

Fachhochschule Aachen
Campus Jülich

Fachbereich: Medizintechnik und Technomathematik
Studiengang: Bachelor of Science — Scientific Programming

FH AACHEN
UNIVERSITY OF APPLIED SCIENCES



**Sensitivitätsanalyse an zeitlich instationären
linearen Systemen: Propagation von
Unsicherheiten in plasmachemischen
Modellen**

Bachelorarbeit

vorgelegt von

Marco Vaßen

Matrikelnummer: 869598

Jülich, den 24. August 2015

Diese Arbeit wurde betreut von:

Prof. Dr. rer. nat. Melanie Hollstein

Prof. Dr. rer. nat. Detlev Reiter

Eigenständigkeitserklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die Bachelorarbeit mit dem Thema

Sensitivitätsanalyse an zeitlich instationären linearen Systemen: Propagation von Unsicherheiten in plasmachemischen Modellen

selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe, alle Ausführungen, die anderen Schriften wörtlich oder sinngemäß entnommen wurden, kenntlich gemacht sind und die Arbeit in gleicher oder ähnlicher Fassung noch nicht Bestandteil einer Studien- oder Prüfungsleistung war.

Jülich, den 24. August 2015

Marco Vaßen

Die vorliegende Arbeit wurde in Zusammenarbeit mit dem Institut für Energie- und Klimaforschung IEK-4 — Plasmaphysik der Forschungszentrum Jülich GmbH angefertigt.



Abstract

Die Sensitivitätsanalyse befasst sich mit der Propagation von Unsicherheiten in mathematischen Modellen. Ihre Aufgabe besteht in der systematischen Quantifizierung der Einflüsse, die mit Unsicherheiten behaftete Modellparameter auf die Ausgaben eines Modells haben. Damit stellt sie ein mächtiges und vielseitig einsetzbares Instrument beim Verständnis der Beziehungen zwischen den Ein- und Ausgabedaten eines Modells dar. So erlauben Parametersensitivitäten unter anderem Rückschlüsse über die Robustheit der Modellprognosen gegenüber ex- wie intrinsischer Störeinflüsse und liefern somit ein Vertrauensmaß für die gewonnenen Resultate. Ferner dienen sie als Gradienten bei parameterabhängigen Optimierungsproblemen und können zur Identifikation dominanter Mechanismen beitragen, die ein zugrundeliegendes Modell maßgeblich steuern. Im Rahmen dieser Arbeit wird ein deterministisches lineares Plasmamodell zur A-priori-Analyse zunächst algebraisch-geschlossen über Eigenwert-Eigenvektor-Tupel gelöst. Im Anschluss wird das Modell hinsichtlich seines Langzeitverhaltens untersucht, wobei der Fokus auf Stabilität, Periodizität, sowie Steifheit liegt, um möglichst starke Aussagen über das Langzeitverhalten zu aggregieren. Wir stellen im Zuge der allgemeinen Herleitung der Sensitivitätskoeffizienten erster Ordnung fest, dass die zugehörigen Sensitivitätsmodelle erneut Anfangswertproblemen gewöhnlicher Differentialgleichungen genügen, die dem Ursprungsmodell ähneln und sich ebenso geschlossen lösen lassen. Bei der Lösung greifen wir für unser konkretes lineares Plasmamodell auf bekannte Größen, darunter die Eigenwert-Eigenvektor-Tupel, zurück. Es wird in diesem Zusammenhang eine Anpassung der Sensitivitätsmodelle durchgeführt, sodass sie die Fortentwicklung für zeitlich instationäre Plasmahintergründe erlauben. Die vorgestellten Lösungsmethoden werden im Anschluss anhand von Testproblemen numerisch verifiziert.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Grundlagen	3
2.1	Skalare gewöhnliche Differentialgleichungen	3
2.2	Anfangswertprobleme von Systemen gewöhnlicher Differentialgleichungen .	5
2.3	Lösungstheorie gewöhnlicher Differentialgleichungen	8
2.3.1	Existenz	8
2.3.2	Eindeutigkeit	9
2.4	Systeme linearer Differentialgleichungen	10
2.5	Autonome Systeme	10
3	Das System der Ratengleichungen	13
3.1	Einführung	13
3.2	Einführung in die Reaktionskinetik	14
3.3	Modellbildung	16
3.4	Analytische Lösung	19
3.4.1	Motivation	19
3.4.2	Fundamentalsystem	21
3.4.3	Lösungsraum und partikuläre Lösung	24
3.5	Zeitlich instationäre Entwicklung	28
3.6	Stabilität und Langzeitverhalten	30
3.7	Steifheitsquotient	33
3.8	Numerische Resultate	34
3.8.1	Gleichgewichtsreaktion	34
3.8.2	Stabilität	36
3.8.3	Steifheitsquotient	37
4	Sensitivitätsanalyse	39
4.1	Einführung in die Forward Sensitivity Analysis	39
4.2	Übertragung auf das System der Ratengleichungen	41
4.3	Analytische Lösung	43
4.4	Konsequente Lösungen	47
4.5	Stabilität und Steifheit	49
4.6	Numerische Resultate	49
4.6.1	Gleichgewichtsreaktion	49
4.6.2	Konsequente Entwicklung	52
4.7	Funktionale	54

5	Bewertung und Ausblick	57
5.1	Bewertung	57
5.2	Ausblick	58

Abbildungsverzeichnis

2.1	Lösungsfolge einer Differenzgleichung zum Anfangswert x_0 bei äquidistanten Zeitschritten	3
2.2	Trajektorie einer Differentialgleichung zum Anfangswert x_0 — das Verhältnis von vertikaler zu horizontaler Komponente des Vektors an der Stützstelle τ_i entspricht jeweils $f(t, x(t)) _{t=\tau_i}$	5
2.3	Richtungsfeld der Differentialgleichung $\dot{x} = x$ mit Trajektorien zu verschiedenen Anfangswerten	7
2.4	Existenzgebiet eines Anfangswertproblems mit beidseitig lokal entwickelter Trajektorie	8
2.5	Zeitverschoben entwickelte Trajektorien eines autonomen Systems zum gleichen Anfangswert	11
2.6	Zeitverschoben entwickelte Trajektorien eines nicht autonomen Systems zum gleichen Anfangswert	12
3.1	Exemplarische Konzentrationsentwicklung der Lösungskomponenten von C und CH ₄ mit stark ausgeprägter Disparität in den Zeitskalen	20
3.2	Zwei voneinander unabhängige Entwicklungen derselben Trajektorien auf disjunkten Zeitintervallen — die erste wurde bei $t = 2 \cdot 10^{-5}$ gestoppt, die zweite ab der Nahtstelle fortentwickelt.	28
3.3	Core-Plasma getrennt vom Edge-Plasma am Beispiel des ITER-Fusionsgefäßes [FOM]	29
3.4	Global zeitlich instationäre Konzentrationsentwicklung mit drei unterschiedlichen Plasmahintergründen bei abschnittsweise stationärer Matrix	30
3.5	Konzentrationsentwicklung der Spezies A und B mit Äquilibration — das Residuum beider Lösungen beschränkt sich bei guter numerischer Praxis auf ein Rauschen in Größenordnung der Maschinengenauigkeit.	34
3.6	Einfluss der Ratenkoeffizienten auf die Niveaus der Ruhelagen	35
3.7	Propagation von Störungen in den Anfangswerten (gestrichelte Trajektorien) gegenüber einer ungestörten Referenz (durchgezogene Trajektorien) bei einem stabilen System (oben) und Relaxation der absoluten Abweichung beider Lösungen für fortschreitende Zeit (unten)	36
3.8	System mit großem Steifheitsquotienten $Q_{\text{stiff}} = 2.003532 \cdot 10^4$ (oben) gegenüber einem nichtsteifen System mit $Q_{\text{stiff}} = 9.419387 \cdot 10^0$ (unten), bewirkt durch unterschiedliche Temperaturen	37

4.1	Zeitliche Entwicklungen des skalierten Sensitivitätskoeffizienten σ_{11} für verschiedene Reaktionsraten; die Niveaus der stationären Zustände für hinreichend großes t sind durch die horizontale Linie ebenfalls angedeutet.	51
4.2	Drei Entwicklungen derselben skalierten Sensitivitätstrajektorien für die Zeitintervalle $[0; 1,5 \cdot 10^{-5}]$, $[1,5 \cdot 10^{-5}; 4,5 \cdot 10^{-5}]$, $[4,5 \cdot 10^{-5}; 1 \cdot 10^{-4}]$; die Fortentwicklung erfolgte an den Nahtstellen der Intervalle. Die markierten Punkte entsprechen Auswertungen einer einzigen Entwicklung über dem gesamte Zeitintervall und dienen der zusammengesetzten (durchgezogen) Lösung als Referenz.	52
4.3	Drei Entwicklungen derselben skalierten Sensitivitätstrajektorien für die Zeitintervalle $[0; 1,5 \cdot 10^{-5}]$, $[1,5 \cdot 10^{-5}; 4,5 \cdot 10^{-5}]$, $[4,5 \cdot 10^{-5}; 1 \cdot 10^{-4}]$ bei zeitlich instationärem Plasmahintergrund; die Variation des Plasmahintergrunds (hier: Temperatur) erfolgte an den markierten Nahtstellen der Zeitintervalle.	53
4.4	Die zu Abbildung 4.3 gehörigen stetigen Trajektorien der absoluten, unskalierten Sensitivitäten	53

1 Einleitung

Die geeignete mathematische Modellierung dynamischer Vorgänge in Fusionsplasmen mit dem Ziel, experimentell beobachtete Phänomene und Gesetzmäßigkeiten theoretisch zu reproduzieren und daraus tiefere Erkenntnisse mittels numerischer Methoden zu erhalten, stellt in der Plasmaphysik das Bindeglied zwischen Experimenten und der theoretischen Physik dar.

Die rasanten Fortschritte im Bereich des Supercomputing und die kontinuierlich wachsenden Rechenkapazitäten erlauben die numerische Behandlung immer komplexerer Probleme, und so lösen Computersimulationen in Industrie und Wissenschaft — so auch in der Plasmaphysik — immer häufiger reale Experimente ab. Da die Güte der Simulationsergebnisse immer von der Güte der Abstraktion der Realität durch mathematische Formalismen abhängt, sind Simulationen jedoch kein vollständiger Ersatz für Experimente und müssen stets gemäß der wissenschaftlichen Methode revidiert werden. Numerische Simulationen bieten gegenüber klassischen Experimenten allerdings den entscheidenden Vorteil, dass Modellparameter mit vergleichsweise geringem Aufwand variiert werden können.

Der Begriff des Modellparameters kann dabei sehr weit gefasst sein und steht für sämtliche variablen Modelleingaben. Häufig sind die tatsächlichen quantitativen Ausprägungen der Modellparameter des zugrundeliegenden Modells nicht exakt bekannt. Der Hauptzweck der Sensitivitätsanalyse besteht in der systematischen Quantifizierung der Einflüsse von mit Unsicherheiten behafteten Modellparametern auf die Prognosen des Modells. Die Sensitivitätsinformation kann anschließend unter anderem zur Isolation der Parameter beitragen, die das Verhalten des Modells/der Simulation maßgeblich beeinflussen. Daraus gewonnene Erkenntnisse fließen wiederum in die Verfeinerung von Experimenten ein. Sensitivitäten tragen jedoch auch zum besseren Verständnis des untersuchten dynamischen Systems bei und werden als Gradienten zur Lösung von Optimierungsproblemen genutzt.

Gegenstand dieser Arbeit ist die mathematische Untersuchung eines linearen Plasmamodells auf Basis von Ratengleichungen, welches im Online-Solver *HYDKIN* [IPP] zur A-priori-Analyse eines reaktionskinetischen Aspektes einer großen *EIRENE*-Plasmasimulation dient. Das Modell dient der Beschreibung zeitlicher Dichteprofile für Teilchenspezies, die in einem Hintergrundmedium (Plasmahintergrund) durch Teilchenstöße initiierte lokale Wechselwirkungen eingehen.

Dabei wird in Kapitel 3 zunächst eine analytische Lösung auf Basis eines Eigenwertproblems für Systeme mit diagonalisierbarem linearem Operator hergeleitet und geklärt, weshalb die Voraussetzung der Diagonalisierbarkeit für praxisrelevante Probleme de facto keine Einschränkung darstellt. Ferner werden die Eigenwerte des konstanten linearen Operators bei der Charakterisierung von Systemeigenschaften wie Stabilität und

Steifheit ebenfalls von zentraler Bedeutung sein.

Da der Sensitivitätsbegriff in enger Beziehung zu partiellen Ableitungen bezüglich relevanter Modellparameter steht, wird in Kapitel 4 die Propagation hinreichend kleiner Unsicherheiten in den Prognosen des Plasmamodells mittels abgeschnittener Taylorentwicklung linear approximiert. Die Sensitivitätssysteme, die sich gemäß *Forward Sensitivity Analysis* ergeben, genügen erneut Systemen gewöhnlicher linearer Differentialgleichungen, deren Lösungen sich für unsere konkreten Anwendungen analytisch bestimmen lassen. Die (zeitliche) Fortsetzbarkeit der Sensitivitätstrajektorien wird anschließend insbesondere im Hinblick auf zeitlich instationäre beziehungsweise räumlich inhomogene Plasmahintergründe geklärt.

Zum Abschluss folgt ein Einblick in die Sensitivitätsanalyse an Funktionalen auf den Lösungen des Systems der Ratengleichungen. Im Ausblick dieser Arbeit wird mit der *Adjoint Sensitivity Method* ein alternatives Konzept zur Sensitivitätsanalyse skizziert, das — im Falle einer großen Anzahl von Parameterabhängigkeiten — eine effizientere Bestimmung der Sensitivitäten erlaubt als das Verfahren der *Forward Sensitivity Analysis*.

In dieser Arbeit werden sowohl die Lösung des Systems der Ratengleichungen als auch die Sensitivitätsanalyse mit analytischem Zugang behandelt. Die meisten vorgestellten Überlegungen und Konzepte dienen jedoch auch der numerischen Behandlung als mathematischer Überbau.

2 Grundlagen

„*Natura non facit saltus*“ („*Die Natur macht keine Sprünge*“)
— Carl von Linné, Naturforscher (1707 – 1778)

2.1 Skalare gewöhnliche Differentialgleichungen

Gewöhnliche Differentialgleichungen zeichnen sich durch die Eigenschaft aus, dass die gesuchte Funktion — im Folgenden mit $x(\cdot)$ bezeichnet — und deren Ableitungen von *genau einem* unabhängigen Parameter abhängen. Da Differentialgleichungen häufig zeitabhängige (Natur-)Vorgänge abbilden und im weiteren Verlauf Zeitentwicklungen plasmachemischer Modelle betrachtet werden, sei $x(t)$ fortan eine Funktion im Zeitparameter t .

Zunächst sei $I := [t_0, t_e]$ mit $I \subset \mathbb{R}$ ein kompaktes Zeitintervall und $x(t)$ eine differenzierbare Funktion $x : I \rightarrow \mathbb{R}$. Betrachten wir die Lösung x zu einer konkreten Zeit $t_0 \leq t \leq t_e$, so lässt sich diese bei bekannter Steigungsinformation zwischen den Punkten $(t, x(t))$ und $(t + \Delta t, x(t + \Delta t))$ unter der Voraussetzung, dass $t + \Delta t \in I$, über den Zeitraum $\Delta t > 0$ fortsetzen.

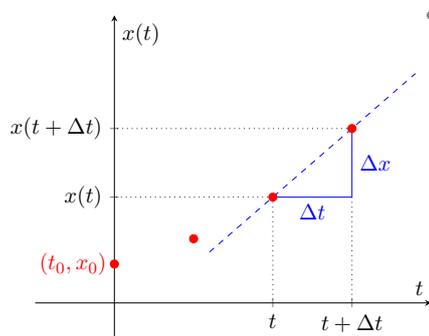


Abbildung 2.1: Lösungsfolge einer Differenzengleichung zum Anfangswert x_0 bei äquidistanten Zeitschritten

Die Steigungsinformation sei durch $f : I \times \mathbb{R} \rightarrow \mathbb{R}$ mit

$$\begin{aligned} \frac{\Delta x}{\Delta t} &= f(t, x(t)) \\ \Leftrightarrow \Delta x &= \Delta t f(t, x(t)) \end{aligned} \tag{2.1}$$

angegeben und der Zuwachs in x über den Zeitraum somit abhängig vom bekannten linksseitigen Funktionswert auf dem Intervall $[t, t + \Delta t] \subseteq I$. Der neue Funktionswert

ergibt sich folglich durch

$$x(t + \Delta t) = x(t) + \Delta x = x(t) + \Delta t f(t, x(t)). \quad (2.2)$$

Dieses Schema lässt sich — wie in der obigen Abbildung skizziert — analog für weitere Zeitschritte fortsetzen und liefert eine rekursive Folge, deren Folgenglieder die Zeitschrittlösungen beschreiben. Die dabei entstehende Gleichung heißt *Differenzgleichung*. Da sämtliche Folgenglieder mit den vorhergehenden gekoppelt sind, ist ein Anfangs- oder Randwert x_0 ein notwendiges Kriterium für die eindeutige Lösbarkeit. Eine Umstellung der Gleichung nach f ergibt mit

$$\frac{x(t + \Delta t) - x(t)}{\Delta t} = f(t, x(t)) \quad (2.3)$$

den Vorwärtsdifferenzenquotienten. Ein derartiger Zugang ist für *zeitdiskrete* Prozesse und solche geeignet, die sich aus einer *Diskretisierung zeitstetiger* Prozesse ergeben.

Zur mathematischen Modellierung *kontinuierlicher* — also *zeitstetiger* — Prozesse ist ein diskreter Ansatz im Allgemeinen ungeeignet. Prozesse, die sich unter der Prämisse der Kontinuität modellieren lassen, finden sich bei Behandlung naturwissenschaftlicher Probleme in großer Fülle. Aus mathematischer Perspektive tragen geeignete Modelle diesem Anspruch dadurch Rechnung, dass Modellaussagen (Ausgaben) per Konstruktion stetig von den Eingabedaten abhängen. Die Lösungstheorie insbesondere solcher Modelle ist Betrachtungsgegenstand der Analysis.

Nach unserer zuvor getroffenen Voraussetzung sei $x(t)$ mindestens einfach differenzierbar. Folglich existiert der Grenzübergang für $\Delta t \rightarrow 0$ und liefert

$$\lim_{\Delta t \rightarrow 0} \frac{x(t + \Delta t) - x(t)}{\Delta t} = \frac{d}{dt} x(t) = f(t, x(t)) \quad (2.4)$$

oder

$$\dot{x} = f(t, x) := f(t, x(t)). \quad (2.5)$$

in Newtonscher Kurzschreibweise für Zeitableitungen. Auf die explizite Nennung des unabhängigen Funktionsparameters t der Funktion x wird zur Vermeidung von Redundanz üblicherweise verzichtet.

Die obige Gleichung (2.5) wird *skalare gewöhnliche Differentialgleichung erster Ordnung* genannt. Die *Ordnung* bezeichnet dabei den Grad der höchsten auftretenden Ableitung der Lösungsfunktion. Eine gewöhnliche Differentialgleichung der Ordnung n genügt immer ihrer allgemeinsten Gestalt

$$F(t, x, \dot{x}, \ddot{x}, \dots, x^{(n)}) = 0. \quad (2.6)$$

Liegt sie in dieser Gestalt vor, so heißt sie *implizit*. Nach dem *Satz von der impliziten Funktion* [For08] gibt es implizite Differentialgleichungen, die eindeutig nach $x^{(n)}$ auflösbar sind.

Dies liefert eine Differentialgleichung der Form

$$x^{(n)} = f(t, x, \dot{x}, \ddot{x}, \dots, x^{(n-1)}), \quad (2.7)$$

welche *explizit* genannt wird.

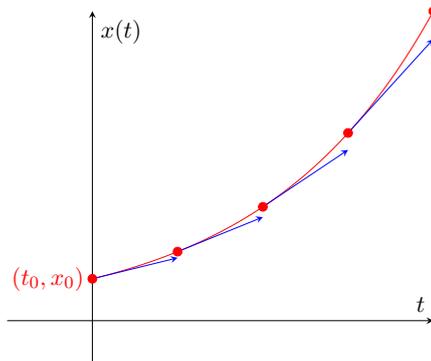


Abbildung 2.2: Trajektorie einer Differentialgleichung zum Anfangswert x_0 — das Verhältnis von vertikaler zu horizontaler Komponente des Vektors an der Stützstelle τ_i entspricht jeweils $f(t, x(t))|_{t=\tau_i}$.

2.2 Anfangswertprobleme von Systemen gewöhnlicher Differentialgleichungen

Bei der mathematischen Modellierung komplexer Vorgänge werden üblicherweise Entwicklungen mehrerer Größen abgebildet, die häufig durch wechselseitige Abhängigkeiten miteinander gekoppelt sind. Realistische Modellfunktionen liefern Lösungen in einem Zustandsraum mit mehreren Freiheitsgraden, dem die skalare Bauart der Differentialgleichung (2.5) nicht gerecht werden kann.

Sei nun $\mathbf{x}(t)$ ein Zustandsvektor im Sinne einer vektorwertigen Funktion $\mathbf{x} : I \rightarrow \mathbb{R}^d$, $d \in \mathbb{N}$

$$\mathbf{x}(t) := \begin{pmatrix} x_1(t) \\ \vdots \\ x_d(t) \end{pmatrix}, \quad x_i : I \rightarrow \mathbb{R} \quad \forall i \in \{1, \dots, d\} \quad (2.8)$$

sowie

$$\mathbf{f}(t, \mathbf{x}) := \begin{pmatrix} f_1(t, \mathbf{x}) \\ \vdots \\ f_d(t, \mathbf{x}) \end{pmatrix} \quad (2.9)$$

mit $\mathbf{f} : I \times \mathbb{R}^d \rightarrow \mathbb{R}^d$, so ist durch

$$\dot{\mathbf{x}} = \begin{pmatrix} \dot{x}_1 \\ \vdots \\ \dot{x}_d \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} f_1(t, \mathbf{x}) \\ \vdots \\ f_d(t, \mathbf{x}) \end{pmatrix} = \mathbf{f}(t, \mathbf{x}) \quad (2.10)$$

ein *System gewöhnlicher Differentialgleichungen erster Ordnung* mit d Freiheitsgraden definiert. Systeme höherer Ordnung lassen sich durch Ordnungsreduktion zu äquivalenten Systemen erster Ordnung transformieren, wodurch ein Ersatzproblem höherer Dimension entsteht.

Sei $y : I \rightarrow \mathbb{R}$ und

$$\ddot{y} = g(t, y, \dot{y}, \ddot{y}) \quad (2.11)$$

eine skalare Differentialgleichung dritter Ordnung, so liefert die Substitution

$$\mathbf{x} := \begin{pmatrix} x_1 \\ x_2 \\ x_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} y \\ \dot{y} \\ \ddot{y} \end{pmatrix} \quad (2.12)$$

mit

$$\dot{\mathbf{x}} = \begin{pmatrix} \dot{x}_1 \\ \dot{x}_2 \\ \dot{x}_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \dot{y} \\ \ddot{y} \\ \ddot{y} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} x_2 \\ x_3 \\ g(t, x_1, x_2, x_3) \end{pmatrix} =: \mathbf{f}(t, \mathbf{x}) \quad (2.13)$$

ein Ersatzproblem, welches der Gestalt eines Systems gewöhnlicher Differentialgleichungen erster Ordnung mit 3 Gleichungen genügt. Tatsächlich ist eine Ordnungsreduktion dieser Art immer — auch für *Systeme* höherer Ordnung — möglich. Dies bestätigt uns der folgende Satz für den allgemeinen Fall.

Satz 2.2.1 (Ordnungsreduktion). *Ist*

$$\mathbf{y}^{(n)} = \mathbf{g}(t, \mathbf{y}, \dot{\mathbf{y}}, \ddot{\mathbf{y}}, \dots, \mathbf{y}^{(n-1)}) \quad (2.14)$$

ein System gewöhnlicher Differentialgleichungen der Ordnung n mit $\mathbf{y} : I \rightarrow \mathbb{R}^d$ und $\mathbf{g} : I \times (\mathbb{R}^d)^n \rightarrow \mathbb{R}^d$, so lässt sich dieses System durch

$$\mathbf{x} := \begin{pmatrix} \mathbf{x}_1 \\ \mathbf{x}_2 \\ \vdots \\ \mathbf{x}_n \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \mathbf{y} \\ \dot{\mathbf{y}} \\ \vdots \\ \mathbf{y}^{(n-1)} \end{pmatrix}, \quad \mathbf{x} : I \rightarrow \mathbb{R}^{dn} \quad (2.15)$$

immer in ein System erster Ordnung

$$\dot{\mathbf{x}} = \mathbf{f}(t, \mathbf{x}) := \begin{pmatrix} \mathbf{x}_2 \\ \vdots \\ \mathbf{x}_n \\ \mathbf{g}(t, \mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2, \dots, \mathbf{x}_n) \end{pmatrix} \quad (2.16)$$

mit dn Freiheitsgraden überführen [Tes12].

