

SIMULAZIONE MONTE CARLO DELLA DISPERSIONE DI CONTAMINANTE DA UN DEPOSITO DI RIFIUTI RADIOATTIVI

Marzio Marseguerra, Enrico Zio
Edoardo Patelli, Francesca Giacobbo
Dipartimento di Ingegneria Nucleare –
Politecnico di Milano
Via Ponzio 34/3, 20133 Milano, Italia
marzio.marseguerra@polimi.it

Piero Risoluti,
Giancarlo Ventura, Giorgio Mingrone
ENEA-RAD (Task Force RAD Sito)
Via Anguillarese 301 - 00060 Roma, Italia

Sommario

In questo lavoro viene presentato un modello del tutto generale, sviluppato al Dipartimento di Ingegneria Nucleare del Politecnico di Milano, per il trasporto di contaminanti attraverso diverse barriere porose. Il modello, basato sulla teoria dei processi stocastici di ramificazione di Kolmogorov-Dmitriev, è stato implementato in un codice di simulazione Monte Carlo ed applicato per valutare la dispersione di contaminanti radioattivi in un modulo di calcestruzzo per il loro confinamento definitivo, progettato da ENEA. La generalità del modello lo rende applicabile anche per lo studio dei fenomeni di dispersione e trasporto di inquinanti tossici da depositi o serbatoi di stoccaggio.

1. Introduzione

In Italia per circa trenta anni, dai primi anni '60 e fino alla fine degli anni '80, sono state condotte attività nucleari, sia di tipo industriale che di ricerca di base ed applicata. Queste attività hanno comportato la produzione di quantitativi non trascurabili di rifiuti radioattivi, cioè di materiale di scarto o residui di lavorazioni per i quali non è previsto più alcun impiego. Quantitativi più considerevoli di rifiuti radioattivi saranno prodotti dalle attività di disattivazione e smantellamento fisico delle installazioni nucleari, in modo particolare delle centrali dell'ENEL e degli impianti dell'ENEA. Tutti questi materiali, quelli già prodotti e quelli previsti, dovranno continuare tuttavia ad essere immagazzinati nei luoghi di produzione fino a quando non sarà disponibile anche in Italia un sito nazionale di smaltimento in cui trasferirli per il deposito definitivo.

Il deposito definitivo deve essere progettato in modo da garantire l'isolamento dei radionuclidi dalla biosfera per l'intero periodo in cui essi rimangono pericolosi. Tale isolamento viene realizzato tramite una serie di barriere di contenimento, la cui funzione è di impedire la diffusione degli isotopi radioattivi verso l'esterno del deposito [1]. Nell'attuale concettualizzazione del deposito definitivo superficiale per rifiuti a bassa attività, i rifiuti radioattivi sono condizionati ed immobilizzati in matrici cementizie e sigillati in appositi contenitori di varie dimensioni detti "manufatti" o waste drum. I manufatti sono posti in contenitori di calcestruzzo chiamati "moduli" all'interno dei quali un materiale cementizio (grout) è interposto tra i manufatti e le pareti del modulo. I moduli sono stivati in celle (240 moduli per cella) e il deposito è costituito da un certo numero di celle. Infine queste celle sono protette mediante un sistema di copertura costituito da strati di terreno di diverse caratteristiche e funzioni, con interposte membrane di impermeabilizzazione.

Le lunghe scale dei tempi associate alla potenziale pericolosità della radioattività richiedono che i livelli di sicurezza e di protezione dei depositi per rifiuti radioattivi debbano essere valutati applicando modelli in grado di simulare la migrazione dei radionuclidi, dal deposito alla biosfera, attraverso le varie barriere artificiali e naturali. I risultati delle simulazioni sono utilizzate nella progettazione del sistema di deposito in modo tale da garantire che l'impatto radiologico nell'ambiente del deposito stesso soddisfi i criteri di sicurezza stabiliti dalle agenzie di regolamentazione nazionali ed internazionali [1-3].

Il principale vettore di rilascio dei radionuclidi dal deposito è costituito dall'acqua di infiltrazione che può percolare attraverso le barriere del deposito e trasportare i radionuclidi in soluzione nelle acque del sottosuolo. Risulta perciò di estrema importanza lo studio dei fenomeni di migrazione dei radionuclidi attraverso le barriere artificiali del deposito (near field) e successivamente il trasporto nella geosfera (far field).

Le barriere di confinamento di un deposito definitivo di rifiuti radioattivi costituiscono un sistema poroso eterogeneo nel quale fenomeni complessi e spesso non lineari governano il trasporto dei radionuclidi. La complessità di tali fenomeni e l'eterogeneità dei mezzi in cui avvengono è tale da rendere spesso inadeguate le soluzioni analitiche-numeriche classiche dei relativi modelli, come ad esempio l'advection-dispersion [4-5]. Recentemente, tecniche stocastiche di modellizzazione, derivate dalla teoria del trasporto dei neutroni nei reattori nucleari, per simulare il trasporto di contaminanti nelle acque del sottosuolo e superare le principali

limitazioni della teoria dell'advection-dispersion sono state proposte da alcuni degli autori del Dipartimento di Ingegneria Nucleare del Politecnico di Milano [6].

