

Modelos de crecimiento de burbujas en residuos radiactivos.

A. CARPIO¹, B. TAPIADOR¹

¹ *Dpto. Matemática Aplicada, Universidad Complutense, E-28040 Madrid. E-mails:
ana_carpio@mat.ucm.es, btapiador@mat.ucm.es.*

Palabras clave: Cinética discreta, Ondas no lineales, Ecuaciones integrodiferenciales.

Resumen

Se propone un modelo para el crecimiento de burbujas de helio en material nuclear que reproduce el comportamiento cualitativo observado experimentalmente para la distribución de tamaños de burbujas. El modelo tiene estructura de sistema infinito de ecuaciones diferenciales acopladas con una restricción no local y una fuente no acotada. Se sugiere una reformulación mediante transformadas de Laplace que reduce el sistema a una ecuación integrodiferencial para la densidad de monómeros y expresa las demás densidades como convoluciones de la densidad de monómeros con núcleos aproximables por gaussianas. Esta reformulación permite establecer resultados de existencia global y obtener información sobre propiedades cualitativas, así como sobre el impacto de distintos parámetros en la evolución de la población de burbujas, fundamentales para controlar su dinámica.

1. Introducción

La agregación molecular irreversible consiste en la absorción, por parte de un compuesto formado por k monómeros, de un nuevo monómero, de forma que no es posible disminuir el tamaño por pérdidas de masa. Algunos modelos cinéticos simples que representan este fenómeno aparecen en coagulación de coloides, fagocitosis de leucocitos y el crecimiento de burbujas de helio en residuos de plutonio, por ejemplo. En este trabajo, nos centraremos en este último caso, de gran importancia medioambiental. La acumulación de burbujas de helio en los contenedores de residuos radioactivos o armamento nuclear almacenado, desgasta las paredes de los contenedores y da lugar a vertidos radioactivos que contaminan el entorno de forma irreversible.

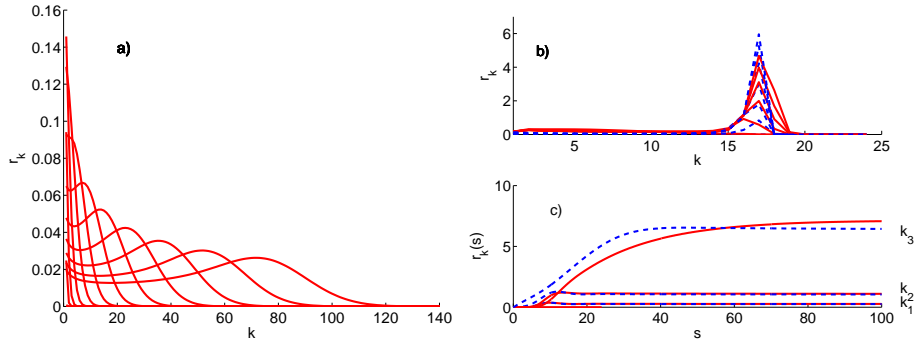


Figura 1: (a) Funciones de distribución r_k frente al tamaño de las burbujas k , con difusión constante. (b) Funciones de distribución r_k frente al tamaño de la burbuja, exactas (línea continua) y usando la aproximación gaussiana (línea discontinua), con difusión variable. (c) Funciones $r_k(s)$, para $k_1 = 15$, $k_2 = 16$, $k_3 = 17$, usando una aproximación gaussiana para las R_k (línea discontinua) y solución exacta (línea continua), con difusión variable.

Un modelo cinético simple para representar este proceso es el propuesto por Schaldach y Wolfer en [7]:

$$\frac{dr_k}{dt} = Dr_1 a_{k-1} r_{k-1} - Dr_1 a_k r_k, \quad k \geq 3, \quad (1)$$

