

# **ECUACIONES DE REACCIÓN-DIFUSIÓN ACOPLADAS PARA MODELAR LA LIBERACIÓN DE GAS DE FISIÓN EN LA IRRADIACIÓN DEL DIÓXIDO DE URANIO.**

Moyano E. A., Scarpettini A. F.

Centro Atómico Constituyentes - Comisión Nacional de Energía Atómica.

Av. Gral. Paz 1499, (1650) San Martín, Prov. Buenos Aires, Argentina.

e-mail: emoyano@cnea.gov.ar

## **RESUMEN**

Se investiga un modelo semilineal de ecuaciones parabólicas débilmente acopladas, con reacción-difusión. El sistema describe la transferencia de gas de fisión del interior de grano de  $\text{UO}_2$  a los bordes del mismo. El problema es estudiado en un dominio acotado. Usando el método de las soluciones superiores e inferiores, se construyen dos sucesiones monótonas para las ecuaciones en diferencias finitas. Se mencionan las razones por las cuales es posible afirmar que en el sector funcional nombrado el algoritmo converge a la única solución del sistema diferencial.

El presente trabajo tiene por objeto resolver numéricamente un modelo diferencial que describe la liberación de gas de fisión, generado durante la irradiación del combustible  $\text{UO}_2$ .

La importancia de predecir y estimar la cantidad de gases de fisión (principalmente xenón y kriptón), producidos y liberados durante la irradiación de combustibles nucleares, radica en la manera en que afectan el rendimiento del combustible y la seguridad de la operación. Estos pueden ocasionar un aumento en la temperatura de la barra, con la consecuente posibilidad de fallas y liberación de estos productos a la atmósfera [1].

Este modelo de liberación de gas de fisión está basado en un trabajo presentado por White y Tucker [2]. El modelo tiene en cuenta los siguientes mecanismos: difusión de átomos de gas al borde de grano considerando el efecto de atrapamiento en burbujas intragranulares, efecto de barrido del borde de grano, disolución de átomos de gas en el interior del grano desde las burbujas del borde de grano, y liberación de átomos de gas desde el combustible debido al exceso de saturación en el borde.

El modelo asume que el  $\text{UO}_2$  es una colección de granos esféricos. Los gases de fisión producidos en un grano son transportados al borde de grano mediante la difusión atómica. Las burbujas de gas intragranular son consideradas como un lugar donde se atrapan átomos, y su tamaño y densidad son controlados por la temperatura del combustible. Estas burbujas intragranulares se consideran inmóviles en este modelo. Cuando el grano crece, los átomos del gas de fisión dentro del grano son arrastrados por el movimiento del borde de grano. Los átomos liberados son acumulados en las burbujas del borde de grano, y su número está limitado por su capacidad de almacenamiento debido a que estas burbujas eventualmente se tocan y pierden su gas en el volumen libre

del combustible. Cuando el número de átomos de gas en el borde alcanza su saturación, cualquier átomo que llegue al borde será liberado desde el combustible. Se asume que los átomos de gas en el borde vuelven al grano por el proceso de disolución inducida por irradiación, y continúan su difusión.

Todo el gas generado en un tiempo  $t$ , que no está en el borde de grano, es contenido dentro de él, tanto en solución como en burbujas intragranulares. La ecuación de difusión en una esfera de radio  $a$ , teniendo en cuenta que atrapa átomos y los disuelve, es descrita por Speight de la siguiente forma:

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \left( \frac{\partial^2 c}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial c}{\partial r} \right) - g c + b' m + \beta \quad (1)$$

$$\frac{\partial m}{\partial t} = g c - b' m$$

donde  $c$  es la concentración de átomos de gas en solución,  $D$  es el coeficiente difusivo de un átomo de gas,  $g$  es la probabilidad de un átomo de gas en solución de ser capturado por una burbuja,  $b'$  es la probabilidad de un átomo de gas dentro de una burbuja de ser redisolto,  $m$  es la cantidad de gas por unidad de volumen en las burbujas,  $\beta$  es la razón de producción de gas por unidad de volumen, y  $r$  es el radio de la burbuja [3]. La segunda ecuación expresa el balance para el gas atrapado.

