

Technická zpráva číslo 186/2017

**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



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

ŘEŠITELÉ:

KJCH FJFI, ČVUT v Praze

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



Obsah

1 Úvod	9
2 Rozvoj modelu transportu C-14 z hlubinného úložiště	9
2.1 Zohlednění dvou forem C-14 v modelu transportu C-14.....	10
2.1.1 Anorganická forma.....	10
2.1.2 Organická forma.....	12
2.1.3 Implementace dvou forem C-14 v GoldSim.....	12
2.2 Transport v částečně saturovaném prostředí.....	13
3 Vybrané studie nových implementací transportu C-14 polem blízkých interakcí v GoldSim	15
3.1 Neurčitostní a citlivostní analýza vybraných parametrů zdrojového členu na tok anorganické a organické formy C-14 polem blízkých interakcí.....	16
3.2 Neurčitostní a citlivostní analýza vybraných parametrů zdrojového členu a Q_{eq} na tok anorganické a organické formy C-14 polem blízkých interakcí.....	20
3.3 Neurčitostní a citlivostní analýza vybraných parametrů zdrojového členu a blízkého pole na tok anorganické a organické formy C-14 polem blízkých interakcí.....	22
3.4 Transport CH ₄ v částečně saturovaném prostředí.....	25
3.4.1 Příklad saturace 0,5.....	25
3.4.2 Příklad saturace 0,999.....	26
4 Souhrn a diskuze	27
5 Citace a seznam literatury	29
Příloha	31
Metody neurčitostní a citlivostní analýzy založené na četnostním popisu neurčitosti.....	31

Seznam obrázků:

Obr. 1 Element Species se dvěma formami C-14.....	13
Obr. 2 Časový vývoj transportu dostupné hmoty anorganické formy C-14 (A) a koncentrace v kontejneru (B). Časový vývoj toků na rozhraní jednotlivých částí modelu (C). 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 , F_{G-P1} tok z poslední cely Granit do první Pipe sítě puklin, F_{P3-B} tok ze třetí Pipe sítě puklin do rezervoáru představující biosféru.	16
Obr. 3 Časový vývoj transportu dostupné hmoty organické formy C-14 (A) a koncentrace v kontejneru (B). Časový vývoj toků na rozhraní jednotlivých částí modelu (C). Označení toků je stejné jako v případě Obr. 2.....	17
Obr. 4 Časový vývoj transportu dostupné hmoty anorganické formy C-14 (A), koncentrací v kontejneru (B), toků na rozhraní kontejner - první cely Backfill1 (C) a toku na rozhraní poslední cely Granit - Pipe1 (D).	18
Obr. 5 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 cely Backfill1 ; (C): tok na rozhraní poslední Granit - Pipe1 (D).....	18
Obr. 6 Neurčitostní analýza časových vývoju sledovaných veličin organické formy C-14. (A): hmotnost transportu dostupné hmoty; (B) koncentrace v kontejner; (C) tok na rozhraní kontejner - první cely Backfill1 ; (D) tok na rozhraní poslední Granit - Pipe1	19
Obr. 7 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 cely Backfill1 ; (C): tok na rozhraní poslední Granit - Pipe1 (D).....	19
Obr. 8 Časový vývoj sledovaných veličin v případě 3.2 a pro anorganickou formy C-14. (A): hmotnost transportu dostupné hmoty; (B) koncentrace v kontejneru; (C) tok na rozhraní kontejner - první cely Backfill1 a (D) tok na rozhraní poslední cely Granit - Pipe1	20
Obr. 9 Citlivostní analýza časových vývoju sledovaných veličin v případě 3.2 a pro anorganickou formy C-14. , plné čáry odpovídají S_i , a přerušované čáry označují S_{Ti} . (A): koncentrace v kontejneru; (B): tok na rozhraní kontejner - první cely Backfill1 ; (C): tok na rozhraní poslední Granit - Pipe1 (D).....	21
Obr. 10 Časový vývoj sledovaných veličin v případě 3.2 a pro organickou formy C-14. (A): hmotnost transportu dostupné hmoty; (B) koncentrace v kontejneru; (C) tok na rozhraní kontejner - první cely Backfill1 a (D) tok na rozhraní poslední cely Granit - Pipe1	21
Obr. 11 Citlivostní analýza časových vývoju sledovaných veličin v případě 3.2 a pro organickou formy C-14 , plné čáry odpovídají S_i , a přerušované čáry označují S_{Ti} . (A): koncentrace v kontejneru; (B): tok na rozhraní kontejner - první cely Backfill1 ; (C): tok na rozhraní poslední Granit - Pipe1 (D).....	22
Obr. 12 Časový vývoj sledovaných veličin v případě 3.3 a pro anorganickou formy C-14. (A): hmotnost transportu dostupné hmoty; (B) koncentrace v kontejneru; (C) tok na rozhraní kontejner - první cely Backfill1 a (D) tok na rozhraní poslední cely Granit - Pipe1	23

Obr. 13 Citlivostní analýza časových vývojų sledovaných veličin v případě 3.3 a pro organickou 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).....	23
Obr. 14 Časový vývoj sledovaných veličin v případě 3.3 a pro organickou formy C-14. (A): hmotnost transportu dostupné hmoty; (B) koncentrace v kontejneru; (C) tok na rozhraní kontejner - první cela Backfill1 a (D) tok na rozhraní poslední cela Granit - Pipe1	24
Obr. 15 Citlivostní analýza časových vývojų sledovaných veličin v případě 3.3 a pro organickou 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).....	24
Obr. 16 Záložka PF vstupního Microsoft Excel souboru InputParameters.xlsx pro první simulaci se saturací 0,5.	25
Obr. 17 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.	26
Obr. 18 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.	27

Seznam tabulek:

Tab. 1 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 SURAO.....	11
Tab. 2 Henryho konstanty $K_{H,r}$ pro referenční teplotu 25°C a parametry teplotní závislosti $-\Delta H_R$ pro vybrané plyny (Sander 2015).....	15
Tab. 3 Parametry zdrojového členu, jejichž vliv byl studován v 3.1.....	16
Tab. 4 Hodnoty maxim transportu dostupné hmoty (Mass), koncentrace v kontejneru (C), toku z kontejneru do první cely (F_{C-B1}), toku z poslední cely Backfill1 do první cely Backfill2 (F_{B1-B2}), a toku z poslední cely Backfill2 do první cely Granit (F_{B2-G}) pro referenční případ.....	17
Tab. 5 Parametry modelu , jejichž vliv byl studován v 3.2. Q_{eq} označuje objemový tok, který reprezentuje difúzní tok z granitu do proudící vody v okolní puklině.	20
Tab. 6 Parametry modelu, jejichž vliv byl studován v 3.3.....	22
Tab. 7 Hodnoty maximálních toků z Obr. 17. 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.	26
Tab. 8 Hodnoty maximálních toků z Obr. 18. 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.	26

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 tohoto projektu je 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 je kvantifikovat vliv neurčitosti vybraných vstupních parametrů na celkovou neurčitost sledovaných výstupů a tím identifikovat kritické parametry. Tato výzkumná zpráva obsahuje jednak popis vývoje modelu transportu C-14, který byl navržený a implementovaný v předchozí etapě, tak výsledky neurčitostních a citlivostních analýz provedených na upraveném modelu. Do modelu byly zavedeny dvě formy C-14: anorganická a organická, pro tyto formy byly navrženy na základě literární rešerše potřebné parametry. Model byl použit ve třech neurčitostních a citlivostních studiích, skupiny studovaných parametrů jsme zvolili podle výsledků screeningových studií uvedených v první průběžné zprávě. Na rozdíl od předchozí studie jsme použili k neurčitostní a citlivostní analýze metodu založenou na četnostním přístupu popisu neurčitosti. První studie se omezila na posouzení vlivu zdrojového členu, přičemž byla věnována vlivu třech parametrů: rychlosti loužení, rozpustnosti, inventáři. Studie ukázala, že největší vliv na všechny sledované časové průběhy a pro obě formy C-14 má rychlost loužení a následně inventář. Druhá studie se dále zaměřila na vliv ekvivalentního difúzního toku do proudící vody Q_{eq} , byly uvažovány tyto čtyři parametry: tři parametry zdrojového členu (rychlost loužení, rozpustnost, inventář) a ekvivalentní difúzní tok do proudící vody Q_{eq} . Studie ukázala, že Q_{eq} ovlivňuje v případě anorganické formy významně ze sledovaných výstupů pouze tok na rozhraní poslední cela vrstvy Granit začátek elementu Pipe1. V případě organické formy Q_{eq} ovlivnil všechny sledované veličiny. Třetí studie se zaměřila na transportní parametry blízkého pole, byl uvažován vliv šesti neurčitých parametrů: třech parametrů zdrojového členu (rychlost loužení, rozpustnost, inventář) a třech parametrů blízkého pole (K_d výplňového materiálu, porozita výplňového materiálu, porozita horninového prostředí). Studie ukázala, že časové průběhy sledovaných veličin anorganické formy C-14 jsou ovlivněny jednak rychlosti loužení a inventářem, tak K_d a porositou vrstev Backfill1,2. Časové průběhy organické formy jsou ovlivněny parametry: rychlosti loužení, inventářem a porositou vrstev Backfill1,2. Dále jsme dokončili vývoj a implementaci modelu zohledňujícího transport v částečně saturovaném prostředí. Implementaci jsme ověřili řešením dvou úloh, které se zabývaly transportem CH₄. Úlohy ukázaly, že díky velkým 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.

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 Rozvoj modelu transportu C-14 z hlubinného úložiště

Cílem této kapitoly je popsat rozvoj modelu transportu C-14 z hlubinného úložiště, který byl navržený a implementován v prostředí GoldSim v předchozí etapě řešení projektu. Konkrétně jsme v předchozí etapě navrhli a implementovali 1D model transportu C-14, který soustřeďuje RAO do jednoho elementu *Source*, který reprezentuje jeden sud. Difúzní transport výplňovým materiálem a horninovým prostředím jsme reprezentovali pomocí 1D sítě elementů *Cell Pathway*, advektivní transport v bezprostředním okolí sudu jsme neuvažovali. Abychom zohlednili heterogenní povahu transportní cesty, cesta je složena 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. Tím vznikl flexibilní model umožňující studovat širokou škálu transportních úloh. Implementovaný model jsme dále použili ve třech neurčitostních a citlivostních studiích. Ve všech případech byly úspěšně identifikovány parametry, které nejvíce přispívají k neurčitostem sledovaných výstupních hodnot. Na základě těchto screeningových studií jsme navrhli dvě úpravy modelu: 1. do modelu zavést explicitně dvě formy C-14: anorganickou a organickou, které se liší rozpustností a sorpčními vlastnostmi; 2.

vytvořit variantu modelu, která by umožňovala simulovat difúzi v částečně saturovaném prostředí blízkého pole.