$$\frac{dr_2}{dt} = 2Dr_1^2 a_1 - Dr_1 r_2 a_2, \quad (2)$$

$$r_1 + \sum_{k=2}^{\infty} k r_k = \int_0^{\bar{t}} g(t') dt', \quad (3)$$

donde r_k es la densidad de k -compuestos con radio crítico a_k , esto es, cuando el centro de un monómero y un k -compuesto distan menos de a_k el monómero es absorbido, formándose un $k + 1$ -compuesto. r_1 representa el número de monómeros por unidad de volumen. D es el coeficiente de difusión, constante en este modelo. Se considera que la densidad inicial de átomos de helio es nula y que existe una fuente productora de los mismos que representaremos mediante una función g . Las ecuaciones (1) y (2) reflejan la tasa de creación de k -meros, mientras que la ecuación (3) indica que el número total de átomos de helio distribuidos entre los distintos tipos de burbuja es igual al número total de átomos creados por la fuente g . Además se postula que el radio crítico se comporta como $a_k = a_1 k^{1/3}$ y se toma la función fuente como $g(t) = 1$.

Resolviendo el problema numéricamente y representando en una gráfica las distribuciones adimensionales de burbujas de tamaño k , r_k , frente a dicho tamaño obtenemos el resultado mostrado en la Figura 1 (a). Como se puede observar el tamaño de las burbujas crece sin límite, mientras que las medidas experimentales indican la existencia de un tamaño máximo por debajo del cual crece el número de burbujas. Nos encontramos así con la necesidad de modificar ligeramente el modelo presentado, para ver reflejada en el nuevo esta observación experimental.

En la Sección 2 proponemos una variante que reproduce el comportamiento asintótico deseado. Al reformularla mediante transformadas de Laplace obtenemos fórmulas ex-

plícitas y aproximaciones de la solución en la Sección 3. La Sección 4 recoge resultados de existencia global y positividad. La Sección 5 describe los esquemas utilizados en la resolución de los problemas integrodiferenciales involucrados.

2. Un modelo con tamaño crítico

Consideraremos un coeficiente de difusión variable con el tamaño de las burbujas $D(k) = \frac{1}{2}(\tanh(K_c - k) + 1)$, donde K_c representará el tamaño crítico que pueden alcanzar. Las nuevas ecuaciones son:

$$\frac{dr_k}{dt} = (k-1)^{1/3}D(k-1)cr_{k-1} - (k)^{1/3}D(k)cr_k, \quad k \geq 3, \quad (4)$$

$$\frac{dc}{dt} = 2D(1)c^2 - 2^{1/3}D(2)cr_2, \quad (5)$$

$$c = t - \sum_{k=2}^{\infty} kr_k, \quad (6)$$

siendo $c = r_1$ la densidad de monómeros. Con el cambio de variable $s = \int_0^t c(t')dt'$ tenemos:

$$\frac{dr_k}{ds} = (k-1)^{1/3}D(k-1)r_{k-1} - k^{1/3}D(k)r_k, \quad k \geq 3, \quad (7)$$

$$\frac{dr_2}{ds} = 2D(1)c - 2^{1/3}D(2)r_2, \quad (8)$$

$$\frac{dc}{ds} + 4cD(1) + M_{\frac{1}{3}} = \frac{1}{c}, \quad M_{\frac{1}{3}} = \sum_{k=2}^{\infty} k^{\frac{1}{3}}D(k)r_k, \quad (9)$$

$$\frac{dt}{ds} = \frac{1}{c}, \quad (10)$$

con las condiciones iniciales $c(0) = 0$, $r_k(0) = 0$, $k \geq 2$. El cambio de variable transforma el sistema no lineal de partida en un sistema lineal, pero con una singularidad en $s = 0$.

El sistema en la variable t puede tener carácter rígido al trabajar con la restricción (6), por lo que su resolución numérica puede ser más sencilla reemplazando esta restricción por la ecuación diferencial para c :

$$\frac{dc}{dt} + 4c^2D(1) + cM_{\frac{1}{3}} = 1. \quad (11)$$

Al resolver las ecuaciones (4), (5), (6), observamos un tamaño crítico para k que las burbujas no rebasan. Por debajo de dicho tamaño, aumenta continuamente el número de burbujas con k átomos, véase la Figura 1 (b).