Ein notwendiges — allerdings nicht hinreichendes (siehe Lösungstheorie) — Kriterium für die eindeutige Lösbarkeit einer Differentialgleichung ist die Einschränkung der Lösungsmenge auf jene Elemente, die mit einer Anfangs- oder Randbedingung $\mathbf{x}(t_0) = \mathbf{x}_0$ verträglich sind. Es handelt sich dabei also um eine Anforderung an die Lösung, dass sie zu einem fixen Zeitpunkt einen fixen Zustand passiert. Ein Fehlen dieser Information käme einer Unkenntnis über Randzustände des betrachteten Systems gleich. Da ein solches Problem nicht wohlgestellt wäre, sind praxisrelevante Differentialgleichungen mit einer oder mehreren Anfangs-/Randbedingung versehen. Werden alle Bedingungen zur gleichen Zeit t_0 gestellt, wird eine solche Komposition *Anfangswertproblem* genannt. Ansonsten handelt es sich um ein *Randwertproblem*.

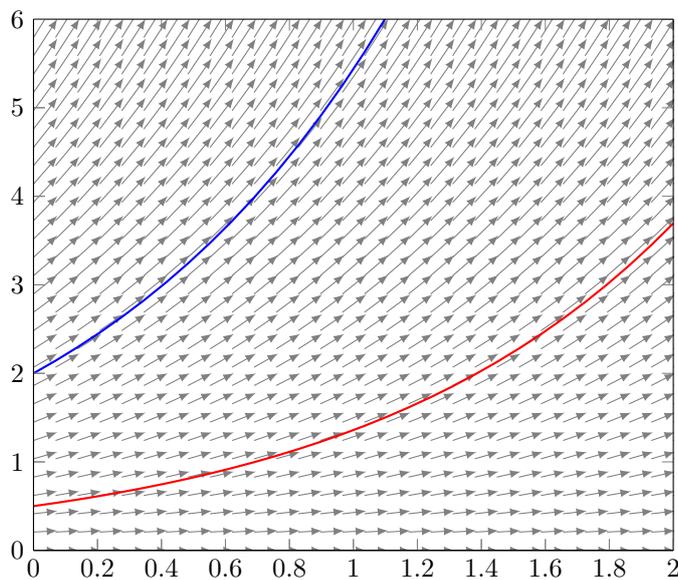


Abbildung 2.3: Richtungsfeld der Differentialgleichung $\dot{x} = x$ mit Trajektorien zu verschiedenen Anfangswerten

Das Vektorfeld in der obigen Abbildung wird *Richtungsfeld*

$$\mathbf{R}(t, x) = \begin{pmatrix} 1 \\ f(t, x) \end{pmatrix} \quad (2.17)$$

der Differentialgleichung genannt und liefert durch Auswertung an beliebigen Punkten auch ohne Kenntnis der Lösung Information über deren Entwicklungsverhalten im Zustandsraum. Es ist gut erkennbar, dass Lösungen durch die Anfangsbedingung „fixiert“ und in ihrer Entwicklung maßgeblich beeinflusst werden.

Lemma 2.2.2. *Ein Differentialgleichungssystem der Ordnung n benötigt n Anfangswerte*

$$\mathbf{x}(t_0) = \begin{pmatrix} x(t_0) \\ \dot{x}(t_0) \\ \vdots \\ x^{(n-1)}(t_0) \end{pmatrix} \quad (2.18)$$

zur eindeutigen Fixierung der Lösung.

Aufgrund von Satz (2.2.1) können wir abschließend ein Anfangswertproblem definieren.

Definition 2.2.3 (Anfangswertproblem).

$$\begin{cases} \dot{\mathbf{x}} = \mathbf{f}(t, \mathbf{x}) \\ \mathbf{x}(t_0) = \mathbf{x}_0 \end{cases} \quad (2.19)$$

heißt mit $\mathbf{x} : I \rightarrow \mathbb{R}^d$, $f : I \times \mathbb{R}^d \rightarrow \mathbb{R}^d$ sowie $\mathbf{x}_0 \in \mathbb{R}^d$ *Anfangswertproblem eines Systems gewöhnlicher Differentialgleichungen.*

2.3 Lösungstheorie gewöhnlicher Differentialgleichungen

2.3.1 Existenz

Die Lösungstheorie gewöhnlicher Differentialgleichungen lässt sich mit wenigen Sätzen und Fallunterscheidungen abdecken. Wir werden feststellen, dass vergleichsweise geringe Anforderungen an die rechte Seite $\mathbf{f}(t, \mathbf{x})$ der Differentialgleichung ausreichen, um die (lokale) Lösbarkeit von Anfangswertproblemen der Gestalt (2.19) zu garantieren.

Satz 2.3.1 (Satz von Peano). *Sei $\Omega \subset [t_0, t_e] \times \mathbb{R}^d$ ein Gebiet um den Anfangswert (t_0, x_0) und $\mathbf{f}(t, \mathbf{x})$ stetig auf Ω , dann besitzt das Anfangswertproblem (2.19) mindestens eine Lösung, welche sich bis an den Rand von Ω fortentwickeln lässt [CL55].*

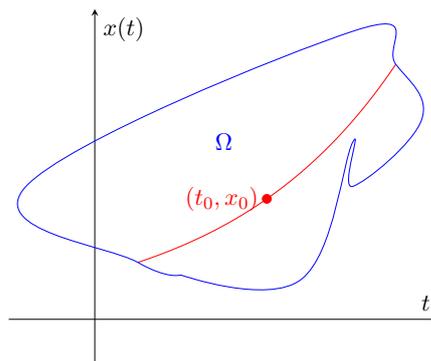


Abbildung 2.4: Existenzgebiet eines Anfangswertproblems mit beidseitig lokal entwickelter Trajektorie

Anmerkung. Bemerkenswert ist in diesem Zusammenhang, dass Giuseppe Peano seinen Existenzsatz erstmals 1886 mit fehlerhaftem Beweis [Pea86] veröffentlichte. Den korrekten Beweis [Pea90] lieferte er erst 1890 nach.

Der Satz von Peano sichert uns die lokale Fortsetzbarkeit der Lösung bis an den Rand des *Existenzgebiets* Ω , welches keineswegs optimal gewählt sein muss. Existiert die Lösung auch über den Rand von Ω hinaus, lässt sich der Schnittpunkt mit dem Rand als neuer Anfangswert in einem erweiterten Existenzgebiet auffassen, von dem ausgehend die Lösung weiterentwickelt werden kann. Nicht selten ist \mathbf{f} in der Praxis auf ganz $[t_0, t_e] \times \mathbb{R}^d$ oder zumindest stückweise — also bis auf abzählbar viele Unstetigkeitsstellen — stetig.

2.3.2 Eindeutigkeit

Satz 2.3.2 (Satz von Picard-Lindelöf). *Sei $\Omega \subset [t_0, t_e] \times \mathbb{R}^d$ ein Gebiet mit $(t_0, x_0) \in \Omega$ sowie $\mathbf{f}(t, \mathbf{x})$ eine stetige Funktion auf Ω , dann besitzt das Anfangswertproblem (2.19) genau eine Lösung \mathbf{x} , die sich bis zum Rand von Ω fortsetzen lässt, wenn \mathbf{f} bezüglich der zweiten Komponente Lipschitz-stetig ist, also die Lipschitz-Bedingung*

$$\|\mathbf{f}(t, \mathbf{x}_2) - \mathbf{f}(t, \mathbf{x}_1)\| \leq L \|\mathbf{x}_2 - \mathbf{x}_1\|, \quad L \in (0, \infty) \quad (2.20)$$

mit $\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2 \in \Omega$ erfüllt [CL55].

Der Satz von Picard-Lindelöf garantiert die eindeutige Lösbarkeit von Anfangswertproblemen gewöhnlicher Differentialgleichungen bei (lokal) vorliegender Lipschitz-Stetigkeit der rechten Seite \mathbf{f} in der Komponente \mathbf{x} . Eine Beweisidee, dass die Erfüllung der Lipschitz-Bedingung die Eindeutigkeit impliziert, geht auf die Gronwallsche Ungleichung zurück.

Das Anfangswertproblem (2.19) ist unter Voraussetzung des Satzes 2.3.2 beidseitig integrierbar und liefert mit

$$\begin{aligned} \int_{t_0}^t \dot{\mathbf{x}}(\tau) d\tau &= \int_{t_0}^t \mathbf{f}(\tau, \mathbf{x}(\tau)) d\tau \\ \Leftrightarrow \mathbf{x}(t) - \underbrace{\mathbf{x}(t_0)}_{=\mathbf{x}_0} &= \int_{t_0}^t \mathbf{f}(\tau, \mathbf{x}(\tau)) d\tau \\ \Leftrightarrow \mathbf{x}(t) &= \mathbf{x}_0 + \int_{t_0}^t \mathbf{f}(\tau, \mathbf{x}(\tau)) d\tau \end{aligned} \quad (2.21)$$

die *Volterra-Integralgleichung* des Anfangswertproblems. Diese stellt einen äquivalenten impliziten Zugang zum Anfangswertproblem dar, da der Integrand durch die Abhängigkeit von der Lösung selbst nicht explizit bekannt ist. Die Volterra-Integralgestalt ist allerdings hinsichtlich der Aussagen, die über die Fortsetzbarkeit von Lösungen getroffen werden können, deutlich handhabbarer, da sich diese unmittelbar aus den Eigenschaften des Integrals ableiten lassen. Dies wird im Verlauf des Kapitels zur Sensitivitätsanalyse im Detail aufgegriffen.

2.4 Systeme linearer Differentialgleichungen

Sämtliche in den folgenden Kapiteln vorgestellten Methoden beziehen sich auf (spezielle) Systeme linearer Differentialgleichungen mit *konstanten Koeffizienten*. Da sich lineare Differentialgleichungen zudem stets explizit ausdrücken lassen, sind alle Repräsentanten der für uns relevanten Problemklasse mit der Form

$$\begin{cases} \dot{\mathbf{x}} = \mathbf{f}(t, \mathbf{x}) := \mathcal{A}\mathbf{x} + \mathbf{b}(t) \\ \mathbf{x}(t_0) = \mathbf{x}_0 \end{cases}, \quad \mathbf{x}(t) \in \mathbb{R}^d, \mathcal{A} \in \mathbb{R}^{d \times d}, \mathbf{b}(t) \in \mathbb{R}^d \quad (2.22)$$

verträglich. Dabei bezeichnet \mathcal{A} die Koeffizientenmatrix und \mathbf{b} die Inhomogenität der Differentialgleichung.

Existenz und Eindeutigkeit

Lemma 2.4.1. $\mathbf{f}(t, \mathbf{x}) := \mathcal{A}\mathbf{x} + \mathbf{b}(t)$ erfüllt stets die globale Lipschitz-Bedingung bezüglich \mathbf{x} . Es existiert also für jedes gewöhnliche lineare System eine globale Lipschitz-Konstante L , durch die sich die Steigung von \mathbf{f} zwischen beliebigen Punkten beschränken lässt. Folglich ist jedes dieser Systeme eindeutig lösbar.

Auf einen Beweis des Lemmas wird an dieser Stelle verzichtet. Die Lipschitz-Stetigkeit von \mathbf{f} bezüglich \mathbf{x} lässt sich mit einer geeigneten Matrixnorm sichern.

2.5 Autonome Systeme

Ein Differentialgleichungssystem heißt *autonom*, wenn $\dot{\mathbf{x}} = \mathbf{f}(t, \mathbf{x}) := \mathbf{f}(\mathbf{x})$ gilt — also die Funktion \mathbf{f} nicht explizit von der Zeit t abhängig ist. Eine besondere Eigenschaft dieser Systeme besteht in der *Translationsinvarianz* bezüglich t , auch *Zeitinvarianz* genannt. Sei $\mathbf{x}(t)$ die Lösung eines Anfangswertproblems

$$\begin{cases} \dot{\mathbf{x}} = \mathbf{f}(\mathbf{x}) \\ \mathbf{x}(t_0) = \mathbf{x}_0 \end{cases} \quad (2.23)$$

des autonomen Systems $\mathbf{f}(\cdot)$ auf dem Zeitintervall I , so ist $\mathbf{y}(t) := \mathbf{x}(t + t_0)$ Lösung des Anfangswertproblems

$$\begin{cases} \dot{\mathbf{y}} = \mathbf{f}(\mathbf{y}) \\ \mathbf{y}(0) = \mathbf{x}_0 \end{cases} \quad (2.24)$$

auf dem verschobenen Zeitintervall $I - t_0$.

Beweis.

Aus der obigen Voraussetzung folgt

$$\dot{\mathbf{y}}(t) = \dot{\mathbf{x}}(t + t_0) = \mathbf{f}(\mathbf{x}(t + t_0)) = \mathbf{f}(\mathbf{y}(t)) \quad (2.25)$$

mit der Anfangsbedingung

$$\mathbf{y}(0) = \mathbf{x}(t_0) = \mathbf{x}_0. \quad (2.26)$$

□

Die Lösung des zeitverschobenen Problems entspricht also der zeitverschobenen — jedoch ansonsten identischen — Lösung der Ursprungsproblems, was für explizit vom Zeitparameter t abhängige Systeme $\mathbf{f}(t, \mathbf{x})$ im Allgemeinen nicht gilt. Daher ist es für autonome Systeme in der Regel ohne Einschränkung zulässig, den Anfangswert bei $t_0 = 0$ anzubringen und die Lösung von dort zu entwickeln. Autonome Systeme besitzen kein somit „Gedächtnis“ über die absolute Lebensdauer des Systems, da sie die explizite Zeitinformation nicht algebraisch verwenden. Der unabhängige Zeitparameter tritt lediglich in impliziter Form in der Lösungsfunktion und ihrer Ableitung auf, wodurch die relative Entwicklung der Lösung in Abhängigkeit vom Startzeitpunkt t_0 gesteuert wird.

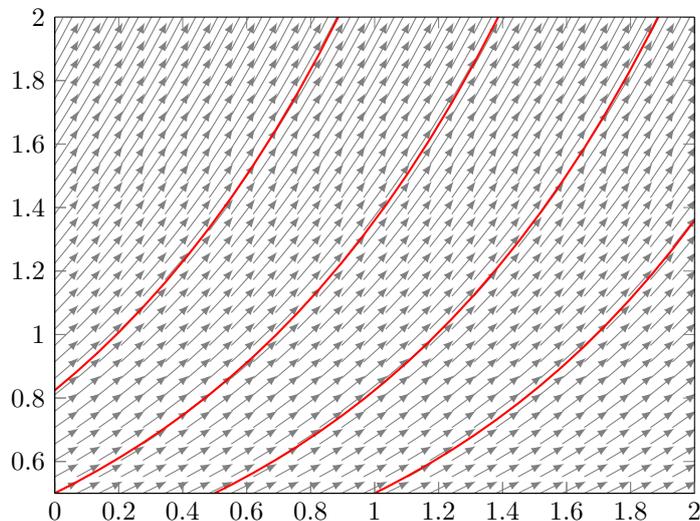


Abbildung 2.5: Zeitverschoben entwickelte Trajektorien eines autonomen Systems zum gleichen Anfangswert

Die Eigenschaft der Zeitinvarianz lässt sich in der vorherigen Abbildung sehr anschaulich anhand der Parallelverschiebung der Trajektorien erkennen, wohingegen dem System in der nun folgenden Abbildung diese Eigenschaft fehlt.

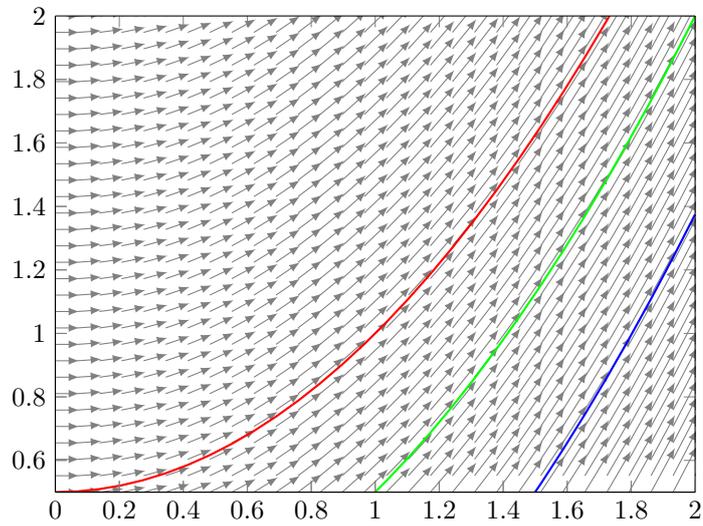


Abbildung 2.6: Zeitverschoben entwickelte Trajektorien eines nicht autonomen Systems zum gleichen Anfangswert

3 Das System der Ratengleichungen

„Wir können nicht beobachten, ohne das zu beobachtende Phänomen zu stören, und die Quanteneffekte, die sich am Beobachtungsmittel auswirken, führen von selbst zu einer Unbestimmtheit in dem zu beobachtenden Phänomen.“

— Werner Heisenberg, *Der Teil und das Ganze*

3.1 Einführung

Eine der zentralen Aufgaben und Herausforderungen der modernen theoretischen Plasmaphysik besteht in der geeigneten Modellierung mikroskopischer Vorgänge in Fusionsplasmen und ihrer makroskopischen Manifestationen. Eine vollständige Plasmasimulation besteht meist aus einer Kopplung von, zum Teil in Wechselwirkung stehenden, Systemmodulen, welche ihrerseits jeweils auf die Modellierung eines physikalischen Aspektes des zu untersuchenden Gesamtsystems spezialisiert sind. Häufig handelt es sich bei den zugrundeliegenden mathematischen Formalismen um Systeme von (partiellen) Differentialgleichungen, die sich in ihrer Komplexität und dem notwendigen Aufwand bei theoretischer wie numerischer Behandlung stark unterscheiden.

Zu den prominenten Modellproblemen der Plasmasimulation und den bei ihrer Behandlung eingesetzten mathematischen Gleichungsfamilien gehören unter anderem:

- Strömungsmechanik und Turbulenzmodelle → *u.a. Navier-Stokes-Gleichung*
- Transportmodelle (Konvektion-Diffusion) → *u.a. Fokker-Planck-Gleichung*
- Reaktionskinetik an idealen Gasen → *u.a. Boltzmannsche Gastheorie*

Nicht immer ist eine globale Betrachtung in Form einer Simulation nötig oder gar sinnvoll, wenn es lediglich von Interesse ist, durch eine A-priori-Analyse Vorhersagen über einen isolierten Teilaspekt zu erhalten. Erlaubt die intrinsische Abhängigkeitsstruktur des physikalischen Systems eine Separation des Teilaspekts vom Gesamtsystem, kann eine isolierte Betrachtung aufgrund des erheblichen numerischen Rechenaufwands einer Simulation vorteilhaft sein.

Plasmodelle sind empfindliche Systeme, deren Zustände durch eine Vielzahl von Modellparametern auf teils sehr kleinen Zeitskalen angesteuert werden. Eine klassische makroskopische Sicht auf die Plasmachemie und ihre Reaktionen kann die realen Abläufe innerhalb eines Plasmas nicht abbilden und zu den damit verbundenen Fragestellungen keine Antworten liefern. Dies ist Gegenstand der vorliegenden Arbeit. Das Gebiet der physikalischen Chemie, das sich mit ebensolchen Problemen — also den zeitlichen Abläufen und örtlichen Entwicklungen von chemischen Reaktionen — befasst, heißt *Reaktionskinetik*.

Es sei nun von Interesse, die zeitliche Entwicklung von Teilchenkonzentrationen in einem Fusionsplasma zu modellieren. Hierzu müssen einige Modellannahmen postuliert werden, die im folgenden Abschnitt im Rahmen eines kurzen Exkurses in die kinetische Gastheorie nach Ludwig Boltzmann herausgearbeitet werden.

3.2 Einführung in die Reaktionskinetik

Kinetische Gastheorie. Annahmen nach Boltzmann:

1. Druck, Temperatur und Volumen sind während der chemischen Reaktion konstant.
2. Das Gas(-gemisch) besteht aus Atomen oder Molekülen, deren eigenes Volumen aufgrund ihrer geringen Größe vernachlässigbar ist.
3. Die Anzahl an Teilchen ist so groß, dass ihr Verhalten statistisch beschreibbar ist.
4. Teilchen bewegen sich gleichförmig und voneinander unabhängig.
5. Teilchenstöße untereinander und mit der Gefäßwand finden konstant pro Zeiteinheit statt und sind ideal-elastisch.
6. Es findet keine gegenseitige Beeinflussung der Teilchen zwischen Stößen statt.
7. Relativistische sowie quantenmechanische Effekte bleiben unberücksichtigt.

Dies konstituiert die (reduzierten) ursprünglichen Annahmen zur Gastheorie [Bol96] (1896) nach der klassischen Physik. Mit der Begründung der Quantenmechanik (1925–1935) wurden zahlreiche Annahmen der klassischen Physik, die entscheidend von den Newtonschen Axiomen vorgeprägt waren, infrage gestellt. Während die makroskopische Physik davon weitgehend unangetastet blieb, lieferte die Quantenmechanik adäquate Erklärungen für Vorgänge und Phänomene auf mikroskopischer Ebene. So flossen die daraus erwachsenen Erkenntnisse auch in die Gastheorie ein und haben zu ihrer Verfeinerung beigetragen.

Die Teilchenstöße in den für uns relevanten Szenarien gehorchen im Standardfall nicht den Gesetzen des elastischen Stoßes. Die Bestimmung der Reaktionsraten (die Erklärung folgt unmittelbar anhand eines konkreten Beispiels) für quantenmechanische Systeme soll jedoch nicht Fokus dieser Arbeit sein. Die Reaktionsraten dienen als Fundament für die nun folgenden Modelle und seien als bekannte Größen vorauszusetzen.

A , B seien zwei Teilchenspezies und $n_A, n_B \in \mathbb{N}_0$ die entsprechenden Teilchenanzahlen der jeweiligen Spezies. Es reagiere nun Spezies A nach dem einfachen Reaktionsschema einer Gleichgewichtsreaktion



mit einem Plasmahintergrund aus Elektronen zu Spezies B und der Prozess sei *reversibel*. Zudem sei anzunehmen, dass Reaktionen konstant pro Zeiteinheit stattfinden. Dann gilt

für den absoluten Zuwachs Δn_A über einen Zeitraum $\Delta t > 0$ der folgende Zusammenhang:

$$\begin{aligned} \Delta n_A &= -k_1 n_A \Delta t + k_2 n_B \Delta t \\ \Leftrightarrow \frac{\Delta n_A}{\Delta t} &= -k_1 n_A + k_2 n_B. \end{aligned} \quad (3.2)$$

Die Proportionalitätsparameter k_1, k_2 , welche die Teilchenübergänge pro Zeiteinheit, respektive die Reaktionsgeschwindigkeiten, maßgeblich steuern, heißen *Reaktionsraten* und die zugehörige Gleichung *Ratengleichung*. Aufgrund der großen Teilchenanzahl (übliche Teilchendichten in realistischen Szenarien bewegen sich in den Größenordnungen von 10^{16} bis 10^{20} Teilchen/m³) ist es zulässig, einen Übergang von einer diskreten zu einer stetigen Teilchenanzahl vorzunehmen. Seien n_A und n_B zusätzlich über t differenzierbar, so existiert ein Grenzübergang für $\Delta t \rightarrow 0$ mit

$$\lim_{\Delta t \rightarrow 0} \frac{\Delta n_A}{\Delta t} = \frac{d}{dt} n_A(t) = -k_1 n_A(t) + k_2 n_B(t). \quad (3.3)$$

Da Spezies B aus A — und umgekehrt A aus B — hervorgeht, gilt unmittelbar

$$\frac{d}{dt} n_B(t) = k_1 n_A(t) - k_2 n_B(t). \quad (3.4)$$

Anmerkung. Die Elektronen dienen in dem einfachen Beispiel lediglich als Pseudo-Reaktanden (Hintergrundspezies) und seien in unerschöpflicher Anzahl vorhanden. Folglich haben sie keinerlei direkten Einfluss auf den zeitlichen Ablauf der Reaktion und müssen daher in den Ratengleichungen nicht explizit berücksichtigt werden. Ihren impliziten Einfluss wirken sie bereits auf die Reaktionsraten der Spezies A und B aus.