Tato kapitola je věnovaná popisu vývoje modelu transportu C-14 z hlubinného úložiště. Nejdříve je uvedeno zohlednění dvou forem C-14, potom je popsán transport C-14 v částečně saturovaném prostředí a jeho implementace v programovém prostředí GoldSim.

2.1 Zohlednění dvou forem C-14 v modelu transportu C-14

V jaderných elektrárnách je C-14 uhlík produkován jak v samotném palivu, tak v materiálech aktivní zóny a v chladivu, díky přítomnosti mateřských izotopů kyslíku, dusíku a uhlíku. V reaktorech vzniká jadernou reakcí $^{17}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$ na kyslíku v chladicí vodě a reakcí $^{14}\text{N}(n, p)^{14}\text{C}$ z dusíku rozpuštěného v chladicí vodě a vyskytujícího se jako nečistota v palivu a konstrukčních materiálech, produkce reakcí $^{13}\text{C}(n, \gamma)^{14}\text{C}$ je zanedbatelná. Množství C-14 je poměrně malé, v chladicí vodě jaderné elektrárny Temelín činí přibližně $1 \text{ kBq}\cdot\text{kg}^{-1}$ chladiva (Čubová et al. 2017). Uvolnitelnými formami anorganického uhlíku mohou být uhličitany (CO_3^{2-}) a hydrogenuhličitany (HCO_3^-), oxid uhličitý (CO_2) a metan (CH_4), 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 (Ochs et al. 2016) se bude jednat o jednodušší sloučeniny, které mohou být plynné (např. CH_4 či $\text{CH}_3\text{-CH}_3$) nebo kapalné (nizkomolekulární 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. institucionární 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 vysokého parciálního tlaku vodíku pak metan. V závislosti na parciálním tlaku vodíku a kyslíku a na mikrobiální aktivitě mohou tyto dvě formy mezi sebou přecházet.

Hodnoty distribučních koeficient byly vybrány zejména na základě kompilací sorpčních dat cementu a betonu (Ochs et al. 2016) a horninového prostředí (Crawford 2013). Další informace o mechanismech sorpce C-14 na bariérové materiály a o hodnotách sorpčních koeficientů lze nalézt například v pracích (Evans et al. 2011; Glasser 2011; Houari et al. 2014; Ochs et al., 2014; Stockdale a Bryan 2013; Windt et al. 2015; Wang et al. 2012).

2.1.1 Anorganická forma

Rozpust anorganicky vázaného uhlíku v cementové vodě byla přejata ze zprávy (Čubová et al. 2017). V souladu s (Ochs et al. 2016) se rozpustnost anorganického uhlíku řídí rozpustností kalcitu (CaCO_3) a zároveň koncentrace, respektive mez rozpustnosti, vápníku se řídí rozpustností portlanditu ($\text{Ca}(\text{OH})_2$). Jedná se vlastně o druhou etapu časové posloupnosti rozpouštění cementu (Berner 1992), kdy již došlo k rozpuštění snadno rozpustných alkálií (NaOH , KOH) a pH se řídí rozpustností $\text{Ca}(\text{OH})_2$ a pohybuje se okolo hodnoty 12,5. O rozpustnosti v dalších etapách není dostatek dostupných dat (Ochs et al. 2016).

Tab. 1 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}	$1 \cdot 10^{-5}$	0,1	0,001
L	m	0,5	5	1,58
Porosity (backfill)		0,2	0,5	0,35
Reference diffusivity	$m^2 s^{-1}$	$2 \cdot 10^{-9}$	$2 \cdot 10^{-9}$	$2 \cdot 10^{-9}$
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)	$mol l^{-1}$	$1 \cdot 10^{-6}$	$1 \cdot 10^{-5}$	$5 \cdot 10^{-6}$
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 ($1 \cdot 10^3$) 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	$1 \cdot 10^4$	316
Geo^D		1	$1 \cdot 10^4$	100
Geo^a	%	0,1	10	1
Inventář v jednom UOS AF	Bq	$5 \cdot 10^{12}$	$5 \cdot 10^{13}$	$1,6 \cdot 10^{13}$
Inventář v jednom UOS OF	Bq	$5 \cdot 10^{12}$	$5 \cdot 10^{13}$	$1,6 \cdot 10^{13}$
Objem uložště (pouze odpady)	m^3	160	800	480
Celkový počet UOS	ks	40	200	120
Maximální aktivita ve všech UOS	Bq	$1 \cdot 10^{14}$	$1 \cdot 10^{15}$	$3,2 \cdot 10^{14}$

¹ hodnota pro případ difúze C-14 v plynné fázi

² hodnota pro případ sorpce na kalcit při vysokém pH

Podle Ochse et al. (2016) K_d (R_d) anorganického uhlíku nezávisí na celkovém inventáři $^{14}\text{CO}_3^{2-}$ v odpadu, ale na poměru mezi stabilním uhličitánem vázaným v matrici odpadu (či v bariérovém materiálu) a koncentrací uhličitánu v pórové vodě (danou limitem rozpustnosti).

$$R_d = \frac{C_s[\text{mol}\cdot\text{kg}^{-1}]}{C_l[\text{mol}\cdot\text{l}^{-1}]} \quad (2.1)$$

Vzhledem k relativně vysokému obsahu uhličitánů (v poměru ke koncentraci C-14) v cementové matrici (a obecně i v ostatních bariérových materiálech a prostředí podzemní a pórové vody) bude k imobilizaci C-14 významně přispívat izotopová výměna, která z hlediska účinku na mobilitu uhlíku může být považována za typ sorpce s pomalou kinetikou. Množství „sorbovaného“ uhlíku pak bude záviset nejen na limitu rozpustnosti a obsahu uhličitánu v pevné fázi, ale také na míře izotopové výměny. Hodnotu R_d je pak nutno snížit o faktor α , jehož hodnota může být podle Ochse et al. (2016) i menší než 1 %. Tento faktor vyjadřuje podíl stabilního anorganického uhlíku dostupného pro izotopovou výměnu a závisí také na hrubosti zrn a dostatečně dlouhé době do dosažení ustáleného stavu. Druhým mechanismem adsorpce anorganického uhlíku v cementové matrici je elektrostatická sorpce uhličitánového aniontu na kladně nabitých sorpčních místech C-S-H skupin. Na základě těchto poznatků byla zvolena doporučená hodnota K_d pro anorganicky vázaný uhlík v cementové matrici $5 \text{ m}^3\cdot\text{kg}^{-1}$ se spodní hranicí $2 \text{ m}^3\cdot\text{kg}^{-1}$ a s horní hranicí $20 \text{ m}^3\cdot\text{kg}^{-1}$.

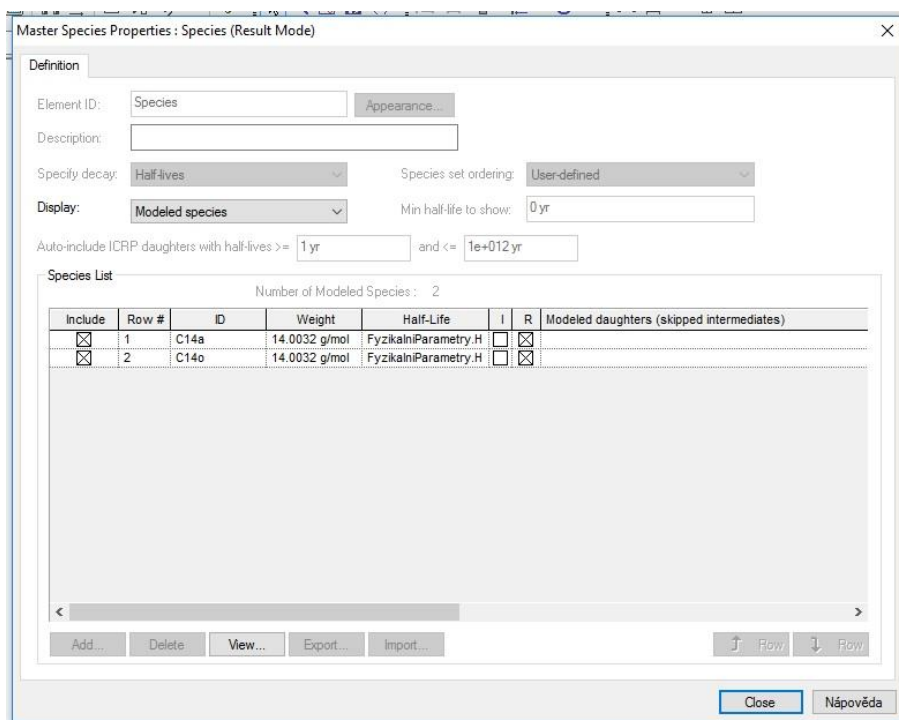
Pro sorpci anorganicky i organicky vázaného uhlíku, včetně metanu, na granit v granitické vodě Crawford (2013) doporučuje nulové hodnoty K_d včetně horních i dolních limitů. Jedinou výjimkou či neznámou je izotopová výměna na kalcitu, v případě jeho přítomnosti např. jako výplňového materiálu fraktur. Záleží však také na pH, v blízkosti cementových materiálů (*near field*) může být i o tři řády vyšší.

2.1.2 Organická forma

Vzhledem k neznámě formě a složení odpadu, jakožto i k dalším neznámým podmínkám, byla pro rozpustnost organicky vázaného uhlíku zvolena hodnota -1, tzn. „nekonečná“ rozpustnost. Sorpce organických forem uhlíku na cementovou matrici je obecně výrazně nižší než sorpce anorganických forem. Přestože někteří autoři (Houari et al. 2014; Wieland et al. 2016) stanovili nenulový distribuční koeficient, ve zprávě (Ochs et al. 2016) je přijat a doporučen konzervativní přístup a tedy nulové hodnoty, jak pro kapalné, tak pro těkavé formy organicky vázaného uhlíku. Difúzní koeficienty různých organických sloučenin lze nalézt v literatuře, například (Vanýsek 2013).

