

České vysoké učení technické v Praze
Czech Technical University in Prague

Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská
Faculty of Nuclear Sciences and Physical Engineering

Mgr. Dušan Vopálka, CSc.

**Modelování migrace radioaktivních kontaminantů v okolí úložišť
radioaktivních odpadů**

**Modelling of Radioactive Contaminants Migration in Nuclear Waste
Repositories**

Summary

The sorption and diffusion coefficients of critical radionuclides play a very important role in the safety analyses of high-level radioactive waste repositories. The model of basic diffusion experiments realized in PHREEQC enabled to assess the influence of the non-linear sorption isotherm on the diffusion transport in engineered barriers. A detailed analysis of numerical modelling of through-diffusion experiments in several multicomponent systems in which the interaction was described by both ion-exchange and surface complexation models resulted in the formulation of the function dependence of the retardation coefficient R on the shape of interaction isotherm. This approach can be recommended in the performance assessment modelling. A modification of the module modelling the processes that occur in a deep geological repository has been prepared in the GoldSim computer code environment. This module helps to understand the role of selected parameters in the near-field region of the final repository. The source term module includes radioactive decay and in-growth in the canister, degradation of fuel matrix controlled by the diffusion transport of uranium in the layer of compacted bentonite, solubility limitation of the concentration of the studied nuclides, and the diffusive migration through the surrounding bentonite layer retarded by sorption and controlled by the output boundary condition formulated with respect to the rate of water flow in the rock. The module enables to perform stochastic modelling in which the influence of uncertainties of selected parameters on the distribution function of the radionuclide release rate from the near-field region was assessed.

Souhrn

Koeficienty charakterizující sorpci a difúzi kritických radionuklidů mají významnou roli v bezpečnostních analýzách úložišť vysoce aktivních odpadů. Model difúzních experimentů v základních uspořádáních realizovaný v prostředí PHREEQC umožnil posuzovat vliv nelinearity sorpční izotermy na difúzní transport v inženýrských bariérách. Detailní rozbor výsledků numerického modelování průnikových difúzních experimentů v několika multikomponentních systémech, v nichž byla interakce popsána iontově výměnným a/nebo povrchově komplexačním modelem, vedl k odvození funkční závislosti retardačního koeficientu na tvaru interakční izotermy. Tento přístup může být doporučen i pro modelování v rámci komplexního posuzování úložiště (*performance assessment*). Byla připravena modifikace modulu vytvořeného v prostředí GoldSim k modelování procesů ve zdrojovém členu hlubinného úložiště vyhořelého jaderného paliva. Tento modul napomáhá k porozumění role vybraných parametrů v blízkém poli trvalého úložiště. Model zdrojového členu uvažuje radioaktivní přeměny, degradaci matrice paliva řízenou úbytkem uranu v kontejneru, jež je důsledkem difúzního transportu uranu ve vrstvě bentonitu obklopující kontejner, meze rozpustnosti všech zájmových prvků v kontejneru a difúzní transport v bentonitové vrstvě retardovaný sorpcí a řízený tokovou okrajovou podmínkou na rozhraní bentonit-hornina. Modul umožňuje provádět pravděpodobnostní modelování, při němž je sledován vliv nejistot vybraných parametrů na distribuční funkci příslušející toku aktivity z pole blízkých interakcí.

Klíčová slova

modelování, simulace, jaderný odpad, vyhořelé palivo, trvalé úložiště, zdrojový člen, radioaktivní kontaminanty, kompaktovaný bentonit, difúzní experimenty, PHREEQC, GoldSim

Keywords

modelling, simulations, nuclear waste, spent fuel, final disposal, source term, radioactive contaminants, compacted bentonite, diffusion experiments, PHREEQC, GoldSim

Obsah

1 Úvod	6
2 Význam popisu difúzních experimentů pro modelování transportu radioaktivních kontaminantů v materiálech bariér	7
2.1 Formální popis difúze v nasycené vrstvě a metodika vyhodnocení difúzních experimentů	7
2.2 Zohledňování reálného chemismu v systému bariérový materiál – soubor migrujících kontaminantů	9
2.3 Návrh zjednodušeného způsobu zohlednění nelineárního charakteru interakční izotermy	10
3 Modelování zdrojového členu v prostředí GoldSim	13
3.1 Základní scénář	13
3.2 Upřesnění modelu a demonstrační výpočty	14
3.3 Pravděpodobnostní modelování zdrojového členu	15
4 Shrnutí a závěry	17
Literatura	19
Mgr. Dušan Vopálka, CSc. – odborný životopis	21

1 Úvod

Výstavba úložiště vysoce aktivních odpadů, včetně vyhořelého jaderného paliva, vyžaduje provedení bezpečnostní analýzy, na jejímž základě bude možno výstavbu úložiště povolit a provést. Celkové posouzení přípravy úložiště je prováděno při průběžném upřesňování metodik potřebných pro celkové posuzování plánovaného úložiště vyhořelého jaderného paliva (PA - *performance assessment*). Výpočetní kódy, s jejichž pomocí se bezpečnostní analýzy připravují, musí zahrnovat popis všech relevantních dějů ovlivňujících transport radionuklidů do biosféry. Pro uložení vysoce aktivních odpadů se vybírá horninové prostředí, ve kterém je minimalizován advektivní tok podzemní vody. Jednotlivé kontejnery se dále, v případě situování úložiště do horninového prostředí, kde je nutno počítat s dominantním tokem podzemní vody štěrbinami, plánují obklopit vrstvou kompaktovaného bentonitu, která významně potlačí advektivní tok v bezprostředním okolí. Dominantním transportním procesem v blízkém okolí úložiště (*near-field*) bude potom difúze v pórovitém materiálu inženýrské a přírodní bariéry. Transport kontaminantů přítomných ve vodné fázi v porézním prostředí inženýrských a přírodních bariér je významným způsobem ovlivňován interakcí kontaminantů s materiálem matrice, kterou nosná kapalina protéká. Dochází při něm k záchytu (sorpci), který transport kontaminantu zpomaluje. V procesu PA, jak bylo konstatováno i v závěrech řešení projektů 6. RP EU „FUNMIG“ a „PAMINA“, které byly studiu transportu radionuklidů v okolí úložiště věnovány, zatím potřebné modelovací nástroje používají pro popis interakce jednoduchý K_d -model, který implikuje konstantní hodnotu retardačního koeficientu R . Zjednodušení, které z tohoto přístupu vyplývá, je v rozporu se stále se prohlubujícími poznatky o interakčních mechanismech, které většinou vyžadují nelineární formu funkční závislosti na koncentracích v systému přítomných složek. V této přednášce je některým aspektům vlivu komplexnějšího popisu interakce kontaminantů rozpuštěných v kapalné fázi s povrchem pevné fáze na jejich migraci v porézním prostředí věnována pozornost, zejména s ohledem na popis a modelování difúzního transportu.