Nel presente articolo applicheremo l'approccio, basato sulla teoria dei processi stocastici di ramificazione di Kolmogorov-Dmitriev [7] al problema della modellizzazione del trasporto di radionuclidi attraverso differenti barriere ingegneristiche. L'approccio porta ad un sistema di $m=2 \cdot N_p \cdot N_z$ equazioni alle derivate parziali accoppiate, ove N_p rappresenta il numero di tipi di particelle da seguire ed N_z il numero di zone discrete in cui è suddiviso il dominio spaziale lungo il quale avviene il trasporto. La soluzione del sistema viene affrontata applicando il metodo di simulazione Monte Carlo. L'idea è quella di simulare un gran numero di storie indipendenti ciascuna delle quali descrive il fato di una particella dalla "nascita" alla "morte", ad esempio perché si trasforma in una nuova particella o perché diffonde al di fuori del dominio spaziale d'interesse. Dunque, ciascuna storia riproduce la vita di una particella secondo uno particolare tra tutti i fati possibili a priori, simulando un cammino casuale nello spazio delle fasi. Nel corso della simulazione, per ciascuna storia vengono accumulati, in opportuni contatori, tutti gli eventi di interesse e alla fine del calcolo si procede a valutare le stime ensemble delle distribuzioni di tali eventi. Questo tipo di approccio consente di determinare i valori attesi delle concentrazioni di ogni tipo di particella presente in ogni zona.

Il principale vantaggio del modello proposto è la sua struttura flessibile che permette di considerare geometrie multidimensionali e descrivere esplicitamente diversi fenomeni e transizioni chimico-fisiche che i contaminanti subiscono durante il trasporto.

Nella prossima Sezione viene presentato il modello concettuale di trasporto di contaminante radioattivo attraverso mezzi porosi sviluppato da alcuni degli autori. La stima dei parametri del modello è ottenuta dal confronto con il modello dell'advection-dispersion scritto alle differenze finite. Nella successiva Sezione, il modello viene validato su un caso di letteratura riguardante il trasporto di una catena di tre radionuclidi [8]. Nella Sezione Quattro, il modello viene utilizzato per la valutazione del trasporto di Pu-238 ed U-234 attraverso le barriere ingegneristiche del deposito definitivo progettato da ENEA [9]. Infine nella Sezione Cinque sono riportati i risultati ottenuti nella simulazione con il codice Monte Carlo.

2. Il modello stocastico

Consideriamo il trasporto dei contaminanti attraverso un mezzo poroso saturo, che in linea di principio può essere mono-, bi- o tri-dimensionale. Il dominio spaziale nel quale avviene il trasporto è suddiviso in N_z zone, $z=1, 2, \dots, N_z$. Il nostro obiettivo è la determinazione delle distribuzioni delle particelle di contaminante nello spazio e nel tempo.

Introduciamo le seguenti due categorie di particelle: i solutoni, particelle libere di muoversi con l'acqua che scorre nei pori del mezzo; i trapponi, particelle intrappolate (adsorbite) sulla matrice solida. Indichiamo con $S_p(z,t)$ e $T_p(z,t)$ una particella di contaminante di tipo p che si trova nella zona z al tempo t , rispettivamente per i solutoni ed i trapponi.

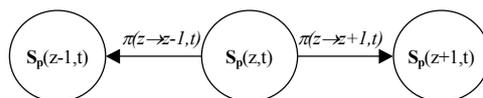


Figura 2.1– Schematizzazione del trasporto delle particelle solutone.

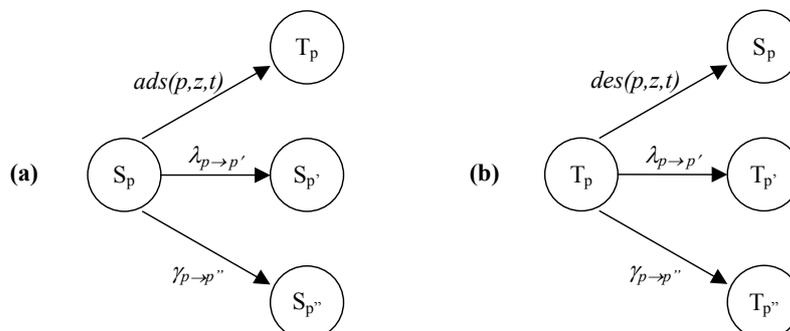


Figura 2.2– (a) Trasformazioni di una particella solutone. (b) Trasformazioni di una particella trappone.