2.1.3 Implementace dvou forem C-14 v GoldSim

V první verzi implementace modelu element *Species* reprezentoval pouze jednu formu C-14. V nové verzi byly do modelu zavedeny explicitně dvě formy: anorganická a organická. K tomu bylo nutné rozšířit element *Species* o novou specii. Anorganická forma C-14 byla označena jako C14a, organická jako C14o (Obr. 1). Dále bylo nutné upravit záložku *PF* vstupního Microsoft Excel souboru *InputParameters.xlsx* a ekvivalentně tomu element *Spreadsheet.FyzikalniParametry*. Nakonec jsme rozšířili výsledky uvedené ve složce *Results* o výsledky obou forem.



Obr. 1 Element Species se dvěma formami C-14.

2.2 Transport v částečně saturovaném prostředí

Ve zprávách NAGRA, např. (Grogan et al., 1992; Mishra et al., 1991) jsou diskutovány scénáře vývoje plynů v prostředí úložišť nízko- a středně-aktivních odpadů. Jedná se o vodík vznikající při anaerobní korozi kovů a o metan, případně oxid uhličitý, které mohou vázat C-14 přítomný v ukládaných odpadech. Oxid uhličitý může vznikat aerobním mikrobiálním rozkladem organické hmoty, metan anaerobním mikrobiálním rozkladem či redukcí oxidu uhličitého při zvýšeném parciálním tlaku vodíku.

Produkce plynu s obsahem C-14 se častěji zabývají publikace svázané s ukládáním nízko- a středně-aktivních odpadů (Grogan et al., 1992). Při výpočtech v této zprávě byl použit nerealisticky konzervativní předpoklad, že produkce plynu z mikrobiálního rozkladu celulózy bude rovna teoretickému výtěžku, který činí 38 molů na kilogram celulózy, a dále, že ostatní organické složky odpadu (plasty, iontoměniče) se budou rozkládat ve stejné míře jako celulóza. Plyn z rozkladu těchto složek bude obsahovat přibližně 60 % metanu a 40 % oxidu uhličitého, který však bude reagovat s $\text{Ca}(\text{OH})_2$ v cementové matici za tvorby kalcitu. Potenciálně mobilní složkou s obsahem C-14 tedy bude většinou metan.

Pro modelování transportu pro potřeby výzkumu hlubinného ukládání bývá obvykle předpokládáno saturované prostředí. V tomto případě jsou parametry porozita ε a *tortuozita* (geometrický faktor) G v GoldSimu svázané s pevnou fází (*Solid material*). Pokud předpokládáme částečně saturované či nesaturované prostředí, je třeba provést korekce. Celková porozita musí být rozdělena mezi část porozity vyplněnou kapalinou, kterou definujeme jako *obsah vody* ϑ_w (*Volumetric content of water*), a část porozity vyplněnou plynem ϑ_g (*Volumetric content of gas*). Pro každou z těchto částí bude definován vlastní difúzní koeficient (D_w, D_g [$\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$]). V GoldSimu je pro výpočet tzv. difúzní vodivosti D_s používána plocha A [m^2], která je násobena celkovou porozitou (Catlett a Tauxe, 2014):

$$D_s = \frac{A \cdot \varepsilon \cdot G \cdot D_w}{L}, \quad (2.2)$$

kde L je difúzní délka [m] a D_w referenční difuzivita [$\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$]. Pro případ částečně saturovaného prostředí je tedy nutné celkovou porozitu vynásobit *saturačním faktorem* S_w (respektive $S_g = 1 - S_w$), čímž získáme obsah vody $\vartheta_w = \varepsilon \cdot S_w$, respektive obsah vzduchu $\vartheta_g = \varepsilon \cdot S_g$.

Podobně je třeba zohlednit různou tortuozitu difúzního transportu v kapalném, respektive plynném prostředí. Vzhledem k odlišným transportním vlastnostem těchto dvou médií je doporučeným postupem nastavit celkovou tortuozitu definovanou pro pevnou fázi na hodnotu 1 a zohlednit tento parametr v parametru difúzní délky L . V modelu tedy vystupují parametry G_w a G_g .

Pokud je část celkové porozity v některé z bariér vyplněna plynem, je třeba dále zohlednit rozpustnost těkavých látek, jakými jsou plyny přítomné v hlubinném úložišti a jeho bariérách před uzavřením (O_2 , CO_2) a eventuálně plyny produkované v hlubinném úložišti po jeho uzavření (CH_4 , CO_2 , H_2). Plyny obsahující uhlík by mohly být potenciálními nositeli C-14, plyny obsahující vodík by mohly být potenciálními nositeli ^3H .

Transport plynů v nesaturovaném prostředí může být řádově rychlejší (D_e řádu $10^{-4} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) než transport rozpuštěných plynů probíhající v saturovaném prostředí (D_e řádu $10^{-9} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$).

V této zprávě je uvažován transport metanu nesoucího C-14, který je loužen do kapaliny obsažené v matici kontejneru s určitou rychlostí loužení r , která vychází především z rychlosti koroze materiálu kontejneru. Omezujícím faktorem je rozpustnost, která je pro metan nastavena na hodnotu -1, tzn. nekonečná. Dále dochází k difúznímu transportu přes výplňový materiál 1 (*Backfill 1*) a 2 (*Backfill 2*) a horninové prostředí (*Granit*), kde již může dojít k rozdělení mezi plynnou a kapalnou fází. To se bude v případě nereaktivních plynů (O_2 , CH_4) řídit Henryho zákonem. Rozdělovací koeficient K_H [$\text{l} \cdot \text{Pa} \cdot \text{mol}^{-1}$] můžeme definovat jako poměr mezi parciálním tlakem plynu nad hladinou kapaliny a molární koncentrací v kapalině:

$$K_H = \frac{p_i}{C_a}, \quad (2.3)$$

kde p_i [Pa] je parciální tlak plynu a C_a [$\text{mol} \cdot \text{l}^{-1}$] je koncentrace v kapalně fázi. GoldSim pracuje s bezrozměrnou variantou této veličiny, $K_{H,r}^{cc}$ [], hodnoty lze získat přepočtem:

$$K_H^{cc} = \frac{K_H}{R \cdot T} = \frac{K_H}{8,314 \cdot 298,15}, \quad (2.4)$$

kde R je plynová konstanta [$\text{J} \cdot \text{K}^{-1} \cdot \text{mol}^{-1}$] a T [K] je teplota. Tato veličina 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 [$\text{mol} \cdot \text{l}^{-1}$]:

$$K_H^{cc} = \frac{C_a}{C_g}. \quad (2.5)$$

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):

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

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 $-\frac{\Delta H}{R} = \frac{d \ln K_H}{d(\frac{1}{T})}$. Hodnoty $K_{H,r}$ a $-\frac{\Delta H}{R}$ pro vybrané plyny shrnuje Tab. 2.

Uvedené hodnoty jsou průměrem hodnot uvedených v *Tabulce 6* v práci (Sander 2015), které byly získány z různých odborných publikací.

Tab. 2 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

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

Stejně jako v předchozí zprávě jsme nový model zohledňující dvě formy C-14 použili ve třech neurčitostních a citlivostních studiích. Studované parametry jsme zvolili podle výsledků screeningových studií uvedených v první průběžné zprávě.

První studie se omezila na vliv zdrojového členu, studie byla věnována vlivu třech vybraných parametrů zdrojového členu: rychlosti loužení, rozpustnosti a inventáři.

Druhá studie se zaměřila na vliv ekvivalentního difúzního toku do proudící vody Q_{eq} , a byly uvažovány tyto parametry: tři parametry zdrojového členu (rychlost loužení, rozpustnost, inventář) a ekvivalentní difúzní tok do proudící vody Q_{eq} . Tato studie má význam pro pochopení migrace organické formy C-14, která nesorbuje.

Třetí studie se zaměřila na transportní parametry blízkého pole, byl uvažován vliv šesti neurčitých parametrů: třech parametrů zdrojového členu (rychlost loužení, rozpustnost, inventář) a třech parametrů blízkého pole (K_d výplňového materiálu, porozita výplňového materiálu, porozita horninového prostředí).

Na rozdíl od předchozí studie jsme použili k neurčitostní a citlivostní analýze metodu založenou na četnostním přístupu popisu neurčitosti, která je v krátkosti uvedena v příloze A. Model zohledňující transport v částečně saturovaném prostředí jsme ověřili řešením dvou úloh, které se zabývaly transportem CH₄. 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. Výška kontejneru byla 2 m.

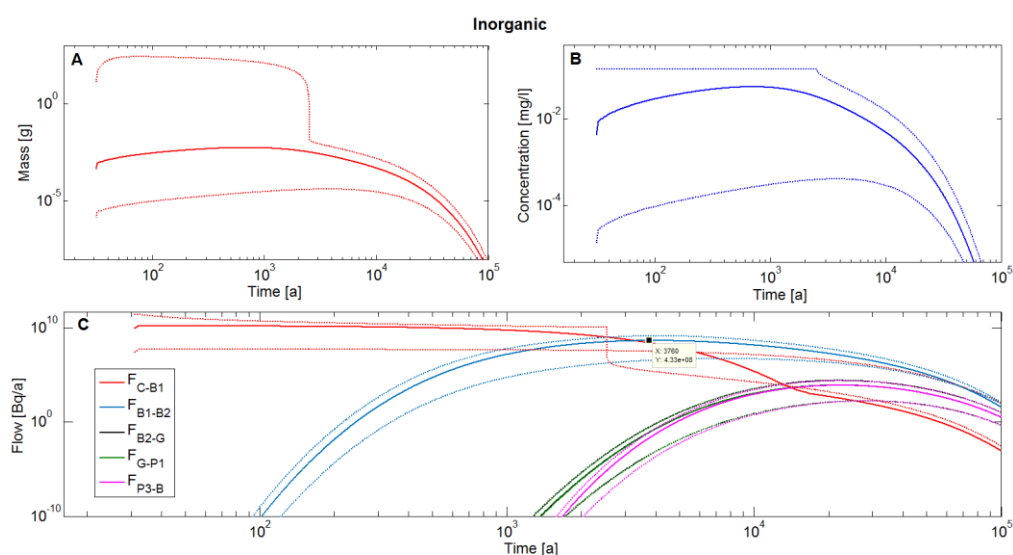
3.1 Neurčitostní a citlivostní analýza vybraných parametrů zdrojového členu na tok anorganické a organické formy C-14 polem blízkých interakcí

Tato studie byla věnována vlivu třech vybraných parametrů zdrojového členu, které jsou spolu s jejich maximálními (Max), minimálními (Min) a neočekávanějšími hodnotami (Mean) uvedeny v Tab. 3. Ve studii jsme uvažovali log-rovnomořné rozdělení hodnot na intervalech definovaných těmito hodnotami.