Die Lösungsfunktionen $n_A(t)$ und $n_B(t)$ sind offensichtlich linear miteinander gekoppelt und lassen sich mit

$$\dot{\mathbf{x}} = \begin{pmatrix} \dot{n}_A(t) \\ \dot{n}_B(t) \end{pmatrix} = \underbrace{\begin{pmatrix} -k_1 & k_2 \\ k_1 & -k_2 \end{pmatrix}}_{=: \mathbf{A}} \underbrace{\begin{pmatrix} n_A(t) \\ n_B(t) \end{pmatrix}}_{=: \mathbf{x}} =: \mathbf{f}(t, \mathbf{x}) \quad (3.5)$$

zu einem System zweier Ratengleichungen im Sinne eines Systems gewöhnlicher linearer Differentialgleichungen zusammenfassen. Die Reaktionsraten beinhalten intrinsische Information über die Systemeigenschaften; so sind sie zum Beispiel implizit abhängig von Temperatur und Teilchendichte der Hintergrundspezies (hier: Elektronen). Die physikalischen Mechanismen, die für die Reaktionsgeschwindigkeiten zweier Reaktionspartner verantwortlich sind, werden als konstant angenommen und stammen aus empirischen Quellen oder theoretischer Bestimmung (Gastheorie). Aus diesem Grund werden von verschiedenen Organisationen — auch vom IEK-4 selbst — Datenbanken gepflegt, die Reaktionsraten für Elementarreaktionen zu vorgegebenen Rahmenbedingungen bereitstellen.

Ist eine Startkonzentration

$$\dot{\mathbf{x}}(t_0) = \begin{pmatrix} n_A(t_0) \\ n_B(t_0) \end{pmatrix} =: \mathbf{x}_0 \quad (3.6)$$

bekannt, lässt sich das System (3.5) eindeutig lösen. Für $t \rightarrow \infty$ konvergiert der Zustandsvektor $\mathbf{x}(t)$ eines geschlossenen Systems abhängig von den Reaktionsraten mit $k_1, k_2 \in \mathbb{R}^{\geq 0}$ gegen einen stationären Zustand. Lassen wir $k_1, k_2 \in \mathbb{C}$ zu, sind auch oszillatorische Effekte möglich. Welche Fallunterscheidungen im Einzelnen für das Langzeitverhalten existieren und welche Konsequenzen dies für die Anforderungen an unser Modell hat, wird im Zuge der Betrachtung von Stabilität und Langzeitverhalten detailliert beleuchtet.

3.3 Modellbildung

Wir haben zuvor anhand einer exemplarischen Gleichgewichtsreaktion erster Ordnung (3.1) die Konstruktion eines einfachen Systems von Ratengleichungen (3.5) skizziert. Die Abstraktion des Modellproblems sowie das allgemeine Vorgehensprinzip bei der Modellierung, das auf den Reaktionsraten von Elementarreaktionen aufbaut, lassen sich allerdings auch auf die komplexeren Reaktionen der Plasmachemie übertragen.

Eine Modellannahme besteht darin, dass chemische Reaktionen innerhalb eines (ionisierten) Gases durch Teilchenkollisionen initiiert werden. Eine Reaktion wird demnach dann ausgelöst, wenn die Stoßenergie bei der Kollision zweier Reaktionspartner eine gewisse — für die Reaktion erforderliche — Schwellenergie¹ überschreitet (Stoßtheorie nach M. Trautz und W. Lewis [MW97], [IUPAC]). Daraus lässt sich mit dem *Stoßquerschnitt* bzw. der *Cross-Section* [IUPAC] eine abstrakte in Flächeneinheiten gemessene Größe ableiten, die als Maß für die Wahrscheinlichkeit dient, dass eine Teilchenkollision ein chemisches Reaktionsereignis zwischen den beteiligten Stoßpartnern auslöst.

Die Stoßquerschnitte $\sigma(E)$ sind von der Energie der Stoßpartner und damit die Raten von der Plasmatemperatur abhängig. Ihre Bestimmung erfolgt experimentell oder theoretisch. Die diskreten Datenpunkte werden im Anschluss mittels Regression durch eine stetig auswertbare Funktion approximiert, deren numerische Integration schließlich zu den, für unser Modell benötigten, *Ratenkoeffizienten* $\langle \sigma v \rangle(T)$ führt, die über

$$k = n_{\text{back}} \langle \sigma v \rangle(T) \quad (3.7)$$

mit n_{back} : Dichte des Plasmahintergrunds in $\# \text{Teilchen/Volumeneinheit}$, mit den Reaktionsraten in Zusammenhang stehen.

Definition 3.3.1 (Plasmachemische Reaktionsratengleichung). Es sei

$$\mathbf{y}(t) := \begin{pmatrix} n_{S_1}(t) \\ n_{S_2}(t) \\ \vdots \\ n_{S_n}(t) \end{pmatrix} \quad (3.8)$$

ein endlichdimensionaler zeitstetiger Zustandsvektor $\mathbf{y} : [t_0, t_e] \rightarrow \mathbb{R}^n$, welcher in seinen skalaren Komponentenfunktionen n_{S_i} für $i \in \{1, \dots, n\}$ jeweils die zeitliche Entwicklung

¹Dabei werden auch spontane Reaktionen berücksichtigt, deren Schwellenergie bei null liegt.

der Konzentration der Teilchenspezies S_i in $\#Teilchen/Volumeneinheit$ abbildet. Ferner seien

$$\mathbf{b}_{\text{influx}} := \begin{pmatrix} \Gamma_{S_1} \\ \Gamma_{S_2} \\ \vdots \\ \Gamma_{S_n} \end{pmatrix}, \quad \mathbf{y}_{\text{loss}} := \begin{pmatrix} C_{S_1}/\tau_{S_1} \\ C_{S_2}/\tau_{S_2} \\ \vdots \\ C_{S_n}/\tau_{S_n} \end{pmatrix}, \quad \mathbf{b}_{\text{influx}}, \mathbf{y}_{\text{loss}} \in \mathbb{R}^n \quad (3.9)$$

mit

- Γ_{S_i} : Quellstärke für Spezies S_i in $(\#Teilchen/Volumeneinheit)s^{-1}$
- C_{S_i}/τ_{S_i} : Verlustrate für Spezies S_i in $(\#Teilchen/Volumeneinheit)s^{-1}$

konstante externe reelle Flüsse. Der Influx beschreibt eine externe Anregung des Systems und ist damit inhomogen. Die Matrix der Reaktionsraten ist ausschließlich außerhalb ihrer Hauptdiagonalen besetzt und besitzt die Gestalt

$$\tilde{\mathcal{A}} := \begin{pmatrix} 0 & \tilde{a}_{12} & \tilde{a}_{13} & \dots & \tilde{a}_{1n} \\ \tilde{a}_{21} & 0 & \tilde{a}_{23} & \dots & \tilde{a}_{2n} \\ \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\ \vdots & & \ddots & 0 & \tilde{a}_{(n-1)n} \\ \tilde{a}_{n1} & \dots & \dots & \tilde{a}_{n(n-1)} & 0 \end{pmatrix}, \quad \tilde{\mathcal{A}} \in \mathbb{R}^{n \times n} \quad (3.10)$$

mit

$$\tilde{a}_{ij} := \sum_{k \in P_{ij}} \nu_k \langle \sigma v \rangle_k n_{\text{back}}, \quad \forall i, j \in \{1, \dots, n\}$$

P_{ij} : Menge aller Elementarprozesse, die an einem Übergang zwischen S_i und S_j beteiligt sind,
 ν_k : Stöchiometrischer Koeffizient,
 n_{back} : Dichte des Plasmahintergrunds

(3.11)

und \tilde{a}_{ij} : Reaktionsrate zwischen Spezies S_i und S_j in s^{-1} . Gemeinsam mit der Diagonalmatrix der Kollisionsverluste

$$\mathcal{D} := \begin{pmatrix} d_{11} & 0 & 0 & \dots & 0 \\ 0 & d_{22} & 0 & \dots & 0 \\ \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\ \vdots & & \ddots & \ddots & 0 \\ 0 & \dots & \dots & 0 & d_{nn} \end{pmatrix}, \quad \mathcal{D} \in \mathbb{R}^{n \times n} \quad (3.12)$$

mit

$$d_{ii} := \sum_{k=1}^i a_{ki}, \quad \forall i \in \{1, \dots, n\} \quad (3.13)$$

und d_{ii} : Kollisionsverlustrate für Spezies S_i , sowie der Diagonalmatrix für externe Verlustkanäle

$$\mathcal{D}_{\text{loss}} := \text{diag}(\mathbf{y}_{\text{loss}}) = \begin{pmatrix} C_{S_1}/\tau_{S_1} & & & \\ & C_{S_2}/\tau_{S_2} & & \\ & & \ddots & \\ & & & C_{S_n}/\tau_{S_n} \end{pmatrix} \quad (3.14)$$

ergibt sich schließlich das *System der Ratengleichungen*

$$\begin{cases} \dot{\mathbf{y}} = \underbrace{(\tilde{\mathcal{A}} - \mathcal{D} - \mathcal{D}_{\text{loss}})}_{\text{lin. Modelloperator}} \mathbf{y} + \underbrace{\mathbf{b}_{\text{influx}}}_{\text{Anregung}} =: \mathcal{A}\mathbf{y} + \mathbf{b} =: \mathbf{f}(t, \mathbf{x}) \\ \mathbf{y}(0) = \mathbf{y}_0 \end{cases}, \quad (3.15)$$

welches uns als plasmachemisches Modell dienen wird.

Das Modell beschreibt über seinen linearen Operator plasmachemische Vorgänge, bei denen linear gekoppelte lokale Wechselwirkungen zwischen Spezies stattfinden. Über die Inhomogenität (Systemanregung) und den Vektor für externe Verlustkanäle \mathbf{y}_{loss} lassen sich sowohl offene als auch geschlossene Systeme modellieren:

1. Offen für $\mathbf{b}_{\text{influx}} \neq \mathbf{0} \vee \mathbf{y}_{\text{loss}} \neq \mathbf{0}$
2. Geschlossen für $\mathbf{b}_{\text{influx}} = \mathbf{0} \wedge \mathbf{y}_{\text{loss}} = \mathbf{0}$

Ziel der folgenden Kapitel wird die Aggregation von mathematischen Aussagen über Systemeigenschaften wie Stabilität und Langzeitverhalten sowie die Bestimmung von Parametersensitivitäten sein. Doch bevor wir uns diesen Punkten zuwenden, sollten wir unseren Fokus zunächst auf die Lösung von Anfangswertproblemen des Systems (3.15) legen.

3.4 Analytische Lösung

3.4.1 Motivation

*„In the study of **chemical kinetics**, electrical circuit theory, and problems of missile guidance a type of differential equation arises which is exceedingly difficult to solve by ordinary numerical procedures. A very satisfactory method of solution of these equations is obtained by making use of a forward interpolation process. [...] The differential equations to which this method applies are called „**stiff**“.*

*A typical example of a stiff equation is the equation representing the rate of formation of free radicals in a complex chemical reaction. The free radicals are created and destroyed **so rapidly compared to the time scale for the over-all reaction** that to a first approximation the rate of production is equal to the rate of depletion. This is the notion of the pseudo-stationary state. In some cases such as the fast reactions occurring in flames or detonations, this approximation is not sufficiently accurate.“*

— C. F. Curtiss and J. O. Hirschfelder, 1952 [CH52]

Die Publikation von Curtiss und Hirschfelder zur numerischen Integration einer speziellen Problemklasse von Anfangswertproblemen, aus der das obige Zitat stammt, hat den Begriff des *steifen Anfangswertproblems* entscheidend geprägt. Dabei handelt es sich keineswegs um ein hartes mathematisches Kriterium, nach dem sich Anfangswertprobleme formal eindeutig klassifizieren lassen. Curtiss und Hirschfelder definierten ein steifes Anfangswertproblem als eines, das mit den klassischen expliziten numerischen Lösungsverfahren ihrer Zeit (1952) schwer handhabbar ist, sich allerdings mit impliziten Verfahren gut behandeln lässt. Die schwere numerische Handhabbarkeit ist auf die ungünstigen numerischen Stabilitätseigenschaften expliziter Löser zurückzuführen, die bei steifen Anfangswertproblemen zum Tragen kommen. Dies äußert sich vor allem darin, dass die Schrittweite der Diskretisierung extrem klein gewählt werden muss, um unerwünschtes Verhalten wie gestörte Konvergenz oder Oszillation zu vermeiden, obwohl die Trajektorie in der Umgebung beinahe keine Steigung aufweist.

Die Ursache für die Steifheit eines Anfangswertproblems liegt häufig in den signifikant unterschiedlichen Zeitskalen begründet, auf denen sich die einzelnen Komponenten des Systems entwickeln. Bei der Modellierung komplexerer (Natur-)Vorgänge tritt eine Koexistenz von sich relativ langsam entwickelnden Termen und solcher, die zu einer starken lokalen Änderung der Lösung führen können, sehr häufig auf. Beispiele hierfür finden sich in vielfältiger Weise bei den Problemen der

Strömungsmechanik: erratisches Verhalten auf sehr kleinem Raum bei Turbulenzen ↔ ein nahezu unbewegtes Medium auf großem Raum

Wärmeleitung: schnelle Diffusion im lokalen Gebiet um die Wärmequelle ↔ nahezu unveränderte Temperatur in einem hinreichend großen Abstand zur Wärmequelle

Reaktionskinetik:

räumlich inhomogen: große Lokalitätsunterschiede bei chemischen Reaktionen durch vereinzelte Reaktionscluster bei einem ansonsten weitgehend inerten Reaktionsmedium

zeitlich instationär: Überlagerung relativ kurz und lang andauernder chemischer Reaktionsprozesse

Die Anfangswertprobleme von Ratengleichungen wie (3.15) sind im Allgemeinen ebenfalls steif. Aufschluss darüber, wie sich diese Eigenschaft im Entwicklungsverhalten der Trajektorien niederschlägt, liefert die folgende Abbildung.

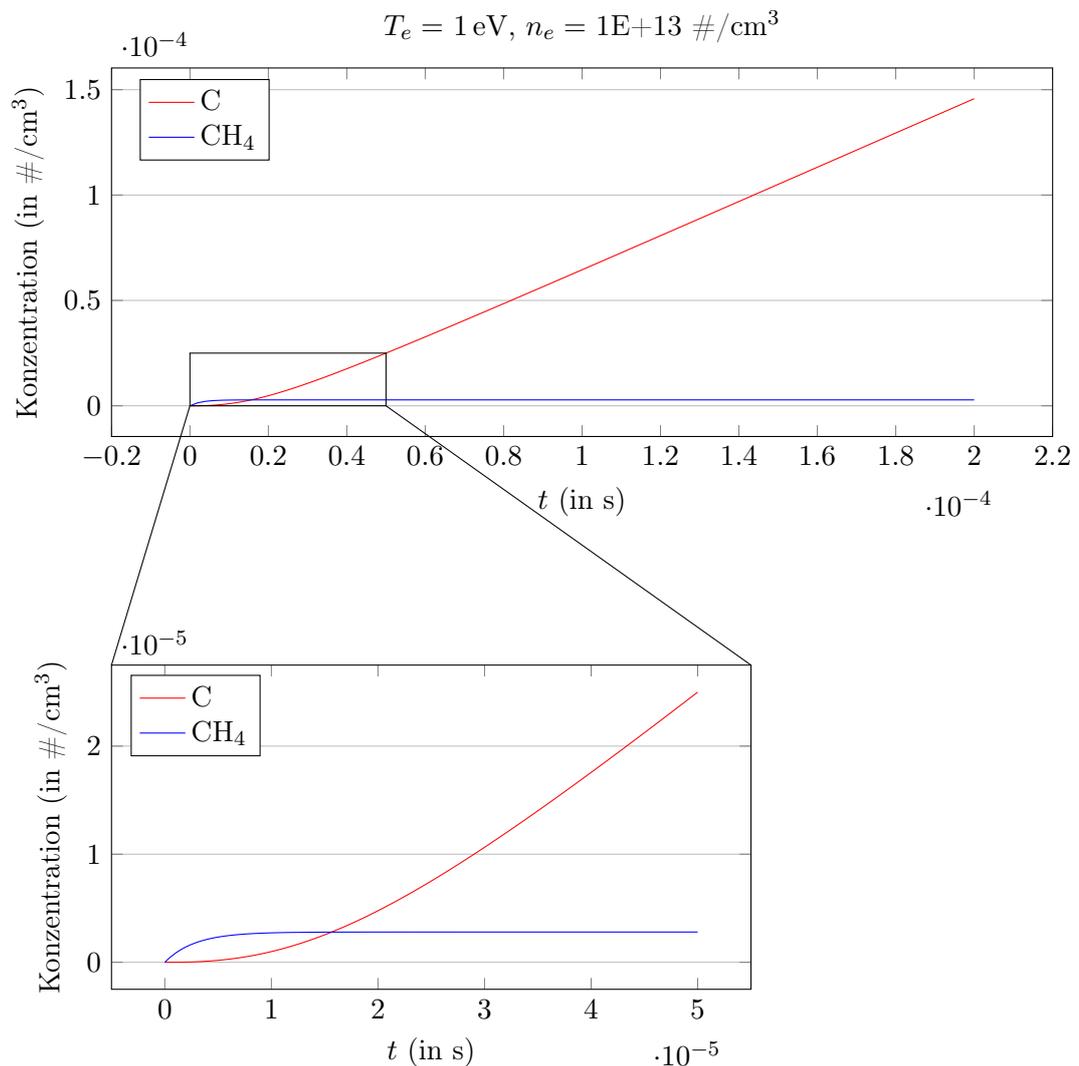


Abbildung 3.1: Exemplarische Konzentrationsentwicklung der Lösungskomponenten von C und CH₄ mit stark ausgeprägter Disparität in den Zeitskalen

Die Konzentration von CH_4 erreicht bereits bei $t = 10^{-5}$ einen hinreichend stationären Zustand und besitzt anschließend nahezu keine Steigung mehr. Die Konzentration von C hingegen entwickelt sich signifikant langsamer und erreicht ihren hinreichend stationären Zustand erst mehrere Größenordnungen später bei $t = 2 \cdot 10^{-1}$. Ähnliches Verhalten ist typisch für steife Anfangswertprobleme und stellt besondere Anforderungen an das verwendete Lösungsverfahren.

Quantitative Aussagen über den Grad der Steifheit sind aufgrund der intuitiven Definition nach Curtiss und Hirschfelder schwierig und müssen in der Regel abhängig vom konkret betrachteten Problem getroffen werden. Wir werden im weiteren Verlauf allerdings mit dem *Steifheitsquotienten* ein heuristisches Maß für die Steifheit von (3.15) herausarbeiten.

Da Steifheit keinen Einfluss auf die Qualität analytischer Lösungen — sofern sie existieren — haben kann und wir nach 2.3 und 2.4 festgestellt haben, dass Anfangswertprobleme gewöhnlicher linearer Systeme lösungstheoretisch kaum Einschränkungen verlangen, wird es nun Ziel sein, ein allgemeines Anfangswertproblem von (3.15) analytisch zu lösen.

3.4.2 Fundamentalsystem

Bei der Wahl einer geeigneten Lösungsmethode für Systeme inhomogener linearer Differentialgleichungen wird sich eine Verallgemeinerung der Lösungskonzepte eines skalaren inhomogenen linearen Anfangswertproblems der Bauart

$$\begin{cases} \dot{x} = a(t)x + b(t) \\ x(t_0) = x_0 \end{cases} \quad (3.16)$$

als sehr hilfreich erweisen. Die homogene Lösung ergibt sich mittels Trennung der Variablen mit

$$\begin{aligned} \frac{\dot{x}}{x} &= a(t) \\ \Leftrightarrow \int_{t_0}^t \frac{\dot{x}(\tau)}{x(\tau)} d\tau &= \int_{t_0}^t a(\tau) d\tau \\ \Leftrightarrow [\ln(x(\tau))]_{t_0}^t &= \int_{t_0}^t a(\tau) d\tau \\ \Leftrightarrow \ln(x(t)) - \ln(x(t_0)) &= \int_{t_0}^t a(\tau) d\tau \\ \Leftrightarrow \ln\left(\frac{x(t)}{x(t_0)}\right) &= \int_{t_0}^t a(\tau) d\tau \\ \Leftrightarrow x(t) &= \underbrace{e^{\int_{t_0}^t a(\tau) d\tau}}_{=: \Psi(t, t_0)} x_0. \end{aligned} \quad (3.17)$$

$\Psi(t, t_0)$ heißt *Fundamentalsystem* von (3.16).

Für das inhomogene Problem wählen wir

$$x(t) = \Psi(t, t_0)c(t), \quad c(t_0) = x_0 \quad (3.18)$$

als Ansatz zur Variation der Konstanten. Aus der Differenzierung von (3.18) ergibt sich unmittelbar

$$\begin{aligned} \dot{x}(t) &= a(t)\Psi(t, t_0)c(t) + \Psi(t, t_0)\dot{c}(t) \\ &= a(t)x(t) + \Psi(t, t_0)\dot{c}(t). \end{aligned} \quad (3.19)$$

Der Ansatz (3.18) löst folglich genau dann die inhomogene Differentialgleichung (3.16), wenn gilt

$$\begin{aligned} \Psi(t, t_0)\dot{c}(t) &\stackrel{!}{=} b(t) \\ \Leftrightarrow \dot{c}(t) &= e^{-\int_{t_0}^t a(s) ds} b(t) \\ \Leftrightarrow c(t) &= \int_{t_0}^t \frac{b(\tau)}{\exp\left(\int_{t_0}^{\tau} a(s) ds\right)} d\tau + \underbrace{c(t_0)}_{=x_0}. \end{aligned} \quad (3.20)$$

Einsetzen in (3.18) liefert abschließend die allgemeine Lösung

$$\begin{aligned} x(t) &= \Psi(t, t_0)x_0 + \underbrace{\Psi(t, t_0) \int_{t_0}^t \frac{b(\tau)}{\exp\left(\int_{t_0}^{\tau} a(s) ds\right)} d\tau}_{\text{Anregung}} \\ &= \Psi(t, t_0)x_0 + \int_{t_0}^t \frac{\exp\left(\int_{t_0}^t a(s) ds\right)}{\exp\left(\int_{t_0}^{\tau} a(s) ds\right)} b(\tau) d\tau \\ &= \Psi(t, t_0)x_0 + \int_{t_0}^t \exp\left(\int_{t_0}^t a(s) ds - \int_{t_0}^{\tau} a(s) ds\right) b(\tau) d\tau \\ &= \Psi(t, t_0)x_0 + \int_{t_0}^t e^{\int_{\tau}^t a(s) ds} b(\tau) d\tau \\ &\stackrel{\text{def}}{=} \Psi(t, t_0)x_0 + \int_{t_0}^t \Psi(\tau, t) b(\tau) d\tau. \end{aligned} \quad (3.21)$$

Die allgemeine Lösung für das skalare Problem lässt sich auf vektorwertige Anfangswertprobleme der Gestalt

$$\begin{cases} \dot{\mathbf{x}} = \mathcal{A}(t)\mathbf{x} + \mathbf{b}(t) \\ \mathbf{x}(t_0) = \mathbf{x}_0 \end{cases}, \quad \mathbf{x}(t) \in \mathbb{R}^n, \mathcal{A}(t) \in \mathbb{R}^{n \times n}, \mathbf{b}(t) \in \mathbb{R}^n \quad (3.22)$$

übertragen, wobei das Fundamentalsystem die Gestalt einer matrixwertigen Funktion $\Psi : \mathbb{R} \times \mathbb{R} \rightarrow \mathbb{R}^{n \times n}$ mit

$$\Psi(t, t_0) := e^{\int_{t_0}^t \mathcal{A}(\tau) d\tau}, \quad (3.23)$$

annimmt, die auch *Fundamentalmatrix* genannt wird. Die Funktion $e^{\mathcal{X}} : \mathbb{R}^{n \times n} \rightarrow \mathbb{R}^{n \times n}$ bezeichne dabei das *Matrixexponential*

$$e^{\mathcal{X}} := \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!} \mathcal{X}^n. \quad (3.24)$$

als matrixwertiges Analogon zur skalaren Exponentialfunktion. Um zu zeigen, dass das Matrixexponential wohldefiniert ist, muss die Konvergenz der Reihe für alle $\mathcal{X} \in \mathbb{R}^{n \times n}$ bewiesen werden.

