

Technická zpráva číslo 171/2017

**VÝVOJ MODELU TRANSPORTU
C-14 Z HLUBINNÉHO ÚLOŽIŠTĚ
A JEHO NEURČITOSTNÍ A
CITLIVOSTNÍ ANALÝZA**

Autoři: Aleš Vetešník, Dan Reimitz, Lucie
Baborová, Dušan Vopálka

KJCH, FJFI, ČVUT v Praze

Praha, duben 2017

Název projektu: Hodnocení nejistot transportu radionuklidů z hlubinného úložiště

Název dílčí etapové zprávy: Vývoj modelu transportu C-14 z hlubinného úložiště a jeho neurčitostní a citlivostní analýza

Závěrečná zpráva

Evidenční číslo objednatele: 4.1.6.6 / č.j. ESS: SURAO-2016-0744

Evidenční číslo poskytovatele: PB-2016-ZL-S0744-028-Transport6

ŘEŠITELÉ:

KJCH FJFI, ČVUT v Praze

Autoři: Aleš Vetešník, Dan Reimitz, Lucie Baborová, Dušan Vopálka

Schválil				
Funkce	Instituce	Jméno	Datum	Podpis
Osoba poskytovatele zodpovědná za technické řešení	FJFI, ČVUT	Mgr. Aleš Vetešník, Ph.D.		
Osoba poskytovatele zodpovědná za koordinaci projektu	FJFI, ČVUT	Mgr. Aleš Vetešník, Ph.D.		
Osoba objednatele zodpovědná za technické řešení	SÚRAO	Ing. Antonín Vokál, CSc.		
Osoba objednatele zodpovědná za koordinaci projektu	SÚRAO	Ing. Antonín Vokál, CSc.		



Obsah

1	Úvod	9
2	Model transportu C-14 z hlubinného úložiště	9
2.1	Konceptuální model transportu C-14 polem blízkých interakcí	9
2.2	Implementace modelu v GoldSim.....	12
2.2.1	Vstupní parametry (InputParameters)	13
2.2.2	Materiály (Material)	13
2.2.3	Transportní model (<i>ContaminantTransport</i>).....	16
2.2.4	Výsledky (Results)	19
3	Vybrané studie modelu transportu C-14 polem blízkých interakcí v GoldSim	19
3.1	Vliv vybraných parametrů zdrojového členu na tok anorganické a organické formy C-14 polem blízkých interakcí.....	20
3.2	Neurčitostní a citlivostní analýza vybraných parametrů blízkého pole na tok anorganické a organické formy C-14 polem blízkých interakcí.....	22
3.3	Transport CH ₄ v částečně saturovaném prostředí	27
3.3.1	Případ saturace 0,5.....	27
3.3.2	Případ saturace 0,999	28
4	Souhrn a diskuze	29
5	Citace a seznam literatury	30
	Příloha	32
	Metody neurčitostní a citlivostní analýzy	32
5.1.1	Metody neurčitostní a citlivostní analýzy založené na teorii fuzzy množin	32
5.1.2	Metody neurčitostní a citlivostní analýzy založené na četnostním popisu neurčitosti	33

Seznam obrázků:

Obr. 1 Zjednodušený konceptuální model založený na difúzním transportu homogenními vrstvami.....	11
Obr. 2 Alternativní konceptuální model zohledňující vliv lokalizace zdroje. Směr difúze je označen hrubě přes neporušené sudy. Konceptuální model ovšem uvažuje difúzní transport v meziprostoru mezi neporušenými kontejnery.....	11
Obr. 3 Schéma implementace alternativního konceptuálního modelu v prostředí GoldSim. 12	
Obr. 4 Implementace modelu geosféry v GoldSim.....	12
Obr. 5 Grafická reprezentace základní struktury implementovaného modelu v GoldSim.	13
Obr. 6 Záložka PF vstupního Microsoft Excel souboru InputParameters.xlsx s hodnotami parametrů použitých v jedné ze simulací.	14
Obr. 7 Záložka GP vstupního Microsoft Excel souboru InputParameters.xlsx pro válcovou geometrii s úhlem válcové výseče $\pi/2$ rad, poloměrem kontejneru 0,78 m, tloušťka první vrstvy Backfill1 byla 0,2 m, tloušťka druhé vrstvy Backfill2 0,5 m, tloušťka vrstvy Granit 0,3 m. Výška kontejneru byla 2 m.	15
Obr. 8 Záložka Flags vstupního Microsoft Excel souboru InputParameters.xlsx.	15
Obr. 9 Struktura transportního modelu.	16
Obr. 10 Časový vývoj transportu dostupné hmoty anorganické formy C-14 (A), koncentrací v kontejneru (B), toků na rozhraní kontejner - první cela Backfill1 (C) a toku na rozhraní poslední cela Granit - Pipe1 (D).	21
Obr. 11 Citlivostní analýza časových vývoju transportu dostupné hmoty anorganické formy C-14, plné čáry odpovídají S_i , a přerušované čáry označují S_{Ti} . (A): koncentrace v kontejneru; (B): tok na rozhraní kontejner - první cela Backfill1 ; (C): tok na rozhraní poslední Granit - Pipe1 (D).....	21
Obr. 12 Neurčitostní analýza časových vývoju sledovaných veličin organické formy C-14. (A): hmotnost transportu dostupné hmoty; (B) koncentrace v kontejneru; (C) tok na rozhraní kontejner - první cela Backfill1 ; (D) tok na rozhraní poslední Granit - Pipe1	22
Obr. 13 Citlivostní analýza časových vývoju transportu dostupné hmoty organické formy C-14, plné čáry odpovídají S_i , a přerušované čáry označují S_{Ti} . (A): koncentrace v kontejneru; (B): tok na rozhraní kontejner - první cela Backfill1 ; (C): tok na rozhraní poslední Granit - Pipe1 (D).....	22
Obr. 14 Neurčitostní a citlivostní analýza časových vývoju sledovaných veličin anorganické formy C-14 pro Q_{eq} z intervalu hodnot $(10^7-10^{10})[l/a]$. (A): koncentrace v kontejneru; (B) tok na rozhraní poslední cela Granit - Pipe1 ; (C) citlivostní míry S_i a S_{Ti} pro koncentrace; (D) citlivostní míry S_i a S_{Ti} pro tok na rozhraní poslední Granit - Pipe1 . Plné čáry stejné barvy v C a D odpovídají S_i a S_{Ti} podle schémat uvedených v příloze A. Černá plná čára v A a B odpovídá průběhu pro referenční případ.	25
Obr. 15 Neurčitostní a citlivostní analýza časových vývoju sledovaných veličin organické formy C-14 pro Q_{eq} z intervalu hodnot $(10^7-10^{10})[l/a]$. (A): koncentrace v kontejneru; (B) tok na rozhraní poslední cela Granit - Pipe1 ; (C) citlivostní míry S_i a S_{Ti} pro koncentrace; (D) citlivostní	

míry S_i a S_{Ti} pro tok na rozhraní poslední Granit - Pipe1 . Plné čáry stejné barvy v C a D odpovídají S_i a S_{Ti} podle schémat uvedených v příloze A. Černá plná čára v A a B odpovídá průběhu pro referenční případ.	25
Obr. 16 Neurčitostní a citlivostní analýza časových vývoju sledovaných veličin anorganické formy C-14 pro Q_{eq} z intervalu hodnot $(10^{-2}-10^1)[l/a]$. (A): koncentrace v kontejneru; (B) tok na rozhraní poslední cely Granit - Pipe1 ; (C) citlivostní míry S_i a S_{Ti} pro koncentrace; (D) citlivostní míry S_i a S_{Ti} pro tok na rozhraní poslední Granit - Pipe1 . Plné čáry stejné barvy v C a D odpovídají S_i a S_{Ti} podle schémat uvedených v příloze A. Černá plná čára v A a B odpovídá průběhu pro referenční případ.	26
Obr. 17 Neurčitostní a citlivostní analýza časových vývoju sledovaných veličin organické formy C-14 pro Q_{eq} z intervalu hodnot $(10^{-2}-10^1)[l/a]$. (A): koncentrace v kontejneru; (B) tok na rozhraní poslední cely Granit - Pipe1 ; (C) citlivostní míry S_i a S_{Ti} pro koncentrace; (D) citlivostní míry S_i a S_{Ti} pro tok na rozhraní poslední Granit - Pipe1 . Plné čáry stejné barvy v C a D odpovídají S_i a S_{Ti} podle schémat uvedených v příloze A. Černá plná čára v A a B odpovídá průběhu pro referenční případ.	26
Obr. 18 Záložka PF vstupního Microsoft Excel souboru InputParameters.xlsx pro první simulaci se saturací 0,5.	27
Obr. 19 Časový vývoj toků na rozhraní prvních třech částí modelu: F_{C-B1} označuje tok z kontejneru do první cely Backfill1 , F_{B1-B2} tok z poslední cely Backfill1 do první cely Backfill2 , F_{B2-G} tok z poslední cely Backfill2 do první cely Granit . Plná čára odpovídá CH_4 v plynné fázi, tečkovaná čára CH_4 v kapalně fázi.	28
Obr. 20 Časový vývoj toků na rozhraní prvních třech částí modelu: F_{C-B1} označuje tok z kontejneru do první cely Backfill1 , F_{B1-B2} tok z poslední cely Backfill1 do první cely Backfill2 , F_{B2-G} tok z poslední cely Backfill2 do první cely Granit . Plná čára odpovídá CH_4 v plynné fázi, tečkovaná čára CH_4 v kapalně fázi.	29

Seznam tabulek:

Tab. 1 Henryho konstanty $K_{H,r}$ pro referenční teplotu 25°C a parametry teplotní závislosti $-\Delta H R$ pro vybrané plyny (Sander 2015).	16
Tab. 2 Soubor neurčitých vstupních parametrů pro citlivostní analýzu transportu uhlíku C-14; AF – anorganická forma C-14, OF – organická forma C-14. Hodnoty parametrů, u kterých není poznamenán zdroj, byly zadány SÚRAO.	18
Tab. 3 Parametry zdrojového členu, jejichž vliv byl studován v 3.1. AF – anorganická forma C-14, OF – organická forma C-14.	20
Tab. 4 Parametry blízkého pole, jejichž vliv byl studován v 3.2. AF – anorganická forma C-14.	24
Tab. 5 Hodnoty maximálních toků z Obr. 19. F_{C-B1} : tok z kontejneru do první cely; F_{B1-B2} : tok z poslední cely Backfill1 do první cely Backfill, a F_{B2-G} : tok z poslední cely Backfill2 do první cely Granit.	28
Tab. 6 Hodnoty maximálních toků z Obr. 20. F_{C-B1} : tok z kontejneru do první cely; F_{B1-B2} : tok z poslední cely Backfill1 do první cely Backfill, a F_{B2-G} : tok z poslední cely Backfill2 do první cely Granit.	28

Seznam použitých zkratk:

AF	anorganická forma
HLW	vysoce aktivní odpad (high-level waste)
HÚ	hlubinné úložiště
OF	organická forma
RAO	radioaktivní odpad
SA	citlivostní analýza (sensitivity analysis)
UA	neurčitostní analýza (uncertainty analysis)
UOS	ukládací obalový soubor


Abstrakt

Cílem projektu byla neurčitostní a citlivostní analýza modelu transportu C-14, a případně dalších mobilních radionuklidů, z hlubinného úložiště ostatních radioaktivních odpadů (nepřijatelných do přípovrchových úložišť) do biosféry. Cílem těchto analýz bylo kvantifikovat vliv neurčitosti vybraných vstupních parametrů na celkovou neurčitost sledovaných výstupů a tím identifikovat kritické parametry.

V rámci projektu byl navržen a v programovém prostředí GoldSim implementován 1-D model transportu C-14. Tento model reprezentuje C-14 obsažené v jednom kontejneru pomocí jednoho objektu GoldSim (element *Source*). Tento objekt uvolňuje C-14 do jednoho ideálně míchaného reaktoru (element *Cell Pathway*), který představuje objem v kontejneru, který je vyplněný vodou. Difúzní transport výplňovým materiálem a horninovým prostředím je v modelu reprezentován pomocí 1D sítě konečných objemů, elementů *Cell Pathway*, advektivní transport ve výplňovém materiálu nebyl do modelu zaveden. Rozdíl mezi hodnotami transportních charakteristik výplňového materiálu a granitu byl v modelu zohledněn složením transportní cesty ze tří částí. Každá část reprezentuje různý materiál, přičemž difúzní cesta v každé části je reprezentována vlastní podsítí elementů *Cell pathway* s volně nastavitelnými difúzními délkami a plochami. Model reprezentuje anorganickou a organickou formu C-14 pomocí dvou specií. Tím vznikl flexibilní model 1D transportu C-14 blízkým polem, který umožňuje studovat širokou škálu transportních úloh. Model transportu C-14 geosférou jsme převzali z referenčního projektu úložiště radioaktivních odpadů. Tento model reprezentuje geosféru pomocí třech hydraulických kolektorů. Tok z pole blízkých interakcí do geosféry je v modelu reprezentován pomocí konceptu ekvivalentní rychlosti, která reprezentuje difúzní tok z výplňového materiálu nebo granitu do proudící vody v puklině.

Neurčitost sledovaných výstupů modelu a citlivost těchto neurčitostí na hodnoty vstupních parametrů byla analyzovaná pomocí vybraných metod neurčitostní a citlivostní analýzy. V průběhu vývoje modelu jsme použili screeningovou metodu založenou na intervalové analýze, v konečné fázi analýzy jsme použili metodu založenou na četnostním přístupu popisu neurčitosti. Konkrétně byl analyzován vliv těchto osmi parametrů; čtyř parametrů zdrojového členu: rychlost loužení, rozpustnosti, inventáře, a objemu volné vody v kontejneru; a čtyř parametrů blízkého pole: K_d výplňového materiálu, porozity výplňového materiálu a granitu v okolí ukládací komory, a ekvivalentního difúzního toku do proudící vody v puklině. Studie ukázaly, že z parametrů zdrojového členu má největší vliv pro obě formy C-14 rychlost loužení a následně inventář. Pro posouzení vlivu parametrů blízkého pole je potřeba rozlišit mezi formami C-14. Rozptyl toku sorbující anorganické formy C-14 do geosféry je způsobem rozptylem hodnot K_d výplňového materiálu. V případě nesorbující organické formy C-14 je tok do geosféry omezen zejména malou porozitou granitu a/nebo difúzním tokem do proudící vody v puklině.