Výpočetní kódy určené pro modelování transportu radionuklidů z prostoru úložiště vyhořelého jaderného paliva do horninového prostředí musejí zohlednit řadu charakteristik a dějů, které transport ovlivňují [1]. Jde mj. o inventář radionuklidů v kontejneru; jejich rozdělení v kontejneru – v tomto ohledu je velmi významná ihned přístupná frakce, tzv. IRF – *instant release fraction*; rychlost koroze kontejneru, vyhořelého paliva a konstrukčních částí; chemické charakteristiky jednotlivých prvků, jako je např. mez rozpustnosti; sorpční vlastnosti tlumícího materiálu inženýrské bariéry – kompaktovaného bentonitu resp. i korozních produktů obalových materiálů; tok podzemní vody v obklopujícím horninovém prostředí a v neposlední řadě i o scénář shrnující představy o degradaci jednotlivých prvků úložiště a

preferenčních cestách kritických radionuklidů. Výpočetní programy, které počítají transport z oblasti inženýrské bariéry do horninového prostředí jako tok aktivity sledovaných nuklidů (v Bq/rok) bývají s ohledem na jednoduchou geometrii kompartmentové povahy [2], v současné době se, i s ohledem na návaznost na modely toku v horninovém prostředí, přechází na modely založené na systému konečných objemů. V poslední době se i v zemích, kde je tato problematika nejvíce rozvinuta (Finsko, Švédsko, USA) přechází od starších vlastních kódů na programy pracující s přívětivým grafickým rozhraním. Patří mezi ně i programové prostředí GoldSim, ve kterém je možno realizovat jak modely založené na kompartmentovém přístupu tak vycházející z metody konečných elementů či objemů [3]. V tomto prostředí byl ve spolupráci FJFI a ÚJV Řež realizován mj. model jednoho kontejneru s vyhořelým palivem z reaktoru VVER 440, se kterým byly provedeny rozsáhlé studie.

2 Význam popisu difúzních experimentů pro modelování transportu radioaktivních kontaminantů v materiálech bariér

2.1 Formální popis difúze v nasycené vrstvě a metodika vyhodnocení difúzních experimentů

Při popisu difúzního transportu v homogenním porézním prostředí, např. kompaktovaného bentonitu, se předpokládá, že transport se děje převážně ve vodě, která v nasycené vrstvě vyplňuje póry [4, 5]. Definiční rovnicí difúzního koeficientu je v případě ustáleného děje, kdy koncentrační gradient je konstantní, 1. Fickův zákon. Tok J látky prošlé plochou pórů S_p ($S_p = \varepsilon S$, kde S je celková plocha a ε je efektivní porozita) je podle tohoto zákona, v případě, že se neuvažuje radioaktivní rozpad, úměrný difúznímu koeficientu D , zmíněné účinné ploše S_p a koncentračnímu gradientu.

$$J = - D_p S_p \frac{\partial C}{\partial x} \quad \left(= D_p \varepsilon S \frac{\partial C}{\partial x} \right) \quad (1)$$

Zde použitý difúzní koeficient se vztahuje k transportu póry, proto se označuje D_p . Vztáhne-li se tok J na celou plochu, můžeme definovat efektivní difúzní koeficient $D_e = \varepsilon D_p$ (2).

$$J = - D_e S \frac{\partial C}{\partial x} \quad (2)$$

Pro difúzní koeficient charakterizující difúzi v pórech D_p platí dále vztahy (3), které odchytku od teoretické difuzivity D_w ve vodě vyjadřují s ohledem na geometrickou odlišnost difúze v pórech od difúze ve volné vodě.

$$D_p = G \cdot D_w, \quad G = \delta / \tau^2 \quad (3)$$

V těchto vztazích je G tzv. tvarový (geometrický) faktor, δ konstriktivita zohledňující měnící se průřez individuálních pórů a τ tortuozita popisující zvětšení skutečné dráhy mezi dvěma body v důsledku proměnlivého tvaru meandrujících pórů.

Pro případ přechodového procesu (koncentrační gradient není konstantní) současně s uvažováním sorpce, je velmi rozšířen (např. [6]) formálně zjednodušující postup, který základní migrační rovnici (5), uvažující současnou změnu koncentrace v kapalně (C) i pevné fázi (q), převádí po zavedení předpokladu o linearitě sorpční izotermy $q = K_d C$ postupně (5–7) na tvar formálně shodný s 2. Fickovým zákonem, ve kterém vystupuje koeficient zdánlivé difúze D_a . Tyto vztahy, ve kterých je dále ρ_d objemová hmotnost bentonitu (*bulk resp. dry density*), zavádějí retardační koeficient R .

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_p \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - \frac{\rho_d}{\varepsilon} \frac{\partial q}{\partial t} \quad (5)$$

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\varepsilon D_p}{\varepsilon + \rho_d K_d} \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad (6)$$

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_a \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \left(= \frac{D_p}{R} \frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} \right) \quad (7)$$

V žádném ze známých analytických řešení a ve většině numerických řešení nebývá respektována obecně nelineární závislost rovnovážné koncentrace na pevné fázi q na koncentraci C . K této skutečnosti je třeba přihlížet při diskuzi a interpretaci hodnot D_a a D_e získaných z vyhodnocení difúzních experimentů.

Pro modelování transportu radionuklidů v okolí úložišť radioaktivních odpadů je třeba znát základní charakteristiky jednotlivých sledovaných nuklidů, včetně popisu interakce s pevnou fází a difúze materiálu bariér a horninou. V případě pole blízkých interakcí (*near-field*) je situace zjednodušena, protože retardace transportu radionuklidů bude v případě narušení stěn kontejneru s odpadem do značné míry ovlivňována převážně homogenní vrstvou kompaktovaného bentonitu.