Beweis.

Jede absolut konvergente Reihe ist auch konvergent. Es gilt nun zu zeigen, dass

$$\sum_{n=0}^{\infty} \left\| \frac{1}{n!} \mathcal{X}^n \right\| \quad (3.25)$$

für alle $\mathcal{X} \in \mathbb{R}^{n \times n}$ mit $n \in \mathbb{N}$ konvergiert. Das Matrixexponential agiert als Funktion auf einem endlichdimensionalen Vektorraum.

Lemma 3.4.1. *Auf endlichdimensionalen Vektorräumen sind alle Normen zueinander äquivalent [Heu04].*

Submultiplikative Matrixnormen erfüllen zusätzlich zu den Normeigenschaften die Ungleichung

$$\|AB\| \leq \|A\| \|B\|, \quad \forall A, B \in \mathbb{R}^{n \times n}. \quad (3.26)$$

Sei $\|\cdot\|$ nun eine solche submultiplikative Matrixnorm (beispielsweise die Operatornorm), so gelingt durch

$$(a_n)_{n \in \mathbb{N}} := \left\| \frac{1}{n!} \mathcal{X}^n \right\| \leq \frac{1}{n!} \|\mathcal{X}\|^n \quad (3.27)$$

eine Majorisierung der Folge (a_n) für alle $n \geq 0$. Die Reihe

$$\sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!} \|\mathcal{X}\|^n = e^{\|\mathcal{X}\|} \quad (3.28)$$

konvergiert offensichtlich, da die skalare Exponentialfunktion e^x für alle $x \in \mathbb{R}$ konvergiert. Das Matrixexponential 3.24 ist folglich wohldefiniert, da die Reihe nach dem Majorantenkriterium stets absolut konvergiert. \square

3.4.3 Lösungsraum und partikuläre Lösung

Wir übertragen nun unsere Erkenntnisse über die Gestalt der allgemeinen Lösung von (3.22) auf das System der Ratengleichungen (3.15) mit

$$\begin{cases} \dot{\mathbf{y}} = \mathcal{A}\mathbf{y} + \mathbf{b} \\ \mathbf{y}(0) = \mathbf{y}_0 \end{cases} . \quad (3.29)$$

Da es sich bei \mathcal{A} um eine Matrix mit konstanten Koeffizienten handelt, gilt

$$\int_{t_0}^t \mathcal{A} d\tau = (t - t_0)\mathcal{A} \stackrel{t_0=0}{=} t\mathcal{A}. \quad (3.30)$$

Wir stellen unmittelbar fest, dass $\mathbf{y}(t) = \Psi(t)\mathbf{v} = e^{t\mathcal{A}}\mathbf{v}$ Lösungen des homogenen Problems für alle $\mathbf{v} \in \mathbb{R}^n$ mit $\mathbf{y}_0 = \mathbf{v}$ liefert.

Beweis.

$$\begin{aligned} \dot{\mathbf{y}}(t) &= \frac{d}{dt} \left[\sum_{n=0}^{\infty} \left(\frac{1}{n!} t^n \mathcal{A}^n \right) \mathbf{v} \right] \\ &= \sum_{n=1}^{\infty} \frac{n}{n!} t^{n-1} \mathcal{A}^n \mathbf{v} \\ &= \mathcal{A} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{(n-1)!} t^{n-1} \mathcal{A}^{n-1} \mathbf{v} \\ &= \mathcal{A} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!} t^n \mathcal{A}^n \mathbf{v} \\ &= \mathcal{A} e^{t\mathcal{A}} \mathbf{v} = \mathcal{A} \mathbf{y}(t) \end{aligned} \quad (3.31)$$

□

Nun kann die numerische Auswertung des Matrixexponentials mit $e^{t\mathcal{A}}$ im allgemeinen Fall aufgrund der Summation von Matrixpotenzen enorm aufwendig sein und auch analytisch ist der Ausdruck — ohne spezielle verwertbare Kenntnisse über die Struktur der Matrix \mathcal{A} — nur schwer handhabbar. Das auf diese Weise gefundene Fundamentalsystem ist zwar wohldefiniert, allerdings zur praktischen Lösung für beliebige \mathbf{v} eher ungeeignet. Wir werden später feststellen, dass es sich bei der Ableitung von Stabilitätseigenschaften noch als nützlich erweisen wird.

Schränken wir die zulässigen Vektoren $\mathbf{v} \in \mathbb{R}^n$ auf solche ein, die zusätzlich der charakteristischen Gleichung

$$\mathcal{A}\mathbf{v} = \lambda\mathbf{v} \quad (3.32)$$

genügen, also Eigenvektoren der Matrix \mathcal{A} sind, ergibt sich

$$\mathbf{y}(t) = e^{t\mathcal{A}}\mathbf{v} = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!} t^n \mathcal{A}^n \mathbf{v} = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!} t^n \lambda^n \mathbf{v} = e^{t\lambda} \mathbf{v}, \quad (3.33)$$

welches deutlich handhabbarer ist. Der Preis für die bessere Handhabbarkeit ist eine zusätzliche Anforderung an die Matrix \mathcal{A} . Diese muss für die Konstruktion eines *regulären* Fundamentalsystems nach dem Schema (3.33) über n linear unabhängige Eigenvektoren verfügen. Dies ist notwendiges wie hinreichendes Kriterium für die *Diagonalisierbarkeit* der Matrix.

Definition 3.4.2. Die Ratenmatrix \mathcal{A} sei per Konstruktion diagonalisierbar. Es existiere also eine Diagonalmatrix \mathcal{D} , sodass die Ähnlichkeitsbedingung

$$\mathcal{D} = \mathcal{M}^{-1} \mathcal{A} \mathcal{M} \quad (3.34)$$

erfüllt wird.

Anmerkung. Die Voraussetzung der Diagonalisierbarkeit ist keineswegs selbstverständlich und lässt sich mathematisch-immanent nicht sichern. Die Annahme der Eigenschaft erfolgt dennoch induktiv auf Basis der physikalischen Vorbetrachtung. Da die Eigenwerte der Matrix die Relaxationsgeschwindigkeit² steuern und die Wahrscheinlichkeit verschwindend gering ist, bei mehreren plasmaphysikalischen Prozessen exakt identisches Abklingverhalten vorzufinden, seien nach dieser Annahme alle Eigenwerte $\lambda < 0$ paarweise verschieden und die korrespondierenden Eigenvektoren folglich linear unabhängig.

Es ist allerdings das Bewusstsein wichtig, dass sich durchaus Systeme konstruieren lassen, die das Kriterium für die Diagonalisierbarkeit nicht erfüllen. Dann muss die Bildung des Fundamentalsystems über die *Hauptvektoren* [KS09] erfolgen (siehe *Jordansche Normalform*).

Korollar 3.4.3. *Ist die Matrix \mathcal{A} diagonalisierbar, so existiert mit*

$$\mathcal{M} := \{E(\lambda_1), \dots, E(\lambda_n)\} \quad (3.35)$$

eine Basis aus Eigenvektoren in Gestalt einer spaltenweise mit Eigenvektoren besetzten Matrix. Folglich liefert Ansatz (3.33) n linear unabhängige Lösungen der Gestalt

$$\mathbf{y}_i(t) = \mathbf{e}_i e^{\lambda_i t} \quad \text{für alle Eigenvektoren } \mathbf{e}_1, \dots, \mathbf{e}_n \quad (3.36)$$

und somit ein reguläres Fundamentalsystem

$$\mathcal{L} = \left\{ \mathbf{y} \mid \mathbf{y} = \sum_{i=1}^n d_i \mathbf{e}_i e^{\lambda_i t}, d_1, \dots, d_n \in \mathbb{R} \right\}. \quad (3.37)$$

²Dass es sich um Abklingvorgänge handelt, lässt sich anhand der nichtpositiven Eigenwerte ableiten, für die der Verstärkungsterm $e^{\lambda t}$ für hinreichend großes t die Lösung dämpft.

Zur Lösung des Eigenwertproblems ist eine genauere Betrachtung der Gestalt von \mathcal{A} hilfreich. Eine Trigonalgestalt der Form

$$\mathcal{A} = \begin{pmatrix} a_{11} & a_{12} & \cdots & a_{1m} & \cdots & \cdots & a_{1n} \\ & a_{22} & \cdots & a_{2m} & \cdots & \cdots & a_{2n} \\ & & \ddots & \vdots & \ddots & \ddots & \vdots \\ & & & a_{mm} & \cdots & \cdots & a_{mn} \\ & & & & 0 & \ddots & \vdots \\ & & & & & \ddots & a_{(n-1)n} \\ & & & & & & 0 \end{pmatrix} \quad (3.38)$$

ist nicht selten und tritt genau dann auf, wenn aus den Reaktionsprodukten nicht erneut die ursprünglichen Reaktanden hervorgehen. Liegt die Matrix in dieser Gestalt vor, gilt unmittelbar

$$\lambda_i = a_{ii} \quad \forall i \in \{1, \dots, n\}. \quad (3.39)$$

Ist die Matrix voller besetzt, bietet sich die numerische Eigenwertbestimmung an. Die korrespondierenden Eigenvektoren erhalten wir durch Lösen linearer Gleichungssysteme. Dies ist insbesondere für eine Matrix in Trigonalgestalt trivial.

Der Eigenwert $\lambda = 0$ ist der einzige, der mit algebraischer Vielfachheit echt-größer 1 auftreten kann. Die zugehörigen Eigenvektoren repräsentieren Spezies, oder Gruppen von Spezies, für die kein homogener Verlustmechanismus³ existiert und müssen in der partikulären Lösung gesondert berücksichtigt werden. Der zugehörige Eigenraum $E(\lambda = 0)$ sei nach Voraussetzung der Diagonalisierbarkeit vollständig.

Aufgrund der konstanten Inhomogenität von (3.15) und dem Ansatz, dass die Komponenten zum Eigenwert $\lambda = 0$ linear in der Zeit skalieren, erfolgt der partikuläre Ansatz

$$\mathbf{y}^p(t) = \sum_{i=1}^m c_i \mathbf{e}_i + \sum_{i=m+1}^n \tilde{c}_i t \mathbf{e}_i, \quad \mathbf{c} := \begin{pmatrix} c_1 \\ \vdots \\ c_m \\ \tilde{c}_{m+1} \\ \vdots \\ \tilde{c}_n \end{pmatrix} \in \mathbb{R}^n \quad (3.40)$$

mit

$$\lambda_1, \lambda_2, \dots, \lambda_m \neq 0 \text{ und } \lambda_{m+1} = \lambda_{m+2} = \dots = \lambda_n = 0. \quad (3.41)$$

Der Koeffizientenvektor \mathbf{c} lässt sich durch Einsetzen in die Differentialgleichung mit

$$\sum_{i=m+1}^n \tilde{c}_i \mathbf{e}_i = \sum_{i=1}^m c_i \lambda_i \mathbf{e}_i + \mathbf{b} \quad (3.42)$$

³Inhomogene Verlustmechanismen können in einem offenen System dennoch vorliegen, bilden jedoch keinen Kollisionsverlust ab.

also

$$\mathcal{M} \underbrace{\begin{pmatrix} -c_1 \lambda_1 \\ \vdots \\ -c_m \lambda_m \\ \tilde{c}_{m+1} \\ \vdots \\ \tilde{c}_n \end{pmatrix}}_{=: \mathbf{x}} = \mathbf{b}, \quad \mathbf{x} = \begin{pmatrix} x_1 \\ \vdots \\ x_m \\ x_{m+1} \\ \vdots \\ x_n \end{pmatrix} := \begin{pmatrix} -c_1 \lambda_1 \\ \vdots \\ -c_m \lambda_m \\ \tilde{c}_{m+1} \\ \vdots \\ \tilde{c}_n \end{pmatrix} \quad (3.43)$$

und schließlich

$$\mathbf{c} = \begin{pmatrix} -x_1/\lambda_1 \\ \vdots \\ -x_m/\lambda_m \\ x_{m+1} \\ \vdots \\ x_n \end{pmatrix} \quad (3.44)$$

an der konstanten Inhomogenität \mathbf{b} fixieren. Die homogene Lösung genügt der Gestalt von (3.37), deren Koeffizienten $\mathbf{d} := (d_1, \dots, d_n)^\top$ anschließend anhand der Anfangsbedingung $\mathbf{y}(t=0) = \mathbf{y}_0$ des Anfangswertproblems (3.29) mit

$$\begin{aligned} \mathbf{y}(t=0) &= \mathbf{y}^p(t=0) + \mathbf{y}^h(t=0) \stackrel{!}{=} \mathbf{y}_0 \\ \Leftrightarrow \sum_{i=1}^m c_i \mathbf{e}_i + \sum_{i=1}^n d_i \mathbf{e}_i &= \mathbf{y}_0 \\ \Leftrightarrow \sum_{i=1}^n d_i \mathbf{e}_i &= \mathbf{y}_0 - \underbrace{\sum_{i=1}^m c_i \mathbf{e}_i}_{=: \hat{\mathbf{c}}} \\ \Leftrightarrow \mathcal{M} \mathbf{d} &= \hat{\mathbf{c}} \end{aligned} \quad (3.45)$$

bestimmt werden können. Damit ist die analytische Lösung eines beliebigen Anfangswertproblems des Systems der Ratengleichungen gelungen. Die so erhaltene allgemeine Lösung

$$\mathbf{y}(t) = \sum_{i=1}^n d_i \mathbf{e}_i e^{\lambda_i t} + \sum_{i=1}^m c_i \mathbf{e}_i + \sum_{i=m+1}^n \tilde{c}_i t \mathbf{e}_i. \quad (3.46)$$

ist eindeutig.

3.5 Zeitlich instationäre Entwicklung

Unser Modell (3.15), (3.29) besitzt eine Matrix mit konstanten Koeffizienten, modelliert also unter der Prämisse, dass die Übergangsraten über das gesamte Zeitintervall $t \in [t_0, t_e] \subset \mathbb{R}$ stationär sind. Das Fortentwickeln einer Lösung $\tilde{\mathbf{y}}$ des Anfangswertproblems (3.29) ab einer Abbruchstelle $t = s$ mit

$$\tilde{\mathbf{y}}_s := \tilde{\mathbf{y}}(t = s), \quad t \in [0; s] \quad (3.47)$$

ist durch Lösung des Anfangswertproblems

$$\begin{cases} \dot{\mathbf{y}} = \mathcal{A}\mathbf{y} + \mathbf{b} =: \mathbf{f}(t, \mathbf{y}) \\ \mathbf{y}(s) = \tilde{\mathbf{y}}_s \end{cases}, \quad t \in [s; t_e] \quad (3.48)$$

stets möglich. Da $\mathbf{f}(t, \mathbf{y})$ nicht explizit zeitabhängig ist, handelt es sich zudem um ein autonomes System. Aufgrund der Translationsinvarianz kann also stattdessen

$$\begin{cases} \dot{\mathbf{y}} = \mathcal{A}\mathbf{y} + \mathbf{b} =: \mathbf{f}(t, \mathbf{y}) \\ \mathbf{y}(0) = \tilde{\mathbf{y}}_s \end{cases}, \quad t \in [0; t_e - s] \quad (3.49)$$

gelöst werden. Eine Fortentwicklung der ursprünglichen Lösung $\tilde{\mathbf{y}}$ durch \mathbf{y} erhalten wir schließlich durch den Zusammenhang (2.24) mit

$$\tilde{\mathbf{y}}(t) = \mathbf{y}(t - s). \quad (3.50)$$

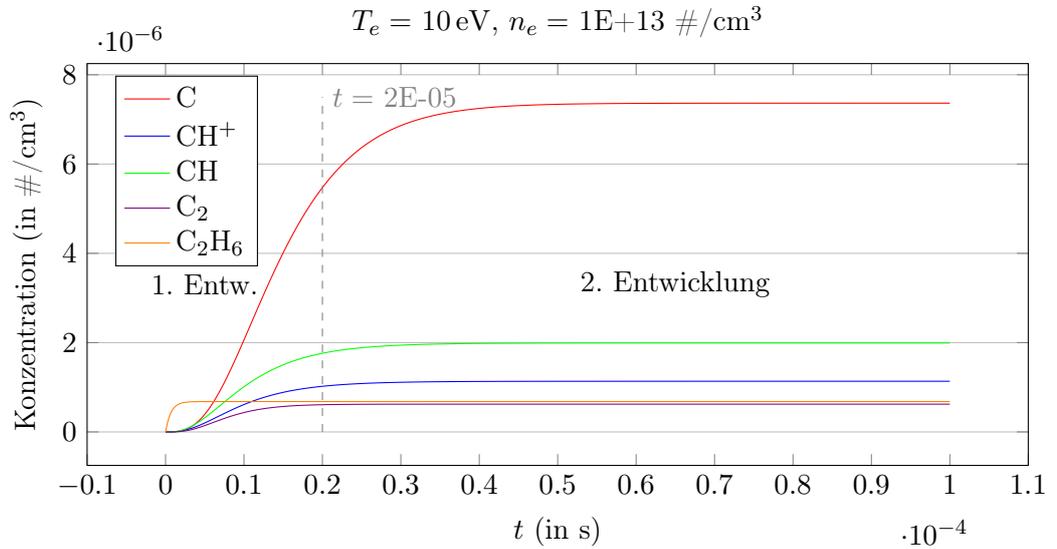


Abbildung 3.2: Zwei voneinander unabhängige Entwicklungen derselben Trajektorien auf disjunkten Zeitintervallen — die erste wurde bei $t = 2 \cdot 10^{-5}$ gestoppt, die zweite ab der Nahtstelle fortentwickelt.

Anmerkung. Die Auswertung der Lösung (3.46) liefert stets überall glatte Trajektorien.

Nun bildet die Annahme der Stationarität der Übergangsmatrix \mathcal{A} die Realität nicht immer hinreichend präzise ab. Dies ist insbesondere richtig für einen instabilen Plasmahintergrund, der in der Zeit stark variiert und die Reaktionsraten kontinuierlich neu aussteuert. Im Falle einer räumlichen Entwicklung ist eine Inhomogenität des Plasmahintergrunds sogar der Standardfall, da das Plasma aus Zonen mit verschiedenen Hintergrundparametern besteht. Das Core-Plasma ist beispielsweise im Normalfall dichter und heißer als das wandnahe Edge-Plasma.

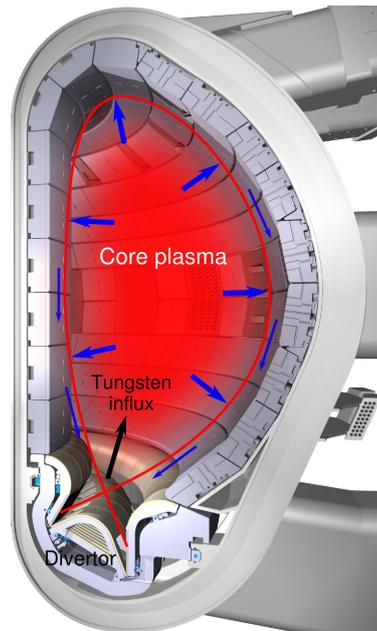


Abbildung 3.3: Core-Plasma getrennt vom Edge-Plasma am Beispiel des ITER-Fusionsgefäßes [FOM]

Bleiben unsere anderen postulierten Modellannahmen gültig, so ließe sich das neue Problem durch eine instationäre Matrix

$$\begin{cases} \dot{\mathbf{y}} = \mathcal{A}(t)\mathbf{y} + \mathbf{b} \\ \mathbf{y}(0) = \mathbf{y}_0 \end{cases} \quad (3.51)$$

mit $\mathcal{A} : [t_0, t_e] \rightarrow \mathbb{R}^{n \times n}$ formulieren. Dies würde jedoch das zuvor erarbeitete analytische Lösungsverfahren auf Basis der Eigenwert-Eigenvektor-Paare der stationären Übergangsmatrix obsolet machen. Gehen wir nun also davon aus, dass für solch instationäre Szenarien die Zeitstetigkeit von $\mathcal{A}(t)$ insoweit vernachlässigbar sei, dass wir stattdessen $\mathcal{A}(t)$ als abschnittsweise konstant ansehen können, so werden die Übergangsraten zu einer Stufenfunktion in der Zeit. Dieser Ansatz arbeitet auf Basis der Prämisse, dass der Plasmahintergrund lokal kein erratisches Verhalten zeigt und zumindest als abschnittsweise stationär aufgefasst werden kann.

Dies hat den entscheidenden Vorteil, dass die Lösungen lediglich mit variierender — abschnittsweise konstanter — Matrix \mathcal{A} nach dem bekannten Lösungsverfahren entwickelt werden können.

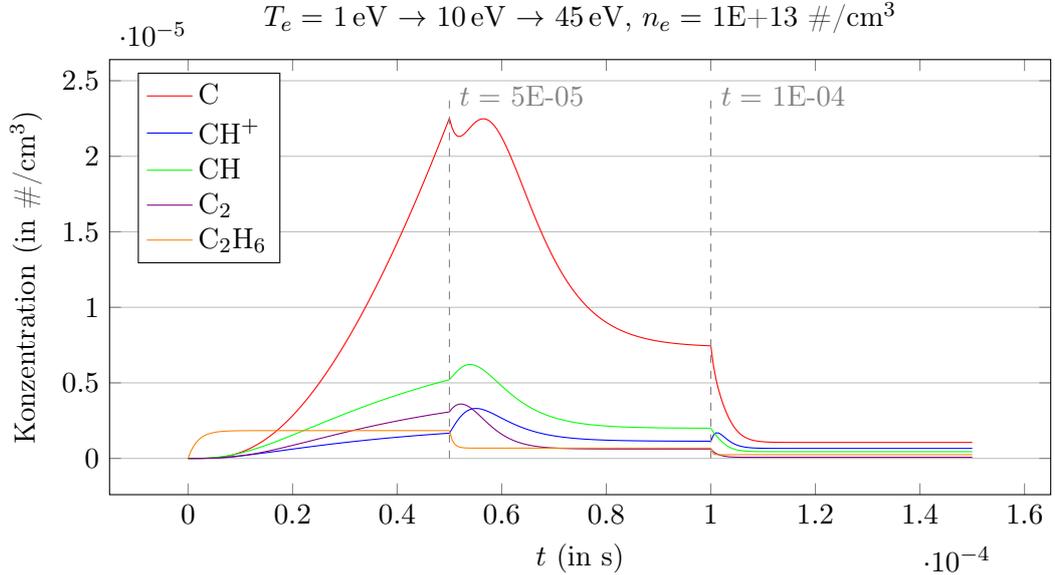


Abbildung 3.4: Global zeitlich instationäre Konzentrationsentwicklung mit drei unterschiedlichen Plasmahintergründen bei abschnittsweise stationärer Matrix

Der Preis für dieses Vorgehen ist — spätestens bei Betrachtung der obigen Abbildung — offensichtlich. Sei $t = s$ eine beliebige Nahtstelle, an der die konstante Matrix variiert wird, so gilt dort für die globale Lösung $\mathbf{y}(t)$

$$\mathbf{y}(t = s)_- = \mathbf{y}(t = s)_+. \quad (3.52)$$

Die Stetigkeit kann durch entsprechende Wahl der Anfangsbedingung *immer* gesichert werden. Des Weiteren gilt jedoch im Allgemeinen

$$\dot{\mathbf{y}}(t = s)_- \neq \dot{\mathbf{y}}(t = s)_+. \quad (3.53)$$

Die Glattheit der Trajektorien geht also durch die fehlende stetige Differenzierbarkeit an den inneren Punkten verloren. Dies ist allerdings ein vergleichsweise geringer Preis für eine Lösung, die keines neuen, komplizierteren Lösungsverfahrens für instationäre Matrizen bedarf. Die Differenzen der Plasmatemperaturen an den Nahtstellen des obigen Beispiels sind zur Illustration bewusst groß gewählt. In einem realistischen Anwendungsfall würde man den Plasmahintergrund feingranularer auflösen.

3.6 Stabilität und Langzeitverhalten

Das dritte Kriterium für die Wohlgestellttheit eines mathematischen Problems nach Jacques Hadamard ist neben Existenz und Eindeutigkeit die *Stabilität*. Kleine Änderungen

in den Eingaben (t_0, x_0) und der rechten Seite \mathbf{f} sollen also nur zu kleinen Änderungen in den Ergebnissen führen, sich also nicht unbeschränkt verstärken.