Jako alternativu jsme implementovali model zohledňující transport v částečně saturovaném prostředí. Funkčnost implementace jsme ověřili řešením úlohy, která se zabývala transportem CH_4 . Výsledky ukázaly, že díky velkým hodnotám difuzivity v plynu a Henryho konstantě určující rozdělení v plynné a kapalné fázi je difúzní tok CH_4 v plynné formě významný i pro relativně velké saturace prostředí.

 SÚRAO	Vývoj modelu transportu C-14 z hlubinného úložiště a jeho neurčitostní a citlivostní analýza	Evidenční označení:
		SÚRAO TZ 171/2017

Klíčová slova

C-14, pole blízkých interakcí, advekce, difúze, sorpce, GoldSim, neurčitostní a citlivostní analýza

1 Úvod

Tato zpráva byla zpracována v rámci projektu SÚRAO „Výzkumná podpora bezpečnostního hodnocení hlubinného úložiště“, který je součástí přípravy hlubinného úložiště radioaktivních odpadů (dále jen HÚ). Cílem projektu je získat vybraná data, modely, argumenty a další informace potřebné pro zhodnocení potenciálních lokalit pro umístění HÚ z hlediska dlouhodobé bezpečnosti. Na základě veřejného zadávacího řízení byla v červenci 2014 uzavřena čtyřletá smlouva s ÚJV Řež, a. s. a jeho subdodavateli: Českou geologickou službou; ČVUT v Praze; Technickou univerzitou v Liberci; Ústavem Geoniky AV ČR, v. v. i.; a společnostmi SG Geotechnika a.s.; Progeo, s. r. o.; Chemcomex Praha, a. s. a Centrum výzkumu Řež s. r. o. o poskytování výzkumné podpory hodnocení dlouhodobé bezpečnosti v následujících oblastech:

- i. Chování VJP a forem RAO, nepřijatelných do přípovrchových úložišť, v prostředí hlubinného úložiště;
- ii. Chování ukládacích obalových souborů (UOS) VJP a RAO v prostředí hlubinného úložiště;
- iii. Chování tlumících, výplňových a dalších konstrukčních materiálů v prostředí hlubinného úložiště;
- iv. Řešení úložných vrtů a jejich vliv na vlastnosti obklopujícího horninového prostředí;
- v. Chování horninového prostředí;
- vi. Transport radionuklidů z úložiště;
- vii. Další charakteristiky lokalit potenciálně ovlivňující bezpečnost úložiště.

Cílem tohoto dílčího projektu *Hodnocení nejistot transportu radionuklidů z hlubinného úložiště* je provedení neurčitostní analýzy (UA), citlivostní analýzy (SA) a zhodnocení vlivu neurčitosti parametrů ovlivňujících transport C-14 a případně dalších mobilních radionuklidů z hlubinného úložiště ostatních radioaktivních odpadů (RAO), nepřijatelných do přípovrchových úložišť.

2 Model transportu C-14 z hlubinného úložiště

2.1 Konceptuální model transportu C-14 polem blízkých interakcí

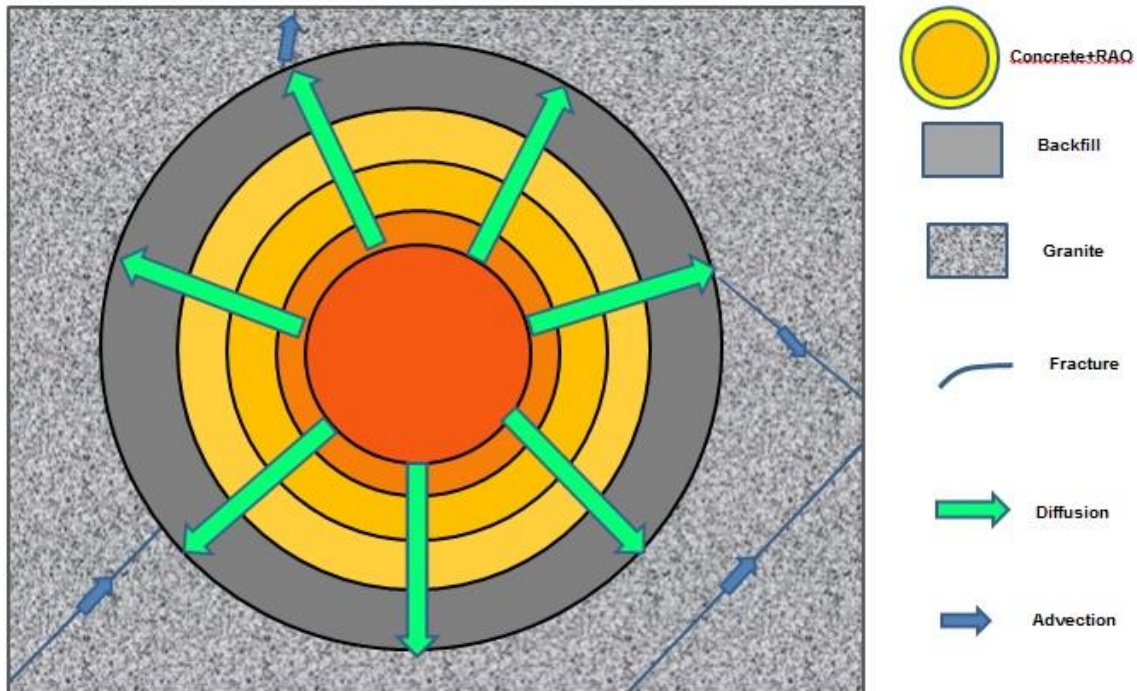
Při návrhu konceptuálního modelu jsme vyšli z předpokladu, že po selhání obalu vnitřního kovového sudu dojde k transportu C-14, který bude z hlubinného úložiště ostatních RAO migrovat v kapalně a plynné fázi do geosféry a následně i do biosféry. Příspěvek jednotlivých forem C-14 k celkovému toku bude záviset na saturaci hostitelského prostředí vodou, chemickém složení horniny a podzemní vody, termodynamických a případně dalších podmínkách. V první fázi implementace modelu jsme se omezili na modelování transportu v kapalně fázi a anorganické formy C-14, protože v této formě se předpokládá většina C-14. Uvolnitelnými formami anorganického uhlíku mohou být uhličitany (CO_3^{2-}) a hydrogenuhličitany (HCO_3^-), oxid uhličitý (CO_2), a dále elementární uhlík a karbidy z aktivovaných kovových komponent (Heikola 2014; Ochs et al. 2016). Část uhlíku pocházející z aktivovaných ocelových komponent se bude také vyskytovat v organické formě. Podle Ochse et al. (2016) se bude jednat o jednodušší sloučeniny, které mohou být plynné (např. CH_4 či $\text{CH}_3\text{-CH}_3$) nebo kapalně (nízkomolekulární organické kyseliny, např. kyselina mravenčí či kyselina octová). Rychlost uvolňování těchto složek bude záviset na rychlosti koroze oceli v podmínkách hlubinného

úložiště. V úložišti mohou být přítomny i jiné typy odpadů (např. institucionální odpady) obsahující organicky vázaný uhlík. Změna formy uhlíku z organické na anorganickou je možná za přítomnosti mikrobiální aktivity, chemická redukce samotná je výrazně pomalejší proces (Grogan et al. 1992; Neretnieks a Moreno 2014). Produktem mikrobiální degradace za aerobních podmínek může být oxid uhličitý, za anaerobních podmínek a vyššího parciálního tlaku vodíku pak metan. V závislosti na parciálním tlaku vodíku a kyslíku a na mikrobiální aktivitě mohou tyto dvě formy uhlíku mezi sebou přecházet. Do plynné fáze se C-14 může dostat ve formě CO₂, který bude ale pravděpodobně silně retardován v poli blízkých interakcí. Dalším způsobem přechodu C-14 do plynné fáze je biologická degradace uloženého odpadu, která může vést k produkci metanu CH₄, což by způsobilo zvýšení transportu C-14 (Heikola 2014). Zohlednění dvou forem C-14 a model transportu CH₄ v plynné fázi byl do modelu začleněn v druhé etapě.

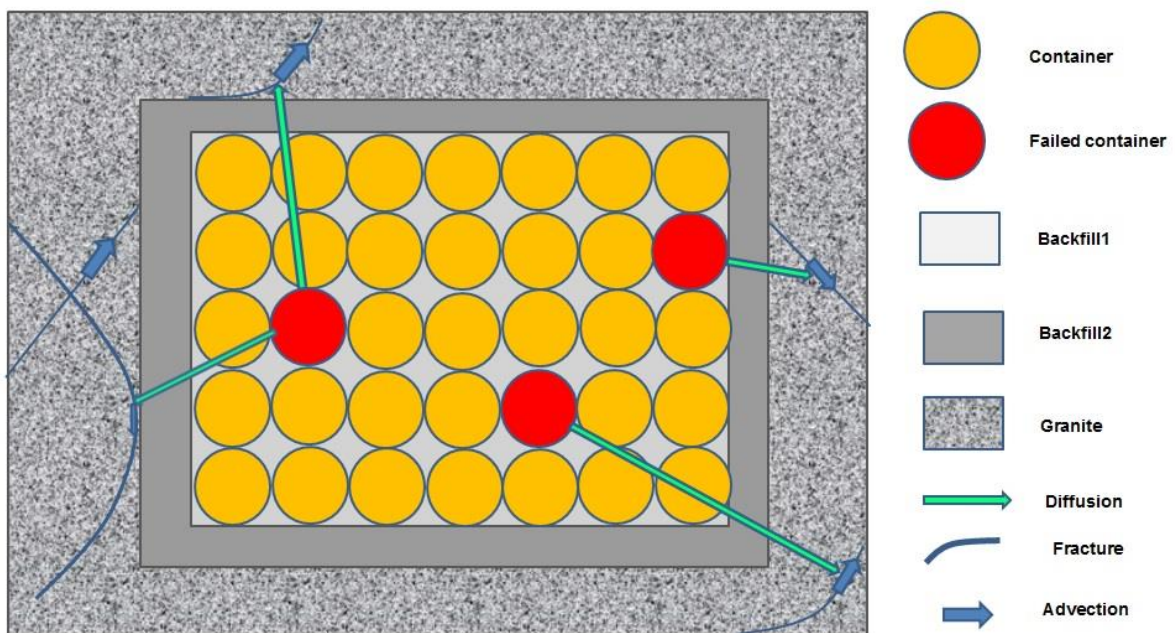
Pro navržení konceptu transportního modelu bylo nutné přihlédnout k možnostem programového prostředí GoldSim (GoldSim Pro +RT, Desktop Standalone, Verze 11.1.6). Difúzní transport v GoldSim je možné implementovat pomocí konečně objemového přístupu; elementární objemy jsou v GoldSim prezentovány pomocí elementů *Cell pathway*. GoldSim je koncipován pro práci se sítí cel, která se skládá z relativně malého počtu elementů *Cell pathway* (do tisíce). GoldSim proto nelze chápat jako plnohodnotný nástroj pro simulace transportních úloh pomocí konečně objemového přístupu, a proto bylo nezbytné do modelu zavést zjednodušení, které umožnily snížit potřebný počet elementů typu *Cell pathway*.

Jedním z možných přístupů k významné redukci počtu potřebných elementů *Cell pathway* je reprezentovat vhodnou část objemu ukládaného RAO pomocí soustavy homogenních vrstev vzájemně propojených difúzním transportem, viz Obr. 1, (Haverkamp et al. 2005). Tento koncept předpokládá, že na začátku simulace dojde k uvolnění veškerého RAO do celého vnitřního objemu ukládacích komor. Uspořádání homogenních vrstev na Obr. 1 umožňuje modelovat 2D úlohy s kulovou nebo válcovou symetrií pomocí 1D sítě a tím významně redukovat počet potřebných elementů *Cell pathway*.

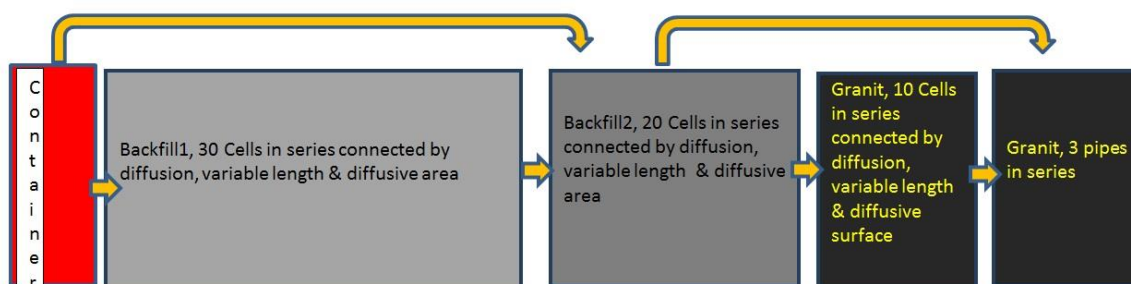
Ačkoliv se může zdát uvolnění veškerého RAO na začátku simulace v konceptu na Obr. 1 dostatečně konzervativním předpokladem, modelová homogenizace RAO v rámci velkých objemů může vést k zředění lokalizovaných zdrojů kritických radionuklidů a tím k podhodnocení toků, které závisí na rozdílu koncentrací. Proto jsme navrhli alternativní koncept, který je zobrazen na Obr. 2. V tomto konceptu je RAO soustředěno do jednoho elementu *Source*, který reprezentuje jeden sud. Po selhání obalu kontejneru dojde k migraci difúzním transportem do okolního výplňového materiálu té části RAO, která je uvolněna do volného objemu v kontejneru. Radionuklidy migrují difúzí směrem k puklinám v horninovém prostředí. Tento difúzní transport jsme reprezentovali pomocí 1D sítě elementů *Cell Pathway*, které jsou vzájemně propojeny difúzním transportem. Difúzní plochy a délky mezi sousedními elementy *Cell pathway* jsou nastavitelné. Model tak umožňuje studovat planární, sférickou, cylindrickou nebo i obecnější geometrii. Abychom umožnili zohlednit heterogenní povahu materiálových vlastností transportní cesty, je cesta složena ze tří částí, z nichž každá reprezentuje různý materiál, přičemž difúzní cesta v každé části je reprezentována vlastní podsítí elementů *Cell pathway*. Na Obr. 3 je zobrazeno schéma implementovaného modelu. Žluté šipky označují směr difúzního toku, horní přemostující šipky označují možnost vynechání transportu v částech transportní cesty *BackFill1* a nebo *Granit*. Tím vznikl flexibilní model umožňující řešit širokou škálu transportních úloh.