Este modelo pertenece a la categoría de sistemas parabólicos acoplados. Está compuesto por una ecuación diferencial parcial parabólica semilineal y una ecuación ordinaria, es decir, esta última con operador difusivo nulo [4].

La difusión en una esfera se estudia como problema parabólico de condiciones iniciales  $c_0(r)$  y  $m_0(r)$  y condición de borde dada por:

$$\left. \frac{\partial c}{\partial r} \right|_{r=0} = 0 \quad ; \quad c(r=a) = 0 \quad (2)$$

Adimensionalizando el sistema:

$$x = \frac{r}{a} \quad ; \quad \tau = \frac{Dt}{a^2} \quad (3)$$

y llamando:

$$G = \frac{g a^2}{D} \quad ; \quad B = \frac{b' a^2}{D} \quad ; \quad \beta' = \frac{\beta a^2}{D} \quad (4)$$

resulta el sistema acoplado:

$$\frac{\partial c}{\partial \tau} = \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \frac{2}{x} \frac{\partial c}{\partial x} - G c + B m + \beta'$$

$$\frac{\partial m}{\partial \tau} = G c - B m$$
(5)

Mediante la transformación:

$$u = \frac{x c}{c_0} \quad ; \quad v = \frac{x m}{c_0} \quad ; \quad \alpha = \frac{\beta'}{c_0}$$
(6)

con  $c_0 = c + m \Big|_{r=0; t=0}$ , resulta el sistema sin término convectivo:

$$\frac{\partial u}{\partial \tau} = \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} - G u + B v + \alpha x$$

$$\frac{\partial v}{\partial \tau} = G u - B v$$
(7)

con las condiciones de borde:

$$u(x = 0) = u(x = 1) = 0$$
(8)

y condiciones iniciales:

$$u(\tau = 0) = u_0 x(1 - x^2)$$
(9.a)

para la ecuación parabólica; y:

$$v(\tau = 0) = v_0 x(1 - x^2)$$
(9.b)

para la ecuación ordinaria.

Varios fenómenos de la naturaleza, como la propagación de los impulsos nerviosos en el campo de la biología y fenómenos de combustión en la físico-química, se modelan con sistemas de ecuaciones diferenciales parciales parabólicas con función de reacción. El presente modelo interesa a la tecnología nuclear y fue propuesto inicialmente por Speight [5]. Los trabajos sobre su resolución que se han podido consultar, se refieren al caso en que la ecuación diferencial ordinaria se independiza del tiempo.

El sistema consta, como se ha dicho, de una ecuación diferencial parcial parabólica con función de reacción, acoplada débilmente con una ecuación diferencial ordinaria también con función de reacción. Se puede pensar como un sistema parabólico acoplado con operador  $L_2 = 0$ , similar a los problemas en que la difusión es muy baja [6].

Se denomina sector funcional, en el presente trabajo, a la colección de funciones  $(u, v)$  tales que  $(\hat{u}, \hat{v}) \leq (u, v) \leq (\tilde{u}, \tilde{v})$ , donde  $(\hat{u}, \hat{v})$  es “solución inferior” y  $(\tilde{u}, \tilde{v})$  “solución superior” [7].

Se dice que el sistema  $(f_1, f_2)$  es cuasi-monótono no decreciente si  $\partial f_1 / \partial v \geq 0$  y  $\partial f_2 / \partial u \geq 0$ . Además,  $(\tilde{u}, \tilde{v})$  es una solución superior del problema

$$\begin{aligned} u_t - D u_{xx} &= f_1(u, v) \\ v_t &= f_2(u, v) \end{aligned} \quad (10)$$

si:

$$\begin{aligned} \tilde{u}_t - D \tilde{u}_{xx} &\geq f_1(\tilde{u}, \tilde{v}) \\ \tilde{v}_t &\geq f_2(\tilde{u}, \tilde{v}) \end{aligned} \quad (11.a)$$

así como  $(\hat{u}, \hat{v})$  es solución inferior si:

$$\begin{aligned} \hat{u}_t - D \hat{u}_{xx} &\leq f_1(\hat{u}, \hat{v}) \\ \hat{v}_t &\leq f_2(\hat{u}, \hat{v}) \end{aligned} \quad (11.b)$$