Per illustrare il modello, ci riferiremo per semplicità ad un dominio spaziale mono-dimensionale e descriveremo le possibili transizioni che ogni particella di contaminante di tipo $p, p=1, 2, \dots, N_p$, può subire in un tempo infinitesimale dt , durante il processo di trasporto.

Il solutone è libero di muoversi nelle diverse zone del mezzo: per semplicità, consideriamo solamente i trasferimenti in avanti ed indietro a zone adiacenti che avvengono con ratei $\pi(z \rightarrow z+1, t)$ e $\pi(z \rightarrow z-1, t)$, rispettivamente (Figura 2.1). Il solutone di tipo p può essere adsorbito dalla matrice solida del mezzo con un rateo di transizione pari a $ads(p, z, t)$ trasformandosi in una particella trappone dello stesso tipo $T_p(z, t)$. Inoltre, a seguito di reazioni chimiche, il solutone $S_p(z, t)$ può trasformarsi in una differente particella solutone p'' con un rateo $\gamma_{p \rightarrow p''}$. Infine, se la una particella di contaminante considerata è un nuclide radioattivo esso può trasformarsi in un differente contaminante p' con il proprio rateo di decadimento $\lambda_{p \rightarrow p'}$ (Figura 2.2 (a)).

I trapponi $T_p(z, t)$ possono desorbirsi dalla matrice porosa, con rateo $des(p, z, t)$, e diventare solutoni $S_p(z, t)$ o, analogamente ai solutoni, possono trasformarsi in una differente particella a causa delle reazioni chimiche o del decadimento radioattivo con rateo rispettivamente di $\gamma_{p \rightarrow p''}$ e $\lambda_{p \rightarrow p'}$ (Figura 2.2 (b)). Nella Tabella 2.1 sono riassunte le diverse transizioni che le particelle possono subire durante il trasporto ed i corrispondenti ratei.

Particella	Transizione	Rateo
S_p	Trasferimento in avanti ad una zona adiacente ($z \rightarrow z+1$)	$\pi(z \rightarrow z+1, t)$
	Trasferimento indietro ad una zona adiacente ($z \rightarrow z-1$)	$\pi(z \rightarrow z-1, t)$
	Adsorbimento sulla matrice porosa	$ads(p, z, t)$
	Trasformazioni chimiche	$\gamma_{p \rightarrow p''}$
	Decadimento radioattivo	$\lambda_{p \rightarrow p'}$
T_p	Desorbimento dalla matrice porosa	$des(p, z, t)$
	Trasformazioni chimiche	$\gamma_{p \rightarrow p''}$
	Decadimento radioattivo	$\lambda_{p \rightarrow p'}$

Tabella 2.1– Transizioni delle particelle e corrispondenti ratei.

I processi sopra descritti possono essere formalizzati nell'ambito della teoria dei processi stocastici di ramificazione di Kolmogorov and Dmitriev [7]. Considerando la funzione di Green per tutte le particelle coinvolte, lavorando nel dominio delle funzione generatrici di probabilità (pgfs) e sfruttando le loro proprietà si arriva al seguente sistema di $2 \cdot N_p \cdot N_z$ equazioni alle derivate parziali accoppiate per i valori di aspettazione delle distribuzioni di probabilità associate a ciascun tipo di particella di contaminante. Indichiamo con $N_{S_p}(z, t)$, $p=1, 2, \dots, N_p$, $z=1, 2, \dots, N_z$, il valore di aspettazione per particelle solutone S_p di tipo p nella zona z al tempo t e con $N_{T_p}(z, t)$ il valore di aspettazione per particelle trappone T_p di tipo p nella zona z al tempo t :

$$\begin{aligned} \frac{\partial N_{S_p}(z, t)}{\partial t} = & -[\pi(z \rightarrow z+1, t) + \pi(z \rightarrow z-1, t)]N_{S_p}(z, t) + \pi(z+1 \rightarrow z, t)N_{S_p}(z+1, t) \\ & + \pi(z-1 \rightarrow z, t)N_{S_p}(z-1, t) - ads(p, z, t)N_{S_p}(z, t) + des(p, z, t)N_{T_p}(z, t) \\ & - N_{S_p}(z, t) \sum_{p'} \lambda_{p \rightarrow p'} - N_{S_p}(z, t) \sum_{p''} \gamma_{p \rightarrow p''} + \sum_{p'} \lambda_{p' \rightarrow p} N_{S_{p'}}(z, t) + \sum_{p''} \gamma_{p'' \rightarrow p} N_{S_{p''}}(z, t) \end{aligned} \quad (1)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial N_{T_p}(z, t)}{\partial t} = & +ads(p, z, t)N_{S_p}(z, t) - des(p, z, t)N_{T_p}(z, t) \\ & - N_{T_p}(z, t) \sum_{p'} \lambda_{p \rightarrow p'} - N_{T_p}(z, t) \sum_{p''} \gamma_{p \rightarrow p''} + \sum_{p'} \lambda_{p' \rightarrow p} N_{T_{p'}}(z, t) + \sum_{p''} \gamma_{p'' \rightarrow p} N_{T_{p''}}(z, t) \end{aligned} \quad (2)$$