Na Obr. 2 a Obr. 3 jsou zobrazeny plnými čarami výsledky z výpočtu pro referenční případ, tedy pro neočekávanější hodnoty označené v Tab. 3 jako Mean. Tečkované čáry na Obr. 2 a Obr. 3 zobrazují výsledky pro výhradně maximální a minimální hodnoty studovaných parametrů z Tab. 3.

Tab. 3 Parametry zdrojového členu, jejichž vliv byl studován v 3.1.

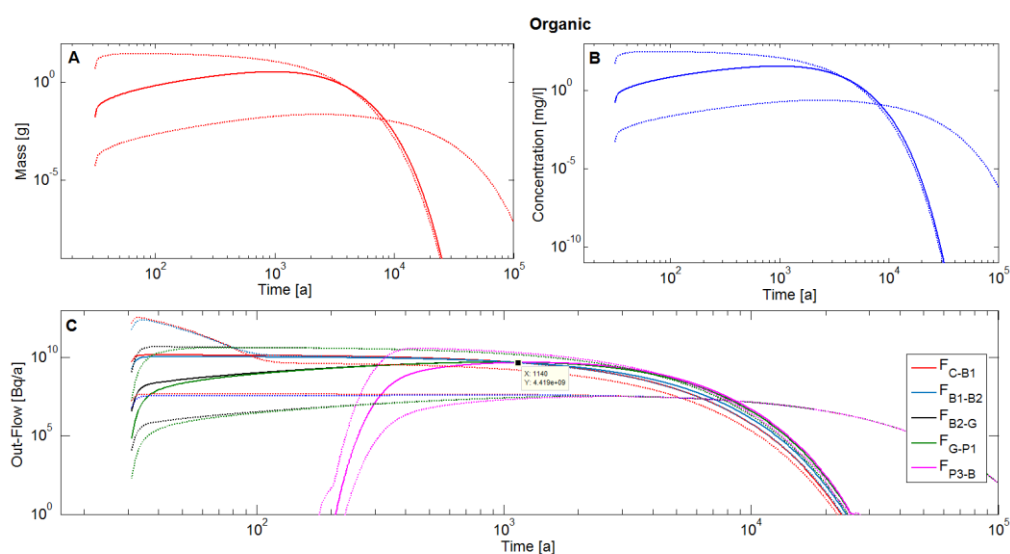
Parametr	τ (rychlost loužení) [a ⁻¹]	Solubility AF [mol l ⁻¹]	Inventář v jednom UOS AF [Bq]	Inventář v jednom UOS OF [Bq]
Mean	0,001	$5 \cdot 10^{-6}$	$1,6 \cdot 10^{13}$	$1,6 \cdot 10^{13}$
Min	$1 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-6}$	$5 \cdot 10^{12}$	$5 \cdot 10^{12}$
Max	0,1	$1 \cdot 10^{-5}$	$5 \cdot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



Obr. 2 Časový vývoj transportu dostupné hmoty anorganické formy C-14 (A) a koncentrace v kontejneru (B). Časový vývoj toků na rozhraní jednotlivých částí modelu (C). 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**, F_{G-P1} tok z poslední cely **Granit** do první Pipe sítě puklin, F_{P3-B} tok ze třetí Pipe sítě puklin do rezervoáru představující biosféru.

Na Obr. 2 a Obr. 3 B jsou zobrazeny časové vývoje koncentrace C-14 ve volné vodě zdrojového členu. Pro referenční průběh jsou tvary koncentrací obou forem C-14 podobné, liší se pouze amplitudou, viz Tab. 4. Rozdíl v amplitudách je díky rozdílným tokům

z porušeného kontejneru dále polem blízkých interakcí, toky jsou ukázány na Obr. 2 a Obr. 3 C. Na Obr. 2 a Obr. 3 A jsou zobrazeny časové vývoje transportu dostupné hmoty ve zdrojovém členu. Pro referenční případ jsou časové průběhy podobné časovým průběhům koncentrací. Pro maximální hodnoty parametrů dochází k saturaci koncentrace anorganické formy C-14 ve volné vodě kontejneru, což je doprovázeno nárůstem transportu dostupné hmoty, její časový průběh připomíná stolovou horu. Maxima toků organické formy C-14 v pozorovacích místech v poli blízkých interakcí jsou velmi podobná, což je dáno hodnotami transportních parametrů pro tuto formu. V případě anorganické formy dochází k poklesu toků, který je způsoben velkou hodnotou K_d a poločasem rozpadu C-14. Je nutné si uvědomit, že v případě jednorozměrného difúzního toku za sebou jdoucími rovinnými vrstvami, při konstantní koncentraci C_s na jednom konci a nulové koncentraci na druhém konci je v ustáleném stavu tok stejný ve všech vrstvách.

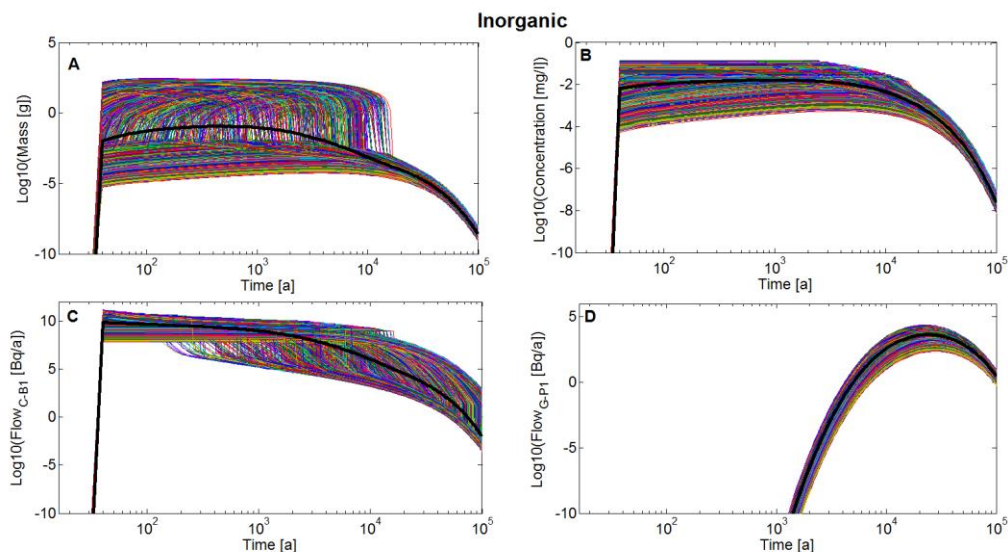


Obr. 3 Časový vývoj transportu dostupné hmoty organické formy C-14 (A) a koncentrace v kontejneru (B). Časový vývoj toků na rozhraní jednotlivých částí modelu (C). Označení toků je stejné jako v případě Obr. 2.

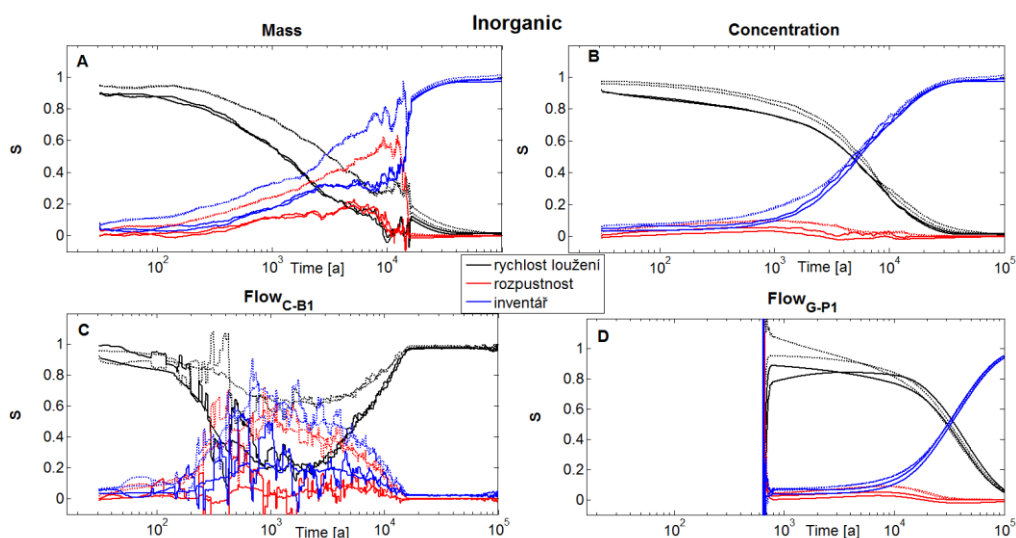
Tab. 4 Hodnoty maxim transportu dostupné hmoty (Mass), koncentrace v kontejneru (C), toku z kontejneru do první cely (F_{C-B1}), toku z poslední cely Backfill1 do první cely Backfill2 (F_{B1-B2}), a toku z poslední cely Backfill2 do první cely Granit (F_{B2-G}) pro referenční případ.

Output	Mass [g]	C [mg/l]	F_{C-B1} [Bq/a]	F_{B1-B2} [Bq/a]	F_{B2-G} [Bq/a]
Inorganic	$5,5 \cdot 10^{-3}$	$5,5 \cdot 10^{-2}$	$1,56 \cdot 10^{10}$	$4,33 \cdot 10^8$	7697
Organic	3,49	34,49	$1,12 \cdot 10^{10}$	$1,05 \cdot 10^{10}$	$4,42 \cdot 10^{09}$

Na Obr. 4 jsou zobrazeny všechny časové vývoje sledovaných veličin pro anorganickou formu C-14, které byly vypočítány pro získání citlivostních měř S_i a S_{Ti} . Celkem bylo provedeno v rámci studie $(2+3) \times 2^9 = 2560$ simulací. Z průběhu koncentrací a transportu



Obr. 4 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).

