависит от начальных условий системы. Иногда используется термин би- или три-ритмичность, если речь идет о сосуществовании различных колебательных ритмов, а термины би- или три- стабильность относят к случаям, когда аттракторами являются устойчивые стационарные точки.

**БЖ-осциллятор:** Химический осциллятор, основанный на колебательной реакции Белоусова-Жаботинского.

БЖ реакция: Колебательная реакция Белоусова-Жаботинского

глобальный период: Период режима сети связанных осцилляторов.

изола – Изолированная ветвь стационарных состояний динамической системы.

**мультистабильная система:** Динамическая система, имеющая несколько устойчивых аттракторов.

нативный период: Период колебаний несвязанного осциллятора.

прямая связь: Однонаправленная связь («feed-forward loops»).

**расстройка частот:** Дисперсия собственных периодов осцилляторов относительно их средней частоты.

регулярная мода (паттерн, режим, ритм): Мода сети связанных осцилляторов, в которой каждый осциллятор производит ровно один спайк за один полный период системы.

связность сети (в данной работе является синонимом «топология сети»): Конфигурация сети, по сути являющейся графом, вершинам которого соответствуют осцилляторы, а рёбрам физические связи между вершинами, в рамках данной работы организованные вливанием растворов или импульсами света.

синглтон: Кластер, состоящий из одного осциллятора.

**сложная (мода, паттерн, режим, ритм):** Мода сети связанных осцилляторов, в которой все осцилляторы производят спайки, и количество спайков  $N_i$  каждого осциллятора за полный период T различно, или все  $N_i > 1$ .

собственный период: То же, что нативный период.

спайк: В осцилляторе, основанном на реакции Белоусова-Жаботинского — это быстрый автокаталитический рост концентрации окисленной формы катализатора и активатора (HBrO<sub>2</sub>), за которым следует их быстрый спад.

функция Хэвисайда: Кусочно-постоянная функция, которая равна нулю, когда аргумент отрицательный, и единице при положительных значениях аргумента.

**химера:** Динамический режим, при котором наряду с синхронизированными осцилляторами присутствуют несинхронизированные.

**щелевой контакт (англ.** *gap junction*): Межклеточный контакт, обеспечивающий прямой перенос ионов и небольших молекул между соседними клетками. Щелевые контакты способны образовывать почти все клетки животных.

# Список сокращений и условных обозначений

VE-модель — математическая модель Ванага-Эпштейна химической реакции Белоусова-Жаботинского.

VL-модель – математическая модель Ванага-Лавровой химической реакции Белоусова-Жаботинского.

АЦП - Аналого-Цифровой Преобразователь.

БЖ реакция - реакция Белоусова-Жаботинского.

КПФ - Кривая Переустановки Фаз.

ОГС - Отрицательная Глобальная Связь.

ПРПП - Проточные Реакторы с Постоянным Перемешиванием.

СС - стационарное состояние.

ЦГР - Центральный Генератор Ритмов.

## Список литературы

- Hodgkin, A.L. A quantitative description of membrane current and its application to conduction and excitation in nerve / A.L. Hodgkin, A.F. Huxley // The Journal of Physiology. – 1952. – Vol. 117 – № 4 – P. 500–544.
- Marek, M. Synchronization in two interacting oscillatory systems / M. Marek, I. Stuchl // Biophysical Chemistry. – 1975. – Vol. 3 – № 3 – Р. 241–248.
- Белоусов, Б.П. Периодическая реакция и её механизм в Сборнике рефератов по радиационной медицине за 1958 г. / Б.П. Белоусов // Медгиз, Москва. – 1959. – С. 145– 152.
- Жаботинский, А.М. Периодические окислительные реакции в жидкой фазе / А.М.
   Жаботинский // Доклады Академии Наук СССР. 1964. Т. 157 С. 392–395.
- 5. Epstein, I.R. An Introduction to Nonlinear Chemical Dynamics: Oscillations, Waves, Patterns, and Chaos: Topics in Physical Chemistry / I.R. Epstein, J.A. Pojman. 1998. 392 p.
- Crowley, M.F. Electrically coupled belousov-zhabotinskii oscillators. 1. Experiments and simulations / M.F. Crowley, R.J. Field // Journal of Physical Chemistry. 1986. Vol. 90 № 9 P. 1907–1915.
- Izhikevich, E.M. Dynamical Systems in Neuroscience: The Geometry of Excitability and Bursting
   / E.M. Izhikevich; ed. by T.J. Sejnowski, T.A. Poggio. 2007. 441 p.
- Osipov, G. V. Synchronization in Oscillatory Networks: Springer Series in Synergetics / G. V.
   Osipov, J. Kurths, C. Zhou. 1st ed. Berlin, Heidelberg2007. 370 p.
- Pikovsky, A. Synchronization: A Universal Concept in Nonlinear Sciences / A. Pikovsky, M. Rosenblum, J. Kurths. 2003. 411 p.
- Epstein, I.R. Coupled chemical oscillators and emergent system properties / I.R. Epstein // Chemical Communications. – 2014. – Vol. 50 – № 74 – P. 10758–10767.
- Showalter, K. From chemical systems to systems chemistry: Patterns in space and time / K.
   Showalter, I.R. Epstein // Chaos. United States2015. Vol. 25 № 9 P. 97613.
- 13. Horvath, V. Pulse-coupled chemical oscillators with time delay / V. Horvath, P.L. Gentili, V.K.