Queste equazioni descrivono i processi di “produzione” e “scomparsa” delle particelle nella zona z . I primi due termini dell'equazione (1) descrivono i processi di scomparsa del solutone S_p dovuti al trasferimento in una zona adiacente; il terzo e il quarto termine descrivono la nascita del solutone nella zona z grazie al trasferimento dalle zone adiacenti; il quinto termine rappresenta la trasformazione del solutone S_p in un trappone T_p a causa dell'adsorbimento sulla matrice porosa; il sesto termine rappresenta la nascita del solutone S_p per desorbimento del trappone T_p dalla matrice; il settimo e l'ottavo termine rappresentano la scomparsa del solutone S_p a causa del decadimento radioattivo o di trasformazioni chimiche; gli ultimi due termini descrivono la nascita del solutone S_p dovuta al decadimento radioattivo ed alle trasformazioni chimiche degli altri tipi di solutone nel solutone di tipo p . Una simile interpretazione vale per i termini dell'equazione (2).

Sostituendo l'equazione (2) nell'equazione (1) si ottiene:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} [N_{S_p}(z, t) + N_{T_p}(z, t)] = & -[\pi(z \rightarrow z+1, t) + \pi(z \rightarrow z-1, t)]N_{S_p}(z, t) + \pi(z+1 \rightarrow z, t)N_{S_p}(z+1, t) \\ & + \pi(z-1 \rightarrow z, t)N_{S_p}(z-1, t) - [N_{S_p}(z, t) + N_{T_p}(z, t)] \cdot \left[\sum_{p'} \lambda_{p \rightarrow p'} + \sum_{p''} \gamma_{p \rightarrow p''} \right] \\ & + \sum_{p'} \lambda_{p' \rightarrow p} [N_{S_{p'}}(z, t) + N_{T_{p'}}(z, t)] + \sum_{p''} \gamma_{p'' \rightarrow p} [N_{S_{p''}}(z, t) + N_{T_{p''}}(z, t)] \end{aligned} \quad (3)$$

Da questa formulazione si può osservare che i fenomeni coinvolti nel trasporto dei contaminanti vengono descritti esplicitamente in termini probabilistici. L'efficacia di questa rappresentazione è condizionata dalla capacità di stimare i valori dei ratei di transizione che governano il processo.

Inoltre, la formulazione in termini di pgfs (non riportata per brevità) permette di risalire oltre che ai valori di aspettazione delle distribuzioni di probabilità associate a ciascun tipo di particella di contaminante, anche ai momenti di ordine superiore [6-7].

2.1. Determinazione dei parametri

L'approccio utilizzato per stimare i valori dei ratei di transizione del modello stocastico consiste nello stabilire una relazione tra i parametri del modello classico ed i ratei di transizione del nostro modello stocastico mediante il confronto tra le equazioni (1-2) e le corrispondenti equazioni del modello classico di advection-dispersion.

Si consideri per semplicità un mezzo monodimensionale e omogeneo, le cui proprietà fisiche, quali porosità, conduttività idraulica e coefficiente di dispersione, siano invariabili nello spazio e nel tempo. Si trascurino, per il momento, i processi di adsorbimento e desorbimento, che determinano un ritardo nel processo di trasporto. Nel caso di flusso stazionario l'equazione di advection-dispersion che governa il trasporto dei contaminanti nelle acque del sottosuolo è:

$$\frac{\partial C_p(z,t)}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C_p(z,t)}{\partial z^2} - v \frac{\partial C_p(z,t)}{\partial z} - C_p(z,t) \sum_{p'} \lambda_{p \rightarrow p'} + \sum_{p'} \lambda_{p' \rightarrow p} C_{p'}(z,t) \quad (4)$$

dove $C_p(z,t)$ rappresenta la concentrazione del contaminante p -esimo disciolta in fase liquida nella zona z al tempo t ; v la velocità dell'acqua nei pori nella matrice e D il coefficiente di dispersione idrodinamica. Questi ultimi due parametri possono essere ricavati dalle seguenti espressioni:

$$v = \frac{q}{n_e} \quad (5)$$

$$q = -K \frac{\partial h}{\partial z} \quad (6)$$

$$D = \alpha_L v + D_{diff} \quad (7)$$

dove con q si indica la velocità di Darcy, K la conducibilità idraulica, h il potenziale idraulico, n_e la porosità effettiva del mezzo, α_L il coefficiente di dispersività longitudinale e D_{diff} il coefficiente di diffusione molecolare [4-5].