Nejpoužívanější experimentální metodiky pro stanovení hodnot difúzních koeficientů v bariérových materiálech, se soustředěním se na kompaktovaný bentonit, jsou přehledně uvedeny např. v základních pracích Muurinen [4] a Yu a Neretnieks [5]. V laboratorním měřítku jsou používány v podstatě tři typy metod, které se s ohledem na formu matematického popisu rozlišují tvarem okrajové podmínky. Difúzní parametry kompaktovaného materiálu (např. bentonitu) jsou získávány zpravidla vyhodnocením časových koncentračních změn v roztoku, nebo, po skončení pokusu, vyhodnocením koncentračních změn v bločku po jeho rozřezání na tenké plátky. Metodika může být založena na vyhodnocení spočívajícím v porovnání experimentálních závislostí s analytickým řešením difúzní rov-

nice pro příslušné počáteční a okrajové podmínky, nebo na aplikaci vhodného numerického modelu. Pokud je studována difúze stopovače z roztoku ve vrtu do stěn okolní horniny, za podmínek *in situ*, potom se v principu jedná o metodu *in-diffusion*, přičemž se sleduje koncentrační změna v čase v tomto roztoku a případně i profil značkovače v hornině po skončení experimentu [7-8]. Při tzv. průnikové metodě (*through-diffusion*) je před zahájením difúzního experimentu v zásobní nádrži z jedné strany vzorku roztok obsahující sledovaný kontaminant, v nádrži na druhé straně vzorku je čistý roztok. Pravidelnými odběry je sledován pokles koncentrace (aktivity) roztoku na vstupní straně (přičemž je případně udržována koncentrace zde na konstantní hodnotě) a nárůst koncentrace na výstupní straně vzorku. V případě, že se po celou dobu experimentu udržují koncentrace v obou reservoárech velmi blízko koncentracím počátečním, jsou splněny podmínky, pro něž bylo odvozeno velmi jednoduché řešení, které umožní stanovit hodnoty obou významných parametrů difúze, tedy koeficientů efektivního difúzního koeficientu D_e a zdánlivého difúzního koeficientu D_a [4].

$$D_e = \frac{QL}{S(C_1 - C_2)} \quad , \quad D_a = \frac{L^2}{6t_L} \quad (8)$$

Zde Q je tok sledovaného nuklidu v ustáleném stavu, který se určí se ze směrnice asymptoty křivky závislosti kumulované aktivity přenesené do výstupního kontejneru na čase), C_1 a C_2 měrné objemové aktivity (koncentrace) postupně ve vstupním a výstupním kontejneru, S a L jsou geometrické charakteristiky vzorku: S plocha kolmá ke směru difúzního toku, L tloušťka vzorku, t_L je úsek na časové ose vyhodnocované závislosti: od počátku do průsečíku časové osy s asymptotou závislosti kumulované aktivity na čase (*time lag*).

2.2 Zohledňování reálného chemismu v systému bariérový materiál – soubor migrujících kontaminantů

Studium retardační schopnosti kompaktovaného bentonitu a dalších bariérových materiálů pomocí standardizovaných metod stanovení difúzních koeficientů je zavedeno již cca 20 let, problematika však ani zdaleka uzavřena [9-11], problematické se jeví vyhodnocení experimentů, při nichž se uplatňuje nelineární charakter sorpce. Od velkých zjednodušení vyplývajících z převážně fyzikální interpretace výsledků, což je např. popis sorpce lineárním modelem rovnováhy nebo vysvětlení snižování sorpčních schopností bentonitového bloku modelem povrchové difúze ([6], [12]), se přechází k podstatně kvalifikovanějšímu popisu založenému na dokonalejším popisu chemismu celého procesu, i v rozšíření fyzikálních představ o struktuře kompaktované bentonitové vrstvy [11]. Speciace a její vliv na sorpci jsou uvažovány např. v pracích [13-14], kde je zároveň uvažován i vliv složení bentonitu a iontové síly. Při modelování složitého hydrochemického systému je

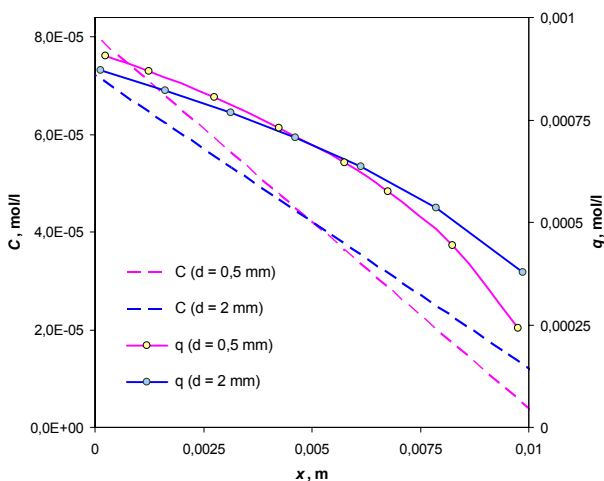
důležitá specifikace nejvýznamnějších reakcí řídicích chemismus dominantního iontu [15-16]. Pro popis sorpce se ve významném rozsahu uplatňují povrchově komplexační modely, které výše uvedené aspekty umožňují respektovat [17].

Většina autorů předpokládá platnost K_d -modelu při matematickém vyhodnocování a při interpretaci výsledků difúzních experimentů. Při zvyšující se kompaktizaci bentonitu je však pozorován efekt zrychlování migrace oproti předpokladům založeným na platnosti K_d modelu, tedy sorpční schopnost bariérového materiálu se snižuje se zvyšujícím se stupněm zhutnění. Modifikací přístupu obdobného modelu duální porozity byl tento jev fyzikálně zdůvodněn, a mikrostrukturální analýzou potvrzen. Dle Bourga et al. [11] jsou v bentonitové vrstvě póry dvojího typu: tzv. volné (*free*), kde difúze probíhá relativně neovlivněna povrchem, a mezivrstevové (*interlayers*) o světlosti odpovídající jen dvěma až třem molekulám vody, kde je difúze silně ovlivněna povrchem (kationty jsou do těchto pórů elektrostaticky vtahovány, anionty jsou naopak odpuzovány – pro ně jsou tedy póry tohoto typu uzavřeny). Při zvyšující se kompaktizaci se podle této představy snižuje objem volných pórů a naopak roste počet mezivrstevových pórů. V prostředí hlubinného úložiště bude docházet k extrémnímu namáhání tlumicí a těsnicí vrstvy bentonitu, což může mít vliv na změny mikrostrukturálních vlastností [18], které mohou, např. v důsledku uzavírání vnitřních pórů, ovlivňovat difúzní vlastnosti základního materiálu. Významné je sledování hraniční oblasti mezi horninou a vrstvou bentonitu [11], kde je na místě uvažovat vnikání bentonitu do puklin v hornině, což ovlivňuje obě základní prostředí. Zmenšuje se potom retardační schopnost inženýrské bariéry, naopak sorpční kapacita bentonitu je přenášena do horninového prostředí – zde však může nastat z hlediska retardace kritických radionuklidů i nepříznivá situace, částčky bentonitu jsou jako koloidy unášeny dále proudem podzemní vody.