Obr. 1 Zjednodušený konceptuální model založený na difúzním transportu homogenními vrstvami.



Obr. 2 Alternativní konceptuální model zohledňující vliv lokalizace zdroje. Směr difúze je označen hrubě přes neporušené sudy. Konceptuální model ovšem uvažuje difúzní transport v meziprostoru mezi neporušenými kontejnery.

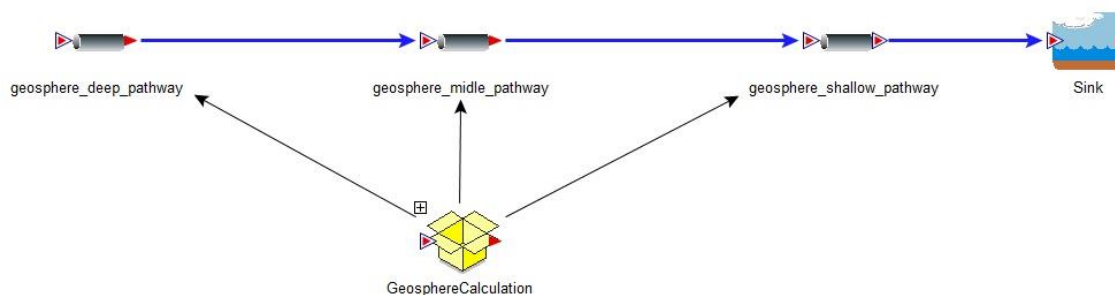


Obr. 3 Schéma implementace alternativního konceptuálního modelu v prostředí GoldSim.

Model transportu radionuklidů geosférou jsme převzali z práce (Landa 2012). Tento model reprezentuje geosféru pomocí třech hydraulických kolektorů, v GoldSim reprezentovaných pomocí elementů *Pipe*, spojených v sérii (Obr. 4). Hlavními vstupními parametry tohoto modelu jsou:

- doba toku podzemní vody od úložného prostoru na rozhraní geosféra – biosféra,
- průtok podzemní vody,
- celkové zředění.

Tyto vstupní parametry jsou použity k výpočtu základních charakteristik elementu *Pipe*, jako je plocha, smáčený obvod a objemový tok. Převodní rovnice je možno nalézt v (Landa 2012).

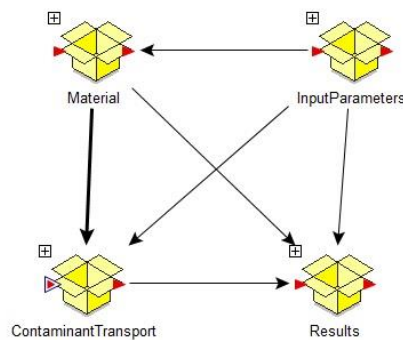


Obr. 4 Implementace modelu geosféry v GoldSim.

Tok z pole blízkých interakcí do geosféry byl v modelu reprezentován pomocí konceptu ekvivalentní rychlosti (Neretnieks et al. 2010). Tato rychlost reprezentuje difúzní tok z výplňového materiálu nebo granitu do proudící vody v puklině.

2.2 Implementace modelu v GoldSim

Na Obr. 5 je zobrazena základní struktura implementovaného modelu v GoldSim. Model je logicky rozdělen na čtyři části pomocí grafických elementů typu *Container*. V následujících podkapitolách bude každá z těchto čtyř složek modelu popsána zvlášť.



Obr. 5 Grafická reprezentace základní struktury implementovaného modelu v GoldSim.

2.2.1 Vstupní parametry (InputParameters)

Vybrané vstupní parametry modelu jsou do modelu zadány pomocí vstupního Microsoft Excel souboru *InputParameters.xlsx*, přičemž model implicitně předpokládá, že vstupní soubor je umístěn ve stejné adresáři jako soubor modelu. Složka *InputParameters* obsahuje čtyři elementy typu *Spreadsheet*: *FyzikalniParametry*, *GeometrickeParametry*, *Flags*, *ParametryToku*. Elementy *FyzikalniParametry* a *ParametryToku* se odkazují na hodnoty uvedené v záložce *PF* (Obr. 6), element *GeometrickeParametry* se odkazují na záložku *GP* (Obr. 7), a na konec element *Flags* na stejnojmennou záložku *Flags* (Obr. 8).

2.2.2 Materiály (Material)

Složka *Material* obsahuje tři elementy, element *Species* a dva elementy *Fluid* (ID v modelu *Water a Gas*). V první verzi implementace modelu element *Species* reprezentoval pouze jednu formu C-14, v následné verzi byly do modelu zavedeny explicitně dvě formy: anorganická a organická. Element *Water* představuje referenční tekutinu, která v modelu definuje referenční difuzivitu (D_w) a rozpustnost v tekutině. Element *Gas* definuje referenční difuzivitu v plynu (D_g) a rozdělovací koeficient, K_H^{CC} , který vyjadřuje poměr mezi molární koncentrací plynu v plynné fázi C_g [$\text{mol}\cdot\text{l}^{-1}$] a molární koncentrací plynu rozpuštěného v kapalině C_a [$\text{mol}\cdot\text{l}^{-1}$]:

$$K_H^{CC} = \frac{C_a}{C_g}. \quad (2.1)$$


Výplňové materiály byly do modelu zadány pomocí elementů *Solid*. Tyto elementy jsou v modelu umístěny v podsložkách **Backfill1**, **BackFill2** a **Granit** složky **ContaminantTransport**.

Hodnoty K_H^{CC} lze získat přepočtem ze vztahu pro Henryho konstantu K_H [$\text{l}\cdot\text{Pa}\cdot\text{mol}^{-1}$], která je definovaná jako poměr mezi parciálním tlakem plynu nad hladinou kapaliny (p_i [Pa]) a molární koncentrací v kapalině (C_a [$\text{mol}\cdot\text{l}^{-1}$]):

$$K_H = \frac{p_i}{C_a}. \quad (2.2)$$

Přepočet má tvar

$$K_H^{CC} = \frac{K_H}{R\cdot T} = \frac{K_H}{8,314\cdot 298,15}, \quad (2.3)$$

	Vývoj modelu transportu C-14 z hlubinného úložiště a jeho neurčitostní a citlivostní analýza	Evidenční označení:
		SÚRAO TZ 171/2017

kde R je plynová konstanta [$J \cdot K^{-1} \cdot mol^{-1}$] a T [K] je teplota. Henryho konstanty lze pro jednotlivé plyny nalézt v literatuře (např. (Sander 2015)) a jsou významně závislé na teplotě a na iontové síle média. Závislost na teplotě lze vyjádřit Van't Hoffovou rovnicí (Sander 2015):

$$K_{H,T} = K_{H,r} \cdot e^{\left(-\frac{\Delta H}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{298,15 K}\right)\right)}, \quad (2.6)$$

kde $K_{H,T}$ je Henryho konstanta pro aktuální teplotu, $K_{H,r}$ je konstanta pro referenční teplotu 25°C (298,15 K), ΔH je entalpie, R je plynová konstanta a T [K] je aktuální teplota. Tento vztah však platí v rozsahu teplot, kde změna entalpie s teplotou není příliš velká. Při vyšších teplotách mohou být použity další empirické vztahy. Hodnoty parametru $\frac{\Delta H}{R}$ či dalších parametrů empirických vztahů shrnuje řada publikací, zde jsme vycházeli z kompilace (Sander 2015), kde $-\frac{\Delta H}{R} = \frac{d \ln K_H}{d\left(\frac{1}{T}\right)}$. Uvedené hodnoty jsou průměrem hodnot uvedených v Tabulce 6 v práci (Sander 2015), zde byly získány kompilací z různých odborných publikací.

Fyzikální parametry			
Half-life time	a	5700	
Reference diffusivity (Water, Gas)	m ² ·s ⁻¹	2.00E-09	1.00E-04
Solubility (anorganic, norganic)	mol/l	-1.00E+00	-1.00E+00
Parametry backfill1			
Partition coefficient (anorganic, organic)	m ³ ·kg ⁻¹	1.00E-05	1.00E-05
Porosity	-	0.50	
Bulk density	kg·m ⁻³	1800	
Tortuosity/Geometric factor (Water, Gas)		8.E-01	7.50E-01
Relative diffusivity	-	1.00	
Parametry backfill2			
Partition coefficient (anorganic, organic)	m ³ ·kg ⁻¹	1.00E-05	1.00E-05
Porosity	-	0.50	
Bulk density	kg·m ⁻³	1800	
Tortuosity/Geometric factor (Water, Gas)		8.E-01	7.50E-01
Relative diffusivity	-	1.00	
Parametry granitu			
Partition coefficient (anorganic, organic)	m ³ ·kg ⁻¹	1.00E-05	1.00E-05
Porosity		0.01	
Bulk density	kg·m ⁻³	2660	
Tortuosity/Geometric factor (Water, Gas)		7.E-01	7.00E-01
Relative diffusivity		1.00	
Parametry matrice			
τ (rychlost loužení)	a·l	1.00E-01	
Parametry kontejneru			
μ (životnost)	a	31	
Inventář v jednom UOS	Bq	1.60E+13	1.60E+13
Volný objem vody v jednom UOS	l	100.00	2.5% z celkového objemu 4000 l jednoho UOS
Parametry puklin			
Qeq	l/a	1.00E+01	
Geo ^{IN}	m ³ /a	1.E+00	
Geo ^T	a	3.16E+02	
Geo ^D		1.00E+02	
Geo ^a		1.00E-02	
Parametry backfill1A			
Scale Factor for Geometric Factor time dependence	yr	2.00E+06	
Parametry backfill2A			
Scale Factor for Geometric Factor time dependence	yr	2.00E+06	
Partial Saturation			
Volumetric content B1 (gas, water)		5.00E-01	5.00E-01
Volumetric content B2 (gas, water)		5.00E-01	5.00E-01
Volumetric content granit (gas, water)		5.00E-01	5.00E-01
Air partition coefficient (anorganic, organic)		1.24E+00	1.24E+00

Obr. 6 Záložka PF vstupního Microsoft Excel souboru InputParameters.xlsx s hodnotami parametrů použitých v jedné ze simulací.


Geometrické parametry					
L_B1 [m]	S_B1 [m2]	L_B2 [m]	S_B2 [m2]	L_G [m]	S_G [m2]
0.006666667	2.45044227	0.025	3.0787608	0.03	4.649557
0.006666667	2.471386221	0.025	3.15730062	0.03	4.743805
0.006666667	2.492330172	0.025	3.23584043	0.03	4.838053
0.006666667	2.513274123	0.025	3.31438025	0.03	4.9323
0.006666667	2.534218074	0.025	3.39292007	0.03	5.026548
0.006666667	2.555162025	0.025	3.47145988	0.03	5.120796
0.006666667	2.576105976	0.025	3.5499997	0.03	5.215044
0.006666667	2.597049927	0.025	3.62853951	0.03	5.309292
0.006666667	2.617993878	0.025	3.70707933	0.03	5.403539
0.006666667	2.638937829	0.025	3.78561915	0.03	5.497787
0.006666667	2.65988178	0.025	3.86415896		
0.006666667	2.680825731	0.025	3.94269878		
0.006666667	2.701769682	0.025	4.0212386		
0.006666667	2.722713633	0.025	4.09977841		
0.006666667	2.743657584	0.025	4.17831823		
0.006666667	2.764601535	0.025	4.25685805		
0.006666667	2.785545486	0.025	4.33539786		
0.006666667	2.806489437	0.025	4.41393768		
0.006666667	2.827433388	0.025	4.49247749		
0.006666667	2.848377339	0.025	4.57101731		
0.006666667	2.86932129				
0.006666667	2.890265241				
0.006666667	2.911209192				
0.006666667	2.932153143				
0.006666667	2.953097094				
0.006666667	2.974041045				
0.006666667	2.994984996				
0.006666667	3.015928947				
0.006666667	3.036872898				
0.006666667	3.057816849				

Obr. 7 Záložka GP vstupního Microsoft Excel souboru InputParameters.xlsx pro válcovou geometrii s úhlem válcové výseče $\pi/2$ rad, poloměrem kontejneru 0,78 m, tloušťka první vrstvy Backfill1 byla 0,2 m, tloušťka druhé vrstvy Backfill2 0,5 m, tloušťka vrstvy Granit 0,3 m. Výška kontejneru byla 2 m.

Přepínače

Backfill1	(0)-bez backfill1, (1)-s backfill1	1
Granit	(0)-bez granitu, (1)-s granitem	1

Obr. 8 Záložka Flags vstupního Microsoft Excel souboru InputParameters.xlsx.

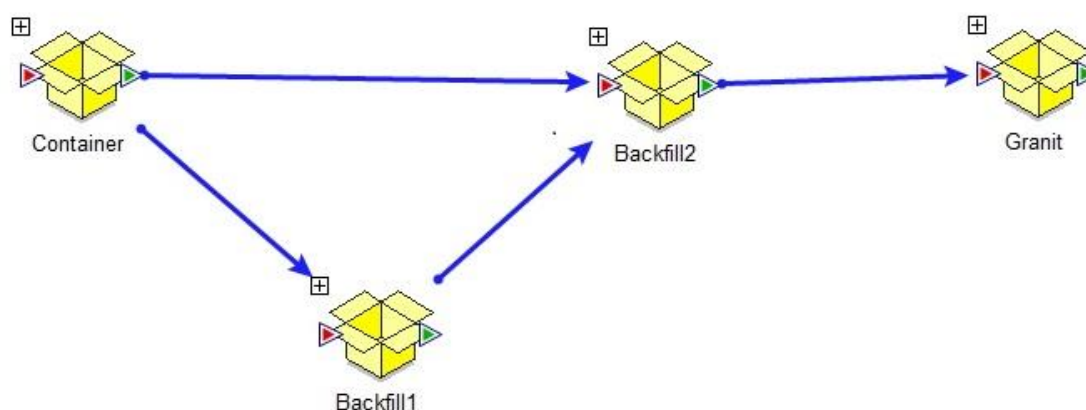
	Vývoj modelu transportu C-14 z hlubinného úložiště a jeho neurčitostní a citlivostní analýza	Evidenční označení:
		SÚRAO TZ 171/2017

Tab. 1 Henryho konstanty $K_{H,r}$ pro referenční teplotu 25°C a parametry teplotní závislosti $-\frac{\Delta H}{R}$ pro vybrané plyny (Sander 2015).