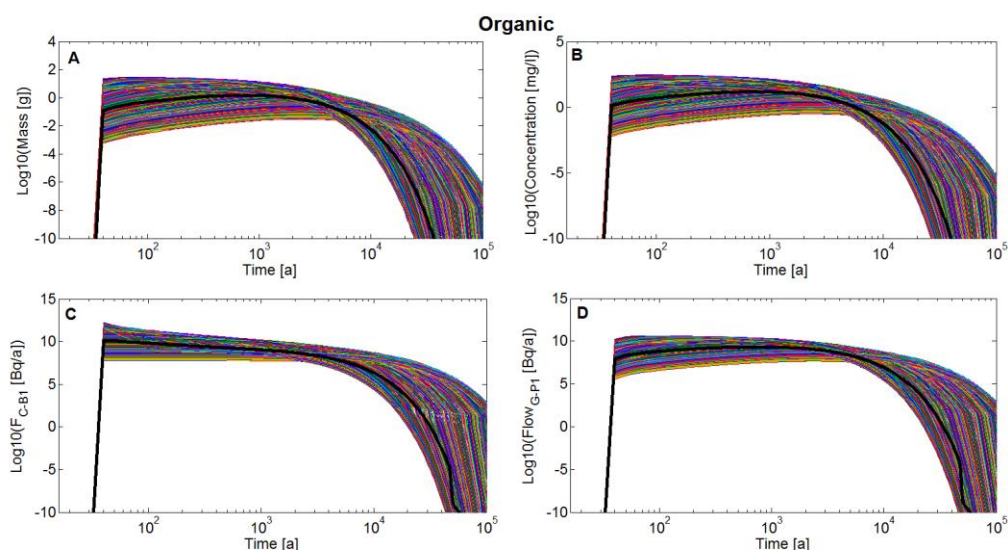


Obr. 5 Citlivostní analýza časových vývoje transportu dostupné hmoty anorganické formy C-14, plné čáry odpovídají S_i , a přerušované čáry označují S_{Ti} . (A): koncentrace v kontejneru; (B): tok na rozhraní kontejner - první cela **Backfill1**; (C): tok na rozhraní poslední **Granit - Pipe1** (D).

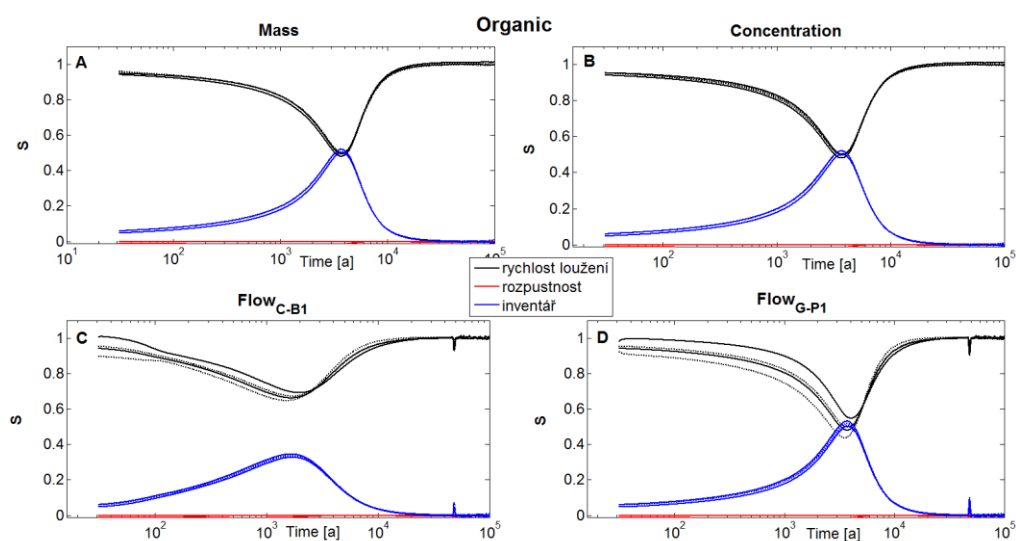
dostupné hmoty je patrné, že pro vyšší hodnoty rychlosti loužení dochází k saturaci koncentrace anorganické formy ve volné vodě kontejneru. Zejména díky velké hodnotě K_d je rozptyl časových průběhů toků na rozhraní poslední cela **Backfill2** - první cela **Granit** (D) poměrně malý, ve srovnání například s rozptylem časových průběhů koncentrací. Na Obr. 5 jsou zobrazeny časové vývoje S_i a S_{Ti} , plné čáry odpovídají S_i , které byly pro kontrolu vypočítány podle obou schémat (A.3). Přerušované čáry odpovídají S_{Ti} vypočítaných podle prvních dvou schémat (A.4). Z průběhů je patrné, že v oblasti maximálních hodnot sledovaných veličin 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. Rozpustnost má spíše minoritní vliv. Nepravidelný průběh citlivostních měr pro transportu dostupné hmoty a toku na rozhraní kontejner - první cela **Backfill1** je způsoben prahováním

způsobeným omezenou rozpustností. Výpočet měř předpokládá rozdělení hodnot veličiny, které je blízké Gaussovu rozdělení.

Na Obr. 6 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. 7. 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. 7 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 parametr inventář. Rozpustnost nemá vliv, protože pro organickou formu byla uvažována neomezená rozpustnost.



Obr. 6 Neurčitostní analýza časových vývojů sledovaných veličin organické formy C-14. (A): hmotnost transportu dostupné hmoty; (B) koncentrace v kontejner; (C) tok na rozhraní kontejner - první cela **Backfill1**; (D) tok na rozhraní poslední **Granit - Pipe1**.



Obr. 7 Citlivostní analýza časových vývojů 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).

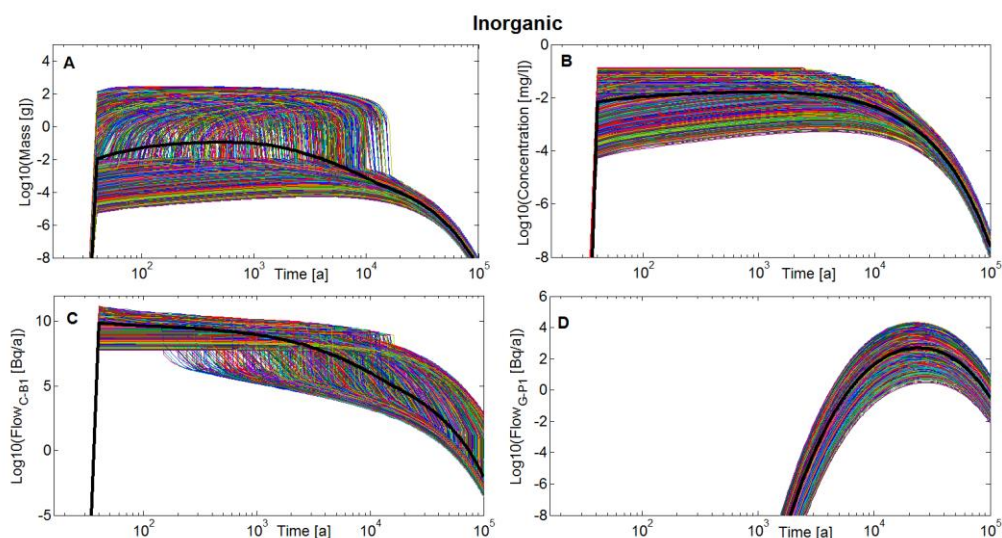
3.2 Neurčitostní a citlivostní analýza vybraných parametrů zdrojového členu a Q_{eq} na tok anorganické a organické formy C-14 polem blízkých interakcí

Tato studie byla věnována vlivu čtyř vybraných parametrů, třech parametrů zdrojového členu uvažovaných v předchozí studii a ekvivalentního toku Q_{eq} . Parametry jsou spolu s jejich maximálními (Max), minimálními (Min) a nejočekávanějšími hodnotami (Mean) uvedeny v Tab. 5. Ve studii jsme opět uvažovali log-rovnoměrné rozdělení hodnot těchto neurčitých parametrů. Druhá studie měla za cíl vyšetřit vliv Q_{eq} na sledované veličiny.

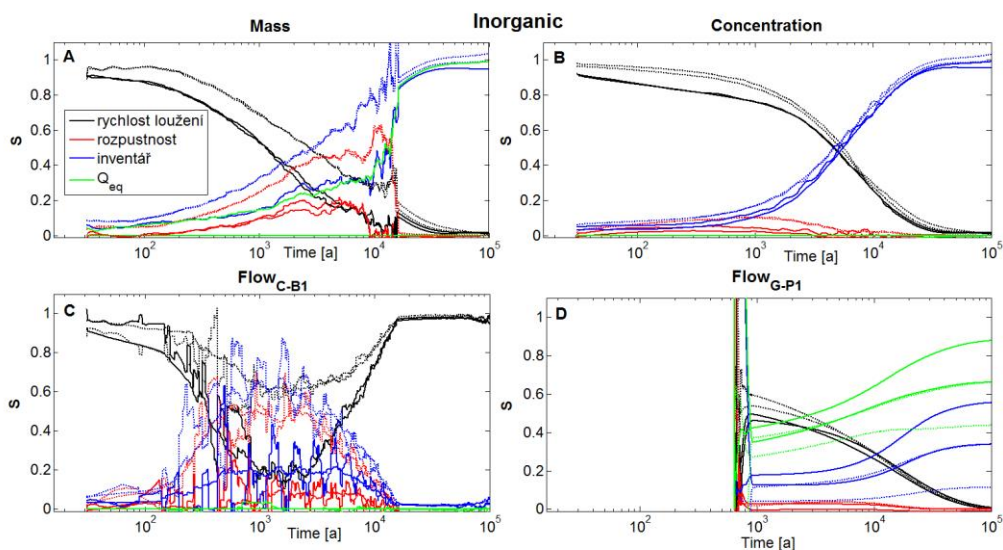
Tab. 5 Parametry modelu, jejichž vliv byl studován v 3.2. Q_{eq} označuje objemový tok, který reprezentuje difúzní tok z granitu do proudící vody v okolní puklině.