2.3 Návrh zjednodušeného způsobu zohlednění nelineárního charakteru interakční izotermy

Při rozvoji modelování multikomponentního reaktivního transportu v nasycené vrstvě byly testovány možnosti geochemického modelu PHREEQC [19]. Na několika modelových i reálných systémech bylo ukázáno, že 1D transport jak s konvektivním tokem kapalné fáze tak i bez něj lze v prostředí PHREEQC modelovat pro několik typů počátečních a okrajových podmínek. Interakce jednotlivých specií byla modelována buď iontově výměnným nebo povrchově komplexačním modelem. Podařilo se modelovat v tomto prostředí základní typy difúzních experimentů. V modelování difúze zahrnující tyto typy interakčních modelů bylo testováno, jaká omezení přináší vyhodnocení difúzních experimentů standardními metodami, které byly odvozeny pro lineární popis sorpce, při reálném nelineárním vztahu

veličin C a q , který je důsledkem různorodých vzájemných vlivů přítomných složek. Dva podrobně modelované systémy, které byly charakterizovány podrobným studiem metodou míchaného reaktoru (sorpcce Cs a Sr na bentonitu [20] a interakce U(VI) se sorbentem MCM-41 [21]) ukázaly významný vliv chemického složení kapalně fáze na hodnotu zdánlivého difúzního koeficientu D_a . Výsledné hodnoty predikovaných hodnot D_a byly v souladu s experimentálními poznatky studia sorpcce v míchaném reaktoru. Bylo ukázáno, že i v dalších aspektech difúzní model vytvořený v prostředí PHREEQC odpovídá představám o popisu difúze v pevné vrstvě obsahující sorbující materiál. Ze tvaru vypočítaných koncentračních profilů v pevné fázi pro případ nelineárního sorpčního systému bylo naznačeno vysvětlení tvaru profilů ve vrstvě sorbujícího materiálu pozorovaných u silně sorbujících nuklidů (viz Obr. 1).



Obr. 1 Modelované profily koncentrací uranu v kapalně (C) i pevně fázi (q) ve vrstvě obsahující sorbent MCM-41[23]) pro dvě hodnoty tloušťky oddělovacích filtrů. Další parametry výpočtu: pH 6, $C_0 = 8,4 \times 10^{-5}$ mol/l, tloušťka vrstvy 1 cm.

Při podrobném studiu modelování difúze uranu ve vrstvě obsahující sorbent MCM-41 byly porovnávány dva rozdílné systémy, které se významně lišily v míře závislosti D_a na hodnotě vstupní koncentrace. U systémů s karbonáty (pro pH 8) byla shledána nevýrazná závislost D_a na hodnotě vstupní koncentrace – systém je možno charakterizovat lineární sorpční izotermou. Naopak závislost D_a na vstupní koncentraci pro systém bez karbonátů vykazovala v oblasti pH 6 výraznou nelinearitu. Tato nelinearita se projevila výrazně vyšší relativní hodnotou koncentrace v pevné fázi na konci vrstvy, přes kterou byla modelována difúze, oproti relativní koncentraci

v kapaln  f zi. Pro vyhodnocov n  konkr tn ch difuzn ch experiment  p n n  tento poznatek moznost vysv tlen   asto pozorovan ho charakteru profilu v pevn  f zi po skon en  pr nikov ho experimentu: p blibn i hodnot koncentrace na v stupn  stran  vrstvy k hodnot  koncentrace na vstupn  stran  vrstvy. Bylo uk z no,  e toto p blibn i se bude zvyšovat se zv třuj c  se tlouřtkou filtru na v stupn  stran  [22]. Pro syst m, kter  je moznost charakterizovat neline rn  izotermou byl pozorov n zlateln  rozdlil v hodnot ch D_a stanoven ch v ust len m stavu (metodou *time-lag*) a ur en ch z koncentra n ch profil  v neust len m stavu.

Na z klad  numerick ch experiment  pro p p ad line rn  izotermy byla diskutov no hodnota retarda n ho koeficientu R . Z rozboru v sledk  t chto numerick ch experiment  vyplynula shoda retarda n ho koeficientu ur en ho metodou *time lag* s  iselnou hodnotou pom ru l tkov ch mnozstv  sledovan  l tky ve vrstv  pro experimenty s interaguj c  l tkou a pro experimenty bez interakce. Tato shoda je p rozen m vyj dřen m podstaty retardace ve vrstv  v d sledku z chytu na povrchu pevn  f ze. Stejn  zp sob odvozen  retarda n ho koeficientu byl aplikov n na p p ad neline rn ho tvaru izotermy [23]: po integraci l tkov ho mnozstv  ve vrstv  v ust len m stavu bylo z sk no analytick  vyj dřen  retarda n ho koeficientu R jako funkce rozdlilu koncentrac  na vstupu a v stupu do vrstvy $C_0 = C_1 - C_2$. Pro Freundlich v tvar izotermy plat  potom vztahy (9), pro Langmuir v tvar vztahy (10), oboj  pro $C_2 = 0$.

$$\text{Freundlich:} \quad q = K_F C^p \quad R = 1 + \frac{2\rho_d K_F C_0^{p-1}}{\varepsilon p + 1} \quad (9)$$

$$\text{Langmuir:} \quad q = \frac{Q_{\max} K_L C}{1 + K_L C} \quad R = 1 + \frac{\rho_d}{\varepsilon} \frac{2Q_{\max} \left(1 - \frac{\ln(1 + K_L C_0)}{K_L C_0} \right)}{C_0} \quad (10)$$

Zde ρ_d je objemov  hmotnost a ε mezerovitost materi lu, Q_{\max} , K_L , K_F a p jsou empirick  parametry uvaov van ch izoterm.

Pro specifick  okrajov  podm nky, odpov daj c  pr nikov mu difuzn mu experimentu, byla odvozena z vislost retarda n ho koeficientu na tvaru neline rn  interak n  izotermy. Modelov n  re ln ho difuzn ho transportu v t lesech s obdobn  nastaven mi okrajov mi a po ate n mi podm nkami se tedy v znamn  zjednoduřuje (nen  t eba řeřit difuzn  rovnici s koncentra n  z visl m retarda n m koeficientem) a v ce p blibn je re ln m podm nk m. Tento zp sob zohledn n  neline rn ho tvaru interak n  izotermy je aplikovateln  i na v po ty v r mci bezpe nostn ch anal z  loziřt .