Plyn	$K_{H,r}$ [l·Pa·mol ⁻¹]	$K_{H,r}^{cc}$ [-]	$\frac{\Delta H}{R}$ [K]
O ₂	76 923	31,25	-1500
H ₂	129 870	52,63	-530
CH ₄	62 500	27,03	-1700
CO ₂	2 857	1,15	-2400

2.2.3 Transportní model (*ContaminantTransport*)

Základní struktura transportního modelu je zobrazena na Obr. 9. Model se skládá ze čtyř částí: **Container**, **Backfill1**, **Backfill2** a **Granit**.



Obr. 9 Struktura transportního modelu.

Difúzi v nesaturovaném prostředí je možné v použité verzi GoldSim (Verze 11.1.6) implementovat dvěma způsoby (Catlett a Tauxe 2014). My jsme zvolili způsob nezávislý na verzi GoldSim. Pro jeho pochopení napíšeme rychlost difúzního toku v plynné (index a) nebo kapalně (index w) z *i*-té do *j*-té cely je ve tvaru

$$f_{i \rightarrow j; a, w}^D = \frac{A^{i,j} S_{a,w} D_{a,w} \tau_{a,w} \varepsilon}{L} (c_{k;a,w}^i - c_{k;a,w}^j), \quad (2.7)$$

kde $S_{a,w}$ je saturační faktor, $D_{a,w}$ je referenční difuzivita, $\tau_{a,w}$ je geometrický faktor. Ze $S_{a,w}$ je možné vypočítat obsah vody $\vartheta_w = \varepsilon \cdot S_w$ a obsah vzduchu $\vartheta_a = \varepsilon \cdot S_a$, které je nutné zohlednit při výpočtu objemu těchto fází v každém elementu *Cell*. Abychom implementovali $S_{a,w}$ je nutné vynásobit difúzní plochu $A^{i,j}$ tímto parametrem. V případě geometrického faktoru je implementace složitější, protože geometrický faktor je vlastností porézního materiálu a tím pádem nelze přímo zadat rozdílné hodnoty pro kapalně a plynné prostředí, které sdílí porézní materiály. My jsme podle (Catlett a Tauxe 2014) zvolili $\tau = 1$ při zadání turtosity elementu Solid

a místo toho jsme dělili difúzní délky hodnotami τ_a popřípadě τ_w vzhledem ke zvolenému prostředí. Nyní následuje popis jednotlivých složek.

- **Container**

Složka *Container* obsahuje zdrojový člen, který je v modelu reprezentován pomocí jednoho elementu *Source*. Vstupní aktivita C-14 je zadaná pomocí vlastnosti *Species Mass* tohoto elementu, model zdrojového členu dále předpokládá, že C-14 je vázáno v matici s rychlostí degradace zadanou pomocí vstupního parametru rychlosti loužení. Volná voda obsažená ve zdrojovém členu je modelována pomocí elementu *Cell pathway* (ID elementu *Cell1*), který je umístěn v podsložce elementu *Source*. *Cell1* je spojena difúzním transportem s prvním elementem sítě **BackFill1** a **Backfill2**, přepnutí mezi variantami je zajištěno vynásobením difúzní plochy hodnotou přepínače *BackFill1*.

- **BackFill1**

Složka **BackFill1** obsahuje dvě podsložky **MaterialB1** a **TransportB1**. Podsložka **MaterialB1** obsahuje element *Fluid* (FluidBackFill1) a element *Solid* (BackFill1M), které definují vlastnosti transportního prostředí. Podsložka **TransportB1** obsahuje vlastní transportní 1D síť složenou ze 30 elementů typu *CellPathway*. Poslední element této sítě je spojen difúzním transportem s prvním elementem sítě Backfill2, difúzní plocha je vypočítána jako součin první difúzní plochy sítě Backfill2 a hodnoty přepínače *BackFill1*.

- **BackFill2**

Složka **BackFill2** také obsahuje dvě podsložky: **MaterialB2** a **TransportB2**. Podsložka **MaterialB2** obsahuje element *Fluid* (FluidBackFill2) a element *Solid* (BackFill2M), které definují vlastnosti transportního prostředí. Podsložka **TransportB2** obsahuje vlastní transportní 1D síť složenou ze 20 elementů *CellPathway*. Poslední element této sítě je spojen difúzním transportem s prvním elementem sítě *Granit*, difúzní plocha je počítána jako součin velikosti první difúzní plochy sítě *Granit* a hodnoty přepínače *Granit*. Poslední element této sítě je spojen advektivním transportem s prvním elementem *Pipe* (ID elementu *geosphere_deep_pathway*) modelu geosféry, příslušný objemový tok je vypočítán jako součin hodnoty ekvivalentního toku a opačné logické hodnoty přepínače *Granit*) (první hodnota přepínače *Granit*).

- **Granit**

Složka **Granit** má o něco složitější strukturu než předcházející dvě složky **BackFill1** a **BackFill2**, obsahuje totiž tři podsložky **MaterialG**, **DTransportG**, **ATransportG**. Podsložka **MaterialG** obsahuje stejně jako předchozí materiálové podsložky dva elementy: element *Fluid* (ID elementu *FluidGranit*) a element *Solid* (ID elementu *GranitM*). Podsložka **DTransportG** obsahuje 1D síť deseti elementů *Cell pathway*. Tato síť modeluje difúzní transport horninovým prostředím a reprezentuje vrstvu horniny mezi vnější stěnou ukládací komory a puklinou s proudící vodou. Vrstvu je možné vyloučit z transportní cesty zadáním hodnoty přepínačem *Granit*=0 (Obr. 8). Poslední element této sítě je spojen advektivním transportem s prvním elementem *Pipe* (ID elementu *geosphere_deep_pathway*) modelu geosféry. Objemový tok tohoto advektivního transportu je vypočítán jako součin hodnoty ekvivalentního toku a hodnoty přepínače *Granit*. Podsložka **ATransportG** obsahuje model geosféry složený ze tří elementů typu *Pipe* spojených v sérii. Vnější hraniční podmínka modelu geosféry je modelována pomocí elementu *CellPathway* (ID elementu *Sink*).

Tab. 2 Soubor neurčitých vstupních parametrů pro citlivostní analýzu transportu uhlíku C-14; AF – anorganická forma C-14, OF – organická forma C-14. Hodnoty parametrů, u kterých není poznamenán zdroj, byly zadány SÚRAO.

Parametr	Jednotka	Min	Max	Mean
μ (životnost)	a	10	100	31
τ (rychlost loužení)	a ⁻¹	1·10 ⁻⁵	0,1	0,001
L	m	0,5	5	1,58
Porosity (backfill1,2)		0,2	0,5	0,35
Reference diffusivity	m ² s ⁻¹	2·10 ⁻⁹	2·10 ⁻⁹	2·10 ⁻⁹
Relative diffusivity (backfill)		1	10 [*]	
Tortuosity		0,5	1	0,75
Porosity (granite)		0,005	0,02	0,01
Relative diffusivity (granite)	m ² s ⁻¹	1	5 ¹	
Solubility AF (Čubová et al. 2017)	mol l ⁻¹	1·10 ⁻⁶	1·10 ⁻⁵	5·10 ⁻⁶
Solubility OF	mol l ⁻¹	-1	-1	-1
K_d (backfill1,2) AF (Ochs et al. 2016)	m ³ kg ⁻¹	2	20	5
K_d (backfill1,2) OF (Ochs et al. 2016)	m ³ kg ⁻¹	0	0	0
K_d (geosphere) AF (Crawford 2013)	m ³ kg ⁻¹	0 (1) ²	0 (1·10 ³) ²	0 (10) ²
K_d (geosphere) OF (Crawford 2013)	m ³ kg ⁻¹	0	0	0
Geo^{IN}	m ³ a ⁻¹	0,01	100	1
Geo^T	a	10	1·10 ⁴	316
Geo^D		1	1·10 ⁴	100
Geo^a	%	0,1	10	1
Inventář v jednom UOS AF	Bq	5·10 ¹²	5·10 ¹³	1,6·10 ¹³
Inventář v jednom UOS OF	Bq	5·10 ¹²	5·10 ¹³	1,6·10 ¹³
Objem uložště (pouze odpady)	m ³	160	800	480
Celkový počet UOS	ks	40	200	120
Maximální aktivita ve všech UOS	Bq	1·10 ¹⁴	1·10 ¹⁵	3,2·10 ¹⁴

¹ hodnota pro případ difúze C-14 v plynné fázi

² hodnota pro případ sorpce na kalcit při vysokém pH

2.2.4 Výsledky (Results)

Složka **Results** se skládá ze dvou podsložek **ActivityOutflows** a **ConcentrationHistories**. Podsložka **ActivityOutflows** obsahuje dva elementy *Time history* (*OutFlows_a* a *OutFlows_o*), které zaznamenávají časové vývoje toků aktivit z pěti míst modelu, ze zdrojového členu, z poslední cely složky **BackFill1**, z poslední cely složky **BackFill2**, z poslední cely složky **Granit**, a z posledního elementu *Pipe* modelu geosféry. Výsledky jsou automaticky po dokončení simulace vyexportovány do výstupního Microsoft Excel souboru, který se nachází ve stejném adresáři jako soubor modelu. Podsložka **ConcentrationHistories** obsahuje celkem osm elementů *Time history*: tři elementy, které zaznamenávají časový vývoj koncentrací anorganické formy C-14 v deseti vybraných celách transportních cest TransportB1 (*B1Ca* – koncentrace v každém třetím elementu *CellPathway*), TransportB2 (*B2Ca* – koncentrace v každém druhém elementu *CellPathway*), DTransportG (*GCa* – koncentrace v každém elementu *CellPathway*); tři elementy (*B1Co*, *B2Co*, *GCo*), které zaznamenávají časový vývoj koncentrací organické formy C-14 ve stejných místech jako u anorganické formy; a dva elementy (*SourceCMA*, *SourceCMo*), které zaznamenávají koncentraci transportu dostupné hmoty v *Cell1* elementu *Source*. Stejně jako v případě výstupů z podsložky **ActivityOutflows** jsou výsledky automaticky po dokončení simulace vyexportovány do výstupního Microsoft Excel souboru.

3 Vybrané studie modelu transportu C-14 polem blízkých interakcí v GoldSim

Zadavatel (SÚRAO) vymezil na začátku projektu soubor vstupních neurčitých parametrů, které měly být uvažovány v rámci neurčitostních a citlivostních analýz. Tab. 2 obsahuje tento soubor parametrů spolu s jejich minimálními, maximálními a středními hodnotami. Z tohoto souboru byly vybrány během testování vyvíjeného modelu transportu C-14 podsoubory parametrů, a byl studován vliv změn jejich hodnot na sledované výstupy pomocí neurčitostní a citlivostní analýzy. Protože jsme vyvíjeli model zdrojového členu a blízkého pole, zaměřili jsme se na vliv parametrů těchto částí transportního modelu. V uvažovaném modelu jsou modely pole blízkých interakcí a geosféry spojeny pomocí ekvivalentního toku Q_{eq} , který reprezentuje difúzní tok z vrstvy **BackFill2** a nebo **Granit** do proudící vody v puklině. Proto jsme zohlednili vliv okolní geosféry na tok z pole blízkých interakcí pomocí tohoto parametru. V úvodních screeningových studiích jsme použili k neurčitostní a citlivostní analýze transformační metodu, která je založena na teorii fuzzy množin, a kterou lze chápat jako druh intervalové analýzy. V dalších fázích testování modelu jsme použili metodu založenou na četnostním přístupu popisu neurčitosti, obě metody jsou v krátkosti uvedeny v Příloze. Model zohledňující transport v částečně saturovaném prostředí jsme ověřili řešením dvou úloh, které se zabývaly transportem CH₄.

První podkapitola (3.1) je zaměřena na vliv parametrů zdrojového členu: rychlosti loužení, rozpustnosti a inventáře. Druhá podkapitola (3.2) je zaměřena na vliv čtyř parametrů blízkého pole: K_d výplňového materiálu, porozity výplňového materiálu a granitu v okolí ukládací komory, a ekvivalentního difúzního toku do proudící vody Q_{eq} . Třetí podkapitola (3.3) je

věnována dvěma úlohám, ve kterých byl řešen transport CH_4 v částečně saturovaném prostředí, tedy v plynné a kapalně fázi. Tyto dvě úlohy byly řešeny pro ověření funkčnosti rozšíření modelu na transport v plynné fázi.

Ve všech studiích byla použita válcová geometrie s úhlem válcové výseče $\pi/2$ rad, poloměrem kontejneru 0,78 m, tloušťka první vrstvy *Backfill1* byla 0,2 m, tloušťka druhé vrstvy *Backfill2* 0,5 m, tloušťka vrstvy *Granit* 0,3 m a výška kontejneru byla 2 m.

3.1 Vliv vybraných parametrů zdrojového členu na tok anorganické a organické formy C-14 polem blízkých interakcí

Provedené neurčitostní a citlivostní analýzy se zaměřily na vliv čtyř vybraných parametrů zdrojového členu: rychlosti loužení, rozpustnosti, inventáře a objemu volné vody v kontejneru. Studie ukázaly, že největší vliv na sledované časové průběhy toků a pro obě formy C-14 má rychlost loužení a dále inventář.

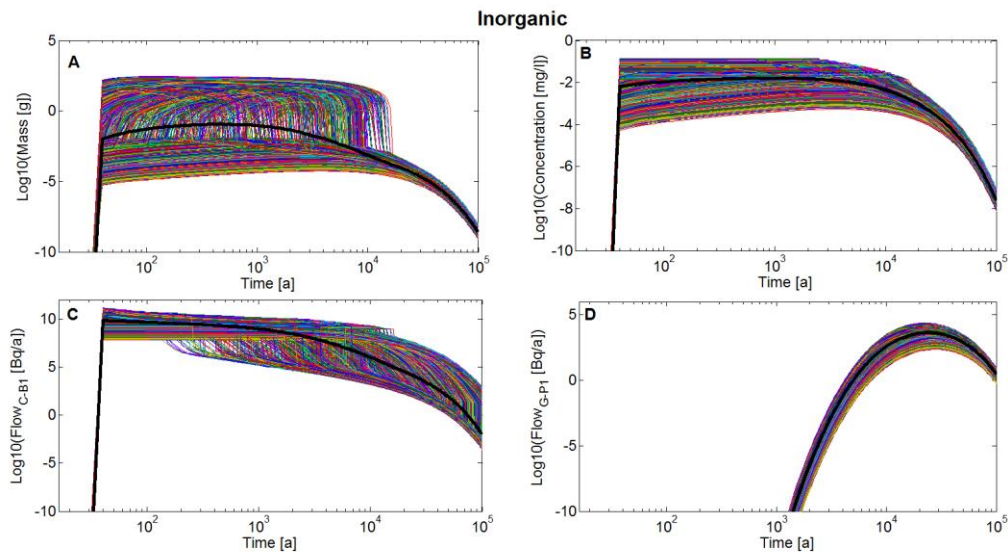
Pro ilustraci tohoto závěru je uvedena studie, která se zaměřila na tři parametry zdrojového členu, které jsou spolu s jejich maximálními (Max), minimálními (Min) a neočekávanějšími hodnotami (Mean) uvedeny v Tab. 3. Vliv objemu volné vody v kontejneru jsme na základě předchozích výsledků zanedbali. Pro neurčitostní a citlivostní analýzu jsme použili metodu založenou na četnostním přístupu popisu neurčitosti. Ve studii jsme uvažovali log-rovnoměrné rozdělení hodnot na intervalech definovaných v Tab. 3.