Unser Ziel sei es somit nun, die Stabilitätseigenschaften unseres Modells (3.15) zu charakterisieren. Hierzu beginnen wir bei der Fundamentalmatrix (3.23)

$$\Psi(t, t_0) = e^{t\mathcal{A}}. \quad (3.54)$$

Da \mathcal{A} per Definition 3.4.2 diagonalisierbar ist, existiert eine Diagonalmatrix \mathcal{D} , sodass gilt

$$\begin{aligned} \mathcal{D} &= \mathcal{M}^{-1}\mathcal{A}\mathcal{M} \\ \Leftrightarrow \mathcal{A} &= \mathcal{M}\mathcal{D}\mathcal{M}^{-1}. \end{aligned} \quad (3.55)$$

Folglich lassen sich Matrixpotenzen durch

$$\begin{aligned} \mathcal{A}^n &= (\mathcal{M}\mathcal{D}\mathcal{M}^{-1})^n \\ &= \mathcal{M}\mathcal{D}\underbrace{\mathcal{M}^{-1}\mathcal{M}}_{\mathcal{I}}\mathcal{D}\underbrace{\mathcal{M}^{-1}\mathcal{M}}_{\mathcal{I}}\cdots\underbrace{\mathcal{M}^{-1}\mathcal{M}}_{\mathcal{I}}\mathcal{D}\mathcal{M}^{-1} \\ &= \mathcal{M}\mathcal{D}^n\mathcal{M}^{-1} \end{aligned} \quad (3.56)$$

bilden. Wir erhalten die Fundamentalmatrix also durch

$$\begin{aligned} \Psi(t, t_0) = e^{t\mathcal{A}} &= \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!} t^n \mathcal{A}^n \\ &= \sum_{n=0}^{\infty} \mathcal{M} \frac{1}{n!} t^n \mathcal{D}^n \mathcal{M}^{-1} \\ &= \mathcal{M} \left(\sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!} (t\mathcal{D})^n \right) \mathcal{M}^{-1} \\ &= \mathcal{M} e^{t\mathcal{D}} \mathcal{M}^{-1}, \end{aligned} \quad (3.57)$$

wobei $\mathcal{D} := \text{diag}(\lambda_1, \dots, \lambda_n)$ mit den Eigenwerten von \mathcal{A} besetzt ist. Ferner ergibt sich demnach

$$\begin{aligned} e^{t\mathcal{D}} &= \sum_{i=0}^{\infty} \left[\frac{t^i}{i!} \begin{pmatrix} \lambda_1 & & & \\ & \lambda_2 & & \\ & & \ddots & \\ & & & \lambda_n \end{pmatrix}^i \right] \\ &= \begin{pmatrix} \sum_{i=0}^{\infty} \frac{(\lambda_1 t)^i}{i!} & & & \\ & \sum_{i=0}^{\infty} \frac{(\lambda_2 t)^i}{i!} & & \\ & & \ddots & \\ & & & \sum_{i=0}^{\infty} \frac{(\lambda_n t)^i}{i!} \end{pmatrix} \end{aligned}$$

$$= \begin{pmatrix} e^{\lambda_1 t} & & & \\ & e^{\lambda_2 t} & & \\ & & \ddots & \\ & & & e^{\lambda_n t} \end{pmatrix} \quad (3.58)$$

und damit abschließend

$$\Psi(t, t_0) = \mathcal{M} \begin{pmatrix} e^{\lambda_1 t} & & & \\ & e^{\lambda_2 t} & & \\ & & \ddots & \\ & & & e^{\lambda_n t} \end{pmatrix} \mathcal{M}^{-1}. \quad (3.59)$$

Sei

$$\begin{cases} \dot{\tilde{\mathbf{y}}} = \mathcal{A}\tilde{\mathbf{y}} + \mathbf{b} + \delta(t) \\ \tilde{\mathbf{y}}(t_0) = \mathbf{y}_0 + \delta_0 \end{cases} \quad (3.60)$$

eine gestörte Variante von (3.29), die sowohl einen gestörten Anfangswert als auch eine gestörte rechte Seite \mathbf{f} modelliert, so gilt für die Abweichung im Resultat $\mathbf{z} := \tilde{\mathbf{y}} - \mathbf{y}$

$$\begin{cases} \dot{\mathbf{z}} = \mathcal{A}\tilde{\mathbf{y}} + \mathbf{b} + \delta(t) - \mathcal{A}\mathbf{y} - \mathbf{b} \\ \mathbf{z}(t_0) = \mathbf{y}_0 + \delta_0 - \mathbf{y}_0 \end{cases} = \begin{cases} \dot{\mathbf{z}} = \mathcal{A}\mathbf{z} + \delta(t) \\ \mathbf{z}(t_0) = \delta_0 \end{cases}. \quad (3.61)$$

Die Fehlerentwicklung im Resultat genügt also erneut einem Anfangswertproblem eines Systems inhomogener linearer Differentialgleichungen mit der Lösung gemäß (3.21)

$$\mathbf{z}(t) = \Psi(t, t_0)\delta_0 + \int_{t_0}^t \Psi(\tau, t)\delta(\tau) d\tau. \quad (3.62)$$

Da beide Systeme über den identischen diagonalisierbaren linearen Operator \mathcal{A} verfügen, ergibt sich die Fundamentalmatrix mit (3.59). Da \mathcal{M} eine Basis aus Eigenvektoren bildet, bestehen die Koeffizienten von $\Psi(t, t_0)$ aus Linearkombinationen von Eigenvektorelementen und

$$e^{\lambda_i(t-t_0)}, \quad i \in \{1, \dots, n\}. \quad (3.63)$$

Lassen wir komplexe Eigenwerte zu, so gilt für einen beliebigen Eigenwert $\lambda \in \mathbb{C}$

$$\begin{aligned} e^{\lambda(t-t_0)} &= e^{(a+ib)(t-t_0)} \\ &= e^{a(t-t_0)} e^{ib(t-t_0)} \\ &= \underbrace{e^{a(t-t_0)}}_{\text{Verstärkung/Dämpfung}} \underbrace{(\cos(b(t-t_0)) + i \sin(b(t-t_0)))}_{\text{oszillatorischer Anteil}}. \end{aligned} \quad (3.64)$$

Die Fehlerverstärkung wird also durch die Eigenwerte der Matrix \mathcal{A} gesteuert. Strikt positive Realteile der Eigenwerte bewirken eine Verstärkung, strikt negative eine Dämpfung des Fehlers. Da die Eigenwerte auch für das Entwicklungsverhalten der Lösungen verantwortlich sind, besitzt die Fehlerpropagation eine Ähnlichkeit zur Lösung selbst.

Die Betrachtungen führen uns schließlich zu einem Stabilitätssatz für gewöhnliche lineare Differentialgleichungen.

Satz 3.6.1 (Stabilitätssatz). *Ein System mit konstanten Koeffizienten*

$$\dot{\mathbf{x}} = \mathcal{A}\mathbf{x} + \mathbf{b}(t) \tag{3.65}$$

ist

- *asymptotisch stabil, falls $\Re(\lambda_i) < 0 \forall i$.*
- *stabil, falls $\Re(\lambda_i) \leq 0 \forall i \wedge$ für alle $\Re(\lambda_i) = 0 : a(\lambda_i) = g(\lambda_i)$.⁴*
- *instabil sonst.*

[Tes12]

Angewendet auf unser Modell (3.15), dessen linearer Operator ausschließlich über nichtpositive reelle⁵ Eigenwerte verfügt und dessen algebraische Vielfachheit zum Eigenwert $\lambda = 0$ aufgrund der vorausgesetzten Diagonalisierbarkeit stets gleich der geometrischen Vielfachheit ist, ergibt sich, dass das System im allgemeinen Fall *stabil* und im Falle, dass der Eigenwert $\lambda = 0$ nicht auftritt, sogar *asymptotisch stabil* ist.

3.7 Steifheitsquotient

Wir haben den Begriff der Steifheit eines Anfangswertproblems anhand der ursprünglichen Definition nach Curtiss und Hirschfelder [CH52] kennengelernt und festgestellt, dass die Primärursache für die Steifheit von Systemen von Ratengleichungen in den signifikant unterschiedlichen Zeitskalen liegt, auf denen sich einzelne Systemkomponenten entwickeln. Des Weiteren haben wir bei der Betrachtung der Stabilität festgestellt, dass die Realteile der Eigenwerte der Matrix \mathcal{A} die Relaxationsgeschwindigkeit steuern.

Fassen wir die Steifheit also als Grad der Disparität in den Zeitskalen auf, so lässt sich die Steifheit heuristisch über das Verhältnis zwischen betragsmäßig größtem und kleinstem Realteil aller Eigenwerte auffassen.

Sei $\Lambda(\mathcal{A})$ das Spektrum von \mathcal{A} , so ergibt sich der Steifheitsquotient mit

$$Q_{\text{stiff}} = \frac{\max_{\lambda \in \Lambda(\mathcal{A})} |\Re(\lambda)|}{\min_{\lambda \in \Lambda(\mathcal{A})} |\Re(\lambda)|} \tag{3.66}$$

und erlaubt einen — für unser spezielles Problem — quantitativen Zugang zur Steifheit des Systems.

⁴algebraische = geometrische Vielfachheit

⁵Auch die Reellwertigkeit der Eigenwerte von Nichtsymmetrischen Matrizen lässt sich im Allgemeinen immanent nicht sichern. Bei der vorliegenden Konstruktion von \mathcal{A} aus positiven Raten und den in der Hauptdiagonalen summierten negativen Verlusten gilt dies jedoch. Daraus folgt unmittelbar, dass der periodische Term in (3.64) und somit Oszillationen in der Lösung entfallen müssen.

3.8 Numerische Resultate

3.8.1 Gleichgewichtsreaktion

Wir haben im Zuge der Einführung in die Reaktionskinetik ein einfaches System mit zwei Freiheitsgraden (3.5) kennengelernt, das aus den Reaktionsraten der Gleichgewichtsreaktion



mit Elektronen als Hintergrundspezies gebildet werden kann und die Wechselwirkung zwischen A und B modelliert. Die Lösungen n_A und n_B zur Anfangsbedingung

$$n_A(t=0) = C_0, n_B(t=0) = 0 \quad (3.68)$$

lassen sich durch Integration analytisch geschlossen mit

$$\begin{aligned} n_A(t) &= \frac{C_0}{k_1 + k_2} \left(k_1 e^{-(k_1+k_2)t} + k_2 \right), \\ n_B(t) &= \frac{k_1 C_0}{k_1 + k_2} \left(1 - e^{-(k_1+k_2)t} \right) \end{aligned} \quad (3.69)$$

bestimmen.

Zwecks Verifikation unseres analytischen Lösungsverfahrens über Eigenvektoren erfolgen eine Auswertung der Lösung (3.46) durch den *HYDKIN*-Online-Solver [IPP] sowie ein anschließender Vergleich mit der oben genannten geschlossenen Lösung.

$$\text{Gleichgewichtsreaktion mit } k_1 = k_2 = 1, \begin{pmatrix} n_A(t=0) \\ n_B(t=0) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$$

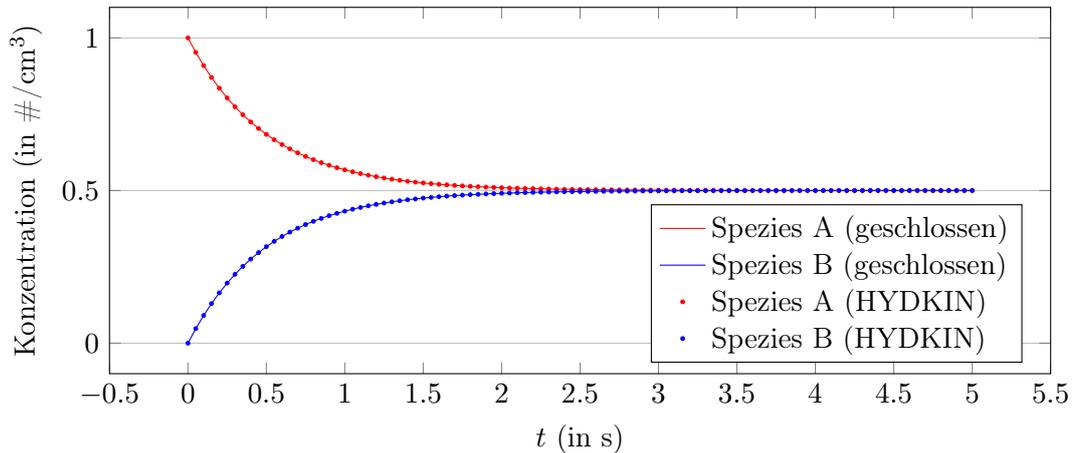


Abbildung 3.5: Konzentrationsentwicklung der Spezies A und B mit Äquilibration — das Residuum beider Lösungen beschränkt sich bei guter numerischer Praxis auf ein Rauschen in Größenordnung der Maschinengenauigkeit.

Da die Eigenwerte der Systemmatrix reellwertig sind und keine externe Anregung des Systems durch In- beziehungsweise Outflux vorliegt, äquilibrieren sich die Konzentrationen genau in den Ruhelagen, in denen ihre inneren Spannungspotentiale minimal — also die Migrationen zwischen den Spezies konstant — sind. Die Niveaus der Ruhelagen, gegen die die Systemzustände für hinreichend großes t konvergieren, hängen von den Ratenkoeffizienten ab.

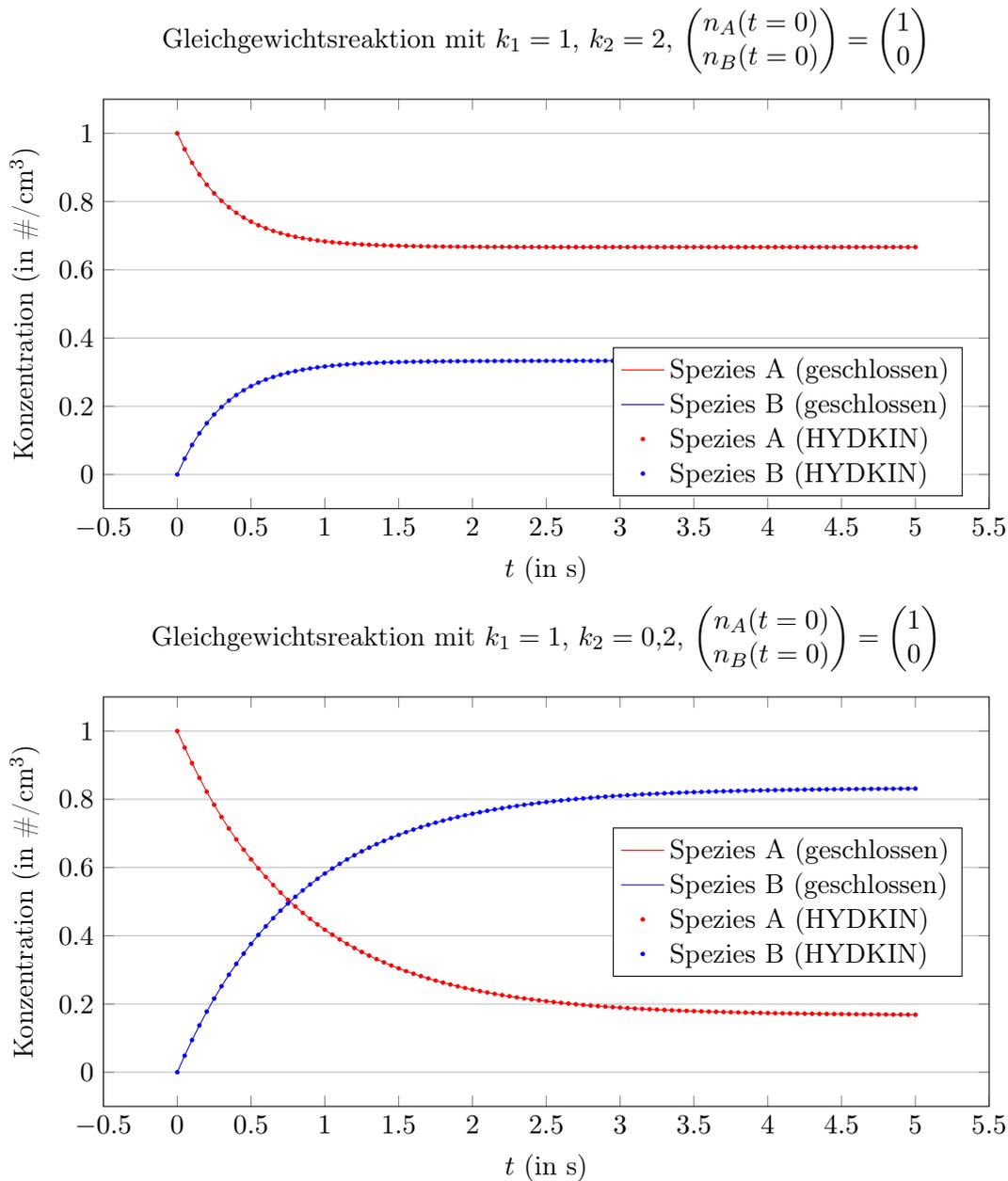


Abbildung 3.6: Einfluss der Ratenkoeffizienten auf die Niveaus der Ruhelagen

3.8.2 Stabilität

Stabile und asymptotisch stabile Systeme zeigen oft ein charakteristisches Langzeitverhalten und reagieren auf Störungen mit Nichtverstärkung oder Dämpfung der Störung.

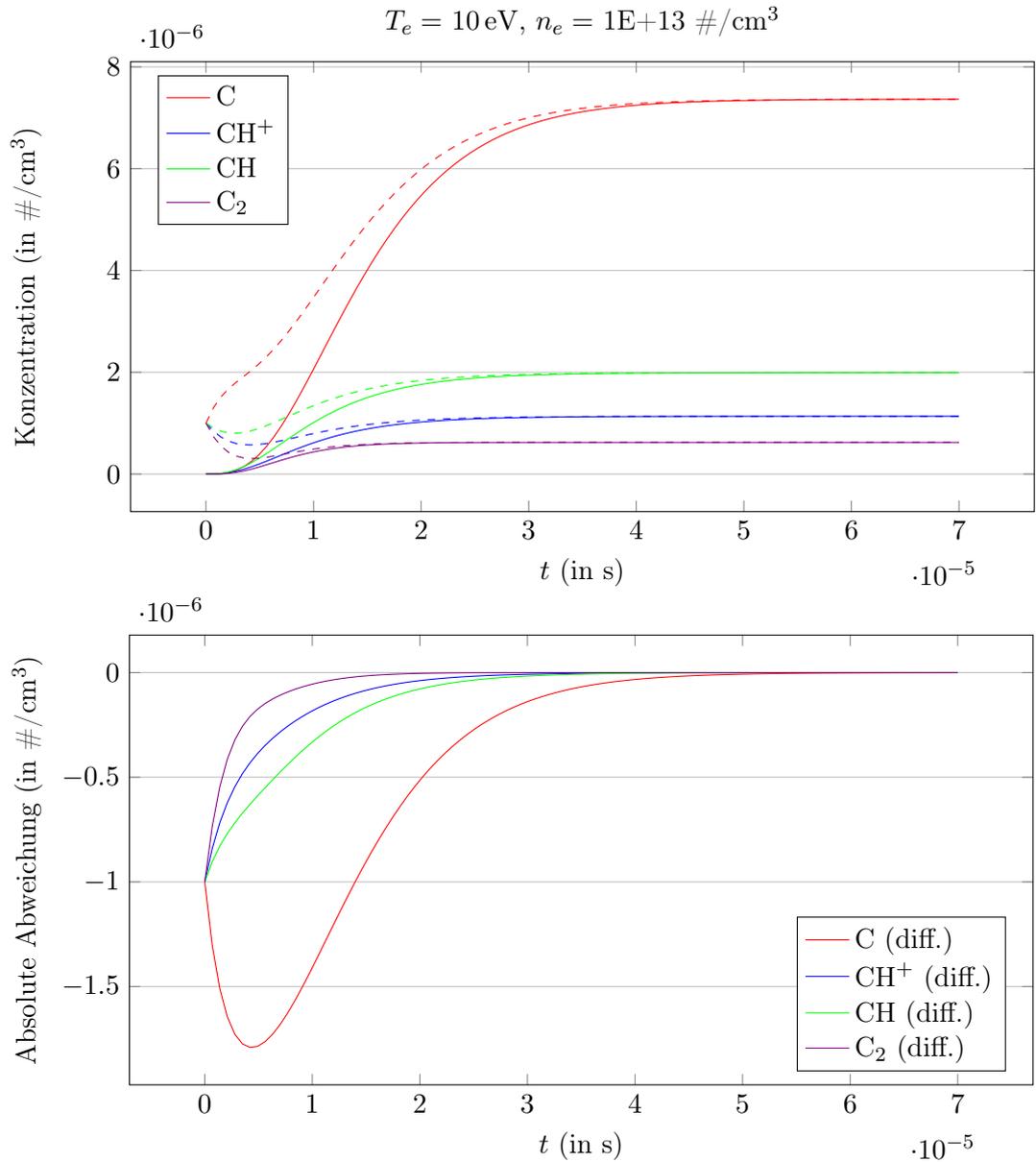


Abbildung 3.7: Propagation von Störungen in den Anfangswerten (gestrichelte Trajektorien) gegenüber einer ungestörten Referenz (durchgezogene Trajektorien) bei einem stabilen System (oben) und Relaxation der absoluten Abweichung beider Lösungen für fortschreitende Zeit (unten)

Es ist jedoch wichtig, sich bewusst zu machen, dass die Stabilitätstheorie keine Aussagen darüber treffen kann, wie eine Störung lokal propagiert. So liefert die Entwicklung der Abweichung für die Spezies C in der vorherigen Abbildung ein Beispiel, bei dem die Abweichung zunächst anwächst bevor sie schließlich abklingt.

3.8.3 Steifheitsquotient

Bei Systemen mit einem großem Steifheitsquotienten ist das Verhältnis von schnellster zu langsamster Zeitskala signifikant⁶ ausgeprägt, wohingegen sich die Komponenten von Systemen mit geringem Steifheitsquotienten auf sehr ähnlichen Zeitskalen entwickeln.

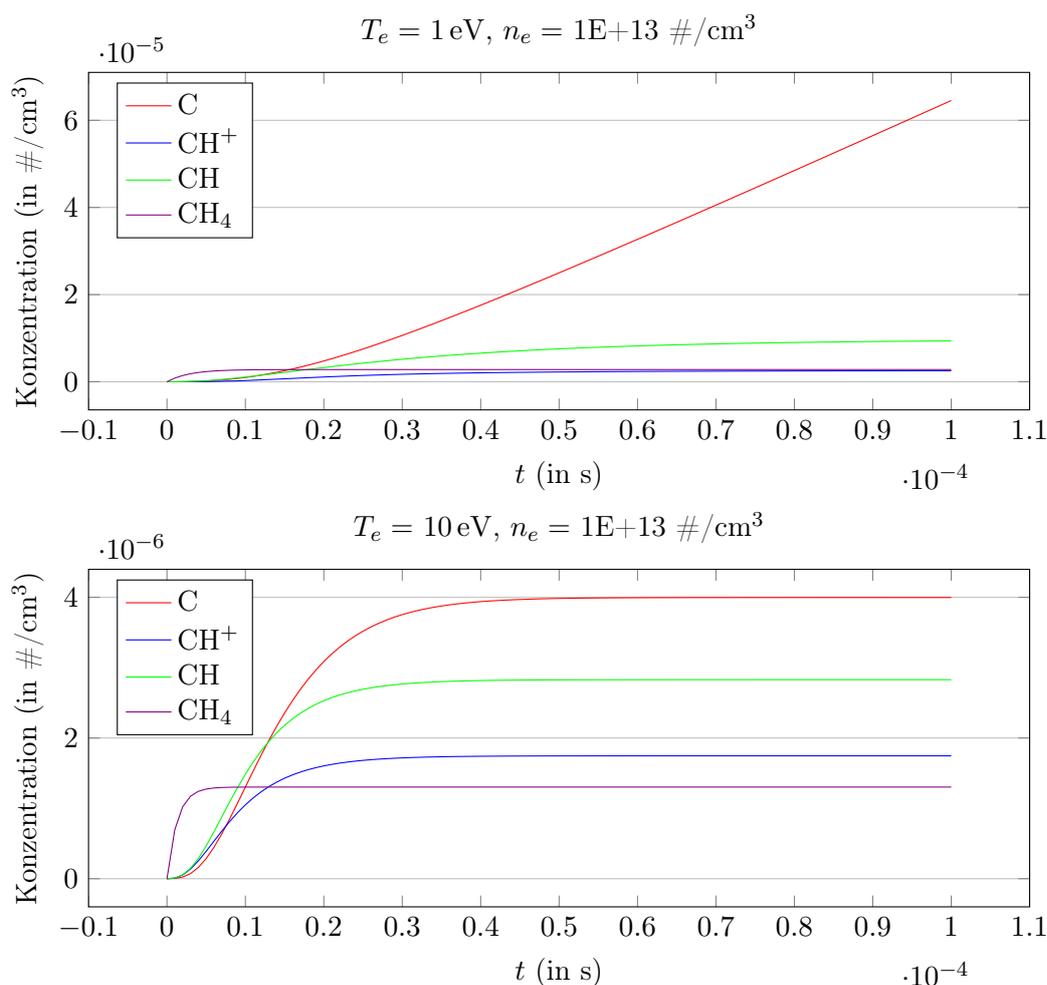


Abbildung 3.8: System mit großem Steifheitsquotienten $Q_{\text{stiff}} = 2.003532 \cdot 10^4$ (oben) gegenüber einem nichtsteifen System mit $Q_{\text{stiff}} = 9.419387 \cdot 10^0$ (unten), bewirkt durch unterschiedliche Temperaturen

⁶Ab welcher Grenze das Verhältnis als signifikant zu bezeichnen ist, hängt von der heuristischen Maßgabe ab.