Vanag, I.R. Epstein // Angewandte Chemie International Edition. – 2012. – Vol. 51 – № 28 – P. 6878–6881.

- Проскуркин, И.С. Динамические режимы двух разночастотных химических осцилляторов, связанных ингибиторной импульсной связью с задержкой / И.С. Проскуркин, В.К. Ванаг // Журнал Физической Химии. – 2015. – Т. 89 – № 2 – С. 340–344.
- Proskurkin, I.S. Inhibitory and excitatory pulse coupling of two frequency-different chemical oscillators with time delay / I.S. Proskurkin, A.I. Lavrova, V.K. Vanag // Chaos. 2015. Vol. 25 № 6 Р. 64601.
- 16. Haken, H. Brain Dynamics / H. Haken. 2nd ed. 2008. 333 p.
- Gyorgyi, L. Mechanistic details of the oscillatory Belousov-Zhabotinskii reaction / L. Gyorgyi, T. Turanyi, R.J. Field // The Journal of Physical Chemistry. 1990. Vol. 94 № 18 P. 7162–7170.
- 18. Field, R.J. Oscillations in chemical systems. II. Thorough analysis of temporal oscillation in the bromate-cerium-malonic acid system / R.J. Field, E. Koros, R.M. Noyes // Journal of the American Chemical Society. – 1972. – Vol. 94 – № 25 – P. 8649–8664.
- Field, R.J. Oscillations in chemical systems. IV. Limit cycle behavior in a model of a real chemical reaction / R.J. Field, R.M. Noyes // The Journal of Chemical Physics. 1974. Vol. 60 № 5 Р. 1877–1884.
- Lavrova, A.I. Two pulse-coupled non-identical, frequency-different BZ oscillators with time delay. / A.I. Lavrova, V.K. Vanag // Physical Chemistry Chemical Physics. 2014. Vol. 16 N

   № 14 P. 6764–72.
- Vanag, V.K. A model for jumping and bubble waves in the Belousov–Zhabotinsky-aerosol OT system / V.K. Vanag, I.R. Epstein // The Journal of Chemical Physics. 2009. Vol. 131 № 10 P. 104512.
- 22. Zhabotinsky, A.M. Oscillations and waves in metal-ion-catalyzed bromate oscillating reactions in highly oxidized states / A.M. Zhabotinsky, F. Buchholtz, A.B. Kiyatkin, I.R. Epstein // The Journal of Physical Chemistry. – 1993. – Vol. 97 – № 29 – P. 7578–7584.
- Proskurkin, I.S. New type of excitatory pulse coupling of chemical oscillators via inhibitor / I.S.
   Proskurkin, V.K. Vanag // Physical Chemistry Chemical Physics. 2015. Vol. 17 № 27 –
   P. 17906–17913.
- 24. Клиньшов, В.В. Синхронизация автоколебательных сетей с запаздывающими связями /
  В.В. Клиньшов, В.И. Некоркин // Успехи Физических Наук. 2013. Т. 183 № 12 –
  С. 1323–1336.