Si consideri ora il trasporto del contaminante nel caso più generale in cui vi siano fenomeni di interazione tra la fase liquida e quella solida. Nell'ipotesi di isoterma lineare di equilibrio, ovvero assumendo che la frazione del p -esimo contaminante intrappolata nella matrice porosa della fase solida sia proporzionale alla concentrazione del p -esimo contaminante nella fase liquida, l'equazione del modello di advection-dispersion, in assenza di trasformazioni chimiche può essere scritta nella seguente forma:

$$\frac{\partial C_p(z,t)}{\partial t} = \frac{D}{R_p} \frac{\partial^2 C_p(z,t)}{\partial z^2} - \frac{v}{R_p} \frac{\partial C_p(z,t)}{\partial z} - C_p(z,t) \sum_{p'} \lambda_{p \rightarrow p'} + \sum_{p'} \lambda_{p' \rightarrow p} C_{p'}(z,t) \quad (8)$$

dove la costante R_p , chiamata "fattore di ritardo", tiene conto del ritardo nel trasporto del p -esimo contaminante in seguito ai processi di adsorbimento/desorbimento nella matrice porosa. Il fattore di ritardo R_p è definito nel seguente modo:

$$R_p = 1 + \frac{\rho_b k_d}{n} \quad (9)$$

dove ρ_b è la densità del mezzo poroso (bulk density), k_d il coefficiente di partizione e n la porosità totale del mezzo.

Per analogia, nel nostro modello stocastico introduciamo la stessa ipotesi di equilibrio lineare nei processi di adsorbimento/desorbimento che coinvolgono i solutoni S_p ed i trapponi T_p :

$$T_p(z,t) = \alpha_p S_p(z,t) \quad (10)$$

dove α_p è il coefficiente di proporzionalità per il contaminante p -esimo. Sostituendo nell'equazione (3) si ottiene:

$$\begin{aligned} \frac{\partial N_{S_p}(z,t)}{\partial t} = & -[\pi_p(z \rightarrow z+1,t) + \pi_p(z \rightarrow z-1,t)] N_{S_p}(z,t) + \pi_p(z-1 \rightarrow z,t) N_{S_p}(z-1,t) \\ & + \pi_p(z+1 \rightarrow z,t) N_{S_p}(z+1,t) - N_{S_p}(z,t) \left[\sum_{p'} \lambda_{p \rightarrow p'} + \sum_{p''} \gamma_{p \rightarrow p''} \right] + \sum_{p'} \lambda_{p' \rightarrow p} N_{S_{p'}}(z,t) \\ & + \sum_{p''} \gamma_{p'' \rightarrow p} N_{S_{p''}}(z,t) \end{aligned} \quad (11)$$

dove $\pi_p(z \pm 1, t) = \frac{\pi(z \pm 1, t)}{(1 + \alpha_p)}$ è l'effettivo rateo di transizione nella zona adiacente per il contaminante p -esimo.

Al fine di trovare un legame fra i parametri D , v e R_p del modello di advection-dispersion e i ratei di transizione del modello stocastico, riscriviamo l'equazione (8) alle differenze finite centrali nella sola variabile spaziale:

$$\begin{aligned} \frac{\partial C(z, t)}{\partial t} = & \left(\frac{D}{R_p} - \frac{v}{2\Delta z} \right) C(z+1, t) + \left(\frac{D}{R_p} + \frac{v}{2\Delta z} \right) C(z-1, t) \\ & - \left(\frac{2D}{R_p} + \sum_{p'} \lambda_{p \rightarrow p'} \right) C(z, t) + \sum_{p'} \lambda_{p' \rightarrow p} C_{p'}(z, t) \end{aligned} \quad (12)$$

Confrontando termine a termine con l'equazione (11) si ottengono le seguenti relazioni tra i parametri dei due modelli:

$$\pi_p(z \rightarrow z-1) = \frac{D}{R_p} - \frac{v}{2\Delta z} \quad (13)$$

$$\pi_p(z \rightarrow z+1) = \frac{D}{R_p} + \frac{v}{2\Delta z} \quad (14)$$

Poiché i ratei di transizione sono quantità positive, dall'equazione (13) otteniamo la seguente limitazione degli intervalli di discretizzazione spaziale:

$$\max[\Delta z] = \left[\frac{2D}{v} \right] \quad (15)$$

Per quanto riguarda i ratei γ_p e λ_p che governano le trasformazioni chimiche e radioattive per il contaminante p -esimo in un differente tipo di contaminante, questi possono essere stimati direttamente dalla caratteristiche chimiche e nucleari del p -esimo contaminante.

Noti i ratei di transizione del modello si può procedere alla soluzione del sistema di $m=2 \cdot N_p \cdot N_z$ equazioni alle derivate parziali accoppiate. Al tal fine, si è proceduto alla stesura di un codice di simulazione Monte Carlo in linguaggio FORTRAN. Come descritto nell'introduzione, tale codice simula un gran numero di storie indipendenti ciascuna delle quali descrive il fato di una particella dalla "nascita" alla "morte", ad esempio perché si trasforma in una nuova particella o perché diffonde al di fuori del dominio spaziale d'interesse. Dunque, ciascuna storia riproduce la vita di una particella secondo uno particolare tra tutti i fati possibili a priori, simulando un cammino casuale nello spazio delle fasi. Nel corso della simulazione, per ciascuna storia vengono accumulati, in opportuni contatori, tutti gli eventi di interesse e alla fine del calcolo si procede a valutare le stime ensemble delle distribuzioni di tali eventi. Questo tipo di approccio consente di determinare i valori attesi delle concentrazioni di ogni tipo di particella presente in ogni zona.