3. Aproximación mediante transformadas de Laplace

Con el fin de obtener información analítica sobre las soluciones del nuevo modelo, se puede pensar en recurrir a límites continuos cuando $k \rightarrow 0$. Obtenemos una ecuación en derivadas parciales de tipo ley de conservación para la distribución $r(k, s)$ complementada con una restricción integral que incorpora la fuente $g(t) = 1$ y una condición de contorno

en términos de c . Las aproximaciones que proporciona este límite continuo se construyen a partir de soluciones autosimilares aproximadas que explotan en sus extremos y resultan ser bastante pobres. Esto indica que se debieran incorporar derivadas de orden superior en la aproximación pero la ecuación resultante carece entonces de soluciones con una expresión analítica sencilla, con lo cual se ha de resolver numéricamente y no se gana nada respecto al modelo discreto.

Un estrategia más fructífera consiste en tomar transformadas de Laplace respecto a la variable s . Con ello conseguimos expresar las distribuciones de tamaños $r_k(s)$, $k \geq 2$, como convoluciones con la distribución de monómeros $r_1(s) = c(s)$. Los núcleos de convolución dependen de k y se calculan invirtiendo la transformada de Laplace de funciones con una expresión analítica conocida. A partir de ahí, conseguimos desacoplar el sistema discreto y obtener una ecuación integrodiferencial para la evolución de la población de monómeros, con lo que se cierra la aproximación. La estructura de esos núcleos permite aproximarlos por deltas de Dirac centradas en torno a su media o bien por gaussianas y esto proporciona aproximaciones con expresiones más sencillas.

Las ecuaciones transformadas son:

$$2^{\frac{1}{3}} D(2) \hat{r}_2(\sigma) = \frac{2D(1)}{1 + \sigma 2^{\frac{-1}{3}} D(2)^{-1}} \hat{c},$$

$$k^{\frac{1}{3}} D(k) \hat{r}_k(\sigma) = \frac{(k-1)^{\frac{1}{3}} D(k-1)}{1 + \sigma k^{\frac{-1}{3}} D(k)^{-1}} \hat{r}_{k-1}, \quad k \geq 3.$$

Por recurrencia tenemos:

$$k^{\frac{1}{3}} D(k) \hat{r}_k = 2\hat{c} D(1) \hat{R}_k,$$

donde

$$\hat{R}_k(\sigma) = \prod_{j=2}^k \frac{1}{1 + \sigma j^{\frac{-1}{3}} D(j)^{-1}}. \quad (12)$$

Invirtiendo la transformada de Laplace se expresan las soluciones r_k en función las transformadas inversas R_k de \hat{R}_k :

$$r_k(s) = \frac{2D(1)}{k^{\frac{1}{3}} D(k)} \int_0^s R_k(s-s') c(s') ds', \quad k \geq 2 \quad (13)$$

con

$$R_k(t) = \lim_{L \rightarrow \infty} \frac{1}{2\pi i} \int_{-iL}^{iL} e^{st} \hat{R}_k(s) ds = \lim_{L \rightarrow \infty} \frac{1}{2\pi} \int_{-L}^L e^{its} \hat{R}_k(is) ds. \quad (14)$$

Insertando en la definición de $M_{\frac{1}{3}}$ la fórmula (13) y sustituyendo en (9) obtenemos la siguiente ecuación integrodiferencial para la concentración de monómeros c , que debe ser resuelta usando la condición inicial $c(0) = 0$:

$$c \frac{dc}{ds} + 4D(1)c^2 + 2D(1)c \int_0^s \left[\sum_{k=2}^{\infty} R_k(s-s') \right] c(s') ds' = 1. \quad (15)$$

La fórmula (13) junto con la ecuación (15) nos dan una reformulación exacta del sistema infinito de ecuaciones diferenciales acopladas (7)-(9). La ecuación integrodiferencial