- 25. Canavier, C.C. Pulse coupled oscillators and the phase resetting curve / C.C. Canavier, S.
   Achuthan // Mathematical Biosciences. 2010. Vol. 226 № 2 Р. 77–96.
- Goel, P. Synchrony, stability, and firing patterns in pulse-coupled oscillators / P. Goel, G.B.
   Ermentrout // Physica D: Nonlinear Phenomena. 2002. Vol. 163 № 3 P. 191–216.
- Klinshov, V. V. Synchronization of time-delay coupled pulse oscillators / V. V. Klinshov, V.I.
   Nekorkin // Chaos, Solitons & Fractals. 2011. Vol. 44 № 1 Р. 98–107.
- 28. Loskutov, A. Model of cardiac tissue as a conductive system with interacting pacemakers and refractory time / A. Loskutov, S. Rybalko, E. Zhuchkova // International Journal of Bifurcation and Chaos. – 2004. – Vol. 14 – № 07 – P. 2457–2466.
- 29. Rybalko, S. A generalized model of active media with a set of interacting pacemakers: application to the heart beat analysis / S. Rybalko, E. Zhuchkova // International Journal of Bifurcation and Chaos. – 2009. – Vol. 19 – № 01 – P. 263–279.
- Grines, E. Describing dynamics of driven multistable oscillators with phase transfer curves / E.
   Grines, G. Osipov, A. Pikovsky // Chaos: An Interdisciplinary Journal of Nonlinear Science. –
   2018. Vol. 28 № 10 P. 106323.
- Klinshov, V. V. Cross-frequency synchronization of oscillators with time-delayed coupling / V. V.
   Klinshov, D.S. Shchapin, V.I. Nekorkin // Physical Review E. 2014. Vol. 90 № 4 P. 42923.
- Ríos, C. Integrated all-photonic non-volatile multi-level memory / C. Ríos, M. Stegmaier, P.
   Hosseini, D. Wang, T. Scherer, C.D. Wright, H. Bhaskaran, W.H.P. Pernice // Nature Photonics. –
   2015. Vol. 9 № 11 P. 725–732.
- Benioff, P. The computer as a physical system: A microscopic quantum mechanical Hamiltonian model of computers as represented by Turing machines / P. Benioff // Journal of Statistical Physics. – 1980. – Vol. 22 – № 5 – P. 563–591.
- 34. Манин, Ю.И. Вычислимое и невычислимое / Ю.И. Манин. Москва. 1980.
- Feynman, R.P. Simulating physics with computers / R.P. Feynman // International Journal of Theoretical Physics. – 1982. – Vol. 21 – № 6–7 – P. 467–488.
- 36. Adamatzky, A. On architectures of circuits implemented in simulated Belousov–Zhabotinsky droplets / A. Adamatzky, J. Holley, P. Dittrich, J. Gorecki, B. de L. Costello, K.-P. Zauner, L. Bull // Biosystems. 2012. Vol. 109 № 1 P. 72–77.
- Adamatzky, A. Binary collisions between wave-fragments in a sub-excitable Belousov–
   Zhabotinsky medium / A. Adamatzky, B. de L. Costello // Chaos, Solitons & Fractals. 2007. –
   Vol. 34 № 2 P. 307–315.
- 38. Adamatzky, A. Towards Arithmetic Circuits in Sub-Excitable Chemical Media / A. Adamatzky, B.

de L. Costello, L. Bull, J. Holley // Israel Journal of Chemistry. – 2011. – Vol.  $51 - N \ge 1 - P. 56 - 66$ .