Además se deben cumplir estas desigualdades en las condiciones de borde e iniciales ( $B$  es operador de borde):

$$\begin{aligned} B \tilde{u} &\geq B u \geq B \hat{u} \\ \tilde{u}(x, 0) &\geq u_0 \geq \hat{u}(x, 0) \\ \tilde{v}(x, 0) &\geq v_0 \geq \hat{v}(x, 0) \end{aligned} \quad (12)$$

Como se afirma al principio, la función de reacción del sistema  $(f_1, f_2)$ , es lipschitziana, ya que suponiendo  $u_1 \geq u_2$  y  $v_1 \geq v_2$ :

$$\begin{aligned} |f_1(u_1, v_1) - f_1(u_2, v_2)| &= \left| -G u_1 + B v_1 + \alpha x - (-G u_2 + B v_2 + \alpha x) \right| \\ &= \left| -G(u_1 - u_2) + B(v_1 - v_2) \right| \\ &\leq G |u_1 - u_2| + B |v_1 - v_2| \\ &\leq K_L \{ |u_1 - u_2| + |v_1 - v_2| \} \end{aligned} \quad (13.a)$$

con  $K_L = \max\{G, B\}$ . Del mismo modo es:

$$\begin{aligned} |f_2(u_1, v_1) - f_2(u_2, v_2)| &= \left| G u_1 - B v_1 - (G u_2 - B v_2) \right| \\ &= \left| G(u_1 - u_2) - B(v_1 - v_2) \right| \\ &\leq G |u_1 - u_2| + B |v_1 - v_2| \\ &\leq K_L \{ |u_1 - u_2| + |v_1 - v_2| \} \end{aligned} \quad (13.b)$$

El carácter lipschitziano de la fuente  $(f_1, f_2)$  permite afirmar que se cumplen las dos condiciones que se nombran a continuación [1], que permiten afirmar la existencia de funciones  $\underline{c}_i(x, t)$  y  $\bar{c}_i(x, t)$ ,  $i = 1, 2$  tales que:

$$\begin{aligned} f_1(u_1, v_1) - f_1(u_2, v_1) &\leq \bar{c}_1(u_1 - u_2), & u_1 &\geq u_2 \\ f_2(u_1, v_1) - f_2(u_1, v_2) &\leq \bar{c}_2(v_1 - v_2), & v_1 &\geq v_2 \end{aligned} \quad (14.a)$$

y

$$\begin{aligned} f_1(u_1, v_1) - f_1(u_2, v_1) &\geq -\underline{c}_1(u_1 - u_2), & u_1 &\geq u_2 \\ f_2(u_1, v_1) - f_2(u_1, v_2) &\geq -\underline{c}_2(v_1 - v_2), & v_1 &\geq v_2 \end{aligned} \quad (14.b)$$

en la zona delimitada por  $(\tilde{u}, \tilde{v})$  y  $(\hat{u}, \hat{v})$ . Las condiciones (14.a) aseguran la existencia de solución  $(u, v)$  del sistema diferencial y las condiciones (14.b) la unicidad de la misma. La teoría de la resolución de sistemas acoplados de reacción-difusión supone que las funciones  $\underline{c}_i(x, t)$  y  $\bar{c}_i(x, t)$  son continuas Hölder [8] en el dominio del plano  $(x, t)$  de interés  $(\bar{D}_T)$ , de modo tal que:

$$\begin{aligned} F_1(u, v) &= \underline{c}_1(x, t)u + f_1(u, v) \\ F_2(u, v) &= \underline{c}_2(x, t)v + f_2(u, v) \end{aligned} \quad (15)$$

resultan continuas Hölder en  $\bar{D}_T \times \langle (\tilde{u}, \tilde{v}), (\hat{u}, \hat{v}) \rangle$  y monótonas no decrecientes ( $F_1$  en  $u$  y  $F_2$  en  $v$ ).

Interesa realizar experiencias numéricas que verifiquen algunas aseveraciones teóricas de interés en el presente tema, como son el determinar algún sector funcional inicial y comprobar que existe y es única la solución del problema parabólico cuando el tiempo tiende a infinito, y constatar que esa solución a tiempo infinito coincide con la del problema elíptico, es decir, ya independizado del tiempo.