Tab. 3 Parametry zdrojového členu, jejichž vliv byl studován v 3.1. AF – anorganická forma C-14, OF – organická forma C-14.

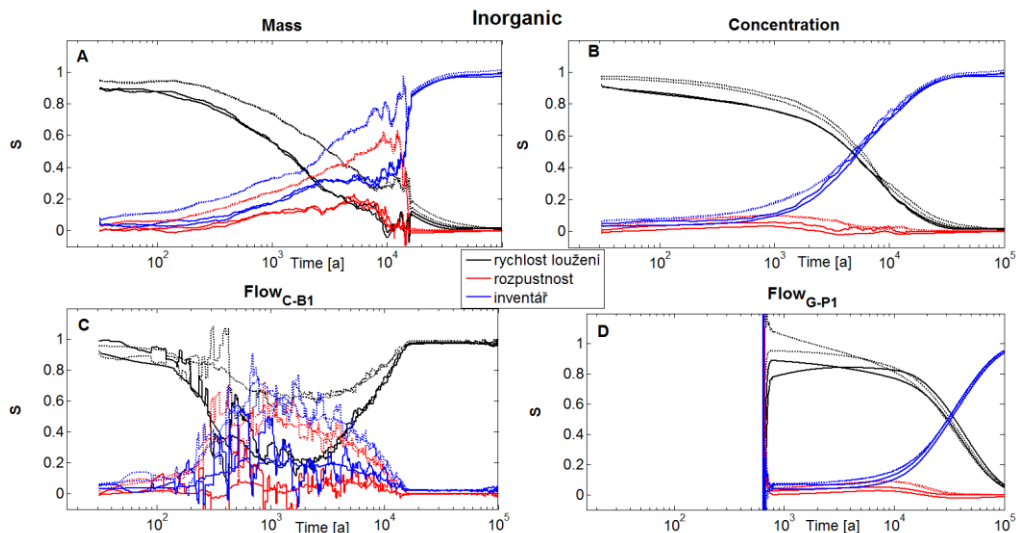
Parametr	τ (rychlost loužení) [a ⁻¹]	Solubility- AF [mol l ⁻¹]	Inventář v jednom UOS - AF [Bq]	Inventář v jednom UOS - OF [Bq]
Mean	0,001	$5 \cdot 10^{-6}$	$1,6 \cdot 10^{13}$	$1,6 \cdot 10^{13}$
Min	$1 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-6}$	$5 \cdot 10^{12}$	$5 \cdot 10^{12}$
Max	0,1	$1 \cdot 10^{-5}$	$5 \cdot 10^{13}$	$5 \cdot 10^{13}$

Na Obr. 10 jsou zobrazeny všechny časové vývoje sledovaných veličin pro anorganickou formu C-14, které byly vypočítány pro získání citlivostních měř S_i a S_{Ti} , jejichž definice je uvedena v podkapitole 5.1.2. Celkem bylo provedeno v rámci této studie $(2+3) \times 2^9 = 2560$ simulací. Z průběhu koncentrací a transportu dostupné hmoty je patrné, že pro vyšší hodnoty rychlosti loužení dochází k saturaci koncentrace anorganické formy ve volné vodě kontejneru. Zejména díky velké hodnotě K_d je rozptyl časových průběhů toků na rozhraní poslední cela **Granit – Pipe1** (panel **D**) poměrně malý, ve srovnání například s rozptylem časových průběhů koncentrací. Na Obr. 11 jsou zobrazeny časové vývoje S_i a S_{Ti} , plné čáry odpovídají S_i , které byly pro kontrolu vypočítány podle obou schémat (5.5). Přerušované čáry odpovídají S_{Ti} vypočítaných podle prvních dvou schémat (5.6). Z průběhů je patrné, že v oblasti maximálních hodnot koncentrací ve volné vodě kontejneru (**B**) má největší vliv rychlost loužení. Na časovém intervalu 10^4 - 10^5 [a], kdy dochází k poklesu sledovaných veličin, má největší vliv na rozptyl parametr inventář v jednom UOS. Rozpustnost má spíše minoritní vliv. Nepravidelný průběh citlivostních měř pro transportu dostupné hmoty (panel **A**) a toku na rozhraní kontejner - první

cela **Backfill1** (panel **C**) je způsoben prahováním díky omezené rozpustnosti. Výpočet měř předpokládá Gaussovo rozdělení hodnot veličiny, které prahování silně deformuje.



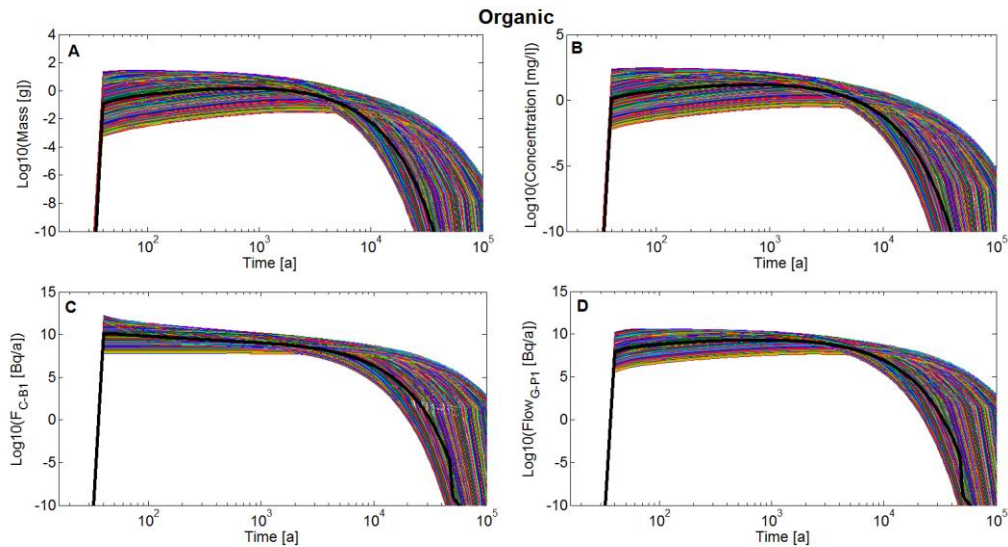
Obr. 10 Časový vývoj transportu dostupné hmoty anorganické formy C-14 (A), koncentrací v kontejneru (B), toků na rozhraní kontejner - první cela **Backfill1** (C) a toku na rozhraní poslední cela **Granit - Pipe1** (D).



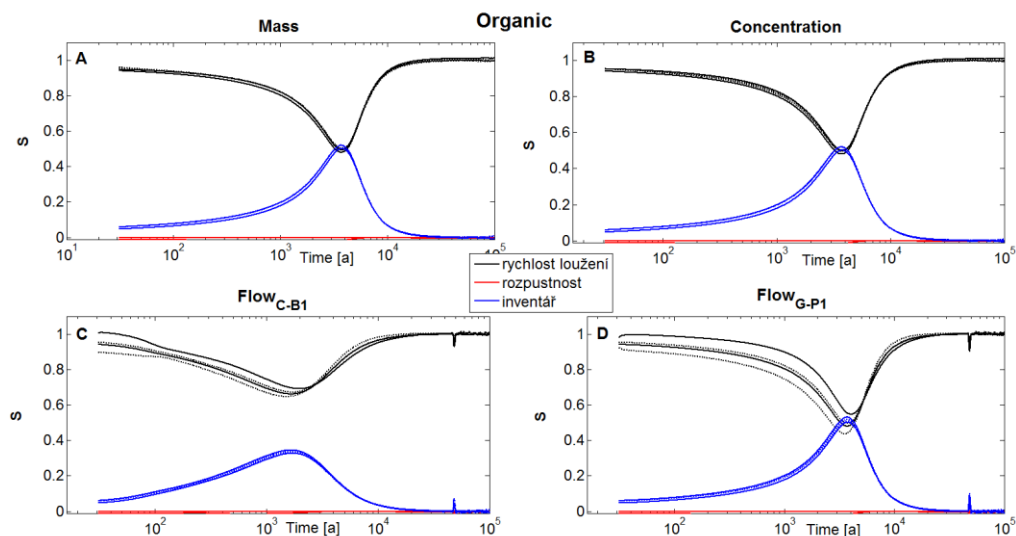
Obr. 11 Citlivostní analýza časových vývoje transportu dostupné hmoty anorganické formy C-14, plné čáry odpovídají S_i , a přerušované čáry označují S_{Ti} . (A): koncentrace v kontejneru; (B): tok na rozhraní kontejner - první cela **Backfill1**; (C): tok na rozhraní poslední **Granit - Pipe1** (D).

Na Obr. 12 jsou zobrazeny časové vývoje sledovaných veličin pro organickou formu C-14, které byly vypočítány pro získání citlivostních měř S_i a S_{Ti} , které jsou zobrazeny na Obr. 13. Všechny časové vývoje vykazují podobný tvar: na začátku, po selhání kontejneru, dojde k rychlému nárůstu. Tento nárůst je následován buď pozvolným poklesem a/nebo nárůstem až do času okolo 10^4 [a], na následném intervalu 10^4 - 10^5 [a] dochází k poklesu všech sledovaných veličin díky radioaktivnímu rozpadu. Na Obr. 13 jsou zobrazeny časové vývoje S_i a S_{Ti} . Stejně jako v případě anorganické formy má největší vliv rychlost loužení. Na časovém

intervalu 10^3 - 10^4 [a] má vliv na rozptyl hodnot také parametr inventář. Rozpustnost nemá vliv, protože pro organickou formu byla uvažována neomezená rozpustnost.




Obr. 12 Neurčitostní analýza časových vývoju sledovaných veličin organické formy C-14. (A): hmotnost transportu dostupné hmoty; (B) koncentrace v kontejneru; (C) tok na rozhraní kontejner - první cela **Backfill1**; (D) tok na rozhraní poslední **Granit - Pipe1**.



Obr. 13 Citlivostní analýza časových vývoju transportu dostupné hmoty organické formy C-14, plné čáry odpovídají S_i , a přerušované čáry označují S_{Ti} . (A): koncentrace v kontejneru; (B): tok na rozhraní kontejner - první cela **Backfill1**; (C): tok na rozhraní poslední **Granit - Pipe1** (D).

3.2 Neurčitostní a citlivostní analýza vybraných parametrů blízkého pole na tok anorganické a organické formy C-14 polem blízkých interakcí

Provedené neurčitostní a citlivostní analýzy se zaměřily na vliv čtyř transportních parametrů blízkého pole: K_d výplňového materiálu anorganické formy C-14, porozity výplňového

	Vývoj modelu transportu C-14 z hlubinného úložiště a jeho neurčitostní a citlivostní analýza	Evidenční označení:
		SÚRAO TZ 171/2017

materiálu a granitu v okolí ukládací komory a ekvivalentního difúzního toku do proudící vody v puklině.

V předchozí studii (podkapitola 3.1) bylo ukázáno, že pro všechny uvažované hodnoty vstupních parametrů zdrojového členu dojde po selhání kontejneru k prudkému nárůstu koncentrace C-14 ve volné vodě kontejneru. Tento nárůst je následován relativně pozvolným poklesem a/nebo nárůstem až do času okolo 10^4 [a]. Na intervalu 10^2 - 10^4 [a] je tedy možné považovat koncentraci ve zdrojovém členu zhruba za konstantní. Toho jsme využili, a abychom lépe pochopili závislost hodnot toků polem blízkých interakcí na sledovaných parametrech, analyzovali jsme zjednodušený případ, který dovoluje vyjádřit závislost konstantních toků na sledovaných parametrech analyticky. V tomto zjednodušeném případě jsme zanedbali radioaktivní rozpad a uvažovali jsme migraci dvěma rovinnými vrstvami o ploše A při konstantním zdroji na počátku první vrstvy reprezentující současně **Backfill1** a **Backfill2** (v uvažované studii jsou hodnoty transportních parametrů **Backfill1** totožné s vlastnostmi **Backfill2**). Jako hraniční podmínku na konci druhé vrstvy, která reprezentuje **Granit**, jsme uvažovali definovaný ekvivalentní tok do proudící pukliny.

Analytické řešení této transportní úlohy vede na konstantní tok, F , ve tvaru (Vetešník et al. 2017)

$$F = AC_0 \frac{\varepsilon_1 D_1 \varepsilon_2 D_2 Q_{eq}}{(\varepsilon_1 D_1 L_2 + \varepsilon_2 D_2 L_1) Q_{eq} + A \varepsilon_1 D_1 \varepsilon_2 D_2}, \quad (3.1)$$


kde C_0 je konstantní vstupní koncentrace, $\varepsilon_{1,2}$ jsou porozity vrstev, $D_{1,2} = G_{1,2} D_w$ jsou difúzní koeficienty v pórech a $L_{1,2}$ jsou délky vrstev. Pro $Q_{eq} \gg (A \varepsilon_1 D_1 \varepsilon_2 D_2) / (\varepsilon_1 D_1 L_2 + \varepsilon_2 D_2 L_1)$ přechází vztah (3.1) ve tvar

$$F \approx AC_0 \frac{\varepsilon_1 D_1 \varepsilon_2 D_2}{\varepsilon_1 D_1 L_2 + \varepsilon_2 D_2 L_1}, \quad (3.2)$$

kteřý odpovídá konstantnímu toku při nulové koncentraci na konci druhé vrstvy. V takovém případě nemá Q_{eq} vliv na hodnotu konstantního toku; díky malé hodnotě porozity granitu může platit $\varepsilon_1 D_1 L_2 > \varepsilon_2 D_2 L_1$, tok F je pak determinován zejména porozitou prostředí **Granit**; granitová vrstva je díky své malé porozitě hlavním omezujícím činitelem difúzního toku. V případě, kdy Q_{eq} dominuje, je F možné aproximovat jako, $F \approx C_0 Q_{eq}$, Q_{eq} má rozhodující vliv na hodnotu konstantního toku.