3. Validazione del modello

Per validare il modello di trasporto ed il corrispondente codice Monte Carlo da noi sviluppato, è stato effettuato un confronto tra i risultati di un caso di letteratura nel quale è analizzato, simulando con un processo markoviano continuo nel tempo, il trasporto monodimensionale di una catena di tre radionuclidi attraverso un mezzo poroso fratturato [8]. In questo caso di letteratura, il movimento dei radionuclidi attraverso la frattura del mezzo è ritardato dai processi di adsorbimento sulle pareti della frattura mentre si trascura la diffusione dei radionuclidi all'interno della matrice. Sono stati considerati due casi [8], qui indicati con A e B, che differiscono solamente per il valore del coefficiente di dispersione.

Nella Tabella 3.1 sono riportati i valori dei parametri considerati in [8]. Nella Tabella 3.2 sono riportati i corrispondenti valori dei parametri del modello stocastico ottenuti come spiegato nella Sezione 2.1.

Per analogia con le condizioni iniziali di [8], nella nostra simulazione è stato ipotizzato che al tempo $t=0$, nella zona $z=0$, è presente una particella del radionuclide padre (1) e zero particelle dei radionuclidi (2) e (3).

Nella Figura 3.1 (a) sono riportati i profili delle concentrazioni dei radionuclidi (1), (2) e (3) al tempo $t=100$ y, e le corrispondenti soluzioni analitiche per il caso A ottenute da [8]. Nella Figura 3.1 (b) sono

riportati i corrispondenti risultati ottenuti con il nostro codice Monte Carlo: l'accordo è sicuramente soddisfacente.

Parameter	Value of case A	Value of case B
Decay chain	(1) → (2) → (3)	
Initial concentration of nuclide (1), $C_0^{(1)}$	1.0	
Initial concentration of nuclide (2), $C_0^{(2)}$	0.0	
Initial concentration of nuclide (3), $C_0^{(3)}$	0.0	
Retardation coefficient of nuclide (1), $R_p^{(1)}$	100	
Retardation coefficient of nuclide (2), $R_p^{(2)}$	100	
Retardation coefficient of nuclide (3), $R_p^{(3)}$	100	
Distance, L (m)	100	
Decay constant of nuclide (1), $\lambda^{(1)}$ (1/y)	$1.60 \cdot 10^{-3}$	
Decay constant of nuclide (2), $\lambda^{(2)}$ (1/y)	$4.62 \cdot 10^{-2}$	
Decay constant of nuclide (3), $\lambda^{(3)}$ (1/y)	$1.06 \cdot 10^{-4}$	
Pore velocity, q/n (m/y)	10	
Dispersion coefficient, D (m ² /y)	2.5	25

Tabella 3.1 – Trasporto di una catena di tre radionuclidi: valore dei parametri in [8].

Parameter	Value of case A	Value of case B
Decay chain	(1) → (2) → (3)	
Decay constant of nuclide (1), $\lambda^{(1)}$ (1/y)	$1.6 \cdot 10^{-3}$	
Decay constant of nuclide (2), $\lambda^{(2)}$ (1/y)	$4.62 \cdot 10^{-2}$	
Decay constant of nuclide (3), $\lambda^{(3)}$ (1/y)	$1.06 \cdot 10^{-4}$	
Delta z (m)	0.25	1
Forward rate (1/y)	0.6	0.3
Backward rate (1/y)	0.2	0.2
Final time (y)	2.0000E+03	
Number of time channels	500	
Number of trials	1000000	
CPU time (Pentium III, 800Mhz)	0 H 9 Min 33 sec.	0 H 9 Min 12 sec.

Tabella 3.2 – Trasporto di una catena di tre radionuclidi: ratei del nostro modello stocastico.