Se eligen funciones de partida que cumplan las condiciones (11) y (12), que delimiten el sector funcional inicial y su evolución en el tiempo. Estas funciones de partida elegidas tienen la forma general:

$$\begin{aligned} \tilde{u}(x, 0) &= \tilde{a} x(x^2 - 1) \quad ; \quad \hat{u}(x, 0) = \hat{a} x(x^2 - 1) \\ \tilde{v}(x, 0) &= \frac{G}{B} \tilde{u}(x, 0) \quad ; \quad \hat{v}(x, 0) = \frac{G}{B} \hat{u}(x, 0) \end{aligned} \quad (16)$$

y surgen de las condiciones impuestas ciertas restricciones para los valores de  $\tilde{a}$  y  $\hat{a}$ .

Se ha usado la metodología de las diferencias finitas, eligiendo un esquema de cálculo cuya solución discreta, a pesar de la no linealidad del problema original, posee propiedades cualitativas análogas a las de la solución  $(u, v)$  del sistema continuo. Como

el método empleado para resolver este problema diferencial acoplado no lineal se basa en la elaboración de sucesiones de funciones que tienden superior e inferiormente, en forma monótona, a la solución  $(u, v)$  del problema, ha sido necesario verificar primero la cuasimonotonicidad del problema diferencial y elegir un esquema en diferencias que preserve la monotonicidad. Otra condición necesaria es la existencia de las mencionadas “solución superior” y “solución inferior”.

De modo que mediante esquemas en diferencias finitas implícitos, se discretizan las ecuaciones y las condiciones de borde. Luego, se suma  $\underline{c}_n u_{i,j}$  a ambos miembros de cada ecuación y se elabora un proceso iterativo, en cada nivel temporal, hasta que la norma infinita de la diferencia entre dos perfiles consecutivos sea menor que un  $\varepsilon$  prefijado. Logrado esto, el control pasa al nivel temporal siguiente.

Es así que de la expresión iterativa continua:

$$\begin{aligned} (u)_t^{(m)} - L_1 u^{(m)} + \underline{c}_1 u^{(m)} &= F_1(u^{(m-1)}, v^{(m-1)}) \\ (v)_t^{(m)} + \underline{c}_2 v^{(m)} &= F_2(u^{(m-1)}, v^{(m-1)}) \end{aligned} \quad (17)$$

( $m$  subíndice de iteración), se pasa a la discreta ( $i$  subíndice espacial,  $j$  subíndice temporal):

$$\begin{aligned} \frac{u_{i,j+1}^{(m)} - u_{i,j}^{(m)}}{k} - \frac{u_{i-1,j+1}^{(m)} - 2u_{i,j+1}^{(m)} + u_{i+1,j+1}^{(m)}}{h^2} + \underline{c}_1 u_{i,j+1}^{(m)} &= \underline{c}_1 u_{i,j+1}^{(m-1)} + f_1(u_{i,j+1}^{(m-1)}, v_{i,j+1}^{(m-1)}) \\ \frac{v_{i,j+1}^{(m)} - v_{i,j}^{(m)}}{k} + \underline{c}_2 v_{i,j+1}^{(m)} &= \underline{c}_2 v_{i,j+1}^{(m-1)} + f_2(u_{i,j+1}^{(m-1)}, v_{i,j+1}^{(m-1)}) \end{aligned} \quad (18)$$

Lo mismo vale con  $\bar{c}_1$  y  $\bar{c}_2$ , para elaborar la sucesión decreciente de funciones ordenadas de grilla. De manera semejante al proceder en la Matemática continua, se demuestra que existen los operadores inversos y que son monótonos.

El algoritmo genera sucesiones inferiores  $\{\underline{u}_{i,j}\}$ ,  $\{\underline{v}_{i,j}\}$  y superiores  $\{\bar{u}_{i,j}\}$ ,  $\{\bar{v}_{i,j}\}$  de funciones de grilla ordenadas y monótonas, que convergen superior e inferiormente, a la solución del sistema discretizado. En la figura 1 puede observarse la evolución temporal de estas sucesiones, a través de la norma infinita de la solución superior e inferior, y su convergencia a la solución del problema elíptico. En la figura 2 se representan las funciones de partida y la solución a la cual convergen las sucesiones.