Abychom ilustrovali výsledky a rozsah platnosti analytického řešení, uvádíme dvě studie, které se liší rozsahem hodnot Q_{eq} . V prvním případě bylo Q_{eq} uvažováno z intervalu možná až nerealisticky vysokých hodnot (10^7 - 10^{10})[l/a], tak aby Q_{eq} nemělo vliv na hodnotu konstantního toku na rozhraní **Granit - Pipe1** (rovnice (3.2)). V druhém případě jsme naopak uvažovali Q_{eq} z intervalu malých hodnot (10^{-2} - 10^1)[l/a], tak aby Q_{eq} omezovalo hodnotu konstantního toku. Pro neurčitostní a citlivostní analýzu jsme použili metodu založenou na četnostním přístupu popisu neurčitosti. Ve studii jsme uvažovali rovnoměrné (porozita vrstvy **Backfill1,2**) a log-rovnoměrné rozdělení hodnot (K_d výplňového materiálu, porozita vrstvy **Granit**, Q_{eq}) na intervalech definovaných v

Tab. 4. V každé studii jsme provedli $(2+4) \times 2^9 = 3070$ simulací.

 SÚRAO	Vývoj modelu transportu C-14 z hlubinného úložiště a jeho neurčitostní a citlivostní analýza	Evidenční označení:
		SÚRAO TZ 171/2017

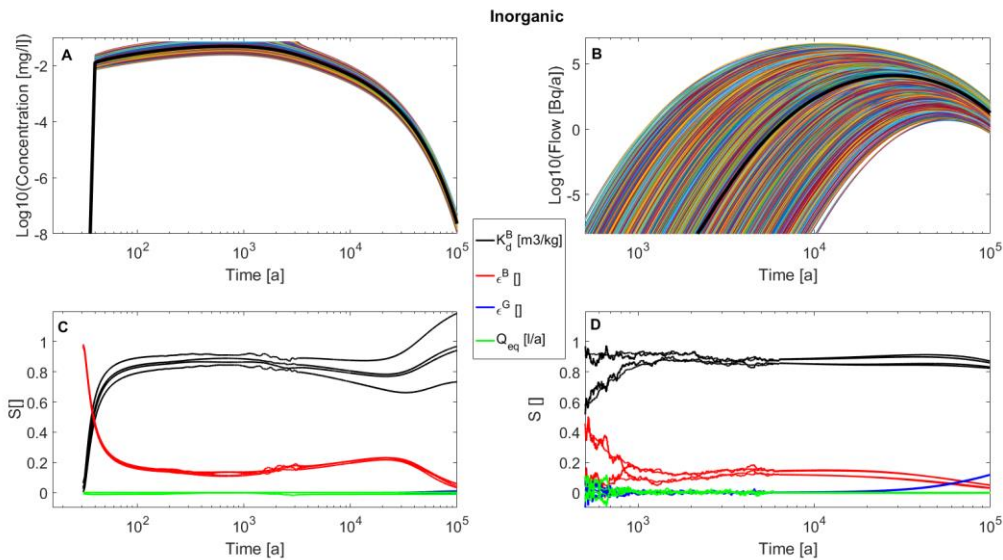
Tab. 4 Parametry blízkého pole, jejichž vliv byl studován v 3.2. AF – anorganická forma C-14.

Parametr	K_d (backfill1,2) AF [m ³ kg ⁻¹]	Porozita (backfill1,2)	Porozita (granite)	Q_{eq} [l.a ⁻¹]
Mean	5	0,35	0,01	5.10 ⁸ (0,5)
Min	2	0,2	0,005	10 ⁷ (10 ⁻²)
Max	20	0,5	0,02	10 ¹⁰ (10 ¹)

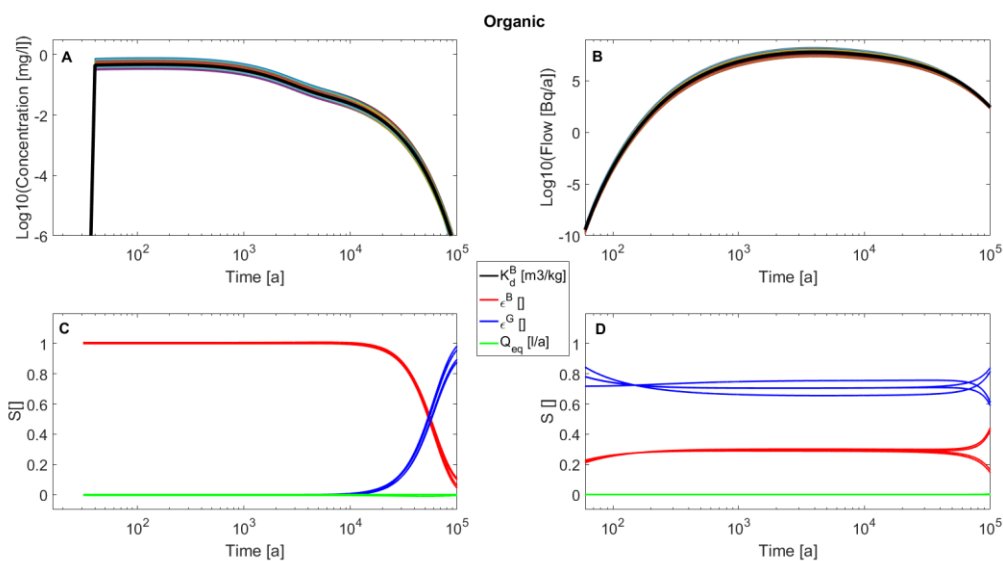
Na Obr. 14 jsou zobrazeny výsledky neurčitostní a citlivostní analýzy anorganické formy C-14 pro první případ Q_{eq} . Panel **A** zobrazuje časové vývoje koncentrací v kontejneru, tedy ve volné vodě v kontejneru, získaných ze všech 3070 simulací, panel **C** pak časové vývoje příslušných citlivostních měř S_i a S_{Ti} . Z výsledků je patrné, že rozptyl hodnot koncentrací anorganické formy je především způsoben K_d výplňového materiálu a částečně porozitou výplňového materiálu. V důsledku velké hodnoty K_d výplňového materiálu tok na rozhraní **Granit - Pipe1** (panel **B**) nedosahuje stacionárního stavu a jeho rozptyl je ovlivněn zejména tímto parametrem (panel **D**).

Na Obr. 15 jsou zobrazeny výsledky neurčitostní a citlivostní analýzy pro organickou formu C-14 pro první případ Q_{eq} . Z výsledků je patrné, že na rozdíl od sorbující anorganické formy tok organické formy C-14 na rozhraní **Granit - Pipe1** (panel **B**) dosahuje stacionárního stavu a závislost rozptylu jeho hodnot odpovídá výsledkům analytického řešení. Rozptyl hodnot toku závisí především na porozitě granitu a částečně na porozitě výplňového materiálu.

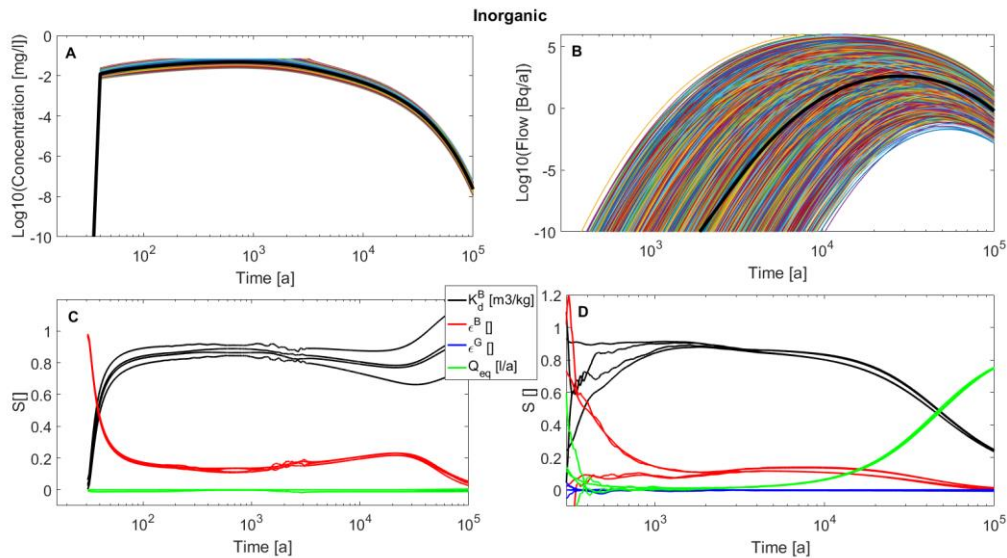
Na Obr. 16 jsou zobrazeny výsledky neurčitostní a citlivostní analýzy anorganické formy C-14 pro druhý případ Q_{eq} . Rozptyl hodnot koncentrací ve volné vodě v kontejneru (panel **A**) a toků na rozhraní **Granit - Pipe1** (panel **B**) se příliš neliší od výsledků z prvního případu (Obr. 14). Rozptyl hodnot Q_{eq} má malý vliv na rozptyl hodnot sledovaných veličin, který je způsoben především rozptylem hodnot K_d výplňového materiálu.



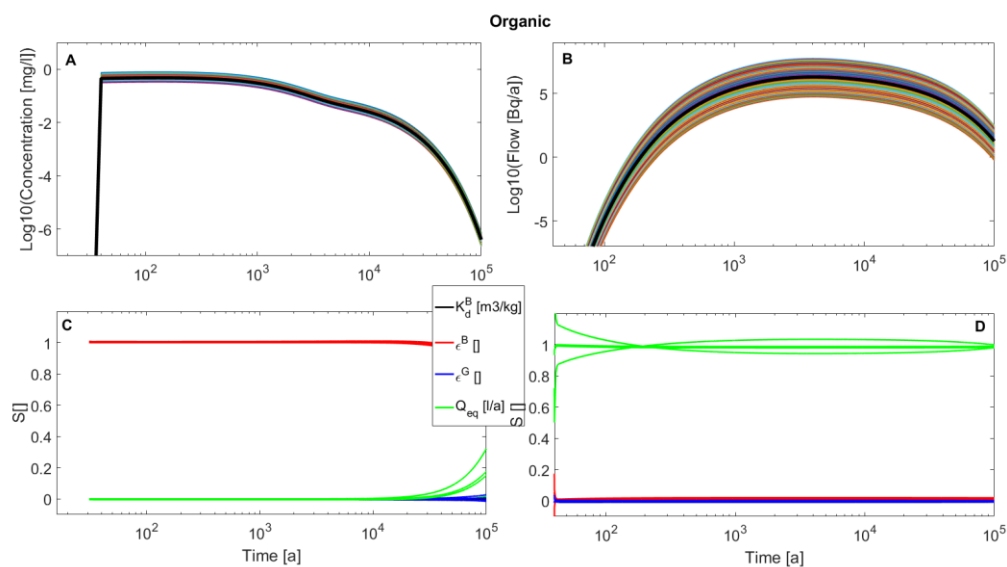
Obr. 14 Neurčitostní a citlivostní analýza časových vývoju sledovaných veličin anorganické formy C-14 pro Q_{eq} z intervalu hodnot $(10^7-10^{10})[l/a]$. (A): koncentrace v kontejneru; (B) tok na rozhraní poslední cela **Granit - Pipe1**; (C) citlivostní míry S_i a S_{Ti} pro koncentrace; (D) citlivostní míry S_i a S_{Ti} pro tok na rozhraní poslední **Granit - Pipe1**. Plné čáry stejné barvy v C a D odpovídají S_i a S_{Ti} podle schémat uvedených v příloze A. Černá plná čára v A a B odpovídá průběhu pro referenční případ.



Obr. 15 Neurčitostní a citlivostní analýza časových vývoju sledovaných veličin organické formy C-14 pro Q_{eq} z intervalu hodnot $(10^7-10^{10})[l/a]$. (A): koncentrace v kontejneru; (B) tok na rozhraní poslední cela **Granit - Pipe1**; (C) citlivostní míry S_i a S_{Ti} pro koncentrace; (D) citlivostní míry S_i a S_{Ti} pro tok na rozhraní poslední **Granit - Pipe1**. Plné čáry stejné barvy v C a D odpovídají S_i a S_{Ti} podle schémat uvedených v příloze A. Černá plná čára v A a B odpovídá průběhu pro referenční případ.



Obr. 16 Neurčitostní a citlivostní analýza časových vývoju sledovaných veličin anorganické formy C-14 pro Q_{eq} z intervalu hodnot (10^2 - 10^1)[l/a]. (A): koncentrace v kontejneru; (B) tok na rozhraní poslední cela **Granit - Pipe1**; (C) citlivostní míry S_i a S_{Ti} pro koncentrace; (D) citlivostní míry S_i a S_{Ti} pro tok na rozhraní poslední **Granit - Pipe1**. Plné čáry stejné barvy v C a D odpovídají S_i a S_{Ti} podle schémat uvedených v příloze A. Černá plná čára v A a B odpovídá průběhu pro referenční případ.



Obr. 17 Neurčitostní a citlivostní analýza časových vývoju sledovaných veličin organické formy C-14 pro Q_{eq} z intervalu hodnot (10^2 - 10^1)[l/a]. (A): koncentrace v kontejneru; (B) tok na rozhraní poslední cela **Granit - Pipe1**; (C) citlivostní míry S_i a S_{Ti} pro koncentrace; (D) citlivostní míry S_i a S_{Ti} pro tok na rozhraní poslední **Granit - Pipe1**. Plné čáry stejné barvy v C a D odpovídají S_i a S_{Ti} podle schémat uvedených v příloze A. Černá plná čára v A a B odpovídá průběhu pro referenční případ.

Na Obr. 17 jsou zobrazeny výsledky neurčitostní a citlivostní analýzy pro organickou formu C-14 a pro druhý případ Q_{eq} . Z výsledků je patrné, že na rozdíl od prvního případu Q_{eq} (Obr. 15), tok organické formy C-14 na rozhraní **Granit - Pipe1** (panel B) závisí především na rozptýlu hodnot Q_{eq} .