3 Modelování zdrojového členu v prostředí GoldSim

3.1 Základní scénář

Základní článkem vytvořeného modelu, který byl ověřen porovnáním s modelem MIVCYL a Pagoda [24-25], je deterministický popis transportu kritických radionuklidů z jednoho kontejneru obsahujícího 7 kazet z reaktoru typu VVER 440 v palivovém souboru, předpokládá se stupeň vyhoření 45 000 MWd/tU, doba skladování před uložením do trvalého úložiště 100 let. Parametry scénáře vycházejí z českého referenčního projektu úložiště [26], dále jsou uvedeny parametry scénáře týkající se kontejneru a bentonitové vrstvy (Tabulka 1) a uvažované chemické charakteristiky diskutovaných prvků (Tabulka 2).

Při výpočtech bylo uvažováno 26 nejdůležitějších kritických radionuklidů, u cesia a jodu byly uvažována 10% podíl IRF, celková aktivita izotopu ^{14}C byla rozdělena mezi matici paliva a konstrukční prvky. Do doby životnosti kontejneru scénář uvažuje pouze radioaktivní rozpad a vznik dceřiných produktů. V čase odpovídajícím životnosti se předpokládá okamžité zaplavení kontejneru vodou, začátek rozpouštění matrice paliva i konstrukčních částí a následně i začátek difúzního děje.

Tabulka 1 Parametry kontejneru a bentonitové vrstvy.

konstantní parametry		proměnné parametry	
veličina	hodnota	veličina	hodnota
průměr kontejneru	0,7 m	volný prostor v kontejneru V	0,2 m ³
výška kontejneru	3,7 m	objemová hmotnost bentonitu ρ_d	1750 kg·m ⁻³
životnost	1000 let	porozita bentonitu ε	0,36
		tloušťka bentonitové vrstvy L	0,325 m
		rychlost degradace paliva a	1,38×10 ⁻⁴ rok ⁻¹
		rychlost degradace konstrukčních částí b	2×10 ⁻³ rok ⁻¹
		difúzní koeficient v pórové vodě D_p	8×10 ⁻¹⁰ m ² ·s ⁻¹
		Darcyho rychlost v_D	2,07×10 ⁻³ m·rok ⁻¹

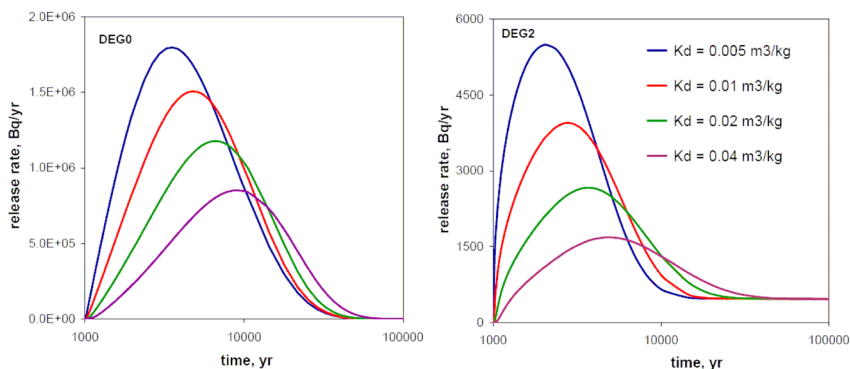
Tabulka 2 Chemické charakteristiky studovaných prvků.

Prvek	K_d m^3kg^{-1}	rozpustnost $mol\cdot dm^{-3}$	Prvek	K_d m^3kg^{-1}	rozpustnost $mol\cdot dm^{-3}$
U	0,2	3×10^{-6}	Np	0,1	2×10^{-9}
Th	1	5×10^{-9}	Nb	0,01	2×10^{-5}
Ra	0,02	1×10^{-7}	Ni	0,05	1×10^{-3}
Am	2	1×10^{-6}	Se	0,005	4×10^{-6}
Pu	1,5	6×10^{-7}	Sn	0,01	3×10^{-8}
C	0	vyšoká	Pd	0,005	6×10^{-8}
Cs	0,02	vyšoká	Tc	0,05	3×10^{-8}
I	0	vyšoká	Pa	0,1	1×10^{-5}

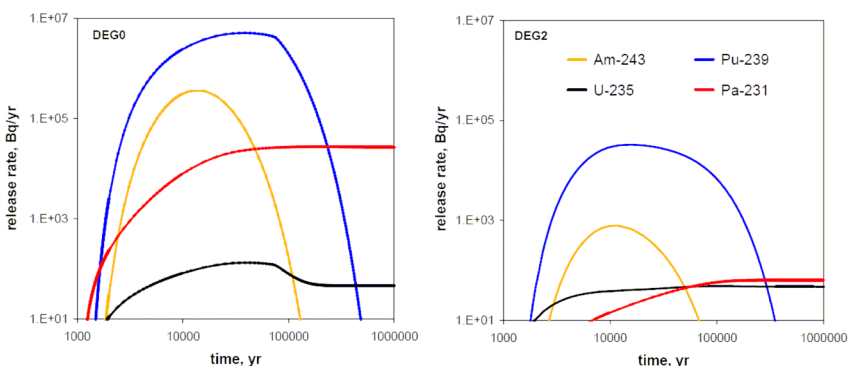
Model neideální vnější okrajové podmínky (na povrchu bentonitové vrstvy není udržována nulová koncentrace) byl realizován zapojením modelu trubkového reaktoru (*pipe*) za lineárně uvažovaný model zdroje (kontejner + bentonitová vrstva). Tak je možno respektovat ovlivňování difúzního toku v bentonitové vrstvě realitě popisem toku v horninovém prostředí, a uvažovat při tom případně i model sorpce v materiálu přírodní bariéry. Referenční hodnota Darcyho rychlosti $2,07\times 10^{-3} m\cdot rok^{-1}$, která představuje v modulu *pipe* navazujícím na model bentonitové vrstvy fyzikální model konvektivního toku v horninovém prostředí, odpovídá rychlosti $6,57\times 10^{-11} m\cdot s^{-1}$. Rozpustnost prvku udává maximální koncentraci sledovaného prvku ve vodě, která zaplní po destrukci stěn kontejneru volný objem kontejneru. Kinetika koroze stěn kontejneru ani vliv korozních produktů na chemické vlastnosti bentonitové vrstvy se neuvažují.

3.2 Upřesnění modelu a demonstrační výpočty

Základním modelovacím prostředím při modelování zdrojového členu bylo voleno prostředí GoldSim a jeho nadstavba (tzv. Contaminant Transport Module [27]), která umožňuje efektivním způsobem modelovat základní fyzikální a chemické procesy uvažované při modelování migrace kontaminantů v životním prostředí. Byla provedena doplnění a upřesnění modelu, z nichž za nejvýznamnější je možno považovat zohlednění vlivu úbytku celkové hmotnosti uranu v kontejneru v důsledku difúzního toku na rychlost degradace matrice paliva. Toto upřesnění respektuje reálnou vazbu většiny radionuklidů na matici paliva a snižuje modelovanou rychlost uvolňování většiny radionuklidů z oblasti kontejneru, což ukazují demonstrační příklady na Obr. 2 a Obr. 3 (původní model je označován DEG0, upřesněný DEG2).