Se demuestra que el sistema discretizado es numéricamente estable, que el sistema tipo Picard converge a la solución del sistema discretizado y que esta solución del sistema discretizado tiende a ser la solución del problema diferencial cuando el paso de malla tiende a cero.

## CONCLUSIONES

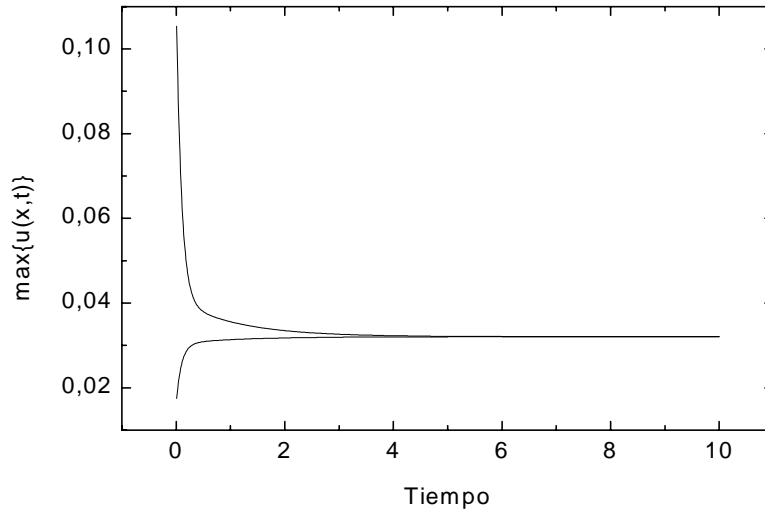
El método numérico expuesto aparece como una buena herramienta para tratar sistemas parabólicos con funciones de reacción-difusión, que posean carácter cuasimonótono. Así ocurre con el modelo propuesto por Speight para estudiar la interrelación entre la concentración de gas de fisión en solución, en el combustible  $UO_2$ , y en las burbujas intragranulares. El modelo se basa en emplear una ecuación de difusión en una burbuja esférica, que atrapa átomos de gas y los redisuelve.

La forma de iterar tipo Picard permite no sólo obtener resultados de buena aproximación, sino también probar la convergencia de la solución en diferencias finitas a la correspondiente solución del sistema diferencial, cuando la malla tiende a cero.