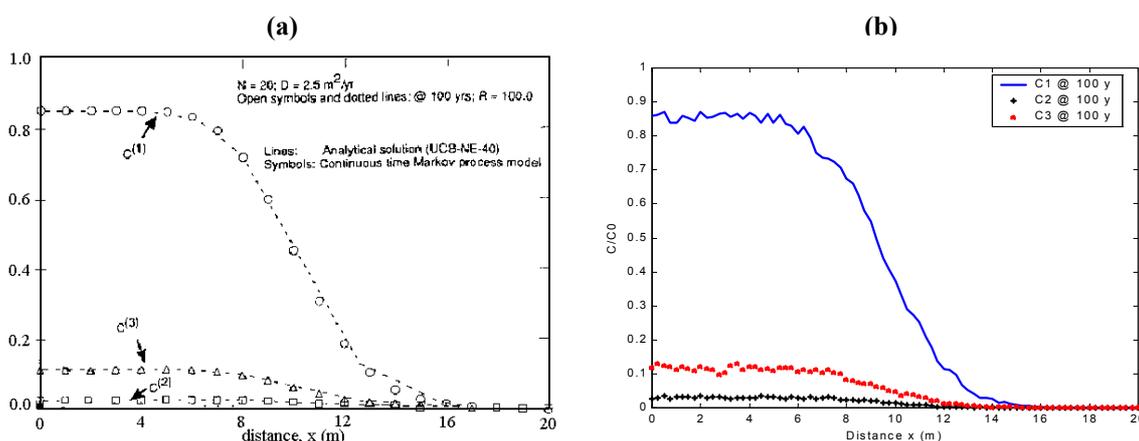


Figura 3.1 – Caso A -(a) – Profili di concentrazione dei radionuclidi (1), (2) e (3) al tempo $t=100$ y ottenuti da [8] e le corrispondenti soluzioni analitiche. (b) – Profili delle concentrazioni dei tre radionuclidi ottenute con il nostro codice Monte Carlo.

Nella Figura 3.2 sono state confrontate, per il caso B e per i radionuclidi (1) e (3), le curve di attraversamento (la distribuzione nel tempo della concentrazione in un punto fissato) alla distanza di 20 e 50 metri dalla sorgente ottenute dal modello di letteratura e dal nostro codice Monte Carlo. L'accordo tra le curve è ancora una volta soddisfacente. La concentrazione del radionuclide (2) non è stata riportata in quanto la sua breve vita media porta a concentrazioni del radionuclide trascurabili.

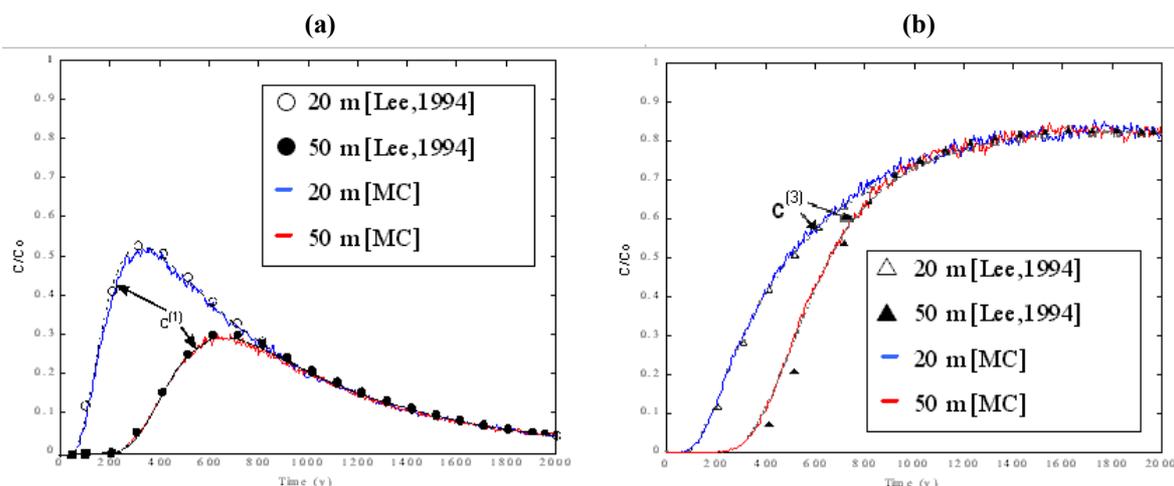


Figura 3.2 – Caso B - (a) Curve di attraversamento a 20 m (pallini bianchi) ed a 50 m (pallini neri) ottenuti da [8] per il radionuclide (1), e i corrispondenti risultati del nostro codice Monte Carlo (linee continue). (b) Curve di attraversamento a 20 m (triangoli bianchi) ed a 50 m (triangoli neri) ottenuti da [8] per il radionuclide (3), e i corrispondenti risultati ottenuti dal nostro codice Monte Carlo (linee continue).

4. Applicazione del modello stocastico al progetto ENEA di modulo di contenimento di rifiuti radioattivi a bassa attività

Consideriamo l'attuale progetto ENEA del modulo per fusti standard da 400 litri [9]. Il layout del sistema è riportato in Figure 4.1. Tre tipi di differenti materiali costituiscono il modulo: calcestruzzo, grout e fusto.