3.3 Transport CH₄ v částečně saturovaném prostředí

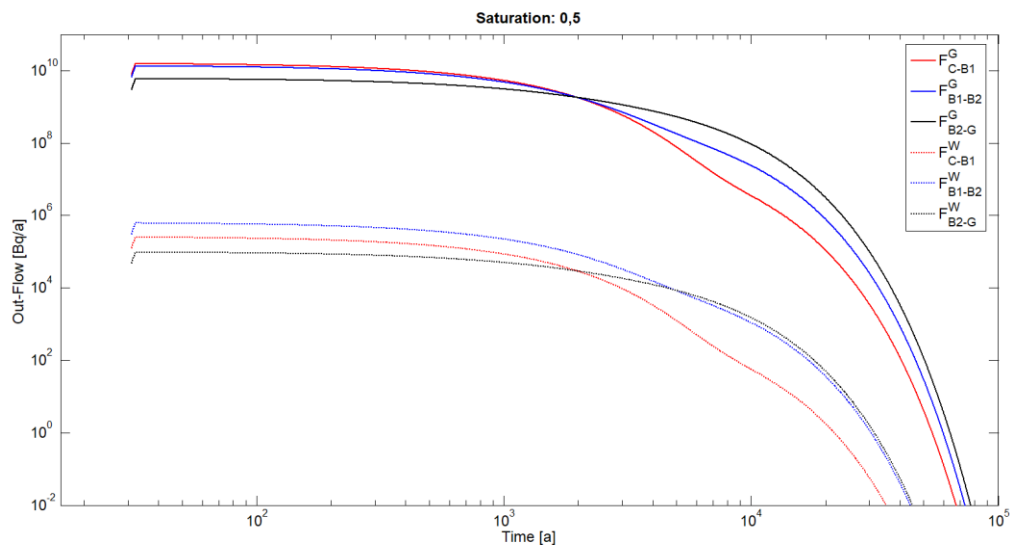
Pro ověření implementace transportu v částečně saturovaném prostředí jsme řešili dvě úlohy, které se zabývaly transportem CH₄. V obou úlohách jsme uvažovali pro jednoduchost standardní teplotu 25°C, která umožňuje přímo využít Henryho konstanty uvedené v Tab. 1.

3.3.1 Příklad saturace 0,5

V první úloze jsme uvažovali saturační faktor $S_w=0,5$, geometrický faktor pro plynnou fázi jsme vypočítali jako $G_g = 0,66\varepsilon(1 - S_w)$, kde ε je porozita. Je to jedna z možných variant uvedená v (Catlett a Tauxe 2014). Na Obr. 18 je uvedena záložka PF vstupního Microsoft Excel souboru *InputParameters.xlsx*, která obsahuje hodnoty vybraných vstupních parametrů. Na Obr. 19 je zobrazen časový vývoj toků na rozhraní prvních třech částí modelu. V důsledku velké hodnoty referenční difuzivity v plynné fázi a hodnotě Henryho konstanty převyšuje tok v plynné fázi tok v kapalně o čtyři řády, viz Tab. 5.

Fyzikální parametry			
Half-life time	a	5700	
Reference diffusivity (Water, Gas)	m ² ·s ⁻¹	2.00E-09	1.00E-04
Solubility (anorganic, norganic)	mol/l	5.00E-06	-1.00E+00
Parametry backfill1			
Partition coefficient (anorganic, organic)	m ³ ·kg ⁻¹	5.00E+00	0.00E+00
Porosity	-	0.35	
Bulk density	kg·m ⁻³	1800	
Tortuosity/Geometric factor (Water, Gas)		8.E-01	1.16E-01
Relative diffusivity	-	1.00	
Parametry backfill2			
Partition coefficient (anorganic, organic)	m ³ ·kg ⁻¹	5.00E+00	0.00E+00
Porosity	-	0.35	
Bulk density	kg·m ⁻³	1800	
Tortuosity/Geometric factor (Water, Gas)		8.E-01	1.16E-01
Relative diffusivity	-	1.00	
Parametry granitu			
Partition coefficient (anorganic, organic)	m ³ ·kg ⁻¹	0.00E+00	0.00E+00
Porosity		0.01	
Bulk density	kg·m ⁻³	2660	
Tortuosity/Geometric factor (Water, Gas)		7.E-01	3.00E-03
Relative diffusivity		1.00	
Parametry matrice			
τ (rychlost loužení)	a ⁻¹	1.00E-03	
Parametry kontejneru			
μ (životnost)	a	31	
Inventář v jednom UOS	Bq	1.60E+13	1.60E+13
Volný objem vody v jednom UOS	l	100.00	2.5% z celkového objemu 4000 l jednoho UOS
Parametry puklin			
Qeq	l/a	1.00E+01	
Geo ^{IN}	m ³ /a	1.E+00	
Geo ^T	a	3.16E+02	
Geo ^D		1.00E+02	
Geo ^a		1.00E-02	
Parametry backfill1A			
Scale Factor for Geometric Factor time dependence	yr	2.00E+06	
Parametry backfill2A			
Scale Factor for Geometric Factor time dependence	yr	2.00E+06	
Partial Saturation			
Volumetric content B1 (gas, water)		1.75E-01	1.75E-01
Volumetric content B2 (gas, water)		1.75E-01	1.75E-01
Volumetric content granit (gas, water)		5.00E-03	5.00E-03
Air partition coefficient (anorganic, organic)		1.15E+00	2.70E+01

Obr. 18 Záložka PF vstupního Microsoft Excel souboru *InputParameters.xlsx* pro první simulaci se saturací 0,5.



Obr. 19 Časový vývoj toků na rozhraní prvních třech částí modelu: F_{C-B1} označuje tok z kontejneru do první cely **Backfill1**, F_{B1-B2} tok z poslední cely **Backfill1** do první cely **Backfill2**, F_{B2-G} tok z poslední cely **Backfill2** do první cely **Granit**. Plná čára odpovídá CH_4 v plynné fázi, tečkovaná čára CH_4 v kapalně fázi.

Tab. 5 Hodnoty maximálních toků z Obr. 19. F_{C-B1} : tok z kontejneru do první cely; F_{B1-B2} : tok z poslední cely **Backfill1** do první cely **Backfill2**, a F_{B2-G} : tok z poslední cely **Backfill2** do první cely **Granit**.

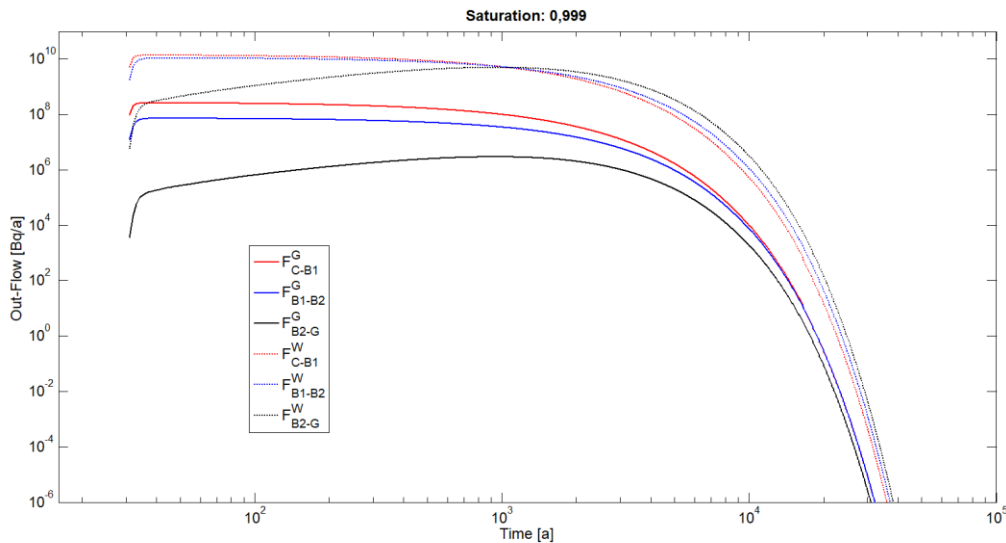
Medium	F_{C-B1} [Bq/a]	F_{B1-B2} [Bq/a]	F_{B2-G} [Bq/a]
Gas	$1,57 \cdot 10^{10}$	$1,34 \cdot 10^{10}$	$5,99 \cdot 10^9$
Water	$2,51 \cdot 10^5$	$6,18 \cdot 10^5$	$9,65 \cdot 10^4$

3.3.2 Příklad saturace 0,999

V druhé úloze jsme uvažovali saturační faktor $S_w = 0,999$. Obr. 20 je zobrazen časový vývoj toků na rozhraní prvních třech částí modelu. V důsledku velké hodnoty saturace převyšuje tok v kapalně fázi tok v plynné fázi, viz Tab. 6 Tab. 6.

Tab. 6 Hodnoty maximálních toků z Obr. 20. F_{C-B1} : tok z kontejneru do první cely; F_{B1-B2} : tok z poslední cely **Backfill1** do první cely **Backfill2**, a F_{B2-G} : tok z poslední cely **Backfill2** do první cely **Granit**.

Medium	F_{C-B1} [Bq/a]	F_{B1-B2} [Bq/a]	F_{B2-G} [Bq/a]
Gas	$2,6 \cdot 10^8$	$7,3 \cdot 10^7$	$2,9 \cdot 10^6$
Water	$1,4 \cdot 10^{10}$	$1,1 \cdot 10^{10}$	$4,5 \cdot 10^9$




Obr. 20 Časový vývoj toků na rozhraní prvních třech částí modelu: F_{C-B1} označuje tok z kontejneru do první cely **Backfill1**, F_{B1-B2} tok z poslední cely **Backfill1** do první cely **Backfill2**, F_{B2-G} tok z poslední cely **Backfill2** do první cely **Granit**. Plná čára odpovídá CH_4 v plynné fázi, tečkovaná čára CH_4 v kapalně fázi.

4 Souhrn a diskuze

Hlavním úkolem tohoto projektu bylo provedení neurčitostní analýzy (UA), citlivostní analýzy (SA) a zhodnocení vlivu neurčitosti parametrů ovlivňujících transport C-14 a případně dalších mobilních radionuklidů z hlubinného úložiště ostatních radioaktivních odpadů (RAO) nepřijatelných do příporchových úložišť. Závěrečná výzkumná zpráva obsahuje jak popis vytvořeného modelu transportu C-14, který byl navržen a implementován, tak výsledky neurčitostních a citlivostních analýz provedených na vyvinutém modelu.

Model popisuje případ, ve kterém je vstupní množství C-14 koncentrováno do jednoho kontejneru. Tento scénář lépe odpovídá skutečnosti; předpokládá se, že v několika sudech bude uložena převážná část množství C-14 připadajícího na jeden úložný prostor. V takovém případě homogenizace vstupního množství na celý objem úložného prostoru může vést k podhodnocení toků C-14 z úložného prostoru. Koncentrace zdroje komplikuje ovšem transportní úlohu; v případě uložení kontejneru s kritickým množstvím C-14 do středu úložného prostoru, okolní sudy a výplňový materiál představují pro jeho transport do geosféry silně heterogenní prostředí. Pro přesný popis transportu takovým prostředím je nutné použít podrobný popis, který není možné implementovat v GoldSim. Pro posouzení bezpečnosti nás ovšem zajímají konzervativní scénáře, ve kterých bude sud s kritickým množstvím uložen v bezprostřední blízkosti geosféry. Pro tento scénář je možné použít 1-D transportní model složený z několika vrstev materiálu, který byl implementován v GoldSim.

C-14 může migrovat v různých formách, přičemž rychlost transportu ze zdroje do biosféry závisí na konkrétní formě. Do modelu byly zavedeny dvě formy C-14: anorganická a organická, pro tyto formy byly navrženy na základě literární rešerše potřebné parametry. Výsledky ukázaly, že transport anorganické formy C-14 je zejména omezen sorbcí na výplňový materiál, transport nesorbující organické formy C-14 byl omezen buď difúzním tokem do proudící vody v puklině a/nebo porozitou granitu a výplňového materiálu. Dále byl studován transport organické formy C-14 (CH_4) v částečně saturovaném prostředí. Studie ukázaly, že díky velkým


 SÚRAO	Vývoj modelu transportu C-14 z hlubinného úložiště a jeho neurčitostní a citlivostní analýza	Evidenční označení:
		SÚRAO TZ 171/2017

hodnotám difuzivity v plynu a Henryho konstantě, určující rozdělení v plynné a kapalné fázi, je difúzní tok CH₄ v plynné formě významný i pro relativně velké saturace prostředí.

Závěrem lze říct, že hlavní cíle projektu byly dosaženy. Vznikl flexibilní model 1D transportu C-14 blízkým polem v GoldSim, který umožňuje studovat širokou škálu transportních úloh. Pomocí metod citlivostní analýzy byly identifikovány kritické parametry, které nejvíce ovlivňují tok C-14 z pole blízkých interakcí v modelových případech.

5 Citace a seznam literatury

CATLETT K., TAUXE J. (2014): Implementation of Diffusion in GoldSim. – Neptune document system. – JT.

 SÚRAO	Vývoj modelu transportu C-14 z hlubinného úložiště a jeho neurčitostní a citlivostní analýza	Evidenční označení:
		SÚRAO TZ 171/2017

- CRAWFORD J. (2013): Quantification of rock matrix Kd data and uncertainties for SR-PSU data and uncertainties for SR-PSU. – Technical Report R-13-38, 65 s.
- ČUBOVÁ K., BABOROVÁ L., NĚMEC M., JOHN J. (2017): Chování VJP a forem RAO nepřijatelných do přípovrchových úložišť v prostředí HÚ/Vlastnosti RAO nepřijatelných do přípovrchových úložišť. Technická zpráva č.
- GOLDSIM (2014): GoldSim Contaminant Transport Module User's Guide. – GoldSim Technology Group, version 6.4.
- GROGAN H. A., WORGAN K. J., SMITH G. M., HODKINSON D. P. (1992): Post-Disposal Implications of Gas Generated from a Repository for Low and Intermediate Level Wastes. – Nagra Technical Report 92-07, 58 s.
- Hanss M. (2002): The transformation method for the simulation and analysis of systems with uncertain parameters. – Fuzzy Sets and Systems 130, 277–289.
- HAVERKAMP B., BIURRUN E., KUCERKA M. (2005): Update of the Safety Assessment of the Underground Richard Repository, Litoměřice. – WM'05 Conference, February 27 – March 3, 2005, Tucson, AZ.
- HEIKOLA T. (2014): Leaching of ¹⁴C in repository conditions. Transport and speciation. – JULKAISIJA – UTGIVARE – PUBLISHER, VTT Technical Research Centre of Finland. Finland, 35 s.
- HOUARI M., HAMDI B., BOURAS O., BOLLINGER J., BAUDU M. (2014): Static sorption of phenol and 4-nitrophenol onto composite geomaterials based on montmorillonite, activated carbon and cement. – Chemical Engineering Journal, 255, 506–512.
- OCHS M., COLÀS E., GRIVÉ M., OLMEDA J., CAMPOS I., BRUNO J. (2014): Reduction of radionuclide uptake in hydrated cement systems by organic complexing agents: Selection of reduction factors and speciation calculations. – Report R-14-22, 65 s.
- OCHS M., MALLANTS D., WANG L. (2016): Radionuclide and Metal Sorption on Cement and Concrete. Topics in Safety, Risk, Reliability and Quality, 29, 300 s.
- SALTELLI A., RATTO M., ANDRES T., CAMPOLONGO F., CARIBONI J., GATELLI D., SAISANA M., TARANTOLA S. (2008): Global Sensitivity Analysis: The Primer. John Wiley & Sons.
- SALTELLI A., ANNONI P., AZZINI I., CAMPOLONGO F., RATTO M., TARANTOLA S. (2010): Variance based sensitivity analysis of model output. Design and estimator for the total sensitivity index. Computer Physics Communications 181, 259-270.
- SANDER R. (2015): Compilation of Henry's Law Constants (version 4.0) for Water as Solvent.– Atmospheric Chemistry and Physics, 15, 4399–4981.
- VETEŠNÍK A., REIMITZ D., VOPÁLKA D. (2017): Popis vývoje modelu transportu C-14 z hlubinného úložiště. Technická zpráva č.
- WIELAND E., JAKOB A., TITS J., LOTHENBACH B., KUNZ D. (2016): Sorption and diffusion studies with low molecular weight organic compounds in cementitious systems. – Applied Geochemistry, 67, 101–117.