- Gorecki, J. Information coding with frequency of oscillations in Belousov-Zhabotinsky encapsulated disks / J. Gorecki, J.N. Gorecka, A. Adamatzky // Physical Review E. 2014. Vol. 89 № 4 P. 42910.
- 40. Hopfield, J.J. Neural networks and physical systems with emergent collective computational abilities. / J.J. Hopfield // Proceedings of the National Academy of Sciences. 1982. Vol. 79 Nº 8 P. 2554–2558.
- 41. Wilson, R.C. Parallel Hopfield Networks / R.C. Wilson // Neural Computation. 2009. Vol. 21
   P. 831–850.
- 42. Little, W.A. The existence of persistent states in the brain / W.A. Little // Mathematical Biosciences. 1974. Vol. 19 № 1–2 P. 101–120.
- 43. Canavier, C.C. Control of multistability in ring circuits of oscillators. / C.C. Canavier, D.A. Baxter,
  J.W. Clark, J.H. Byrne // Biological cybernetics. Germany1999. Vol. 80 № 2 P. 87–102.
- Klinglmayr, J. Convergence of Self-Organizing Pulse-Coupled Oscillator Synchronization in Dynamic Networks / J. Klinglmayr, C. Bettstetter, M. Timme, C. Kirst // IEEE Transactions on Automatic Control. – 2017. – Vol. 62 – № 4 – P. 1606–1619.
- 45. Luo, C. Multimodal behavior in a four neuron ring circuit: mode switching / C. Luo, J.W. Clark,
  C.C. Canavier, D.A. Baxter, J.H. Byrne // IEEE Transactions on Biomedical Engineering. 2004. –
  Vol. 51 № 2 P. 205–218.
- 46. Mirollo, R.E. Synchronization of Pulse-Coupled Biological Oscillators / R.E. Mirollo, S.H. Strogatz
   // SIAM Journal on Applied Mathematics. 1990. Vol. 50 № 6 Р. 1645–1662.
- 47. Safonov, D.A. Dynamical regimes of four oscillators with excitatory pulse coupling / D.A.
  Safonov, V. V. Klinshov, V.K. Vanag // Physical Chemistry Chemical Physics. 2017. Vol. 19 Nº 19 P. 12490–12501.
- Vanag, V.K. Dynamical regimes of four almost identical chemical oscillators coupled via pulse inhibitory coupling with time delay / V.K. Vanag, P.S. Smelov, V. V. Klinshov // Physical Chemistry Chemical Physics. 2016. Vol. 18 № 7 P. 5509–5520.
- Bargmann, C.I. From the connectome to brain function / C.I. Bargmann, E. Marder // Nature
   Methods. 2013. Vol. 10 P. 483–490.
- Kopell, N.J. Beyond the Connectome: The Dynome / N.J. Kopell, H.J. Gritton, M.A. Whittington,
   M.A. Kramer // Neuron. 2014. Vol. 83 № 6 Р. 1319–1328.
- 51. Buzsáki, G. Neural Syntax: Cell Assemblies, Synapsembles, and Readers / G. Buzsáki // Neuron.

- 2010. - Vol. 68 - № 3 - P. 362-385.

- 52. Marder, E. Principles of rhythmic motor pattern generation / E. Marder, R.L. Calabrese //
   Physiological Reviews. 1996. Vol. 76 № 3 P. 687–717.
- Belousov, B.P. A periodic reaction and its mechanism in Collection of short papers on radiation medicine / B.P. Belousov // Medgiz, Moskow. – 1959. – P. 145–152.
- 54. Zhabotinskiy, A.M. Periodic liquid phase reactions / A.M. Zhabotinskiy // Proceedings of the USSR Academy of Sciences. 1964. Vol. 157 P. 392–395.
- Schmitz, R.A. Experimental evidence of chaotic states in the Belousov–Zhabotinskii reaction /
   R.A. Schmitz, K.R. Graziani, J.L. Hudson // The Journal of Chemical Physics. 1977. Vol. 67 –
   № 7 P. 3040–3044.
- 56. Proskurkin, I.S. Experimental Investigation of the Dynamical Modes of Four Pulse-Coupled Chemical Micro-Oscillators / I.S. Proskurkin, P.S. Smelov, V.K. Vanag // ChemPhysChem. – 2019. – Vol. 20 – № 17 – P. 2162–2165.
- 57. Crowley, M.F. Experimental and theoretical studies of a coupled chemical oscillator: Phase death, multistability, and in-phase and out-of-phase entrainment / M.F. Crowley, I.R. Epstein // Journal of Physical Chemistry. 1989. Vol. 93 № 6 Р. 2496–2502.
- 58. Horvath, V. Pulse-coupled BZ oscillators with unequal coupling strengths / V. Horvath, D.J.
   Kutner, J.T. Chavis III, I.R. Epstein // Physical Chemistry Chemical Physics. 2015. Vol. 17 Nº 6 P. 4664–4676.
- Kawamura, Y. Phase synchronization between collective rhythms of fully locked oscillator groups / Y. Kawamura // Scientific Reports. – 2014. – Vol. 4 – P. 4832.
- 60. Ashwin, P. Weak chimeras in minimal networks of coupled phase oscillators / P. Ashwin, O.
   Burylko // Chaos: An Interdisciplinary Journal of Nonlinear Science. 2015. Vol. 25 № 1 –
   P. 13106.
- Barrón, M.A. Synchronization of four coupled van der Pol oscillators / M.A. Barrón, M. Sen //
   Nonlinear Dynamics. 2009. Vol. 56 № 4 P. 357–367.
- 62. Chandrasekaran, L. Multistability of clustered states in a globally inhibitory network / L.
  Chandrasekaran, V. Matveev, A. Bose // Physica D: Nonlinear Phenomena. 2009. Vol. 238 N
  <sup>o</sup> 3 P. 253–263.
- 63. Collins, J.J. Coupled nonlinear oscillators and the symmetries of animal gaits / J.J. Collins, I.N.
   Stewart // Journal of Nonlinear Science. 1993. Vol. 3 № 1 Р. 349–392.
- 64. Emelianova, Y.P. A structure of the oscillation frequencies parameter space for the system of dissipatively coupled oscillators / Y.P. Emelianova, A.P. Kuznetsov, L. V. Turukina, I.R. Sataev,