Obr. 2 Závislost toku aktivity ^{135}Cs z oblasti blízkých interakcí do horninového prostředí na hodnotě rozdělovacího koeficientu K_d v bentonitu pro dva modelové přístupy (DEG0 vlevo, DEG2 vpravo). Podíl IRF cesia byl pro tyto výpočty nulový.



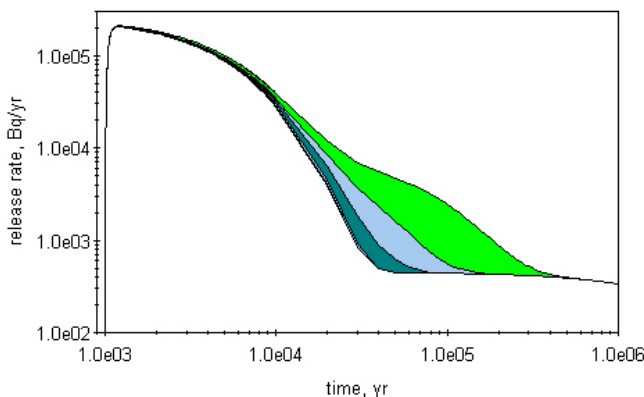
Obr. 3 Závislost toků čtyř nuklidů přeměnové řady 4N+3 do horninového prostředí na čase pro modelové popisy DEG0 a DEG2.

3.3 Pravděpodobnostní modelování zdrojového členu

V trvalém úložišti vyhořelého paliva bude migrace radionuklidů ovlivňována řadou procesů, které všechny musejí být řádně ohodnoceny a jejich vlivy modelovány, zejména s ohledem na dlouhodobý charakter dějů v úložišti. Nejistota v chování úložného systému, která je důsledkem nedokonalého poznání jednotlivých dějů a jejich variability, vede k četným zdrojům nejistot, které se komplexním způsobem překrývají a kříží [28]. Dopad nejistot musí být proto v rámci celkového posouzení chování úložiště (PA) s velkou pozorností vyhodnocen. Vzhledem k tomu, že prostředí GoldSim, ve kterém je náš model vytvořen, nabízí pravděpodobnostní modelování pomocí metody Monte Carlo pro vyjádření vlivu neurčitosti parametrů modelu na sle-

dovanou odezvu, rozhodl jsem se doplnit rozvinutou metodiku deterministického modelování i o pravděpodobnostní modelování.

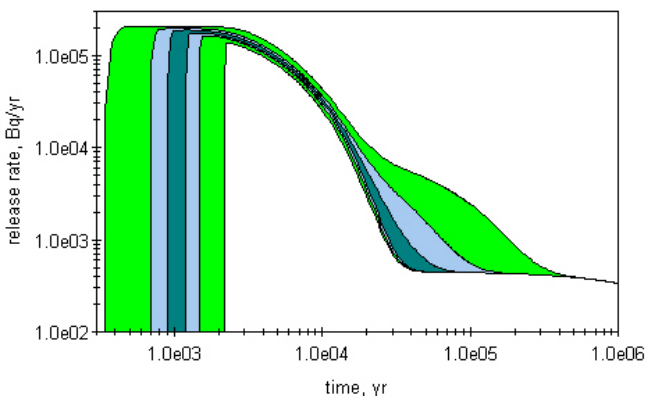
K ověření metodiky pravděpodobnostního modelování v prostředí GoldSim na model jednoho kontejneru DEG2 byly testovány vlivy neurčitosti **IRF podílu jódu** (trojúhelníkový tvar hustoty pravděpodobnosti), neurčitost v hodnotě rozdělovacího **koeficientu K_d uranu** popisující sorpci tohoto prvku na bentonitu (popsána lognormálním rozdělením) neurčitosti hodnot **dob života kontejneru** (Weibullovo rozdělení).



Obr. 4 Vliv neurčitosti K_d uranu na tok aktivity ^{135}Cs na rozhraní bentonitové vrstvy a horninového prostředí. Výpočet byl proveden pro konstantní životnost kontejneru $t_K = 1000$ let (rozpětí: $Q_{0,95} - Q_{0,05}$ - střední sytost, $Q_{0,75} - Q_{0,25}$ - světle, $Q_{0,60} - Q_{0,40}$ - tmavě).

Jako základní nástroj pro prezentaci odezvy neurčitosti vybraných parametrů na tok aktivity z modelovaného tělesa byl zvolen grafický výstup, který po jisté modifikaci formátu poskytuje sám GoldSim. Jedná se o znázornění tří mezipercentilových rozmezí výsledných toků aktivity na vymezeném rozhraní $Q_{0,95} - Q_{0,05}$, $Q_{0,75} - Q_{0,25}$ a $Q_{0,60} - Q_{0,40}$, což vyjadřuje intervaly, které zahrnují postupně 90 %, 50 % a 20 % z výsledků všech realizací (se středem, který vymezuje medián ze všech realizací). Tento způsob hodnocení umožňuje identifikovat časové intervaly, ve kterých v důsledku neurčitosti při výpočtu měněných parametrů dochází k největšímu relativnímu rozptylu ve výsledném toku aktivity a sledovat alespoň orientačně jak se mění hustota pravděpodobnosti sledované veličiny v čase.

Se jmenovanými neurčitostmi byla provedena rozsáhlá numerická studie, ve které byly vyhodnoceny zvolené postupy, zejména s ohledem na potřebný počet realizací v pravděpodobnostním modelování a na způsob prezentace získaných rozdělení hustoty pravděpodobnosti sledovaný veličin. Dále byla diskutována získaná pravděpodobnostní rozdělení toků aktivit sledovaných nuklidů s cílem identifikace vlivů neurčitosti vstupních parametrů. Studie naznačila možné směry v rozšiřování tohoto typu modelování, její výsledky poukázaly i na možné nedostatky základního model, např. bylo pozorováno navýšení toku celkové aktivity v důsledku prodloužení doby života kontejneru. Vybrané výsledky rozsáhlejší pravděpodobnostní studie jsou uvedeny na Obr. 4. a Obr. 5.