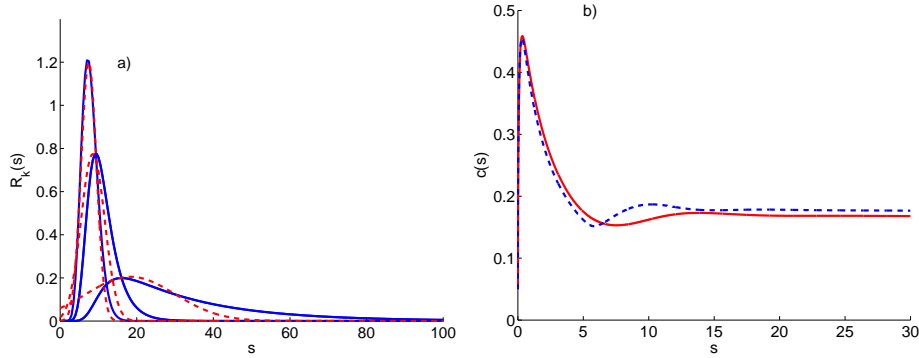


Figura 2: (a) Aproximación gaussiana para los núcleos R_k (línea discontinua) comparada con los núcleos originales (línea continua), para $k_1 = 12$, $k_2 = 15$, $k_3 = 16$ y $k_4 = 17$ con coeficiente de difusión variable. (b) Comparación de la densidad de monómeros c calculada numéricamente a partir del sistema original (línea continua) y a partir de la ecuación aproximada (15) (línea discontinua).

para c es muy costosa de resolver, pues el núcleo integral lo forma una serie infinita de transformadas de Laplace inversas que han de calcularse numéricamente. Podemos obtener ecuaciones aproximadas menos costosas proponiendo expresiones aproximadas para los núcleos R_k .

La Figura 2 (a) sugiere aproximar las funciones R_k por funciones delta centradas en torno a su media $a(k) = \int_0^k \frac{d\tilde{k}}{\tilde{k}^{\frac{1}{3}} D(\tilde{k})}$. Por tanto, r_k será:

$$r_k(s) = \frac{2D(1)}{k^{\frac{1}{3}} D(k)} \int_0^s \delta(s - s' - a(k)) c(s') ds' = \frac{2D(1)}{k^{\frac{1}{3}} D(k)} c(s - a(k)) \theta(s - a(k)), \quad (16)$$

siendo θ la función de Heaviside. La ecuación integrodiferencial para c se reduce a

$$c \frac{dc}{ds} + 4c^2 D(1) + 2D(1)c \int_0^s (a^{-1}(s - s'))^{1/3} D(a^{-1}(s - s')) c(s') ds' = 1, \quad (17)$$

aproximando sumas por integrales y efectuando el cambio de variable $s' = s - a(k)$, $k = a^{-1}(s - s')$, $dk = -(a^{-1})'(s - s') ds'$. Nótese que a^{-1} se puede calcular resolviendo la ecuación

$$\frac{da^{-1}(k)}{dk} = (a^{-1}(k))^{1/3} D(a^{-1}(k))$$

partiendo de $a^{-1}(0) = 0$.

La Figura 2(b) compara los valores de $c(s)$ obtenidos a partir del sistema discreto y de la aproximación (17). La aproximación es aceptable. No así la proporcionada por (16) para las distribuciones de tamaños grandes. Los resultados mejoran proponiendo aproximaciones de orden más alto para R_k , de estructura gaussiana $R(k, s) = \frac{1}{(4\pi\alpha(k)k)^{\frac{1}{2}}} e^{-\frac{(\beta s - \epsilon(k))^2}{4\alpha(k)k}}$ como puede verse en la Figura 1 (b)-(c).

4. Resultados de existencia y positividad

En esta sección vamos a justificar la existencia y unicidad de solución de nuestro problema. Utilizaremos el sistema diferencial de dimensión infinita en la variable t para establecer existencia local. A continuación, la formulación integro-diferencial nos permite establecer la positividad de c , lo que garantiza que el cambio de variable de t a s está bien definido pues s es una función creciente de t . Finalmente, recurrimos al sistema diferencial en la variable s para establecer existencia global.