4 Sensitivitätsanalyse

4.1 Einführung in die Forward Sensitivity Analysis

Die Stabilitätstheorie liefert bereits Aussagen, um die langfristige Reaktion von Modellvorhersagen auf gestörte Eingaben zu charakterisieren. So neigen asymptotisch stabile Systeme dazu, Störungen stets vollständig zu dämpfen, sodass die Systemkomponenten schließlich gegen die gleiche Ruhelage streben.

Für lineare Systeme mit konstanten Koeffizienten lässt sich aus (3.64) sogar eine Aussage über die Konvergenzordnung des Zustandsvektors \mathbf{y} ableiten. Für asymptotisch stabile Systeme gilt $\Re(\lambda_i) < 0$ für alle i . Wird ein solches System gestört, ist die Relaxationsgeschwindigkeit der Störung in der Lösung von exponentieller Ordnung. Die Komponenten y_i nähern sich ihrem stationären Zustand also ebenfalls mit exponentieller Geschwindigkeit.

Nun vermag die Stabilitätstheorie keine Aussagen darüber zu treffen, wie empfindlich die Ausgabedaten des Modells lokal — also zu einem bestimmten Zeitpunkt oder an einem bestimmten Ort — auf kleine Störungen in den Eingabedaten reagieren. Die Untersuchung des Modells mit dem Ziel, quantitative Aussagen über die Einflüsse variiertter Modellparameter auf die Lösung treffen zu können, wird *Sensitivitätsanalyse* genannt.

Wir betrachten das Anfangswertproblem

$$\begin{cases} \dot{\mathbf{x}} = \mathbf{f}(t, \mathbf{x}(t, \mathbf{p}), \mathbf{p}) \\ \mathbf{x}(t_0) = \mathbf{x}_0(\mathbf{p}) \end{cases}, \quad \mathbf{x} \in \mathbb{R}^n, \quad (4.1)$$

welches nun zusätzlich stetig von den Modellparametern

$$\mathbf{p} := \begin{pmatrix} p_1 \\ \vdots \\ p_{n_p} \end{pmatrix} \in \mathbb{R}^{n_p} \quad (4.2)$$

abhängt. Bezeichne $\Delta\mathbf{p}$ eine Störung¹ der Modellparameter (4.2), so erhalten wir mit

$$\Delta x_i \approx x'_i = \sum_{k=1}^{n_p} \frac{\partial x_i}{\partial p_k} \Delta p_k \quad (4.3)$$

eine lineare Taylor-Approximation der resultierenden Störung in der i -ten Komponente der Modellausgabe unter Nichtberücksichtigung der Einflussmomente zweiter oder höherer Ordnung. Eine solche Linearisierung des Problems ist zulässig, sofern $\|\Delta\mathbf{p}\|$ hinreichend klein ist und die ersten partiellen Ableitungen existieren. Eine Berücksichtigung der

¹Dies können Störungen, also Variationen der Modellparameter, in Form von Fehlern oder Unsicherheiten sein.

Terme höherer Ordnung wäre einerseits in der numerischen Behandlung ausgesprochen aufwendig und zudem müsste gewährleistet sein, dass die — im Allgemeinen unbekannte — Lösungsfunktion $\mathbf{x}(t)$ hinreichend glatt ist.

Eine Auswertung von (4.3) setzt die Kenntnis der partiellen Ableitungen der Modellkomponenten bezüglich der Modellparameter voraus, die in diesem Kontext *Sensitivitätskoeffizienten* genannt werden. Mit dem Sensitivitätskoeffizienten erster Ordnung

$$z_{ik} := \frac{\partial x_i}{\partial p_k} \left(= \frac{\partial}{\partial p_k} x_i(t, \mathbf{p}) \right) \quad (4.4)$$

erhalten wir den quantitativen Zugang zur Sensitivität der Modellkomponente x_i bezüglich hinreichend kleiner Störungen des Modellparameters p_k . Die aus der Störung $\Delta \mathbf{p}$ der Modellparameter resultierende Propagation x'_i in der skalaren Komponente x_i der Lösung nach (4.3) lässt sich alternativ durch einen Gradientenbegriff mit dem Nabla-Operator

$$\nabla_p := \left(\frac{\partial}{\partial p_1}, \frac{\partial}{\partial p_2}, \dots, \frac{\partial}{\partial p_{n_p}} \right) \quad (4.5)$$

als die Divergenz des Vektorfeldes $x_i \Delta \mathbf{p}$ bezüglich ∇_p

$$\begin{aligned} x'_i &= \sum_{k=1}^{n_p} \frac{\partial x_i}{\partial p_k} \Delta p_k \\ &= \nabla_p \cdot (x_i \Delta \mathbf{p}) \\ &= \operatorname{div}(x_i \Delta \mathbf{p}) \end{aligned} \quad (4.6)$$

ausdrücken.

Eine umfassende Bestimmung der Sensitivitätskoeffizienten bezüglich aller Modellparameter ergibt sich schließlich über die Jacobimatrix

$$\mathcal{Z} = \begin{pmatrix} \frac{\partial x_1}{\partial p_1} & \frac{\partial x_1}{\partial p_2} & \cdots & \frac{\partial x_1}{\partial p_{n_p}} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \frac{\partial x_n}{\partial p_1} & \frac{\partial x_n}{\partial p_2} & \cdots & \frac{\partial x_n}{\partial p_{n_p}} \end{pmatrix}, \quad \mathcal{Z} \in \mathbb{R}^{n \times n_p}. \quad (4.7)$$

Die Zeilenvektoren der Sensitivitätsmatrix \mathcal{Z} entsprechen den transponierten Gradienten $(\nabla_p x_i)^\top$ für $i \in \{1, \dots, n\}$. Diese erlauben Rückschlüsse auf Korrelationen zwischen Modellparametern, die für eine bestimmten Systemkomponente besonders kritisch sind. Konkret bedeutet dies, dass Störungen $\Delta \mathbf{p}$ signifikanter in die Systemkomponenten propagieren, je stärker sie in Richtung der Gradienten ebendieser Komponenten bezüglich der Modellparameter ausgeprägt sind.

Die vorgestellten Konzepte zur Bestimmung der Sensitivitäten betrachten die Störungen der Modellausgaben in Abhängigkeit von gestörten Modelleingaben. Eine solche Betrachtungsweise wird *Forward Sensitivity Analysis* genannt, da die Propagation von Störungen für fortschreitende Zeit (Ausgaben bezüglich Eingaben) untersucht wird.

In einigen Fällen kann es sinnvoll sein, die partiellen Sensitivitäten

$$\mathbf{z}_{.k} = \frac{\partial \mathbf{x}}{\partial p_k}, \quad (4.8)$$

für $k \in \{1, \dots, n_p\}$, respektive die Spaltenvektoren der Sensitivitätsmatrix, zu extrahieren und isoliert zu untersuchen. Diese liefern die Abhängigkeiten aller Systemkomponenten bezüglich eines bestimmten Modellparameters p_k . Wir werden sie im Folgenden nutzen, um die Sensitivitätsanalyse an Modell (3.15) auf bereits bekannte Ausdrücke und Konzepte zurückzuführen, die wir im Rahmen der Lösung des Systems der Ratengleichungen erarbeitet haben.

4.2 Übertragung auf das System der Ratengleichungen

Wir betrachten nun erneut das System der Ratengleichungen (3.15), dessen Lösung wir zuvor analytisch bestimmt haben. Die Parameterabhängigkeiten dieses Modells bestehen in den experimentell oder theoretisch bestimmten Ratenkoeffizienten mit

$$\begin{cases} \dot{\mathbf{y}} = \mathbf{f}(t, \mathbf{y}(t, \mathbf{p}), \mathbf{p}) := \mathcal{A}(\mathbf{p})\mathbf{y}(t, \mathbf{p}) + \mathbf{b} \\ \mathbf{y}(t_0) = \mathbf{y}_0(\mathbf{p}) \end{cases}, \quad \mathbf{p} := \begin{pmatrix} \langle \sigma v \rangle_1 \\ \vdots \\ \langle \sigma v \rangle_{n_p} \end{pmatrix}. \quad (4.9)$$

Die algebraischen Eigenschaften, insbesondere das Spektrum, des linearen Modelloperators \mathcal{A} sind über die Abhängigkeit von den Ratenkoeffizienten auch implizit von der Plasmatemperatur abhängig. Die realen Reaktionsraten werden durch Naturkonstanten gesteuert; die Gesetze und Mechanismen, die die Reaktionsraten festlegen sind also unveränderlich. Eine Störung $\Delta \mathbf{p}$ der Ratenkoeffizienten bildet daher keine Verzerrung der Realität, sondern eine quantitative Realisierung der inhärenten Unsicherheit durch ihren experimentellen oder theoretischen Ursprung ab. Ziel einer Sensitivitätsanalyse an dem obigen System ist eine Untersuchung der Propagation von Unsicherheiten in den Prognosen des Modells.

Wir beginnen mit den partiellen Sensitivitäten

$$\mathbf{z}_{.k} = \frac{\partial \mathbf{y}}{\partial \langle \sigma v \rangle_k}. \quad (4.10)$$

Eine Zeitableitung d/dt liefert

$$\begin{aligned} \frac{d\mathbf{z}_{.k}}{dt} &= \frac{d}{dt} \left(\frac{\partial \mathbf{y}}{\partial \langle \sigma v \rangle_k} \right) \\ &\stackrel{*}{=} \frac{\partial}{\partial \langle \sigma v \rangle_k} \left(\frac{d\mathbf{y}}{dt} \right) \\ &= \frac{\partial}{\partial \langle \sigma v \rangle_k} \mathbf{f}(t, \mathbf{y}(t, \mathbf{p}), \mathbf{p}) \\ &= \frac{\partial \mathbf{f}}{\partial \mathbf{y}} \underbrace{\frac{\partial \mathbf{y}}{\partial \langle \sigma v \rangle_k}}_{=\mathbf{z}_{.k}} + \frac{\partial \mathbf{f}}{\partial \langle \sigma v \rangle_k}, \end{aligned} \quad (4.11)$$

welches erneut einem Anfangswertproblem eines Systems gewöhnlicher Differentialgleichungen mit

$$\begin{cases} \dot{\mathbf{z}}_{\cdot k} = \frac{\partial \mathbf{f}}{\partial \mathbf{y}} \mathbf{z}_{\cdot k} + \frac{\partial \mathbf{f}}{\partial \langle \sigma v \rangle_k} \\ \mathbf{z}_{\cdot k}(t_0) = \frac{\partial \mathbf{y}(t_0)}{\partial \langle \sigma v \rangle_k} \end{cases} \quad (4.12)$$

genügt.

Anmerkung. Die Zulässigkeit der Vertauschung der Ableitungsreihenfolge in der zweiten Zeile ($\stackrel{*}{=}$) setzt die Anwendbarkeit des Satzes von Schwarz-Clairaut [AE06] (Symmetrie zweiter Ableitungen) voraus. Für die Kommutativität der partiellen Ableitungen von $\mathbf{y}(t, \mathbf{p})$ ist es erforderlich, dass die Funktion mindestens zweimal partiell differenzierbar ist und diese partiellen Ableitungen ihrerseits mindestens stetig sind. Die geforderten Eigenschaften werden an dieser Stelle ohne Beweis angenommen.

Folglich ist für die vollständige Aggregation der Sensitivitätsinformation bezüglich der Ratenkoeffizienten $\langle \sigma v \rangle_1, \dots, \langle \sigma v \rangle_{n_p}$ im Sinne der Sensitivitätsmatrix (4.7) die Lösung von n_p Anfangswertproblemen nach Schema (4.12) vonnöten. Der numerische Aufwand der *Forward Sensitivity Analysis* hängt demnach maßgeblich von der Anzahl der Modellparameter ab und skaliert mit $\mathcal{O}(n_p)$. Für eine geringe Anzahl von Modellparametern (relativ zu der Anzahl von Systemkomponenten) liefert die *Forward Sensitivity Analysis* eine effiziente Lösung. Dabei lässt sich zusätzlich ausnutzen, dass sich alle n_p Sensitivitätssysteme die modellparameterunabhängige Jacobimatrix $\partial \mathbf{f} / \partial \mathbf{y}$ teilen. In unserem konkreten Fall (4.9) gilt

$$\frac{\partial \mathbf{f}}{\partial \mathbf{y}} = \mathcal{A}; \quad (4.13)$$

die Jacobimatrix bezüglich des Zustandsvektors \mathbf{y} entspricht also dem linearen Modelloperator.

Abschließend erhalten wir nach [RKJ09] die konkrete Gestalt des Anfangswertproblems (4.12) mit

$$\begin{cases} \dot{\mathbf{z}}_{\cdot k} = \mathcal{A} \mathbf{z}_{\cdot k} + \mathbf{b}_1 + \mathbf{b}_2 t + \sum_{i=1}^n \mathbf{b}_{3,i} e^{\lambda_i t} \\ \mathbf{z}_{\cdot k}(t_0) = \mathbf{z}_{\cdot k,0} \end{cases} . \quad (4.14)$$

Die Betrachtung des obigen Systems offenbart unmittelbar die Ähnlichkeiten zu (3.15) beziehungsweise (3.29). Tatsächlich werden wir im Laufe des Kapitels feststellen, dass sich eine Vielzahl der Eigenschaften des Systems der Ratengleichungen an die Sensitivitätssysteme „vererbt“. Verantwortlich für diesen Umstand ist der gemeinsame lineare Operator \mathcal{A} . Es gibt jedoch — auch das werden wir feststellen — Eigenschaften, die einer besonderen Vorsicht bedürfen. Die Ähnlichkeit der Inhomogenität zur Lösung (3.46) ist ebenfalls kein Zufall. Die Gestalt ergibt sich aus dem Term $\frac{\partial \mathbf{f}}{\partial \langle \sigma v \rangle_k} = \frac{\partial \mathcal{A}}{\langle \sigma v \rangle_k} \mathbf{y}$.

4.3 Analytische Lösung

Wir betrachten das Anfangswertproblem (4.14) mit

$$\dot{\mathbf{z}}_k = \mathcal{A}\mathbf{z}_k + \mathbf{b}_1 + \mathbf{b}_2 t + \sum_{i=1}^n \mathbf{b}_{3,i} e^{\lambda_i t}, \quad (4.15)$$

welches sich von (3.29) lediglich durch zusätzliche inhomogene Terme unterscheidet. Hier bezeichnen $(\lambda_i, \mathbf{e}_i)$ für $i \in \{1, \dots, n\}$ erneut die Eigenwert-Eigenvektor-Paare der Matrix \mathcal{A} . Das Fundamentalsystem — also die Menge aller homogenen Lösungen — lässt sich somit identisch zu (3.37) konstruieren. Die Koeffizientenvektoren $\mathbf{b}_1, \mathbf{b}_2, \mathbf{b}_{3,i}$ ergeben sich aus *bekannt*en Größen. Aufgrund der mühsamen Herleitung wird auf ihre Herkunft an dieser Stelle nicht näher eingegangen. Für die verbleibende partikuläre Lösung postulieren wir den Ansatz

$$\begin{aligned} \mathbf{z}_k^p(t) = & \sum_{i=1}^m c_i \mathbf{e}_i + \sum_{i=1}^n \tilde{c}_i t \mathbf{e}_i + \sum_{i=m+1}^n \tilde{c}_i t^2 \mathbf{e}_i \\ & + \sum_{j=1}^n \left[\sum_{i=1, \lambda_i \neq \lambda_j}^n \tilde{\tilde{c}}_{i,j} \mathbf{e}_i e^{\lambda_j t} + \sum_{i=1, \lambda_i = \lambda_j}^n \tilde{\tilde{c}}_{i,j} \mathbf{e}_i t e^{\lambda_j t} \right] \end{aligned} \quad (4.16)$$

mit $\lambda_1, \lambda_2, \dots, \lambda_m \neq 0$ und $\lambda_{m+1} = \lambda_{m+2} = \dots = \lambda_n = 0$.

Differenzieren nach t liefert

$$\begin{aligned} \dot{\mathbf{z}}_k^p(t) = & \sum_{i=1}^n \tilde{c}_i \mathbf{e}_i + t \sum_{i=m+1}^n 2\tilde{c}_i \mathbf{e}_i \\ & + \sum_{j=1}^n \left[\sum_{i=1, \lambda_i \neq \lambda_j}^n \tilde{\tilde{c}}_{i,j} \lambda_j \mathbf{e}_i e^{\lambda_j t} \right. \\ & \left. + \sum_{i=1, \lambda_i = \lambda_j}^n \left(\tilde{\tilde{c}}_{i,j} \mathbf{e}_i e^{\lambda_j t} + \tilde{\tilde{c}}_{i,j} \lambda_j \mathbf{e}_i t e^{\lambda_j t} \right) \right] \end{aligned} \quad (4.17)$$

und anschließendes Einsetzen in das Differentialgleichungssystem

$$\begin{aligned} \dot{\mathbf{z}}_k^p(t) \stackrel{!}{=} & \mathcal{A} \left(\sum_{i=1}^m c_i \mathbf{e}_i + \sum_{i=1}^n \tilde{c}_i t \mathbf{e}_i + \sum_{i=m+1}^n \tilde{c}_i t^2 \mathbf{e}_i \right. \\ & \left. + \sum_{j=1}^n \left[\sum_{i=1, \lambda_i \neq \lambda_j}^n \tilde{\tilde{c}}_{i,j} \mathbf{e}_i e^{\lambda_j t} + \sum_{i=1, \lambda_i = \lambda_j}^n \tilde{\tilde{c}}_{i,j} \mathbf{e}_i t e^{\lambda_j t} \right] \right) \\ & + \mathbf{b}_1 + \mathbf{b}_2 t + \sum_{j=1}^n \mathbf{b}_{3,j} e^{\lambda_j t} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 &= \sum_{i=1}^m c_i \lambda_i \mathbf{e}_i + \underbrace{\sum_{i=1}^n \tilde{c}_i t \lambda_i \mathbf{e}_i}_{\forall i \geq m+1: \lambda_i \mathbf{e}_i = 0} + \underbrace{\sum_{i=m+1}^n \tilde{c}_i t^2 \lambda_i \mathbf{e}_i}_{\forall i \geq m+1: \lambda_i \mathbf{e}_i = 0} \quad (2) \\
 &+ \sum_{j=1}^n \left[\sum_{i=1, \lambda_i \neq \lambda_j}^n \tilde{\tilde{c}}_{i,j} \lambda_i \mathbf{e}_i e^{\lambda_j t} + \sum_{i=1, \lambda_i = \lambda_j}^n \tilde{\tilde{c}}_{i,j} \underbrace{\lambda_i}_{\lambda_i = \lambda_j} \mathbf{e}_i t e^{\lambda_j t} \right] \\
 &+ \mathbf{b}_1 + \mathbf{b}_2 t + \sum_{j=1}^n \mathbf{b}_{3,j} e^{\lambda_j t} \\
 &= \sum_{i=1}^m c_i \lambda_i \mathbf{e}_i + \sum_{i=1}^m \tilde{c}_i t \lambda_i \mathbf{e}_i \\
 &+ \sum_{j=1}^n \left[\sum_{i=1, \lambda_i \neq \lambda_j}^n \tilde{\tilde{c}}_{i,j} \lambda_i \mathbf{e}_i e^{\lambda_j t} + \sum_{i=1, \lambda_i = \lambda_j}^n \tilde{\tilde{c}}_{i,j} \lambda_j \mathbf{e}_i t e^{\lambda_j t} \right] \\
 &+ \mathbf{b}_1 + \mathbf{b}_2 t + \sum_{j=1}^n \mathbf{b}_{3,j} e^{\lambda_j t}. \tag{4.18}
 \end{aligned}$$

Die Koeffizienten

- c_i für $i \in \{1, \dots, m\}$
- \tilde{c}_i für $i \in \{1, \dots, n\}$
- $\tilde{\tilde{c}}_i$ für $i \in \{m+1, \dots, n\}$
- $\tilde{\tilde{c}}_{i,j}$ für $i, j \in \{1, \dots, n\}$

werden ohne Berücksichtigung der Anfangsbedingung anhand der Inhomogenitäten fixiert. Zu diesem Zweck erweist sich ein Koeffizientenvergleich als hilfreich. Die zur Lösung der Gleichungssysteme verwendete Matrix \mathcal{M} ist gemäß (3.35) kontruiert. Dabei beginnen wir zunächst mit den linearen Komponenten. Weshalb diese Reihenfolge sinnvoll ist, wird nun unmittelbar ersichtlich.

²Durch Ausnutzen der Information über die Eigenwerte entfallen bei der Summe über die linearen Terme alle Summenglieder für $i \geq m+1$. Die Summe über die quadratischen Terme entfällt vollständig.

- Lineare Komponenten:

$$\begin{aligned}
 & \sum_{i=m+1}^n 2\tilde{c}_i \mathbf{e}_i && \stackrel{!}{=} \sum_{i=1}^m \tilde{c}_i \lambda_i \mathbf{e}_i + \mathbf{b}_2 \\
 \Leftrightarrow & \sum_{i=m+1}^n 2\tilde{c}_i \mathbf{e}_i + \sum_{i=1}^m -\tilde{c}_i \lambda_i \mathbf{e}_i = \mathbf{b}_2 \\
 \Leftrightarrow & \mathcal{M} \begin{pmatrix} -\tilde{c}_1 \lambda_1 \\ \vdots \\ -\tilde{c}_m \lambda_m \\ 2\tilde{c}_{m+1} \\ \vdots \\ 2\tilde{c}_n \end{pmatrix} && = \mathbf{b}_2 \tag{4.19}
 \end{aligned}$$

Damit sind die Koeffizienten \tilde{c}_i von 1 bis m und alle \tilde{c}_i bestimmt.

- Konstante Komponenten:

$$\begin{aligned}
 & \sum_{i=1}^n \tilde{c}_i \mathbf{e}_i && \stackrel{!}{=} \sum_{i=1}^m c_i \lambda_i \mathbf{e}_i + \mathbf{b}_1 \\
 \Leftrightarrow & \sum_{i=1}^n \tilde{c}_i \mathbf{e}_i + \sum_{i=1}^m -c_i \lambda_i \mathbf{e}_i = \mathbf{b}_1 \\
 \Leftrightarrow & \mathcal{M} \begin{pmatrix} \tilde{c}_1 - c_1 \lambda_1 \\ \vdots \\ \tilde{c}_m - c_m \lambda_m \\ \tilde{c}_{m+1} \\ \vdots \\ \tilde{c}_n \end{pmatrix} && = \mathbf{b}_1 \tag{4.20}
 \end{aligned}$$

Dies liefert die verbleibenden \tilde{c}_i von $m+1$ bis n , wobei zusätzlich mit Hilfe der aus dem vorherigen Koeffizientenvergleich bekannten Koeffizienten \tilde{c}_i von 1 bis m alle c_i bestimmt werden können.