Obr. 5 Vliv neurčitosti doby životnosti kontejneru a K_d uranu na tok ^{135}Cs na rozhraní bentonitové vrstvy a horninového prostředí, střední hodnota $t_K = 1100$ let (rozpětí: $Q_{0,95} - Q_{0,05}$ - střední sytost, $Q_{0,75} - Q_{0,25}$ - světle, $Q_{0,60} - Q_{0,40}$ - tmavě).

4 Shrnutí a závěry

V hlubinném úložišti vysoce aktivních odpadů se předpokládá použít bloky zhutněného bentonitu jako základní inženýrskou bariéru, která by měla zabránit jednak přístupu vody z hostitelského prostředí k úložnému kontejneru, jednak úniku radionuklidů od úložného systému kontejneru v případě jeho porušení a vyluhování radionuklidů do okolní vody. Jelikož je hutněný bentonit velice málo propustným materiálem a okolí kontejneru by mělo být postupným botnáním bentonitu utěsněno, bude difúze pro radionuklidy pocházející z porušených kontejnerů s vysoce aktivním odpadem v blízkém okolí úložiště (*near-field*) hlavním transportním mechanismem.

Byly uvedeny základní aspekty experimentálního studia a modelování difúze v nasycené homogenní vrstvě, přičemž pozornost se soustředila zejména na otázky spojené s popisem interakce sledovaných kontaminantů s povrchem bariérového materiálu. V souladu s cílem uvedeným v úvodní kapitole byla pozornost věnována zejména třem aspektům, které patří při studiu difúze radioaktivních kontaminantů v bariérových materiálech k nejvíce sledovaným.

1. Systém podzemní voda – bariérový materiál je složitý v důsledku svého multikomponentního charakteru, proto studium interakce jediného vybraného radioaktivního kontaminantu s povrchem pevné fáze vyžaduje znalost celého systému a odpovídající popis konkurenčních reakcí všech důležitých složek přítomných v systému. Bylo ukázáno, speciální program PHREEQC umožňuje modelovat jednorozměrný reaktivní transport pro široký soubor dějů a experimentů, za různorodých počátečních a okrajových podmínek.

2. Rozborem modelových experimentů bylo ukázáno, že pro systémy, které není možno popsat lineární izotermou, mohou různé způsoby vyhodnocení standardních typů difúzních experimentů poskytovat výrazně odlišné výsledky. Modelování dále ukázalo, že pro systém, v němž není možno aplikovat lineární sorpční izotermu, se výrazně (a nečekaně) projeví vliv oddělovacích filtrů. Na základě tohoto rozboru byl navržen způsob zohlednění nelineárního tvaru sorpční izotermu modelování difúze v homogenní nasycené vrstvě, tento postup zpřesňuje i výpočty prováděné jednoduchými modely i v rámci PA.

3. Modelování difúzního transportu je základem modelování zdrojového členu úložiště v české koncepci ukládání, která předpokládá situování úložiště v granitickém prostředí a obklopení každého kontejneru vrstvou kompaktovaného bentonitu. V současném stavu modelování není zohledňována multikomponentnost systému z hlediska sorpce, ani nelinearita interakční izotermu. Základem výpočtu zdrojového členu, který byl prezentován v této práci, je model jednoho obalového souboru s vyhořelým jaderným palivem. Z matematického hlediska jde pro každý sledovaný nuklid o řešení difúzní rovnice ve vrstvě cylindrického tvaru za dynamicky se měnících okrajových podmínek. Výpočetní modul vytvořený ve spolupráci pracovišť ÚJV Řež a KJCH v prostředí GoldSim, byl úspěšně testován porovnáním s výsledky kódů připravených pro řešení stejné úlohy. V posledním období byly provedeny dílčí změny programu, které zrealizují pohled na bilanci radionuklidů v modelovaném systému. S upraveným modelem byla provedena úvodní pravděpodobnostní studie, která naznačila možnosti realizace tohoto typu výpočtu v prostředí GoldSim.

Literatura

- [1] Pastina B., Hellä P.: Models and Data Report 2010. Report POSIVA 2010-1, Olkiluoto 2010, 478 p.
- [2] Vieno T.: Safety analysis of disposal of spent nuclear fuel. VTT Publications, No. 177, Espo 1994, 256 p.
- [3] Pulkkanen V.-M., Nordman H.: Modelling of Near-Field Radionuclide Transport Phenomena in a KBS-3V Type of Repository for Nuclear Waste with Goldsim Code – and Verification Against Previous Methods. Working Report 2010-14, Posiva Oy, Olkiluoto 2010, 36 p.
- [4] Muurinen A.: Diffusion of anions and cations in compacted sodium bentonite. VTT Publications 168, Espoo 1994, 75 p.
- [5] Yu J.-W., Neretnieks I.: Diffusion and sorption properties of radionuclides in compacted bentonite. Report SKB TR 97-12, Stockholm 1997, 98 p.
- [6] Muurinen A., Lehtikoinen J.: Evaluation of phenomena affecting diffusion of cations in compacted bentonite. Report YJT-95-05, Nuclear Waste Commission of Finnish Power Companies, Helsinki 1995, 59 p.
- [7] Gimmi T.: Modeling field diffusion experiments in clay rock: influence of numerical representation of borehole and rock interface. *J. of Environ. Science for Sustainable Society*, 2, 2008, 63-70.
- [8] Wersin P., Soler J.M., Van Loon L., Eikenberg J., Baeyens B., Grolimund D., Gimmi T., Dewonck S.: Diffusion of HTO, Br⁻, I⁻, Cs⁺, Sr²⁺ and Co²⁺ in a clay formation: Results and modelling from an in situ experiment in Opalinus Clay. *Applied Geochemistry*, 23, 2008, 678-691.
- [9] Ochs M., Lothenbach B., Shibata N., Sato H., Yui M.: Sensitivity analysis of radionuclide migration in compacted bentonite: a mechanistic model approach. *J. Cont. Hydrol.*, 61, 2003, 313-328.
- [10] Liu J., Kozaki T., Horiuchi Y., Sato S.: Microstructure of montmorillonite/silica sand mixture and its effects on the diffusion of strontium ions. *Applied Clay Science*, 23, 2003, 89-95.
- [11] Bourg I.C., Bourg A.C.M., Sposito G.: Modelling diffusion and adsorption in compacted bentonite: a critical review. *J. Cont. Hydrol.*, 61, 2003, 293-302.
- [12] Rasilainen K.: Matrix diffusion model – in situ tests using natural analogues. VTT Publications 331, VTT, Espoo 1997, 81 p.
- [13] Muurinen A., Lehtikoinen J.: Porewater chemistry in compacted bentonite. *Engineering Geology*, 54, 1999, 207-214.
- [14] Bradbury M.H., Baeyens B.: Behaviour of actinides and porewater chemistry in compacted re-saturated MX-80 bentonite. *J. Cont. Hydrol.*, 61, 2003, 329-338.
- [15] Štamberg K., Vopálka D., Škrkal J., Beneš P., Chalupská K.: Simulation of transport of uranium(VI) species through the bed of bentonite. *Material Research Society, Symp. Proc.*, 506, 1998, 485-493.
- [16] Wersin P.: Geochemical modelling of bentonite porewater in high-level waste repositories. *J. Cont. Hydrol.* 61, 2003, 405-422.