4.1. Existencia local

El sistema (4)-(5) y (11) se expresa en forma matricial' como sigue:

$$Y' = F(t, Y), \quad Y(t_0) = Y_0$$

con $Y = (r_1, \dots, r_k, \dots)^T$, $t_0 = 0$, $Y_0 = \bar{0}$ y $F(t, Y) = r_1 AY + G(t)$, siendo:

$$A = \begin{pmatrix} -4D(1) & -2^{\frac{1}{3}}D(2) & -3^{\frac{1}{3}}D(3) & \cdot & \cdot & -k^{\frac{1}{3}}D(k) & \cdot \\ 2D(1) & -2^{\frac{1}{3}}D(2) & 0 & \cdot & \cdot & 0 & \cdot \\ 0 & 2^{\frac{1}{3}}D(2) & -3^{\frac{1}{3}}D(3) & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & 0 & \cdot \\ 0 & \cdot & 0 & (k-1)^{\frac{1}{3}}D(k-1) & -k^{\frac{1}{3}}D(k) & \cdot & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot & \cdot \end{pmatrix},$$

y

$$G(t) = (1, 0, \dots, 0, \dots)^T.$$

La existencia y unicidad local de solución de este problema, es consecuencia de resultados para espacios en dimensión infinita con fuentes localmente lipschitzianas (véase [3]). Tenemos así el siguiente resultado [6]:

Teorema 1. *Existe una única solución del problema (4)-(6), con condiciones iniciales $c(0) = 0$ y $r_k(0) = 0, k \geq 2$, definida hasta un tiempo $T_0 > 0$.*

4.2. Positividad

La ecuación (11) y el hecho de partir de datos iniciales nulos garantizan que $c = r_1$ es positiva durante un cierto tiempo. Podemos definir el cambio de variable $\frac{ds}{dt} = c(s)$ y $s(t)$ es positiva y creciente durante ese tiempo. Esto nos permite reescribir el sistema (4), (5), (11) en función de la variable s y aplicar la transformada de Laplace como se hizo en la Sección 3 al derivar la ecuación integro-diferencial (15) para c . Esta ecuación nos garantiza que c no puede anularse para s positivo. Si $c(s_0) = 0$, $s_0 > 0$, entonces

$$\frac{dc}{ds}(s_0) + \int_0^{s_0} \sum_{k=2}^{\infty} R_k(s-s')c(s')ds = \frac{1}{c(s_0)} = \infty,$$

lo cual es imposible, ya que la integral en un intervalo finito de una función acotada es finita y la derivada en s_0 también lo es. Por tanto, c es siempre positivo y $s(t)$ es una función

positiva y creciente. Como los núcleos R_k son positivos, (13) implica que $r_k, k > 2$, son también positivas. Hemos probado que

Teorema 2. *La solución $c = r_1$ de (15) que arranca de $c(0) = 0$ y las funciones r_k definidas por (13) son positivas si los núcleos R_k son positivos y la serie $\sum_{k=2}^{\infty} R_k$ es finita.*

Podemos entonces trabajar con las ecuaciones

$$\frac{dc}{dt} + 4D(1)c^2 + 2D(1)c \int_0^t \left[\sum_{k=2}^{\infty} R_k(s(t) - s(t')) \right] c^2(s(t')) dt' = 1, \quad (18)$$

$$\frac{ds}{dt} = c(t), \quad (19)$$

que se pueden utilizar alternativamente para dar resultados de existencia para c (y consecuentemente, para r_k gracias a (13)). Basta reescribir (18) y (19) como una ecuación integral de Volterra:

$$V(t) = \int_0^t G(t, t', V(t')) dt', \quad V(t_0) = V_0.$$

Usando resultados clásicos para integrandos localmente lipschitzianos (véase [2]) se prueba la existencia local de solución [6]:

Teorema 3. *La ecuación integro-diferencial (15) tiene solución única para $t \leq T_0$.*

Además, por el método de las aproximaciones sucesivas, si definimos la sucesión $V_0 = \bar{0}$, $V_m = \int_0^t G(t, t', V_{m-1}) dt'$, $m \geq 1$ tenemos que $V(t) = \lim_{m \rightarrow \infty} V_m(t)$.