- Exponentielle Komponenten:

$$\begin{aligned}
 & \sum_{j=1}^n \left[\sum_{i=1, \lambda_i \neq \lambda_j}^n \tilde{\tilde{c}}_{i,j} \lambda_j \mathbf{e}_i + \sum_{i=1, \lambda_i = \lambda_j}^n \left(\tilde{\tilde{c}}_{i,j} \mathbf{e}_i + \tilde{\tilde{c}}_{i,j} \lambda_j \mathbf{e}_i t \right) \right] \\
 & \stackrel{!}{=} \sum_{j=1}^n \left[\sum_{i=1, \lambda_i \neq \lambda_j}^n \tilde{\tilde{c}}_{i,j} \lambda_i \mathbf{e}_i + \sum_{i=1, \lambda_i = \lambda_j}^n \tilde{\tilde{c}}_{i,j} \lambda_j \mathbf{e}_i t \right] + \sum_{j=1}^n \mathbf{b}_{3,j} \\
 \Leftrightarrow & \sum_{j=1}^n \left[\sum_{i=1, \lambda_i \neq \lambda_j}^n \tilde{\tilde{c}}_{i,j} (\lambda_j - \lambda_i) \mathbf{e}_i + \sum_{i=1, \lambda_i = \lambda_j}^n \tilde{\tilde{c}}_{i,j} \mathbf{e}_i \right] = \sum_{j=1}^n \mathbf{b}_{3,j}. \tag{4.21}
 \end{aligned}$$

Dies verlangt die Lösung von n linearen Gleichungssystem nach

$$\begin{aligned} & \sum_{i=1, \lambda_i \neq \lambda_j}^n \tilde{\tilde{c}}_{i,j} (\lambda_j - \lambda_i) \mathbf{e}_i + \sum_{i=1, \lambda_i = \lambda_j}^n \tilde{\tilde{c}}_{i,j} \mathbf{e}_i = \mathbf{b}_{3,j}, \quad \text{für } j = 1, \dots, n \\ \Leftrightarrow & \mathcal{M} \begin{pmatrix} \tilde{\tilde{c}}_{i,j} (\lambda_j - \lambda_i) & , \lambda_i \neq \lambda_j, i = 1, \dots, n \\ \tilde{\tilde{c}}_{i,j} & , \lambda_i = \lambda_j, i = 1, \dots, n \end{pmatrix} = \mathbf{b}_{3,j}, \end{aligned} \quad (4.22)$$

welche die letzten verbleibenden Koeffizienten fixiert.

In der bisherigen Implementation von *HYDKIN* wurde der Koeffizientenvektor $\mathbf{d} := (d_1, \dots, d_n)^\top$ der homogenen Lösung

$$\mathbf{z}_k^h(t) = \sum_{i=1}^n d_i \mathbf{e}_i e^{\lambda_i t} \quad (4.23)$$

an der *vereinfachten* Anfangsbedingung

$$\mathbf{z}_k(t=0) = \mathbf{0} \quad (4.24)$$

fixiert. Dies ist zulässig, sofern die Lösung des Systems der Ratengleichungen $\mathbf{y}(t)$ auf dem Intervall $[0, t_e]$ kontinuierlich und mit stationären Raten entwickelt wird. Für die Sensitivitätskoeffizienten gilt dann

$$\mathbf{z}_k(t=0) = \left. \frac{\partial \mathbf{y}}{\partial \langle \sigma v \rangle_k} \right|_{t=0} = \frac{\partial \mathbf{y}_0}{\partial \langle \sigma v \rangle_k} = \mathbf{0}. \quad (4.25)$$

Dieses Resultat ist auch intuitiv offensichtlich, da die Unsicherheiten in den Ratenkoeffizienten keinen Einfluss auf den Entwicklungspunkt haben können, an dem das Modell per Konstruktion fixiert ist.

Die freien Koeffizienten \mathbf{d} werden in diesem Falle durch

$$\begin{aligned} & \mathbf{z}_k^h(t=0) + \mathbf{z}_k^p(t=0) = \mathbf{0} \\ \Leftrightarrow & \sum_{i=1}^n d_i \mathbf{e}_i = - \underbrace{\sum_{i=1}^m c_i \mathbf{e}_i - \sum_{j=1}^n \sum_{i=1, \lambda_i \neq \lambda_j}^n \tilde{\tilde{c}}_{i,j} \mathbf{e}_i}_{=: \hat{\mathbf{d}}} \\ \Leftrightarrow & \mathcal{M} \mathbf{d} = \hat{\mathbf{d}}. \end{aligned} \quad (4.26)$$

bestimmt. Die allgemeine Lösung besitzt also die Gestalt

$$\begin{aligned} \mathbf{z}_k(t) = & \sum_{i=1}^n d_i \mathbf{e}_i e^{\lambda_i t} + \sum_{i=1}^m c_i \mathbf{e}_i + \sum_{i=1}^n \tilde{c}_i t \mathbf{e}_i + \sum_{i=m+1}^n \tilde{\tilde{c}}_i t^2 \mathbf{e}_i \\ & + \sum_{j=1}^n \left[\sum_{i=1, \lambda_i \neq \lambda_j}^n \tilde{\tilde{c}}_{i,j} \mathbf{e}_i e^{\lambda_j t} + \sum_{i=1, \lambda_i = \lambda_j}^n \tilde{\tilde{c}}_{i,j} \mathbf{e}_i t e^{\lambda_j t} \right] \end{aligned} \quad (4.27)$$

und ist eindeutig.

4.4 Konsekutive Lösungen

Die vereinfachte Anfangsbedingung $\mathbf{z}_{\cdot k}(t = 0) = \mathbf{0}$ der bisherigen Implementation ist in zweierlei Hinsicht unzureichend, wenn Lösungen von einer Zeit $t = T > 0$ ⁽³⁾ fortentwickelt werden sollen. Da das System der Ratengleichungen (3.29) autonom ist, zeigen seine Anfangswertprobleme unabhängig von den Zeiten t_0 , zu denen die Anfangsbedingungen gestellt werden, identisches Entwicklungsverhalten. Aufgrund der Zeitinvarianz ist es zulässig, die Anfangswerte für $t_0 = 0$ zu fordern. Die Sensitivitätssysteme (4.14) sind jedoch in den Inhomogenitäten explizit zeitabhängig und damit *nicht* autonom. Des Weiteren gilt für die Sensitivitäten

$$\mathbf{z}_{\cdot k}(t = T) = \left. \frac{\partial \mathbf{y}}{\partial \langle \sigma v \rangle_k} \right|_{t=T} = \frac{\partial \mathbf{y}}{\partial \langle \sigma v \rangle_k}(t = T) = \mathbf{z}_{\cdot k, T} \stackrel{\text{i. Allg.}}{\neq} \mathbf{0}. \quad (4.28)$$

Die Unsicherheiten in den Modellparametern propagieren in der Zeit und stören folgerichtig auch den Anfangswert einer fortgesetzten Lösung.

Die Anfangsbedingung muss also im Allgemeinen (4.14)

$$\mathbf{z}_{\cdot k}(t = t_0) = \mathbf{z}_{\cdot k, 0} \quad (4.29)$$

lauten.

Definition 4.4.1. Auf Basis der Volterra-Integralgleichung 2.21 bezeichne Φ mit

$$\Phi(t, t_0, x_0) := \mathbf{x}(t) = \mathbf{x}_0 + \int_{t_0}^t \mathbf{f}(\tau, \mathbf{x}(\tau)) d\tau \quad (4.30)$$

die *Evolution* eines Anfangswertproblems

$$\begin{cases} \dot{\mathbf{x}} = \mathbf{f}(t, \mathbf{x}) \\ \mathbf{x}(t_0) = \mathbf{x}_0 \end{cases} \quad (4.31)$$

im Sinne einer Funktion, die eine Trajektorie $\mathbf{x}(t)$ einer Differentialgleichung zu einer beliebigen Anfangsbedingung (t_0, x_0) fortentwickelt.

Ist das Anfangswertproblem eindeutig lösbar, ist die Evolution wohldefiniert. Explizit bekannt ist sie im Regelfall allerdings nicht, da schon der Integrand durch die implizite Abhängigkeit von der Lösung selbst nicht explizit bekannt ist. Eine geschlossene Abbildungsvorschrift für Φ käme der Lösung eines Anfangswertproblems für alle Anfangsbedingungen gleich.

Als Evolution für (4.14) erhalten wir

$$\Phi(t, t_0, x_0) := \mathbf{z}_{\cdot k}(t) = \mathbf{z}_{\cdot k, 0} + \int_{t_0}^t \mathbf{f}(\tau, \mathbf{z}_{\cdot k}(\tau)) d\tau. \quad (4.32)$$

³Die Null ist hier als absolute „Nullzeit“ der Lebensdauer des Systems zu verstehen, da \mathbf{y} dort startet.

Es beschäftigen uns also Fortentwicklungen innerhalb des bereits „lebenden“ Systems.

⁴Die Anfangszeit t_0 ist dabei keineswegs gleichbedeutend mit der Anfangszeit von (3.29).

Ferner gilt

$$\begin{aligned}
 \Phi(t, t_0, x_0) &= \mathbf{z}_{.k,0} + \int_{t_0}^t \mathbf{f}(\tau, \mathbf{z}_{.k}(\tau)) d\tau \\
 &= \mathbf{z}_{.k,0} + \int_{t_0}^T \mathbf{f}(\tau, \mathbf{z}_{.k}(\tau)) d\tau + \int_T^t \mathbf{f}(\tau, \mathbf{z}_{.k}(\tau)) d\tau \\
 &= \Phi(T, t_0, x_0) + \int_T^t \mathbf{f}(\tau, \mathbf{z}_{.k}(\tau)) d\tau \\
 &= \Phi(t, T, \Phi(T, t_0, x_0)).
 \end{aligned} \tag{4.33}$$

Eine Fortsetzung dieser Art ist aufgrund der Additivität des Integrals *stets* möglich. Die Auswertung einer „großen“ Evolution auf ganz $[t_0, t_e]$ ist aufgrund des obigen Resultats mathematisch äquivalent zu einer rekursiv ausgeführten Auswertung vieler „kleiner“ konsekutiver Evolutionsen. Formal bedeutet dies

$$\begin{aligned}
 \Phi(t, t_0, x_0) &\equiv \Phi_{t, T_n} \circ \Phi_{T_n, T_{n-1}} \circ \cdots \circ \Phi_{T_1, t_0} \\
 &= \Phi \left(t, T_n, \Phi \left(T_n, T_{n-1}, \Phi \left(\cdots, \Phi(T_1, t_0, x_0) \right) \right) \right).
 \end{aligned} \tag{4.34}$$

Nun, da die Fortsetzbarkeit gesichert ist, gilt es, die Koeffizienten \mathbf{d} anhand der Anfangsbedingung $(t_0, \mathbf{z}_{.k,0})$ zu fixieren. Wir erhalten

$$\begin{aligned}
 \mathbf{z}_{.k}^h(t = t_0) + \mathbf{z}_{.k}^p(t = t_0) &= \mathbf{z}_{.k,0} \\
 \Leftrightarrow \sum_{i=1}^n d_i \mathbf{e}_i e^{\lambda_i t_0} &= \mathbf{z}_{.k,0} - \sum_{i=1}^m c_i \mathbf{e}_i - \sum_{i=1}^n \tilde{c}_i t_0 \mathbf{e}_i - \sum_{i=m+1}^n \tilde{\tilde{c}}_i t_0^2 \mathbf{e}_i \\
 &\quad - \sum_{j=1}^n \left[\sum_{i=1, \lambda_i \neq \lambda_j}^n \tilde{\tilde{c}}_{i,j} \mathbf{e}_i e^{\lambda_j t_0} + \sum_{i=1, \lambda_i = \lambda_j}^n \tilde{\tilde{c}}_{i,j} \mathbf{e}_i t_0 e^{\lambda_j t_0} \right].
 \end{aligned} \tag{4.35}$$

Anmerkung. Die wesentlichen Unterschiede zur bisherigen Umsetzung nach (4.26) bestehen in der Berücksichtigung des Vektors aus Anfangswerten $\mathbf{z}_{.k,0}$ und der Auswertung der Lösung am der Fortsetzstelle $t = t_0$. Dadurch ist die Auswertung zusätzlicher, jedoch aus der Vorbetrachtung der praktikulären Lösung bekannter, Terme vonnöten. Wir müssen uns in diesem Zusammenhang erneut bewusst machen, dass es *nicht* ohne Einschränkungen zulässig ist, die Anfangsbedingung mit den Anfangswerten $\mathbf{z}_{.k,0}$ zwecks Vereinfachung der Koeffizientenbestimmung zur Zeit $t = 0$ zu stellen, da es sich bei den Sensitivitätssystemen im Allgemeinen nicht um autonome Systeme handelt.

Der gesamte rechte Term werde nun mit $\hat{\mathbf{d}}$ bezeichnet.

Mit

$$\mathcal{M} \underbrace{\begin{pmatrix} d_1 e^{\lambda_1 t_0} \\ \vdots \\ d_m e^{\lambda_m t_0} \\ d_{m+1} \\ \vdots \\ d_n \end{pmatrix}}_{=: \mathbf{x}} = \widehat{\mathbf{d}} \quad (4.36)$$

ergibt sich durch Lösung des linearen Gleichungssystems schließlich

$$\mathbf{d} = \begin{pmatrix} x_1 / e^{\lambda_1 t_0} \\ \vdots \\ x_m / e^{\lambda_m t_0} \\ x_{m+1} \\ \vdots \\ x_n \end{pmatrix}. \quad (4.37)$$

Die allgemeine Gestalt der Lösung (4.27) bleibt erhalten.

4.5 Stabilität und Steifheit

Da das Anfangswertproblem (4.14) ein lineares System mit konstanten Koeffizienten beinhaltet, lässt sich der Stabilitätssatz (3.6.1) anwenden. Sowohl die Sensitivitätssysteme für alle k nach (4.14) als auch das System der Ratengleichungen (3.29) besitzen in Gestalt der Ratenmatrix \mathcal{A} einen gemeinsamen linearen Operator. Folglich sind auch die Spektren aller Matrizen identisch. Sowohl Stabilität als auch Steifheit werden ausschließlich über die Eigenwerte der Matrizen charakterisiert und „vererben“ sich vollständig an die Sensitivitätssysteme.

4.6 Numerische Resultate

4.6.1 Gleichgewichtsreaktion

Wir greifen erneut auf das System (3.5) zur Gleichgewichtsreaktion



zurück. Dieses diente in (3.5) der Einführung in die Reaktionskinetik und wurde bereits in (3.69) zur Verifikation der Konzentrationsprofile aus dem *HYDKIN*-Solver anhand der geschlossenen Lösung herangezogen. Nun soll es uns ein weiteres Mal zur Illustration der

Sensitivitätstrajektorien und anschließenden Verifikation der analytischen Lösung (4.27) zur Sensitivitätsanalyse an einem einfachen System der Gestalt

$$\dot{\mathbf{x}} = \begin{pmatrix} \dot{n}_A(t) \\ \dot{n}_B(t) \end{pmatrix} = \underbrace{\begin{pmatrix} -k_1 & k_2 \\ k_1 & -k_2 \end{pmatrix}}_{=: \mathcal{A}} \underbrace{\begin{pmatrix} n_A(t) \\ n_B(t) \end{pmatrix}}_{=: \mathbf{x}} =: \mathbf{f}(t, \mathbf{x}) \quad (4.39)$$

mit zwei Freiheitsgraden und zur Anfangsbedingung

$$n_A(t=0) = C_0, n_B(t=0) = 0 \quad (4.40)$$

dienen. Als Sensitivitätsmatrix gemäß (4.7) erhalten wir für dieses konkrete Beispiel

$$\mathcal{Z} = \begin{pmatrix} \frac{\partial n_A}{\partial k_1} & \frac{\partial n_A}{\partial k_2} \\ \frac{\partial n_B}{\partial k_1} & \frac{\partial n_B}{\partial k_2} \end{pmatrix}. \quad (4.41)$$

Integration liefert für die Komponente \mathcal{Z}_{11} die geschlossene Lösung

$$\mathcal{Z}_{11} \left(= \frac{\partial n_A}{\partial k_1} \right) = \frac{-C_0}{(k_1 + k_2)^2} \left(k_2 \left(1 - e^{-(k_1+k_2)t} \right) + k_1(k_1 + k_2)te^{-(k_1+k_2)t} \right) \quad (4.42)$$

und analog auch geschlossene Lösungen für die anderen drei Komponenten. Der *HYDKIN*-Solver bestimmt \mathcal{Z} spaltenweise über die partiellen Sensitivitäten (Spaltenvektoren von \mathcal{Z}) mit

$$\begin{aligned} \mathbf{z}_{\cdot k_1} &= \begin{pmatrix} \frac{\partial n_A}{\partial k_1} \\ \frac{\partial n_B}{\partial k_1} \end{pmatrix}, \\ \mathbf{z}_{\cdot k_2} &= \begin{pmatrix} \frac{\partial n_A}{\partial k_2} \\ \frac{\partial n_B}{\partial k_2} \end{pmatrix}, \end{aligned} \quad (4.43)$$

die sich als Lösung zweier Anfangswertprobleme (4.12) beziehungsweise (4.14) ergeben. Die Ausgabe der Sensitivitätskoeffizienten durch *HYDKIN* erfolgt in Form der sogenannten *skalierten Sensitivitätskoeffizienten*, die wir aus der Multiplikation mit der Rate und Division durch die Konzentration erhalten. Der zur obigen geschlossenen Lösung gehörige skalierte Ratenkoeffizient für \mathcal{Z}_{11} lautet

$$\sigma_{11} = \frac{k_1}{n_A} \mathcal{Z}_{11} = \frac{-k_1}{k_1 + k_2} \frac{k_2 \left(1 - e^{-(k_1+k_2)t} \right) + k_1(k_1 + k_2)te^{-(k_1+k_2)t}}{k_1 e^{-(k_1+k_2)t} + k_2}. \quad (4.44)$$

Ferner ergibt sich

$$\lim_{t \rightarrow \infty} \sigma_{11} = \frac{-k_1}{k_1 + k_2} \quad (4.45)$$

als Grenzwert für $t \rightarrow \infty$.

Es erfolgt zur Verifikation des Lösungsverfahrens (4.27) sowohl eine Auswertung der gerade angeführten geschlossenen Lösung (4.44) für das konkrete System (3.5) als auch der geschlossenen und allgemeineren — in *HYDKIN* eingesetzten — Lösung über Eigenvektoren (4.27) auf dem Zeitintervall $[0, 5]$.

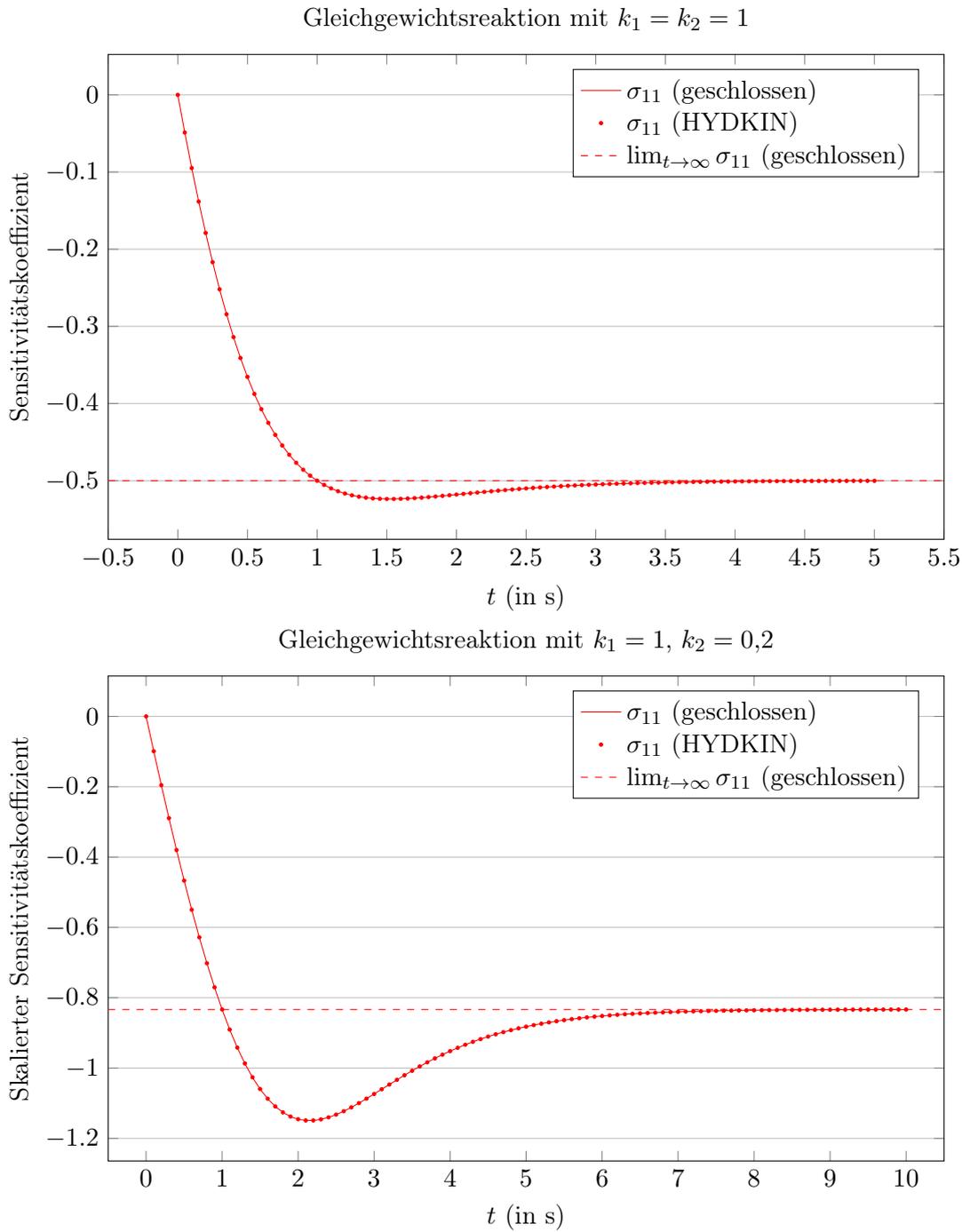


Abbildung 4.1: Zeitliche Entwicklungen des skalierten Sensitivitätskoeffizienten σ_{11} für verschiedene Reaktionsraten; die Niveaus der stationären Zustände für hinreichend großes t sind durch die horizontale Linie ebenfalls angedeutet.

4.6.2 Konsekutive Entwicklung

Der praktische Anwendungszweck konsekutiver (Zeit-)Entwicklungen der Sensitivitätskoeffizienten besteht in der geeigneten Modellierung einer Unsicherheitspropagation für zeitlich instationäre (bei zeitlicher Entwicklung) oder räumlich inhomogene (bei örtlichen Entwicklungen) Systeme, wie sie bereits unter Abschnitt 3.5 vorgestellt wurden. Es soll also dem Umstand Rechnung getragen werden, dass sich Unsicherheiten aus einer Entwicklung der Anfangswertprobleme von (4.14) auch in den Folgeentwicklungen mit anderen Hintergrundparametern fortpflanzen. Dabei hat der Entwicklungsprozess ein Gedächtnis, das von der letzten Entwicklung (Vergangenheit), allerdings nicht explizit von der Vorvergangenheit abhängt; er gehorcht also einem Kausalitätsprinzip.

Stationärer Plasmahintergrund Eine Verifikation der unter 4.4 vorgestellten Lösung zur zeitlich fortgesetzten Sensitivitätsanalyse mit der allgemeinen Anfangsbedingung

$$\mathbf{z}_{.k}(t = t_0) = \mathbf{z}_{.k,0} \quad (4.46)$$

erfolgt zunächst anhand eines stationären Plasmahintergrunds. Bei dem zugrundeliegenden Plasmamodell gemäß (3.15), an dem die Sensitivitätsanalyse durchgeführt wird, handelt es sich jedoch bereits um einen realistischen Testfall. Es folgt ein Vergleich der Sensitivitätsprofile für eine zusammenhängende sowie drei konsekutive Entwicklungen.