N.Y. Chernyshov // Communications in Nonlinear Science and Numerical Simulation. – 2014. – Vol.  $19 - N_{2} 4 - P$ . 1203–1212.

- 65. Ermentrout, G.B. Mathematical Foundations of Neuroscience: Interdisciplinary Applied Mathematics / G.B. Ermentrout, D.H. Terman. – 2012. – 246–249 p.
- Golubitsky, M. Nonlinear dynamics of networks: the groupoid formalism / M. Golubitsky, I.N.
  Stewart // Bulletin of the american mathematical society. 2006. Vol. 43 № 3 Р. 305–364.
- 67. Nana, B. Synchronized states in a ring of four mutually coupled oscillators and experimental application to secure communications / B. Nana, P. Woafo // Communications in Nonlinear Science and Numerical Simulation. 2011. Vol. 16 № 4 P. 1725–1733.
- 68. Olejarczyk, E. Susceptibility of switching between in-phase and anti-phase patterns in the network of relaxation oscillators / E. Olejarczyk, H. Ostaszewski, P. Meyrand, T. Bem // Biocybernetics and Biomedical Engineering. 2014. Vol. 34 № 4 P. 250–257.
- 69. Stewart, I.N. Symmetry-breaking in a rate model for a biped locomotion central pattern generator / I.N. Stewart // Symmetry. 2014. Vol. 6 № 1 Р. 23–66.
- Turukina, L. V. Hyperbolic chaos in a system of resonantly coupled weakly nonlinear oscillators
   / L. V. Turukina, A. Pikovsky // Physics Letters A. 2011. Vol. 375 № 11 P. 1407–1411.
- Wickramasinghe, M. Spatially Organized Dynamical States in Chemical Oscillator Networks:
   Synchronization, Dynamical Differentiation, and Chimera Patterns / M. Wickramasinghe, I.Z.
   Kiss // PLOS ONE. 2013. Vol. 8 № 11.
- Grebogi, C. Metamorphoses of Basin Boundaries in Nonlinear Dynamical Systems / C. Grebogi,
  E. Ott, J.A. Yorke // Physical Review Letters. 1986. Vol. 56 № 10 Р. 1011–1014.
- Feudel, U. Complex Dynamics in Multistable Systems / U. Feudel // International Journal of Bifurcation and Chaos. 2008. Vol. 18 № 06 Р. 1607–1626.
- Feudel, U. Multistability and tipping: From mathematics and physics to climate and brain—
   Minireview and preface to the focus issue / U. Feudel, A.N. Pisarchik, K. Showalter // Chaos: An
   Interdisciplinary Journal of Nonlinear Science. 2018. Vol. 28 № 3 Р. 33501.
- Pisarchik, A.N. Control of multistability / A.N. Pisarchik, U. Feudel // Physics Reports. 2014. –
  Vol. 540 № 4 P. 167–218.
- 76. Kuramoto, Y. Coexistence of Coherence and Incoherence in Nonlocally Coupled Phase
   Oscillators / Y. Kuramoto, D. Battogtokh // Nonlinear Phenomena in Complex Systems. 2002.
   Vol. 5 P. 380–385.
- 77. Abrams, D.M. Chimera States for Coupled Oscillators / D.M. Abrams, S.H. Strogatz // Physical

Review Letters. – 2004. – Vol. 93 – № 17 – P. 174102.