- [17] Ochs M., Talerico C.: Data and uncertainty assessment. Migration parameters for the bentonite buffer in the KBS-3 concept. Technical Report, TR-04-18, SKB, Stockholm 2004, 165 p.
- [18] Neaman A., Pelletier M., Villieras F.: The effects of exchanged cation, compression, heating and hydration on textural properties of bulk bentonite and its corresponding purified montmorillonite. *Applied Clay Science*, 22, 2003, 153-68.
- [19] Parkhurst D.L., Appelo C.A.J.: User's guide to PHREEQC (Version 2) - a computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations. Report 99-4259, U.S. Geological Survey, 1999, 312 p.
- [20] Filipská H., Štamberg K.: Sorption of Cs(I) and Sr(II) on a Mixture of Bentonite and Magnetite Using SCM + IExM: A Parametric Study. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 270, 3, 2006, 531-542.
- [21] Štamberg K., Venkatesan K.A., Vasudeva Rao P.R.: Surface Complexation Modeling of Uranyl Ion Sorption on Mesoporous Silica. *Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects*, 221, 2003, 149-162.
- [22] Vopálka D., Drtinová B., Motl A., Šebera, J., Štamberg K., Vetešník A., Zavadilová A.: Rozvoj pokročilých metod studia speciace a popisu sorpce aktinidů (Etapa 4). Výzkumná zpráva, Katedra jaderné chemie JFI ČVUT v Praze, 2009, 81 s.
- [23] Jindrová T., Vopálka D.: Modelování difúzního transportu kontaminantů v materiálech bariér. *Inovativní sanační technologie ve výzkumu a praxi III*, 13-14. 10. 2010, Beroun, Olga Halousková (Edit.), Vodní zdroje Ekomonitor s.r.o., Chrudim 2010, 141-142.
- [24] Vopálka D.: Porovnání výpočetních kódů MIVCYL a PAGODA. Výzkumná zpráva ČVUT, Fakulta jaderná a fyzikálně inženýrská, No. 274/02, Praha 2002, 12 s.
- [25] Vopálka D., Lukin D., Vokál A.: Modelling of processes occurring in Deep Geological Repository – Development of new modules in the GOLDSIM environment. *Czechoslovak J. Phys.*, 56, 2006, D623-D628.
- [26] Vokál A., Laciok A., Ligaunová M., Lietava P., Havlová V., Vavřina V., Píček M., Barvínek R., Bucek R., Herle V., Křížová V., Marek P., Svatoš J., Štamberg K., Vopálka D., Beneš P., Pacovský J.: Testovací program pro vývoj inženýrských bariér hlubinného úložiště VJP a VAO, Zpráva ÚJV Řež, listopad 1999.
- [27] Golder Associates: GoldSim Contaminant Transport Module, Manual, Version 1.30, GoldSim Technology Group, Redmond (Washington) 2002, 285 p.
- [28] Prváková S., Nilsson K.-F. (2006) Treatment of data uncertainty for the modelling of radionuclide migration in geological repository. Report DG JRC Institute for Energy No. EUR 22605 EN, Petten 2006, 48 p.

Mgr. Dušan Vopálka, CSc. – odborný životopis

Narozen 9.10.1947 v Praze.

Vysokoškolské vzdělání: Univerzita Karlova v Praze – Matematicko-fyzikální fakulta, obor elektronika a vakuová fyzika (1972)

Vědecká hodnost: FJFI ČVUT v Praze - kandidát věd v oboru jaderná chemie (2001)

Zaměstnání:

1972 - 1995: technický a výzkumný pracovník na Katedře jaderné chemie (KJCH) FJFI ČVUT v Praze (v letech 1973-1976 řádná aspirantura).

1995 - dosud: akademický pracovník

Pedagogická praxe:

Od poloviny 80. let zapojení do výuky, nejdříve ve cvičení z Numerických metod pro studenty KJCH, v cca 5 letech vedl toto cvičení i pro další studenty základního studia. V 90. letech se podílel na vedení základního kurzu použití počítačů, případně ECDL. Od r. 2009 zajišťuje v bakalářském studijním programu pro studenty jaderně chemického inženýrství předmět Měření a zpracování dat. Pro vyšší ročníky specializací zajišťovaných KJCH zavedl a přednáší dvě speciální přednášky. Vedení 10 obhájených diplomových prací, 3 bakalářských prací a řady rešeršních prací a prací na výzkumném úkolu; vedení 4 studentů doktorského studia.

Vědecká a výzkumná činnost:

V prvním období své odborné činnosti na FJFI se D. Vopálka věnoval hmotnostní spektrometrii stabilních izotopů. Souběžně s touto problematikou se postupně zapojil do řešení problematiky výpočetních metod separačních procesů, zejména s ohledem na aplikaci sorbentů a na aplikace optimalizačních postupů v komplexních vyhodnocovacích a simulačních programech. V souvislosti s těmito metodami se dostal k problematice ochrany životního prostředí, s důrazem na modelování transportu kontaminantů.

D. Vopálka byl členem řešitelských kolektivů tří úspěšných grantů GAČR a tří projektů řešených v 5. a 6. rámcovém programu EU („HUPA“, „FUNMIG“ a „NF-PRO“), tyto projekty byly zaměřeny na studium migrace radioaktivních kontaminantů v životním prostředí. V posledních letech se stal mj. řešitelem dílčích částí tří projektů MPO ČR tohoto zaměření a dílčí části výzkumného záměru MSM6840770020 "Bezpečnost jaderných zařízení" řešené na KJCH.

D. Vopálka je autorem a spoluautorem cca 200 článků, zpráv, příspěvků v domácích a mezinárodních sbornících a prezentací na konferencích, z toho 19 článků evidovaných WoS a asi 70 oponovaných zpráv.

Činnost v orgánech FJFI a ČVUT:

Člen AS FJFI 1995 - 2004 (v letech 1996 - 2001 předseda). Člen AS ČVUT 2001 - 2005 (v letech 2004 - 2005 předseda legislativní komise). Proděkan FJFI 2006 - dosud.