4.3. Existencia global

Una vez establecida la existencia local, la positividad de c y la corrección del cambio de variable $s(t)$, tomamos como nuevo dato inicial los valores $r_k(\tau)$, $k = 1, 2, \dots$ en un tiempo τ en el que $c(\tau) = r_1(\tau) \neq 0$. Podemos entonces considerar un nuevo problema de valores iniciales (7)-(9) en la variable s . Por la teoría clásica de ecuaciones diferenciales ordinarias, sabemos que una solución local se puede extender hasta un tiempo maximal. Se tienen dos opciones, o ese tiempo maximal es infinito y tenemos existencia global, o es finito y la solución explota en el sentido de que alguna norma de la solución tiende a infinito al acercarse a ese tiempo.

Manteniendo la notación de la Sección 4.1, en la variable s se tiene el problema de valor inicial:

$$Y' = F(s, Y), \quad Y(s_0) = Y_0$$

con $Y = (r_1, \dots, r_k, \dots)^T$, $Y_0 = Y(\tau)$ y $F(s, Y) = AY + G(s)$, con $G(s) = (\frac{1}{r_1(s)}, 0, \dots, 0, \dots)^T$. Si $G(s) = 0$, tenemos un problema lineal en un espacio Banach de dimensión infinita y la existencia de solución global está garantizada (véase [3]).

Cuando $G(s) = \frac{1}{r_1}$, el problema se puede reescribir como

$$Y(s) = S(s)Y(\tau) + \int_0^s S(s - s') \left(\frac{1}{r_1(s')}, 0, \dots, 0 \right)^T ds', \quad (20)$$

donde $S(s)Z$ es la solución del problema lineal con dato inicial Z y $G = 0$. Supongamos por reducción al absurdo que $Y(s) \rightarrow \infty$ cuando $s \rightarrow s_1$. Por las propiedades del operador

S y la expresión integral (20), esto sólo puede ocurrir si la fuente $\frac{1}{r_1(s)}$ tiende a infinito en tiempo finito y esto requiere que r_1 se anule en tiempo infinito, lo que es imposible. Hemos probado que:

Teorema 4. *El sistema (7)-(9) con datos iniciales nulos tiene una única solución definida para todo $t > 0$.*

5. Esquemas numéricos

El sistema de infinitas ecuaciones diferenciales acopladas se resuelve truncando a un sistema finito e imponiendo una condición de contorno nula en la frontera artificial $k = K$, K suficientemente grande. El sistema truncado se aproxima por métodos Runge-Kutta de paso variable, como RKF45.

La ecuación integrodiferencial (15) se resuelve discretizando la integral mediante la regla del trapecio compuesta y la ecuación diferencial con un Runge-Kutta de orden 2, con el mismo paso. El uso de métodos de orden más alto no permite recurrir a pasos grandes por cuestiones de inestabilidad, por lo que elegimos esquemas de orden bajo, que son los que permiten usar pasos mayores [4, 5].

Agradecimientos

Este trabajo ha sido financiado por los proyectos MAT2005-05730-C02-02 del MEC, BSCH/UCM PR27/05-13939 y CM-910143 de la Comunidad de Madrid.

Referencias

- [1] L.L. Bonilla, A. Carpio, J.C. Neu, W.G. Wolfer, *Kinetics of helium bubble formation in nuclear materials*, Physica D 222, 131-140, 2006.
- [2] C. Corduneanu, *Integral Equations and Applications*, Cambridge Univ. Press, Cambridge, 1991.
- [3] T.M. Flett, *Differential Analysis*, Cambridge Univ. Press, Cambridge, 1980.
- [4] P. Linz, *Linear multistep methods for Volterra integro-differential equations*, J. Assoc. Comput. Mach., 16, 295-301, 1969.
- [5] W.L. Mokarsky, *Convergence of step-by-step methods for nonlinear integro-differential equations*, J. Inst. Math. Appl. 8, 235, 1971.
- [6] B. Tapiador, *Ondas discretas y aplicaciones al crecimiento de burbujas de helio en plutonio*, Trabajo de DEA, UCM, 2007.
- [7] C.M. Schaldach, W.G. Wolfer, *Kinetics of Helium bubble formation in nuclear and structural materials*, in *Effects of Radiation Materials: 21st Symposium*. M.L. Grossbeck; T.R. Allen; R.G. Lott; A.S. Kumar, eds ASTM STP 1447, ASTM International, West Conshohocken.