Příloha

Metody neurčitostní a citlivostní analýzy

Neurčitostní analýza v kontextu modelování se snaží odhadnout a kvantifikovat neurčitosti hodnot sledovaného výstupu modelu ($y(\Sigma)$), které vznikají v důsledku nejistot v hodnotách některých vstupních parametrů modelu (Σ). S neurčitostní analýzou je úzce spjata citlivostní analýza, která hledá odpověď na otázku jak jednotlivé neurčité parametry ($s, s \in \Sigma$) přispívají k neurčitosti hodnot výstupu modelu $y(\Sigma)$.

Pro obě analýzy je důležitá volba matematického popisu neurčitostí vstupních parametrů. V této příloze budou v krátkosti uvedeny dvě metody neurčitostní a citlivostní analýzy, které jsou založeny na rozdílných přístupech k modelování neurčitostí: první přístup je založený na teorii fuzzy množin, druhý přístup je založený na četnostním popisu neurčitosti.

5.1.1 Metody neurčitostní a citlivostní analýzy založené na teorii fuzzy množin

Fuzzy reálné číslo si lze představit jako sadu intervalů, které jsou uspořádány hierarchicky tak, že $S^\beta \subset S^\alpha$ pokud $\alpha < \beta$. Hodnotu indexu $0 \leq \alpha \leq 1$ lze interpretovat jako stupeň pravděpodobnosti, že hodnota s bude z intervalu S^α . Hodnota $\alpha = 1$ reprezentuje nejvyšší stupeň pravděpodobnosti a odpovídající interval S^1 obsahuje pouze jedinou hodnotu. Na druhé straně minimální hodnotě $\alpha = 0$ odpovídá interval, obsahující i hodnoty s s nejmenším stupněm pravděpodobnosti, odpovídající interval S^0 zahrnuje všechny přípustné hodnoty S , tj. $[\min(S), \max(S)]$.

Transformační metoda (Hanss 2002) umožňuje analýzu numerických modelů s neurčitými parametry, jejichž hodnoty jsou právě vyjádřeny pomocí fuzzy reálných čísel. Transformační metoda nejdříve rozdělí interval možných hodnot na podintervaly $S_i^j \equiv (\alpha_i^j, \beta_i^j)$, tzv. α -řez. Každý neurčitý parametr je tak reprezentován množinou $(M + 1)$ intervalů $\tilde{s}_i = \{S_i^0, S_i^1, \dots, S_i^M\}$. V následujícím kroku metoda transformuje každý interval S_i^j do řady \hat{S}_i^j . V případě použité redukované transformační metody \hat{S}_i^j má tvar

$$\hat{S}_i^j = \overbrace{\left((\alpha_i^j, \beta_i^j), (\alpha_i^j, \beta_i^j), \dots, (\alpha_i^j, \beta_i^j) \right)}^{2^{i-1} \text{ dvojic}}$$

$$\alpha_i^j = \underbrace{(a_i^j, \dots, a_i^j)}_{2^{K-i} \text{ členů}}, \quad \beta_i^{(j)} = \underbrace{(b_i^{(j)}, \dots, b_i^{(j)})}_{2^{K-i} \text{ členů}} \quad (5.1)$$

Redukovaná transformační metoda je vhodná pro monotónní matematické modely, protože uvažuje pouze hraniční body a_i^j a b_i^j intervalů S_i^j . V případě třech neurčitých parametrů, tj. $K = 3$, \hat{S}_i^j pro každý α^j -řez definuje souřadnice vrcholů kvádry vymezeného třemi intervaly S_i^j . Např. pro α^0 -řez

$$\begin{aligned}
 \hat{S}_1^0 &= (a_1^0, a_1^0, a_1^0, a_1^0, b_1^0, b_1^0, b_1^0, b_1^0), \\
 \hat{S}_2^0 &= (a_2^0, a_2^0, b_2^0, b_2^0, a_2^0, a_2^0, b_2^0, b_2^0), \\
 \hat{S}_3^0 &= (a_3^0, b_3^0, a_3^0, b_3^0, a_3^0, b_3^0, a_3^0, b_3^0).
 \end{aligned} \tag{5.2}$$

Pokud jsou tyto řady uspořádány do sloupců matice, potom každý řádek této matice odpovídá jedné z možných kombinací hodnot K neurčitých parametrů. Simulace modelu proběhne pro každou z těchto kombinací a získaná řešení modelu, $\hat{y}^{\alpha_j} = F(\hat{S}_1^{\alpha_j}, \hat{S}_2^{\alpha_j}, \dots, \hat{S}_K^{\alpha_j})$, jsou uspořádány do řad \hat{Y}^{α_j} , které jsou nakonec zpětně transformovány do intervalů Y^{α_j} . Dolní hranice j -tého intervalu je vypočtena jako společné minimum řady \hat{Y}^{α_j} a dolní hranice intervalu $Y^{\alpha_{j+1}}$, horní hranice pak jako společné maximum stejné řady a horní hranice $Y^{\alpha_{j+1}}$. Řešení modelu je tedy reprezentováno pomocí $M+1$ intervalů Y^{α_j} , které charakterizují neurčitosti řešení modelu.

Kromě toho transformační metoda umožňuje kvantifikovat podíl jednotlivých vstupních neurčitých parametrů na této neurčitosti, tedy umožňuje SA. Za tímto účelem byl zaveden koeficient $\eta_i^{(j)}$, který je v případě redukované transformační metody

$$\eta_i^{(j)} = \frac{1}{2^{K-1} (b_i^{(j)} - a_i^{(j)})} \sum_{k=1}^{2^{K-i}} \sum_{l=1}^{2^{i-1}} (k_2 \hat{y}^{(j)} - k_1 \hat{y}^{(j)}), \tag{5.3}$$

$$k_1(k, l) = k + (l-1)2^{K-i+1}, \quad k_2(k, l) = k + (2l-1)2^{K-i}.$$

Koeficient $\eta_i^{(j)}$ vyjadřuje vliv neurčitosti i -tého parametru \tilde{s}_i na neurčitost výstupu \hat{y}^{α_j} pro α_j -řez. Standardizovaný koeficient ρ_i charakterizující souhrnný vliv \tilde{s}_i ve všech α_j -řezech je definovaný jako (Hanss 2002)

$$\rho_i = \frac{\sum_{j=1}^{M-1} m_j \left| \eta_i^{(j)} (a_i^{(j)} + b_i^{(j)}) \right|}{\sum_{q=1}^n \sum_{j=1}^{M-1} m_j \left| \eta_q^{(j)} (a_q^{(j)} + b_q^{(j)}) \right|}. \tag{5.4}$$

5.1.2 Metody neurčitostní a citlivostní analýzy založené na četnostním popisu neurčitosti

Pro lepší pochopení metody si představme, že můžeme zvolit novou metodu měření, která zúží rozptyl hodnot jednoho z neurčitých parametrů, s_i , což povede v konečném důsledku ke snížení rozptylu výsledků $y(\Sigma)$. Abychom kvantitativně odhadli snížení rozptylu, zafixujeme s_i na hodnotě s_i^* , a vypočítejme redukovaný podmíněný rozptyl $V(y|s_i = s_i^*)$, kde V označuje operátor rozptylu. S takovým přístupem ke kvantifikaci snížení rozptylu jsou spojeny dva problémy. Zaprvé, pro nelineární model může platit $V(y|s_i = s_i^*) \geq V(y)$, a za druhé, ve skutečnosti nevíme, na jaké hodnotě zafixovat s_i . Oba problémy můžeme překonat, jestliže

vypočítáme průměrný podmíněný rozptyl přes možné hodnoty s_i , $E(V(y|s_i))$, kde E je operátor střední hodnoty. Pro tuto míru již platí $E(V(y|s_i)) \leq V(y)$, protože $V(y)$ lze rozložit jako $E(V(y|s_i)) + V(E(y|s_i)) = V(y)$, kde člen $V(E(y|s_i))$ je možno interpretovat jako vliv prvního řádu s_i na y (Saltelli et al. 2008). Tento člen je proto použit pro definici citlivostní míry ve tvaru

$$S_i = \frac{V(E(y|s_i))}{V(y)}. \quad (5.5)$$

Dále zavedeme zcela univerzální citlivostní míru, která je vhodná i pro neaditivní nelineární modely. V obecném případě musíme zavést citlivostní míry, které charakterizují společný efekt všech parametrů. Takovouto míru lze definovat jako (Saltelli et al., 2008)

$$S_{Ti} \equiv \frac{E(V(y|z_{\sim i}))}{V_y} = 1 - \frac{V(E(y|z_{\sim i}))}{V_y} = 1 - \frac{V(E(y|z_1, z_2, \dots, z_{i-1}, z_{i+1}, z_K, s_1, s_2, \dots, s_K))}{V_y}, \quad (5.6)$$

kde střední hodnota je vypočítána pro pevné hodnoty všech parametrů kromě z_i .

Pro výpočet citlivostního koeficientu prvního řádu S_i a citlivostního koeficientu celkového efektu S_{Ti} je nutné vygenerovat množinu výstupů Y . To je možné pomocí Monte Carlo metody, ve které je nejdříve pomocí generátoru pseudonáhodných čísel vygenerována matice S kombinací parametrů s_i . Pro tyto kombinace jsou následně vypočítány hodnoty y . Pro výpočet S_i a S_{Ti} se matice S skládá z $2+K$ matic o velikosti $(n \times K)$, S má tedy velikost $((2+K)n \times K)$. První dvě $(n \times K)$ matice, \mathbf{A} a \mathbf{B} , jsou na sobě nezávislé, přičemž každý sloupec představuje soubor pseudonáhodných hodnot jednoho z neurčitých parametrů s hustotou pravděpodobnosti popisující neurčitost příslušného parametru. Zbývajících K matic velikosti $(n \times K)$, $\mathbf{A}_B^{(i)}$, má s maticí \mathbf{A} shodné všechny sloupce vyjma i -tého, který se shoduje s i -tým sloupcem matice \mathbf{B} . Hodnoty $V(E(y|s_i))$, nutné pro výpočet S_i , je pak možné vypočítat podle jednoho z těchto dvou schémat (Saltelli et al. 2010)

$$V(E(y|s_i)) = \frac{1}{n} \sum_{j=1}^n y(\mathbf{B})_j \left(y(\mathbf{A}_B^{(i)})_j - y(\mathbf{A})_j \right), \quad (5.7)$$

$$V(E(y|s_i)) = V(y) - \frac{1}{2n} \sum_{j=1}^n \left(y(\mathbf{B})_j - y(\mathbf{A}_B^{(i)})_j \right)^2.$$


A hodnoty $E(V(y|s_{-i}))$, potřebné pro výpočet S_{Ti} , je možné vypočítat podle jednoho z těchto tří schémat (Saltelli et al. 2010)

$$E(V(y|s_{-i})) = V(y) - \frac{1}{n} \sum_{j=1}^n y(\mathbf{A})_j y(\mathbf{A}_B^{(i)})_j + (E(y))^2,$$

$$E(V(y|s_{-i})) = \frac{1}{n} \sum_{j=1}^n y(\mathbf{A})_j \left(y(\mathbf{A})_j - y(\mathbf{A}_B^{(i)})_j \right), \quad (5.8)$$

$$E(V(y|s_{-i})) = \frac{1}{2n} \sum_{j=1}^n \left(y(\mathbf{A})_j - y(\mathbf{A}_B^{(i)})_j \right)^2.$$

Stejně jako v (Saltelli et al. 2010), pro výpočet matic \mathbf{A} a \mathbf{B} byla nejdříve vygenerována matice \mathbf{C} velikosti $n \times 2K$, jejíž každý sloupec je složen ze Sobolovy série n pseudonáhodných čísel s rovnoměrným rozdělením na intervalu $[0,1]$. Matice byla pak rozdělena na dvě poloviny (\mathbf{A} , \mathbf{B}) a hodnoty každého sloupce byly transformovány tak, aby měly požadovanou hustotu

 SÚRAO	Vývoj modelu transportu C-14 z hlubinného úložiště a jeho neurčitostní a citlivostní analýza	Evidenční označení:
		SÚRAO TZ 171/2017

rozdělení pravděpodobnosti. Nakonec bylo vytvořeno K matic $\mathbf{A}_B^{(i)}$ pomocí tzv. radiálního schématu (Saltelli et al. 2010).

V rámci neurčitostní analýzy je možné z výsledků Monte Carlo simulací odpovídajícím maticím \mathbf{A} a \mathbf{B} vypočítat základní statistické charakteristiky jako je střední hodnota, rozptyl, mezikvartilové rozpětí, popřípadě sestavit histogramy rozdělení hodnot $y^j(t_i; \Sigma_j)$.

NAŠE BEZPEČNÁ BUDOUCNOST



SÚRAO

Správa úložišť radioaktivních odpadů

Dlážděná 6, 110 00 Praha 1

Tel.: 221 421 511, E-mail: info@surao.cz

www.surao.cz