- 78. Abrams, D.M. Solvable model for chimera states of coupled oscillators / D.M. Abrams, R.
   Mirollo, S.H. Strogatz, D.A. Wiley // Physical Review Letters. 2008. Vol. 101 № 8 –
   P. 84103.
- Tinsley, M.R. Chimera and phase-cluster states in populations of coupled chemical oscillators /
   M.R. Tinsley, S. Nkomo, K. Showalter // Nature Physics. 2012. Vol. 8 P. 662.
- Wickramasinghe, M. Spatially organized partial synchronization through the chimera mechanism in a network of electrochemical reactions / M. Wickramasinghe, I.Z. Kiss // Physical Chemistry Chemical Physics. – 2014. – Vol. 16 – № 34 – P. 18360–18369.
- Schmidt, L. Chimeras in globally coupled oscillatory systems: From ensembles of oscillators to spatially continuous media / L. Schmidt, K. Krischer // Chaos. 2015. Vol. 25 № 6 –
  P. 64401.
- 82. Lücken, L. Two-cluster bifurcations in systems of globally pulse-coupled oscillators / L. Lücken,
  S. Yanchuk // Physica D: Nonlinear Phenomena. 2012. Vol. 241 № 4 P. 350–359.
- Banapathisubramanian, N. Bistability, mushrooms, and isolas / N. Ganapathisubramanian, K.
   Showalter // The Journal of Chemical Physics. 1984. Vol. 80 № 9 P. 4177–4184.
- Rabinovich, M. NEUROSCIENCE: Transient Dynamics for Neural Processing / M. Rabinovich, R.
  Huerta, G. Laurent // Science. 2008. Vol. 321 № 5885 P. 48–50.
- 85. Yanchuk, S. Delay and periodicity / S. Yanchuk, P. Perlikowski // Physical Review E. 2009. –
  Vol. 79 № 4 P. 46221.
- 86. Yanchuk, S. Variability of spatio-temporal patterns in non-homogeneous rings of spiking neurons / S. Yanchuk, P. Perlikowski, O. V. Popovych, P.A. Tass // Chaos: An Interdisciplinary Journal of Nonlinear Science. – 2011. – Vol. 21 – № 4 – P. 47511.
- 87. Hohmann, W. Pattern Recognition by Electrical Coupling of Eight Chemical Reactors / W.
  Hohmann, M. Kraus, F.W. Schneider // The Journal of Physical Chemistry A. 1999. Vol. 103
   № 38 P. 7606–7611.
- 88. Toiya, M. Diffusively Coupled Chemical Oscillators in a Microfluidic Assembly / M. Toiya, V.K.
  Vanag, I.R. Epstein // Angewandte Chemie International Edition. 2008. Vol. 47 № 40 –
  P. 7753–7755.
- 89. Tompkins, N. Testing Turing's theory of morphogenesis in chemical cells / N. Tompkins, N. Li, C. Girabawe, M. Heymann, G.B. Ermentrout, I.R. Epstein, S. Fraden // Proceedings of the National Academy of Sciences. 2014. Vol. 111 № 12 P. 4397–4402.
- 90. Vanag, V.K. Diffusive instabilities in heterogeneous systems / V.K. Vanag, I.R. Epstein // The
Journal of Chemical Physics. – 2003. – Vol. 119 – № 14 – P. 7297–7307.