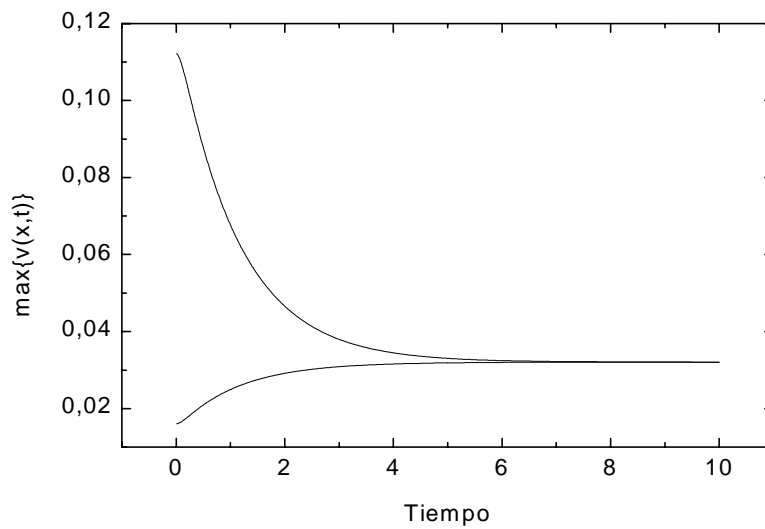
## REFERENCIAS

- [ 1 ] **D. R. Olander**, *Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements*, Technical Information Center, US Department of Energy, 1976.
- [ 2 ] **R. J. White y M. O. Tucker**, *A New Fission-Gas Release Model*, J. Nuclear Mater. 118 (1983) 1-38.
- [ 3 ] **T. Nakajima y H. Saito**, *A Comparison between Fission Gas Release Data and FEMAXI-IV Code Calculations*, Nuclear Eng. And Design 101 (1987) 267-279.
- [ 4 ] **J. D. Logan**, *Nonlinear Partial Differential Equations*, J. Wiley, 1994.
- [ 5 ] **M. V. Speight**, *A Calculation on the Size Distribution of Intragranular Bubbles in Irradiated  $UO_2$* , J. Nuclear Mater. 38 (1971) 236-238.
- [ 6 ] **O. A. Ladyzenskaja, V. A. Solonnikov y N. N. Ural'ceva**, *Linear and Quasi-linear Equations of Parabolic Type*, Translations of Mathematical Monographs, vol. 23, American Math. Society, 1988.
- [ 7 ] **C. V. Pao**, *Nonlinear Parabolic and Elliptic Equations*, Plenum Press, New York, 1992.
- [ 8 ] **J. Smoller**, *Shock Waves and Reaction-Diffusion Equations*, Springer-Verlag, 1994.

## GRAFICOS



**Figura 1a.** Evolución en el tiempo de la norma infinita de la solución superior  $\tilde{u}(x,t)$  e inferior  $\hat{u}(x,t)$ , para el caso  $G = 1$ ,  $B = 1$ ,  $\alpha = 0,5$ , tomando una grilla de  $h = k = 0,01$ .



**Figura 1b.** Evolución en el tiempo de la norma infinita de la solución superior  $\tilde{v}(x,t)$  e inferior  $\hat{v}(x,t)$ , para el caso  $G = 1$ ,  $B = 1$ ,  $\alpha = 0,5$ , tomando una grilla de  $h = k = 0,01$ .



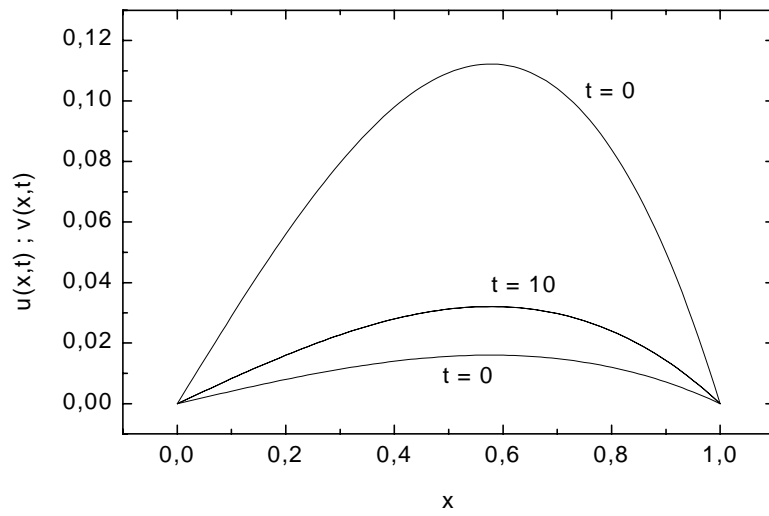


Figura 2. Perfiles de las funciones de partida y de la solución del problema luego de 1000 pasos temporales, para el caso  $G = 1$ ,  $B = 1$ ,  $\alpha = 0,5$ , tomando una grilla de  $h = k = 0,01$ .

Para la base de datos INIS:

**COUPLED REACTION-DIFFUSION EQUATIONS TO MODEL THE FISSION GAS RELEASE IN THE IRRADIATION OF THE URANIUM DIOXIDE.**

Moyano E. A., Scarpettini A. F.

Centro Atómico Constituyentes - Comisión Nacional de Energía Atómica.

Av. Gral. Paz 1499, (1650) San Martín, Prov. Buenos Aires, Argentina.

e-mail: emoyano@cnea.gov.ar

**ABSTRACT**

A semilinear model of weakly coupled parabolic p.d.e. with reaction-diffusion is investigated. The system describes fission gas transfer from grain interior of  $\text{UO}_2$  to grain boundaries. The problem is studied in a bounded domain. Using the upper-lower solutions method, two monotone sequences for the finite differences equations are constructed. Reasons are mentioned that allow to affirm that in the proposed functional sector the algorithm converges to the unique solution of the differential system.