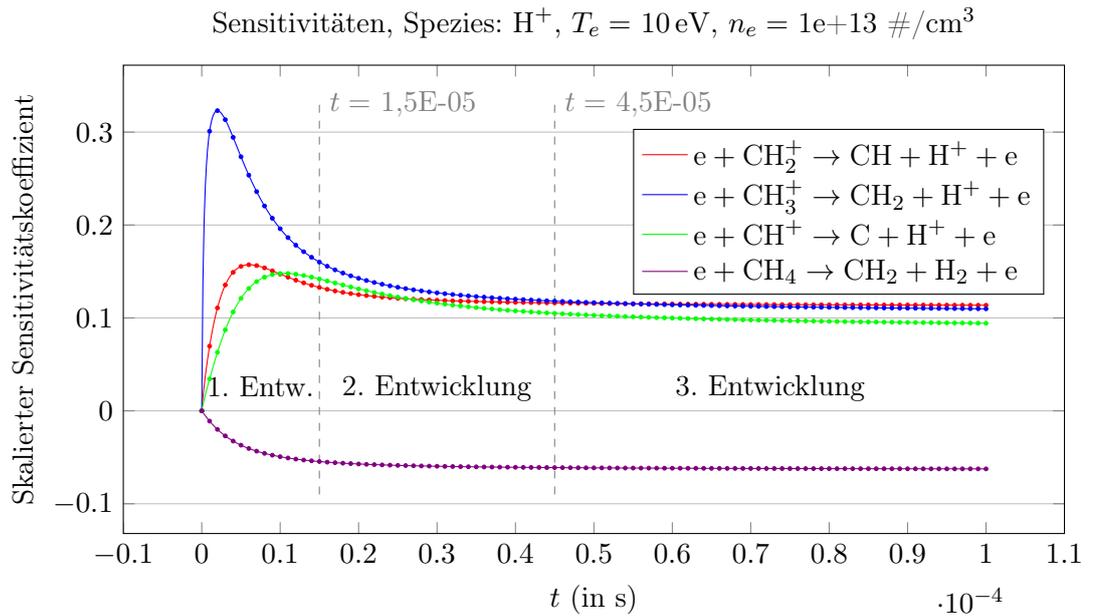


Abbildung 4.2: Drei Entwicklungen derselben skalierten Sensitivitätstrajektorien für die Zeitintervalle $[0; 1,5 \cdot 10^{-5}]$, $[1,5 \cdot 10^{-5}; 4,5 \cdot 10^{-5}]$, $[4,5 \cdot 10^{-5}; 1 \cdot 10^{-4}]$; die Fortentwicklung erfolgte an den Nahtstellen der Intervalle. Die markierten Punkte entsprechen Auswertungen einer einzigen Entwicklung über dem gesamten Zeitintervall und dienen der zusammengesetzten (durchgezogenen) Lösung als Referenz.

Instationärer Plasmahintergrund

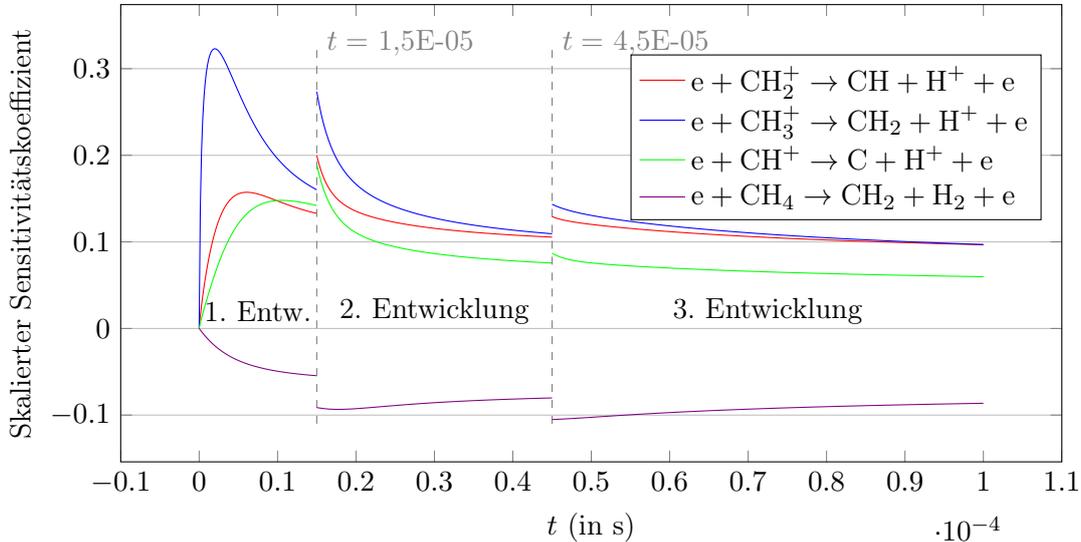
Sensitivitäten, Spezies: H^+ , $T_e = 10 \text{ eV} \rightarrow 15 \text{ eV} \rightarrow 20 \text{ eV}$, $n_e = 1\text{e}+13 \text{ \#/cm}^3$ 

Abbildung 4.3: Drei Entwicklungen derselben skalierten Sensitivitätstrajektorien für die Zeitintervalle $[0; 1,5 \cdot 10^{-5}]$, $[1,5 \cdot 10^{-5}; 4,5 \cdot 10^{-5}]$, $[4,5 \cdot 10^{-5}; 1 \cdot 10^{-4}]$ bei zeitlich instationärem Plasmahintergrund; die Variation des Plasmahintergrunds (hier: Temperatur) erfolgte an den markierten Nahtstellen der Zeitintervalle.

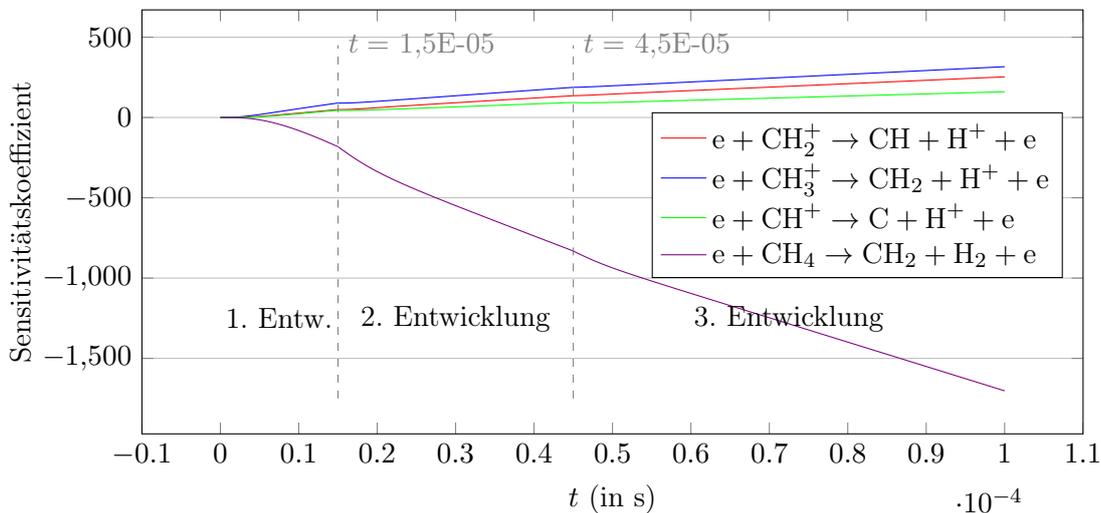
Sensitivitäten, Spezies: H^+ , $T_e = 10 \text{ eV} \rightarrow 15 \text{ eV} \rightarrow 20 \text{ eV}$, $n_e = 1\text{e}+13 \text{ \#/cm}^3$ 

Abbildung 4.4: Die zu Abbildung 4.3 gehörigen stetigen Trajektorien der absoluten, unskalierten Sensitivitäten

Wir haben im Zuge des Abschnitts 3.5 bereits herausgearbeitet, dass die Stetigkeit fortgesetzter Lösungen an den inneren Punkten selbst bei instationärem Plasmahintergrund durch geeignete Wahl der Anfangsbedingung stets gesichert werden kann. Während wir Abbildung 4.4 entnehmen können, dass für die unskalierten Sensitivitätskoeffizienten an einer beliebigen Nahtstelle $t = s$ die Stetigkeitsbedingung

$$\mathbf{z}_{.k}(t = s)_- = \mathbf{z}_{.k}(t = s)_+ \quad (4.47)$$

erfüllt wird, beobachten wir an der durch Fortentwicklung erzeugten globalen Lösung für die *skalierten* Sensitivitätskoeffizienten in Abbildung 4.3 ein interessantes Phänomen. Offensichtlich geht bei der Fortsetzung die Stetigkeit an den inneren Punkten verloren. Tatsächlich handelt es dabei nicht um eine Eigenart des gewählten Testbeispiels, sondern es gilt im allgemeinen Fall

$$\sigma_{ik}(t = s)_- \neq \sigma_{ik}(t = s)_+ \quad \text{für alle } i, k. \quad (4.48)$$

Die skalierten Sensitivitätskoeffizienten ergeben sich durch Multiplikation der unskalierten Sensitivitätskoeffizienten mit der Rate und Division durch die Konzentration. Während die Konzentration per Voraussetzung (siehe Abschnitt 3.5) immer stetig ist, sind es die Raten in unserem konkreten Modell mit konstanter Ratenmatrix im Allgemeinen nicht. Da die Reaktionsraten eng mit den physikalischen Eigenschaften des Plasmahintergrunds gekoppelt sind, stellen diese — durch die unstetige Variation des abschnittsweise als konstant angenommenen Plasmahintergrunds an den Nahtstellen — eine Stufenfunktion in der Zeit dar. Durch ihre Verwendung als Skalierungsfaktoren tragen sie dazu bei, dass auch die Lösungen an den Nahtstellen unstetig werden, während sie an allen anderen Stellen beliebig glatt sind — ein Zusammenhang, der sich in Abbildung 4.3 deutlich niederschlägt.

4.7 Funktionale

Während die Sensitivitätskoeffizienten $z_{ik} = \partial y_i / \partial \langle \sigma v \rangle_k$ als solche bereits Information über das zugrundeliegende Modell $\mathbf{y}(t, \mathbf{p})$ (3.15), (3.46) liefern, so treten sie auch häufig als Größen in komplexeren Problemen auf.

Es sei $f(\mathbf{y})(= f(y_1, \dots, y_n)) : \mathbb{R}^n \rightarrow \mathbb{R}$ ein skalares Funktional im Sinne einer Funktion auf den Lösungen unseres Plasmamodells (3.15). Die Größen $\partial f / \partial \langle \sigma v \rangle_k$ für alle k liefern einen quantitativen Zugang zu den (Stör-)Einflüssen der Modellparameter (hier Ratenkoeffizienten)

$$\mathbf{p} = \begin{pmatrix} \langle \sigma v \rangle_1 \\ \vdots \\ \langle \sigma v \rangle_{n_p} \end{pmatrix} \quad (4.49)$$

auf das Funktional. Häufig ist das Funktional f ein Güte- oder Kostenmaß, beschreibt also den Grad, zu dem die Argumente ein gewisses formales Ziel erfüllen. Wir stellen also

fest, dass der Gradient $\nabla_{\mathbf{p}}f$ neben der Untersuchung von Unsicherheitspropagation auch für Optimierungsprobleme wie $\min_{\mathbf{p}} f$ von Interesse ist.

Differenzieren liefert

$$\frac{\partial}{\partial \langle \sigma v \rangle_k} f(\mathbf{y}(t, \mathbf{p})) = \frac{\partial f}{\partial \mathbf{y}} \underbrace{\frac{\partial \mathbf{y}}{\partial \langle \sigma v \rangle_k}}_{\mathbf{z}_{\cdot k}}. \quad (4.50)$$

Die Jacobimatrix $\partial f / \partial \mathbf{y}$ ist als $(1 \times n)$ -Zeilenvektor und die partielle Sensitivität $\mathbf{z}_{\cdot k}$ als $(n \times 1)$ -Spaltenvektor aufzufassen; die Multiplikation liefert also eine skalare Komponente. Folglich erhalten wir

$$\nabla_{\mathbf{p}}f = \begin{pmatrix} \frac{\partial f}{\partial \mathbf{y}} \frac{\partial \mathbf{y}}{\partial \langle \sigma v \rangle_1} \\ \vdots \\ \frac{\partial f}{\partial \mathbf{y}} \frac{\partial \mathbf{y}}{\partial \langle \sigma v \rangle_{n_p}} \end{pmatrix}, \quad (4.51)$$

wobei die Bestimmung von $\partial f / \partial \mathbf{y}$ günstig ist und nur einmal durchgeführt werden muss. Die Bestimmung der Sensitivitäten ist hingegen deutlich teurer und muss für jeden Modellparameter separat, also insgesamt n_p -mal, durchgeführt werden.

Gilt $f(\mathbf{y}, \mathbf{p}) : \mathbb{R}^n \times \mathbb{R}^{n_p} \rightarrow \mathbb{R}$, ist f also selbst explizit von den Modellparametern abhängig, ergibt sich analog

$$\frac{\partial}{\partial \langle \sigma v \rangle_k} f(\mathbf{y}(t, \mathbf{p}), \mathbf{p}) = \frac{\partial f}{\partial \mathbf{y}} \underbrace{\frac{\partial \mathbf{y}}{\partial \langle \sigma v \rangle_k}}_{\mathbf{z}_{\cdot k}} + \frac{\partial f}{\partial \langle \sigma v \rangle_k} \quad (4.52)$$

Für unser konkretes Problem (3.15) verfügen wir zur Bestimmung der Sensitivitäten (4.12), (4.14) über eine analytische, über t auswertbare, Lösung (4.27). Nach einmal durchgeführter Sensitivitätsanalyse lässt sich der Gradient $\nabla_{\mathbf{p}}f$ sehr günstig aggregieren. Dies ist jedoch für komplexere Modelle nicht der Standardfall: nicht selten existieren geschlossen auswertbare Lösungen nicht oder sind wegen ihres erheblichen formalen Aufwands nicht handhabbar. In diesem Fall lässt sich $\nabla_{\mathbf{p}}f$ beispielsweise durch finite Differenzen [BraSU] numerisch approximieren. Da der Finite-Differenzen-Ansatz für einen großen Parametersatz numerisch sehr teuer wird, liefert eine Bestimmung mit Hilfe sogenannter *adjungierter* Gleichungssysteme (siehe Ausblick) eine effizientere Alternative.

5 Bewertung und Ausblick

5.1 Bewertung

Gewöhnliche Differentialgleichungen erlauben durch ihre geringen lösungstheoretischen Anforderungen und vergleichsweise gute analytische Handhabbarkeit ein sehr geradliniges methodisches Vorgehen. Aus diesem Grund hat sich diese Arbeit dem Anspruch verschrieben, vom absoluten Fundament der Lösungstheorie ausgehend, zunächst die Überlegungen, die in die Modellbildung eingeflossen sind, detailliert zu beleuchten und anschließend auf dieser Basis sowohl bei der Herleitung der Lösungsmethoden als auch bei der Ableitung von Aussagen über Systemeigenschaften möglichst deduktiv vorzugehen. An den Stellen, an denen induktive Annahmen ausgenutzt wurden, ist explizit darauf hingewiesen worden.

Das Ziel dieser Arbeit bestand in der theoretischen Ausarbeitung des mathematischen Überbaus zur Lösung des Plasmamodells (3.15), zu den Systemeigenschaften und schließlich zur Bestimmung der Parametersensitivitäten für zeitlich instationäre Plasmahintergründe. Es ist uns zunächst gelungen, für das Plasmamodell (3.15) eine geschlossene Lösungsmethode (3.46) über die Eigenwert-Eigenvektor-Paare der Ratenmatrix aufzustellen. Es konnte gezeigt werden, dass dieser Ansatz (3.32), (3.33) die Konstruktion eines vollständigen¹ Fundamentalsystems dann und nur dann erlaubt, wenn der lineare Operator in Gestalt der Ratenmatrix diagonalisierbar ist. Diese Eigenschaft kann mathematisch nicht garantiert werden. Durch das algebraische Spektrum der Ratenmatrix, welches das Spektrum der Zeitskalen abbildet, auf denen die skalaren Komponenten der Lösung abklingen, besitzt der Matrix jedoch einen charakteristischen algebraischen „Fingerabdruck“, dessen Übereinstimmung mit anderen Systemen äußerst unwahrscheinlich ist. Den algebraischen Vielfachheiten für Komponenten ohne Verlustmechanismus wurde durch einen zusätzlichen linearen Zeitterm Rechnung getragen. Es konnte zudem gezeigt werden, dass die Systeme des Plasmamodells (3.15) mindestens stabil — in besonderen Fällen sogar asymptotisch stabil — sind und Störungen der Modelleingaben somit auf lange Sicht nicht verstärkt — bei Vorliegen von asymptotischer Stabilität sogar gedämpft — werden. Ferner besitzen die Lösungen keine Periodizität.

Im Anschluss wurden die Grundlagen der Sensitivitätsanalyse ausgearbeitet. Die Sensitivitätskoeffizienten erster Ordnung (4.4) liefern über die ersten partiellen Ableitungen bezüglich der Modellparameter ihre direkten Einflussmomente auf die Komponenten der Lösung. Aufgrund des Zugangs zur propagierenden Störung über eine lineare Taylor-Approximation (4.3) und der damit verbundenen Nichtberücksichtigung der Einflussmomente zweiter und höherer Ordnung liefert das vorgestellte Verfahren zur Sensitivi-

¹Ein System mit n Freiheitsgraden erfordert n linear unabhängige Lösungen.

tätsanalyse nur dann belastbare Aussagen, wenn die Störung in den Modellparametern hinreichend klein ist. Wir haben festgestellt, dass sich die Sensitivitätsanalyse an (3.15) ebenfalls geschlossen über Eigenwert-Eigenvektor-Paare (4.27) durchführen lässt.

Hinsichtlich der zeitlichen Fortentwicklung der Sensitivitäten für zeitlich instationäre Plasmahintergründe wurde ein Lösungsalgorithmus entwickelt, der mit der allgemeinen Gestalt von (4.27) verträglich ist. Da Variationen des Plasmahintergrunds direkte Auswirkungen auf die algebraischen Eigenschaften der Ratenmatrix haben, werden sämtliche freien Koeffizienten der Lösung entsprechend angepasst. Während die Koeffizienten der partikulären Lösung an die Inhomogenitäten angepasst werden, fixieren die Koeffizienten der homogenen Lösung die Trajektorien anhand der allgemeinen Anfangsbedingung (4.29).

Die Verifikation der vorgestellten Verfahren erfolgte numerisch; einerseits anhand eines Testsystems mit zwei Freiheitsgraden (3.5), andererseits anhand realistischer Systeme für die Fragmentierung von Kohlenwasserstoffen. Wir konnten zeigen, dass der *HYDKIN*-Solver durchweg zufriedenstellende Ergebnisse liefert und die Entwicklung eines Verfahrens zur Fortsetzung in instationären Szenarien gelungen ist. Dies liefert die Grundlage für örtliche Entwicklungen bei räumlich inhomogenen Plasmahintergründen.

5.2 Ausblick

Das vorgestellte Verfahren zur Sensitivitätsanalyse arbeitet auf Basis einer Linearisierung der Unsicherheitsfortpflanzung und somit der Prämisse, dass die Unsicherheiten in den Modellparametern hinreichend klein sind. Kann dies nicht garantiert werden, liefert das in dieser Arbeit vorgestellte Vorgehen keine zuverlässigen quantitativen Aussagen mehr. Tieferes Verständnis der Beziehungen zwischen den Ratenkoeffizienten und den Modellprognosen könnte eine varianzbasierte Sensitivitätsanalyse liefern. Aufgrund des um ein Vielfaches höheren numerischen Aufwands wäre sie allerdings nicht für den Einsatz in der interaktiven Online-Umgebung des *HYDKIN*-Solvers geeignet, sondern eher als Instrument für kritische Parameterstudien prädestiniert.

Die *Forward Sensitivity Analysis* skaliert bei konstanter Anzahl Systemvariablen n und variabler Anzahl Modellparameter n_p mit $\mathcal{O}(n_p)$, da für eine umfassende Bestimmung aller Sensitivitätskoeffizienten n_p Anfangswertprobleme gelöst werden müssen, die sich aus der Differenzierung des Ursprungsproblems bezüglich aller zu berücksichtigenden n_p Modellparameter ergeben. Bei großem n_p liefert die sogenannte *Adjoint Sensitivity Method* einen effizienteren Zugang; dies ist insbesondere richtig, wenn die Anzahl an Systemvariablen ebenfalls groß ist [CLPS03], [BraSU]. Die Grundidee besteht darin, durch geschickte Umformung der Sensitivitätsgleichung ein System mit adjungiertem Operator² zu erhalten. Dieses adjungierte System, das der Methode ihren Namen gibt, ist selbst nicht explizit von den Modellparametern abhängig. Seine Lösung wird anschließend in das Ursprungsproblem eingesetzt, sodass der numerische Aufwand maßgeblich von der Anzahl der n Systemvariablen abhängt und mit $\mathcal{O}(n)$ skaliert.

²Da unsere Ratenmatrizen stets reellwertig sind, handelt es sich bei uns um den transponierten Operator.

Für die zeitliche Fortentwicklung der Sensitivitäten konnte eine Lösung entwickelt werden. Der nächste Schritt bestünde in der Übertragung des Verfahrens auf die örtliche Fortentwicklung, da räumlich stark inhomogene Plasmahintergründe in den für die Plasmaphysik relevanten Szenarien den Standardfall darstellen. Dies verlangt nach einem geeigneten Modell, dem die zeitliche Fortentwicklung die Grundlage liefert.

Literaturverzeichnis

- [AE06] Herbert Amann und Joachim Escher: *Analysis 2*. Birkhäuser, 2. Auflage, 2006, ISBN 9783764371050.
- [Bol96] Ludwig Boltzmann: *Vorlesungen über Gastheorie*. Verlag von Johann Ambrosius Barth, Leipzig, 1. Auflage, 1896.
- [CH52] C. F. Curtiss and J. O. Hirschfelder: *Integration of Stiff Equations*. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 38:235–243, 1952.
- [CL55] Earl A. Coddington and Norman Levinson: *Theory of Ordinary Differential Equations*. International Series in Pure and Applied Mathematics. McGraw-Hill, 1st edition, 1955.
- [CLPS03] Yang Cao, Shengtai Li, Linda Petzold, and Radu Serban: *Adjoint Sensitivity Analysis for Differential-Algebraic Equations: The Adjoint DAE System and its Numerical Solutions*. Siam J. Sci. Comput., 24:1076–1089, 2003.
- [IPP] Institut für Energie- und Klimaforschung (IEK-4 Plasmaphysik): *HYDKIN*. <http://www.hydkin.de/>. Zugriff: 05.08.2015.
- [FOM] Foundation for Fundamental Research on Matter: *Tokamak fusion reactor*. <http://www.fom.nl/live/english/news/archives/pressreleases2013/artikel.pag?objectnumber=215161>. Zugriff: 30.07.2015.
- [For08] Otto Forster: *Analysis 2: Differentialrechnung im \mathbb{R}^n , gewöhnliche Differentialgleichungen*. Vieweg+Teubner, 8. Auflage, 2008, ISBN 3528472316.
- [Heu04] Harro Heuser: *Lehrbuch der Analysis*, Band 2 der Reihe *Mathematische Leitfäden*. Teubner, 13. Auflage, 2004, ISBN 3519622327.
- [KS09] Wolfgang Kummerle und Markus Stroppel: *Lineare Algebra und Geometrie: für Ingenieure, Mathematiker und Physiker*. edition delkhofen, 3. Auflage, 2009, ISBN 3936413223.
- [MW97] Alan D. McNaught and Andrew Wilkinson: *Compendium of chemical terminology: IUPAC recommendations*. Oxford, Blackwell Scientific Publications, 2nd edition, 1997, ISBN 0865426848. Gold Book.
- [IUPAC] International Union of Pure und Applied Chemistry: *Gold Book*. <http://goldbook.iupac.org/>. Zugriff: 04.08.2015.

- [Pea86] Giuseppe Peano: *Sull'integrabilità delle equazioni differenziali del primo ordine*. Atti della R. Accademia delle Scienze di Torino, 21:437–445, 1886.
- [Pea90] Giuseppe Peano: *Démonstration de l'intégrabilité des équations différentielles ordinaires*. Mathematische Annalen, XXXVII:182–228, 1890.
- [RKJ09] D Reiter, B Küppers, and R K Janev: *Hydrocarbons in edge plasmas: a sensitivity analysis*. Physica Scripta, 2009.
- [Tes12] Gerald Teschl: *Ordinary Differential Equations and Dynamical Systems*. American Mathematical Society, 2012, ISBN 0821883283.
- [BraSU] Andrew M. Bradley (Stanford University): *PDE-constrained optimization and the adjoint method*. https://cs.stanford.edu/~ambrad/adjoint_tutorial.pdf. Zugriff: 14.08.2015.