Parametr	τ (rychlost loužení)[a ⁻¹]	Solubility AF [mol l ⁻¹]	Inventář v jednom UOS AF [Bq]	Inventář v jednom UOS OF [Bq]	Q_{eq} [l/a]
Mean	0,001	$5 \cdot 10^{-6}$	$1,6 \cdot 10^{13}$	$1,6 \cdot 10^{13}$	0,1
Min	$1 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-6}$	$5 \cdot 10^{12}$	$5 \cdot 10^{12}$	0,01
Max	0,1	$1 \cdot 10^{-5}$	$5 \cdot 10^{13}$	$5 \cdot 10^{13}$	1

Na Obr. 8 jsou zobrazeny všechny časové vývoje sledovaných veličin pro anorganickou formu C-14, které byly vypočítány pro získání citlivostních měř S_i a S_{Ti} . Celkem bylo provedeno v rámci studie $(2+4) \times 2^9 = 3072$ simulací. Srovnáním s Obr. 4 lze říct, že rozptyl časových průběhů transportu dostupné hmoty organické formy C-14 (A) a koncentrace v kontejneru (B) jsou stejné, Q_{eq} zejména ovlivňuje tok na rozhraní poslední cela **Granit – Pipe1** (D). Na Obr. 9 jsou zobrazeny časové vývoje S_i a S_{Ti} , které korespondují s tímto závěrem.

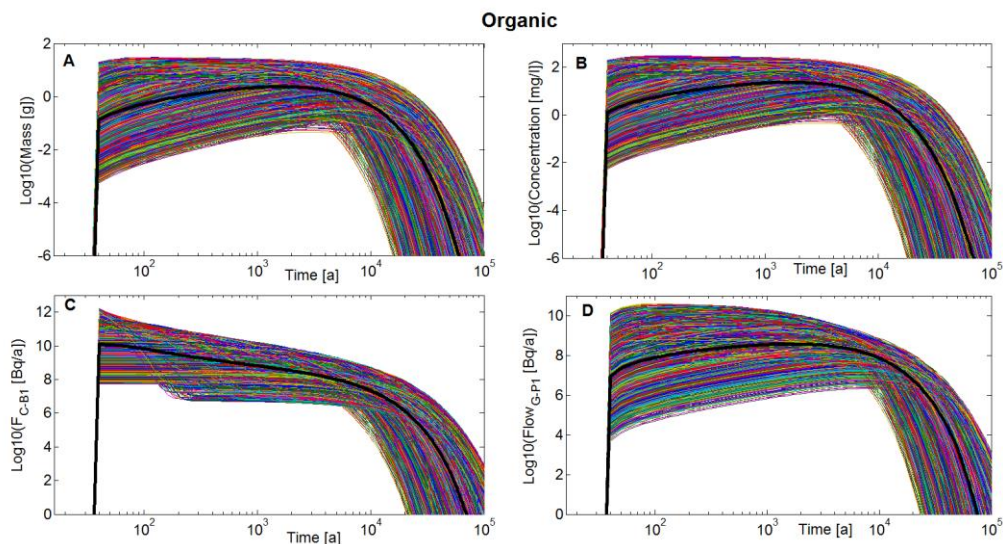


Obr. 8 Časový vývoj sledovaných veličin v případě 3.2 a pro anorganickou formu C-14. (A): hmotnost transportu dostupné hmoty; (B) koncentrace v kontejneru; (C) tok na rozhraní kontejner - první cela **Backfill1** a (D) tok na rozhraní poslední cela **Granit - Pipe1**.

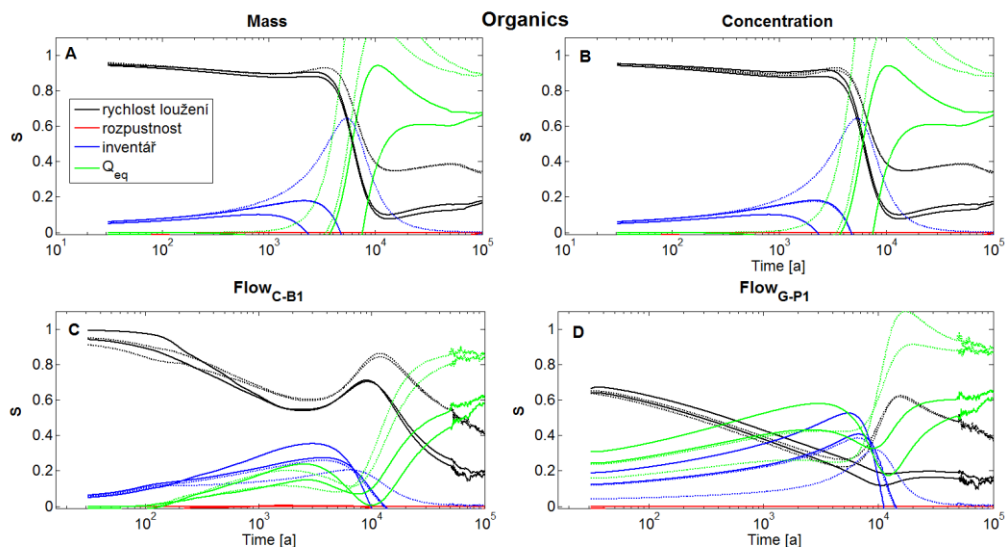


Obr. 9 Citlivostní analýza časových vývoju sledovaných veličin v případě 3.2 a pro anorganickou formy C-14. , plné čáry odpovídají S_i , a přerušované čáry označují S_{Ti} . (A): koncentrace v kontejneru; (B): tok na rozhraní kontejner - první cela **Backfill1**; (C): tok na rozhraní poslední **Granit - Pipe1** (D).

Na Obr. 10 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. 11. Srovnáním s Obr. 5 lze říct, že Q_{eq} sice nemá vliv na tvar časových průběhů, ale významně ovlivňuje rozptyl amplitud všech sledovaných veličin. Tento závěr potvrzují hodnoty S_i a S_{Ti} pro Q_{eq} uvedených na Obr. 11, a to zejména na časovém intervalu 10^4 - 10^5 [a].



Obr. 10 Časový vývoj sledovaných veličin v případě 3.2 a pro organickou formy C-14. (A): hmotnost transportu dostupné hmoty; (B) koncentrace v kontejneru; (C) tok na rozhraní kontejner - první cela **Backfill1** a (D) tok na rozhraní poslední cela **Granit - Pipe1**.



Obr. 11 Citlivostní analýza časových vývoje sledovaných veličin v případě 3.2 a pro organickou 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).

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

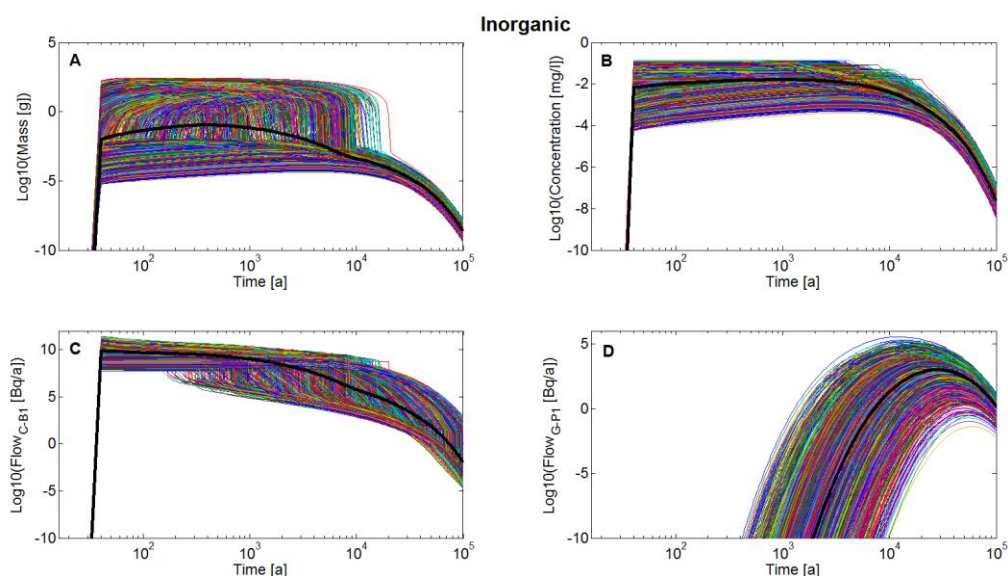
Třetí studie měla za cíl vyšetřit vliv třech parametrů blízkého pole na sledované veličiny. Konkrétně byla studie věnována vlivu šesti neurčitých parametrů, třech parametrů zdrojového členu uvažovaných v první studii a třech parametrů blízkého pole. Parametry jsou spolu s jejich maximálními (Max), minimálními (Min) a neočekávanějšími hodnotami (Mean) uvedeny v Tab. 6. Ve studii jsme uvažovali log-rovnorné rozdělení hodnot neurčitých parametrů definovaných těmito hodnotami kromě porosity pro *Backfill1,2*, pro tento neurčitý parametr jsme uvažovali rovnoměrné rozdělení.

Tab. 6 Parametry modelu, jejichž vliv byl studován v 3.3.

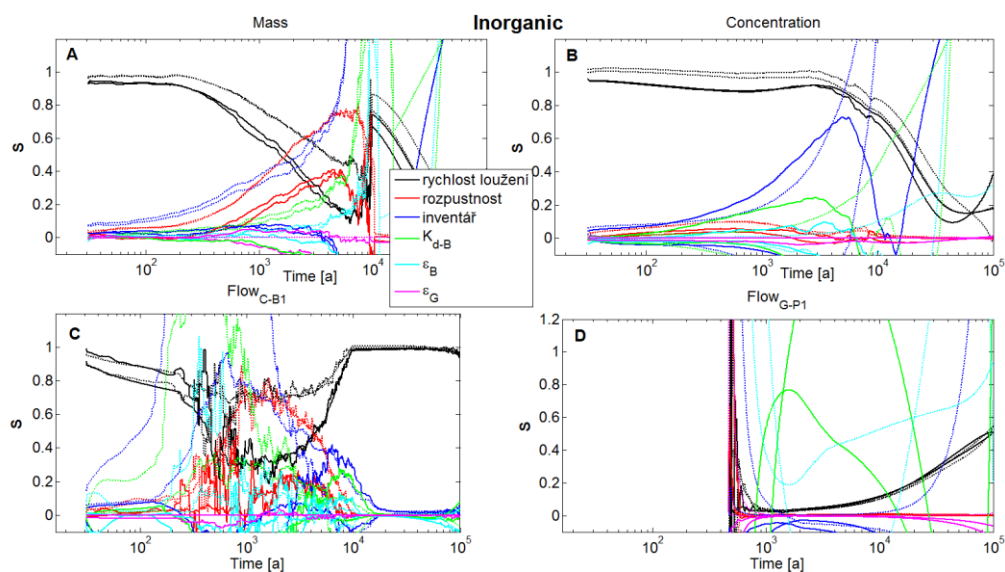
Parametr	τ (rychlost loužení) [a ⁻¹]	Solubility AF [mol l ⁻¹]	Inventář v jednom UOS AF [Bq]	Inventář v jednom UOS OF [Bq]	K_d (Backfill1,2) AF [m ³ kg ⁻¹]	Porosity (Backfill1,2) []	Porosity (granite) []
Mean	0,001	$5 \cdot 10^{-6}$	$1,6 \cdot 10^{13}$	$1,6 \cdot 10^{13}$	5	0,35	0,01
Min	$1 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-6}$	$5 \cdot 10^{12}$	$5 \cdot 10^{12}$	2	0,2	0,005
Max	0,1	$1 \cdot 10^{-5}$	$5 \cdot 10^{13}$	$5 \cdot 10^{13}$	20	0,5	0,02