- 91. Vanag, V.K. Pattern Formation in the Belousov–Zhabotinsky Reaction with Photochemical Global Feedback / V.K. Vanag, A.M. Zhabotinskiy, I.R. Epstein // The Journal of Physical Chemistry A. – 2000. – Vol. 104 – № 49 – P. 11566–11577.
- 92. Жаботинский, А.М. Периодический ход окисления малоновой кислоты в растворе (Исследование реакции Белоусова) / А.М. Жаботинский // Биофизика. – 1964. – Т. 9 – С. 306–311.
- 93. Vanag, V.K. Asymmetrical Concentration Fluctuations in the Autocatalytic Bromate-Bromide Catalyst Reaction and in the Oscillatory Belousov-Zhabotinsky Reaction in Closed Reactor: Stirring Effects / V.K. Vanag, D.P. Melikhov // The Journal of Physical Chemistry. 1995. Vol. 99 № 48 P. 17372–17379.
- Bull, L. Towards Unconventional Computing through Simulated Evolution: Control of Nonlinear Media by a Learning Classifier System / L. Bull, A. Budd, C. Stone, I. Uroukov, B. de L. Costello, A. Adamatzky // Artificial Life. 2008. Vol. 14 № 2 P. 203–222.
- 95. Marder, E. Multiple models to capture the variability in biological neurons and networks / E.
   Marder, A.L. Taylor // Nature Neuroscience. 2011. Vol. 14 P. 133.
- 96. Hart, J.D. Experimental observation of chimera and cluster states in a minimal globally coupled network / J.D. Hart, K. Bansal, T.E. Murphy, R. Roy // Chaos: An Interdisciplinary Journal of Nonlinear Science. – 2016. – Vol. 26 – № 9 – P. 94801.
- Смелов, П.С. Экспериментальное исследование сети из четырех химических осцилляторов, однонаправленно связанных ингибиторной импульсной связью / П.С. Смелов, В.К. Ванаг // Журнал Физической Химии. 2017. Т. 91 № 6 С. 963–968.
- 98. Izhikevich, E.M. Polychronization: Computation with Spikes / E.M. Izhikevich // Neural
   Computation. 2006. Vol. 18 № 2 P. 245–282.
- 99. Izhikevich, E.M. Polychronous wavefront computations / E.M. Izhikevich, F.C. Hoppensteadt //
   International Journal of Bifurcation and Chaos. 2009. Vol. 19 № 05 Р. 1733–1739.
- 100. Hopfield, J.J. Pattern recognition computation using action potential timing for stimulus representation / J.J. Hopfield // Nature. 1995. Vol. 376 P. 33.
- 101. Neves, F.S. Noise-constrained switching times for heteroclinic computing / F.S. Neves, M. Voit,
   M. Timme // Chaos: An Interdisciplinary Journal of Nonlinear Science. 2017. Vol. 27 № 3 –
   P. 33107.
- Golubitsky, M. Symmetry in locomotor central pattern generators and animal gaits / M.
   Golubitsky, I. Stewart, P.-L. Buono, J.J. Collins // Nature. 1999. Vol. 401 P. 693.

- 103. Timme, F.S.N. and M. Controlled perturbation-induced switching in pulse-coupled oscillator networks / F.S.N. and M. Timme // Journal of Physics A: Mathematical and Theoretical. 2009.
   Vol. 42 № 34 P. 345103.
- 104. Smelov, P.S. Controllable switching between stable modes in a small network of pulse-coupled chemical oscillators / P.S. Smelov, I.S. Proskurkin, V.K. Vanag // Physical Chemistry Chemical Physics. – 2019. – Vol. 21 – № 6 – P. 3033–3043.
- 105. Grebogi, C. Fractal Basin Boundaries, Long-Lived Chaotic Transients, and Unstable-Unstable
   Pair Bifurcation / C. Grebogi, E. Ott, J.A. Yorke // Physical Review Letters. 1983. Vol. 50 –
   № 13 P. 935–938.
- 106. Neves, F.S. Computation by Switching in Complex Networks of States / F.S. Neves, M. Timme // Physical Review Letters. – 2012. – Vol. 109 – № 1 – P. 18701.
- 107. Smelov, P.S. A 'reader' unit of the chemical computer / P.S. Smelov, V.K. Vanag // Royal Society Open Science. – 2018. – Vol. 5 – № 1 – P. 171495.
- Proskurkin, I.S. Experimental verification of an opto-chemical "neurocomputer" / I.S.
   Proskurkin, P.S. Smelov, V.K. Vanag // Physical Chemistry Chemical Physics. 2020. Vol. 22 N
   № 34 P. 19359–19367.
- 109. Vanag, V.K. Hierarchical network of pulse coupled chemical oscillators with adaptive behavior: Chemical neurocomputer / V.K. Vanag // Chaos: An Interdisciplinary Journal of Nonlinear Science. – 2019. – Vol. 29 – № 8 – P. 083104.