Na Obr. 12 jsou zobrazeny všechny časové vývoje sledovaných veličin pro anorganickou formu C-14, které byly vypočítány pro získání citlivostních měř S_i a S_{Ti} . Celkem bylo provedeno v rámci studie $(2+6) \times 2^9 = 4096$ simulací. Podobně jako v předchozím případě 3.2, na základě srovnání s Obr. 4 lze říct, že rozptyl časových průběhů transportu dostupné hmoty organické formy C-14 (A) a koncentrace v kontejneru (B) jsou podobné, amplitudy leží v podobných intervalech. Vybrané parametry zejména ovlivňují tok na rozhraní poslední cela *Granit - Pipe1* (D). Na Obr. 13 jsou zobrazeny časové vývoje S_i a S_{Ti} . Hodnoty koncentrací

jsou, stejně jako v předchozích případech ovlivněny rychlostí loužení, inventářem, a dále je koncentrace ovlivněna porositou a K_d pro *Backfill1,2*. Vliv těchto parametrů je větší na tok mezi rozhraním poslední cela *Granit – Pipe1*, jak je možné vidět z panelu (D). V důsledku relativně velkého počtu uvažovaných parametrů a prahování v důsledku omezené rozpustnosti, některé hodnoty S_i a S_{Ti} přesahují definiční limitní hodnotu. Pro odstranění provedeme simulace pro větší počet opakování, a pokud bude nutné odstraníme vliv prahování vhodnou transformací. Předpokládáme ovšem, že tato úprava nebude mít vliv na výše uvedené závěry.

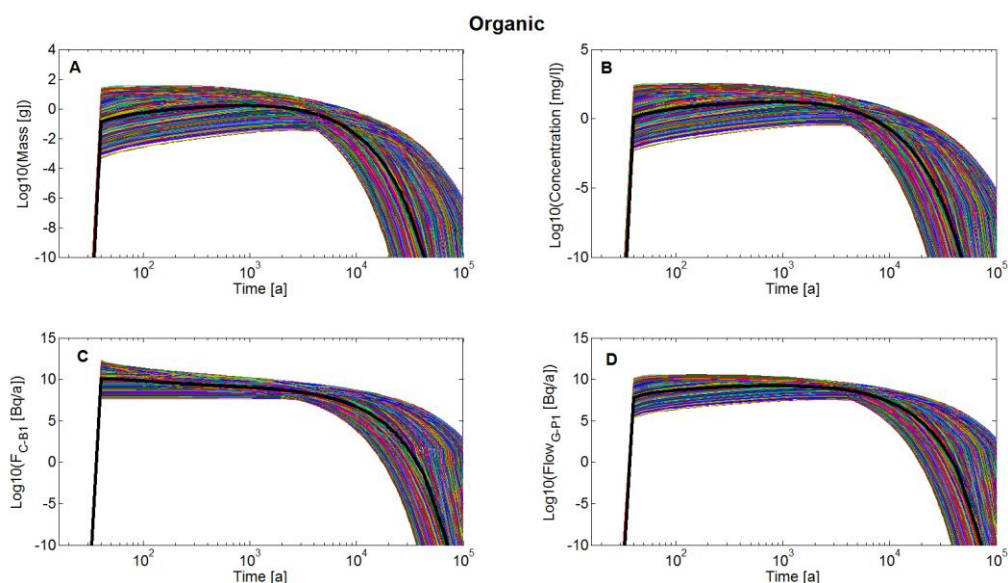


Obr. 12 Časový vývoj sledovaných veličin v případě 3.3 a pro anorganickou formy C-14. (A): hmotnost transportu dostupné hmoty; (B) koncentrace v kontejneru; (C) tok na rozhraní kontejner - první cela *Backfill1* a (D) tok na rozhraní poslední cela *Granit - Pipe1*.

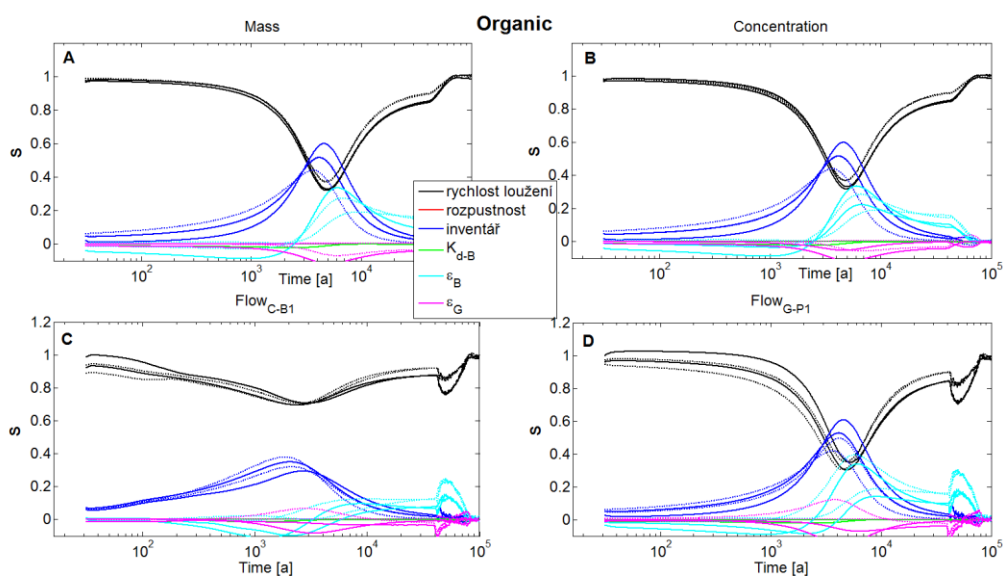


Obr. 13 Citlivostní analýza časových vývoju sledovaných veličin v případě 3.3 a pro organickou formy C-14, plné čáry odpovídají S_i , a přerušované čáry označují S_{Ti} . (A): koncentrace v kontejneru; (B): tok na rozhraní kontejner - první cela *Backfill1*; (C): tok na rozhraní poslední *Granit - Pipe1* (D).

Na Obr. 14 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. 15. Srovnáním s Obr. 5 lze říct, že uvažované parametry blízkého pole nemají zásadní vliv ani na tvar průběhů sledovaných veličin, ani na rozptyl jejich hodnot. Stejně jako v přechozích případech je tento závěr potvrzen hodnotami S_i a S_{Ti} pro K_d pro *Backfill1,2* a porozitu pro **Granit** uvedených na Obr. 15. Jedině porozita pro *Backfill1,2* má vliv v periodě poklesu amplitud sledovaných veličin. Stejně jako v 3.1 mají největší vliv na rozptyl hodnot rychlost loužení a inventář.



Obr. 14 Časový vývoj sledovaných veličin v případě 3.3 a pro organickou formu C-14. (A): hmotnost transportu dostupné hmoty; (B) koncentrace v kontejneru; (C) tok na rozhraní kontejner - první cela *Backfill1* a (D) tok na rozhraní poslední cela **Granit** - *Pipe1*.



Obr. 15 Citlivostní analýza časových vývoje sledovaných veličin v případě 3.3 a pro organickou formu 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).

3.4 Transport CH₄ v částečně saturovaném prostředí

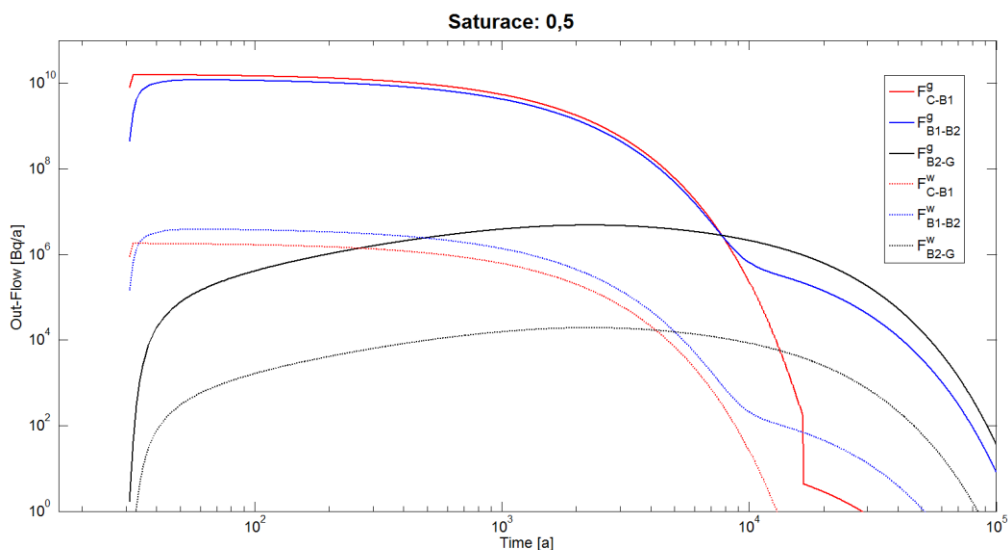
Pro ověření implementace transportu v částečně saturovaném prostředí jsme řešili dvě úlohy, které se zabývaly transportem CH₄. V obou úlohách jsme uvažovali pro jednoduchost standardní teplotu 25°C, která umožňuje přímo využít Henryho konstanty uvedené v Tab. 2.

3.4.1 Příklad saturace 0,5

V první úloze jsme uvažovali saturační faktor $S_w=0,5$, geometrický faktor pro plynnou fázi jsme vypočítali jako $G_g = 0,66 \vartheta_w$, což jedna z možných variant uvedená v (Catlett a Tauxe 2014). Na Obr. 16 je uvedena záložka PF vstupního Microsoft Excel souboru *InputParameters.xlsx*, která obsahuje hodnoty vybraných vstupních parametrů. Na Obr. 17 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. 7.

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			
Q _{eq}	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 ^α		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. 16 Záložka PF vstupního Microsoft Excel souboru *InputParameters.xlsx* pro první simulaci se saturací 0,5.



Obr. 17 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. 7 Hodnoty maximálních toků z Obr. 17. 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**.

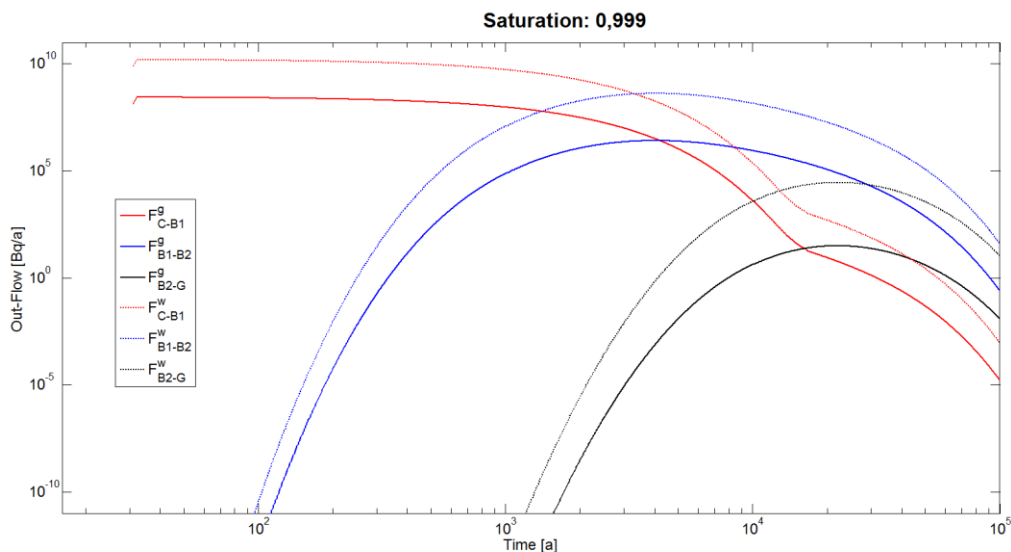
Medium	F_{C-B1} [Bq/a]	F_{B1-B2} [Bq/a]	F_{B2-G} [Bq/a]
Gas	$1,58 \cdot 10^{10}$	$1,19 \cdot 10^{10}$	$4,81 \cdot 10^6$
Water	$1,79 \cdot 10^6$	$3,54 \cdot 10^6$	$1,82 \cdot 10^4$

3.4.2 Příklad saturace 0,999

V druhé úloze jsme uvažovali saturační faktor $S_w=0,999$. Obr. 18 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. 8.

Tab. 8 Hodnoty maximálních toků z Obr. 18. 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	$2,74 \cdot 10^8$	$2,57 \cdot 10^8$	$2,18 \cdot 10^4$
Water	$1,59 \cdot 10^{10}$	$4,05 \cdot 10^8$	$2,84 \cdot 10^4$



Obr. 18 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 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 přípořchových úložišť. Tato výzkumná zpráva obsahuje jednak popis vývoje modelu transportu C-14, který byl navržen a implementován v předchozí etapě, tak výsledky neurčitostních a citlivostních analýz provedených na upraveném modelu.

Do modelu byly zavedeny dvě formy C-14: anorganická a organická, pro tyto formy byly navrženy na základě literární rešerše potřebné parametry.

Model byl použit ve třech neurčitostních a citlivostních studiích, skupiny studovaných parametrů jsme zvolili podle výsledků screeningových studií uvedených v první průběžné zprávě. Na rozdíl od předchozí studie jsme použili k neurčitostní a citlivostní analýze metodu založenou na četnostním přístupu popisu neurčitosti.

První studie se omezila na vliv zdrojového členu, byla věnována vlivu třech parametrů: rychlosti loužení, rozpustnosti, inventáři. Studie ukázala, že největší vliv na všechny sledované časové průběhy a pro obě formy C-14 má rychlost loužení a následně inventář.

Druhá studie se dále zaměřila na vliv ekvivalentního difúzního toku do proudící vody Q_{eq} . Byly uvažovány tyto čtyři parametry: tři parametry zdrojového členu (rychlost loužení, rozpustnost, inventář) a ekvivalentní difúzní tok do proudící vody Q_{eq} . Studie ukázala, že v případě anorganické formy Q_{eq} ovlivňuje významně, ze sledovaných výstupů, pouze tok na rozhraní poslední cely vrstvy **Granit** začátek elementu *Pipe1*, kde je Q_{eq} přímo vstupuje v modelu do výpočtu toku na rozhraní těchto dvou elementů. V případě organické formy, ekvivalentní difúzní tok Q_{eq} ovlivnil všechny sledované veličiny, v důsledku nulové sorpce je stacionární tok vrstvami omezen tokem na rozhraní granit-puklina s proudící vodou.


 SÚRAO	Vývoj modelu transportu C-14 z hlubinného úložiště a jeho neurčitostní a citlivostní analýza	Evidenční označení:
		186/2017

Třetí studie se zaměřila na transportní parametry blízkého pole, byl uvažován vliv šesti neurčitých parametrů: třech parametrů zdrojového členu (rychlost loužení, rozpustnost, inventář) a třech parametrů blízkého pole (K_d výplňového materiálu, porozita výplňového materiálu, porozita horninového prostředí). Studie ukázala, že časové průběhy sledovaných veličin anorganické formy C-14 jsou ovlivněny jednak rychlostí loužení a inventářem, jednak K_d a porozitou vrstev *Backfill*1,2. Časové průběhy organické formy jsou ovlivněny parametry: rychlosti loužení, inventářem a porozitou vrstev *Backfill*1,2. Dále jsme dokončili vývoj a implementaci modelu zohledňujícího transport v částečně saturovaném prostředí. Implementaci jsme ověřili řešením dvou úloh, které se zabývaly transportem CH₄. Úlohy ukázaly, že díky velkým hodnotám difuzivity v plynu a Henryho konstantě, určující rozdělení v plynné a kapalně fázi, je difúzní tok CH₄ v plynné formě významný i pro relativně velké saturace prostředí.

Závěrem lze říct, že hlavní cíle projektu byly dosaženy. Na základě výsledků získaných v obou předchozích etapách řešení projektu bude připravena závěrečná zpráva.

5 Citace a seznam literatury

- BERNER U. R. (1992): Evolution of pore water chemistry during degradation of cement in a radioactive waste repository environment. – *Waste Management*, 12, 201–219. [https://doi.org/10.1016/0956-053X\(92\)90049-O](https://doi.org/10.1016/0956-053X(92)90049-O)
- CATLETT K., TAUXE J. (2014): Implementation of Diffusion in GoldSim. – Neptune document system. – JT.
- 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.
- DE WINDT L., BERTRON A., LARREUR-CAYOL S., ESCADEILLAS, G. (2015): Cement and Concrete Research Interactions between hydrated cement paste and organic acids: Thermodynamic data and speciation modeling. – *Cement and Concrete Research*, 69, 25–36.
- EVANS N., WARWICK P., LEWIS T., BRYAN N. (2011): Influence of humic acid on the sorption of uranium(IV) to kaolin. – *Environmental Chemistry Letters*, 9(1), 25–30.
- GLASSER F. (2011): Application of inorganic cements to the conditioning and immobilisation of radioactive wastes. – *Handbook of advanced radioactive waste conditioning technologies*. – Woodhead Publishing Limited, 67–135.
- 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.
- 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., HAMDİ 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., COLÁS 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.

 SÚRAO	Vývoj modelu transportu C-14 z hlubinného úložiště a jeho neurčitostní a citlivostní analýza	Evidenční označení:
		186/2017

- STOCKDALE A., BRYAN N. D. (2013): The influence of natural organic matter on radionuclide mobility under conditions relevant to cementitious disposal of radioactive wastes: A review of direct evidence. – *Earth-Science Reviews*, 121, 1–17.
- VANÝSEK P. (2009): Ionic conductivity and diffusion at infinite dilution. CRC handbook of chemistry and physics 90th edition. CRC Press, 5-93 – 5-95.
- WANG L., MARTENS E., JACQUES D., DE CANNIERE P., BERRY J., MALLANTS, D. (2012): 18 - Review Of Sorption Values For The Cementitious Near Field Of A Near-Surface Radioactive Waste Disposal. – *NEA/RWM/R(2012)3/REV, 3*, 225–230.
- 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 založené na četnostním popisu neurčitosti

V následujícím textu budou uvedeny univerzální metody citlivostní analýzy, které nejsou závislé na linearitě modelu. Představme si, 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 vypočítáme 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

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

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)

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

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

Je vysoce pravděpodobné, že sledovaný výstup z modelu HÚ bude nelineární vzhledem k vybraným neurčitým parametrům. Protože výše uvedené globální metody vhodné pro lineární a nelineární modely jsou založeny na Monte Carlo simulacích (opakovaném počtu simulací), zvolili jsme pro kvantifikaci vlivu neurčitých parametrů výpočet citlivostních měř S_i a S_{Ti} .

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)

$$\begin{aligned}
 V(E(y|s_i)) &= \frac{1}{n} \sum_{j=1}^n y(\mathbf{B})_j \left(y(\mathbf{A}_B^{(i)})_j - y(\mathbf{A})_j \right), \\
 V(E(y|s_i)) &= V(y) - \frac{1}{2n} \sum_{j=1}^n \left(y(\mathbf{B})_j - y(\mathbf{A}_B^{(i)})_j \right)^2.
 \end{aligned}
 \tag{A.3}$$

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)

$$\begin{aligned}
 E(V(y|s_{-i})) &= V(y) - \frac{1}{n} \sum_{j=1}^n y(\mathbf{A})_j y(\mathbf{A}_B^{(i)})_j + (E(y))^2, \\
 E(V(y|s_{-i})) &= \frac{1}{n} \sum_{j=1}^n y(\mathbf{A})_j \left(y(\mathbf{A})_j - y(\mathbf{A}_B^{(i)})_j \right), \\
 E(V(y|s_{-i})) &= \frac{1}{2n} \sum_{j=1}^n \left(y(\mathbf{A})_j - y(\mathbf{A}_B^{(i)})_j \right)^2.
 \end{aligned}
 \tag{A.4}$$

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 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