Nel presente lavoro è stato simulato il trasporto del Pu-238 e dei figli attraverso il modulo ENEA per un periodo temporale di 1000 anni discretizzato in 500 canali temporali (ogni canale temporale corrisponde a 2 anni). La simulazione della catena del Pu-238 è limitata al Pu-238 ed al suo figlio U-234 a causa dei bassi ratei di decadimento dell'U-234 ($T_{1/2} = 244500$ anni). Il temine di sorgente è rappresentato da una particella trappone di Pu-238 intrappolato all'interno del fusto al tempo $t=0$. Per soddisfare le condizioni (15) di non-negatività dei ratei di transizione, è stato utilizzato un passo di discretizzazione di 2 mm per il fusto e di 0.2 mm per il grout e il calcestruzzo, per un totale di $N_z=3500$ zone (Tabella 4.1).

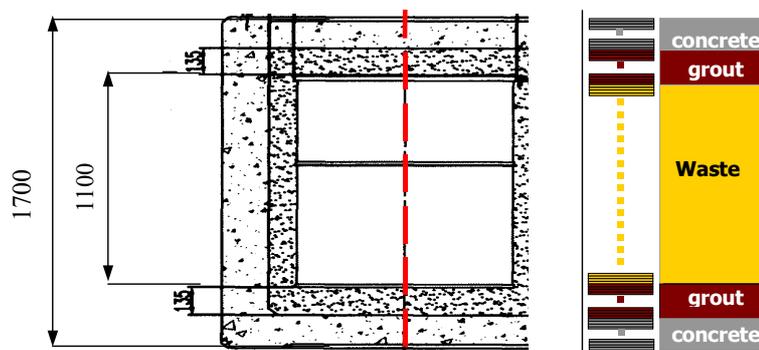


Figure 4.1 – Layout del modulo ENEA. Le dimensioni sono espresse in millimetri. Lo schema di destra rappresenta la discretizzazione spaziale utilizzata nel codice Monte Carlo.

Discretization of the module				
	1. Concrete (cover)	1. Concrete (bottom)	2. Grout	3. Waste drum
Discretization step [mm]	0.20	0.20	0.20	2.00
Thickness zone [mm]	150	170	135	1100
Zones number	750	850	675	550

n_z		n_m
From:	To:	Type of medium
1	850	1 Concrete
851	1525	2 Grout
1526	2075	3 Waste drum
2076	2750	2 Grout
2751	3500	1 Concrete

Tabella 4.1 – Discretizzazione del modulo ENEA.

Per la determinazione dei ratei di transizione necessari per simulare la migrazione dei radionuclidi attraverso il modulo ENEA, è stato conservativamente ipotizzato che il modulo sia completamente saturo di acqua e sottoposto ad un battente idraulico costante di 60 cm, nel quale si istaura un flusso monodimensionale attraverso il fondo del modulo. Questo scenario è estremamente conservativo, e può verificarsi solamente in caso di fallimento del sistema di copertura e comunque non prima della fine del periodo di controllo istituzionale (300 anni dalla chiusura del deposito).

Per quanto riguarda la sorgente, è stato ipotizzato che i radionuclidi siano uniformemente distribuiti all'interno del fusto. Un'altra ipotesi conservativa introdotta è stata quella di considerare i radionuclidi intrappolati nel fusto direttamente a contatto con l'acqua di infiltrazione attraverso il modulo trascurando così la resistenza offerta dalla barriera di acciaio del fusto.

Realisticamente, le caratteristiche idrauliche delle barriere ingegneristiche evolvono durante il lungo periodo di tempo considerato nella nostra simulazione (1000 anni). La conoscenza dell'evoluzione dei materiali costituenti il modulo su queste lunghe scale temporali è scarsa e deriva principalmente da analogie con casi naturali e/o studi con test accelerati [2]. Nel nostro caso, si considera che le proprietà fisiche delle barriere ingegneristiche varino nel tempo passando da condizioni integre a condizioni completamente degradate, in accordo con un modello a gradino [10] (Tabella 4.2).

Temporal period [y]	State of material
0 - 200	Intact
200 - 500	Partially degraded
> 500	Totally degraded

Tabella 4.2 – Processo di degradazione a gradino dei materiali del modulo [10].

Poiché variazioni brusche, a gradino, sono da ritenersi poco realistiche, si è deciso di adottare un andamento sigmoidale (gradini smussati) (Figura 4.2) con la seguente espressione:

$$y(t) = y_1 + \frac{y_2 - y_1}{1 + e^{-\frac{(t-200)}{g_1}}} + \frac{y_3 - y_2}{1 + e^{-\frac{(t-500)}{g_2}}}; \quad g_1 = \Delta t_{12}/10; \quad g_2 = \Delta t_{23}/10 \quad (16)$$

dove t è il tempo, y_1 , y_2 e y_3 sono i valori dei parametri nelle tre condizioni di materiale intatto, parzialmente degradato e completamente degradato, $\Delta t_{12}=100$ anni è la durata della transizione delle caratteristiche del materiale da intatto a parzialmente degradato, $\Delta t_{23}=300$ anni è la durata della transizione tra le condizioni parzialmente e totalmente degradato.

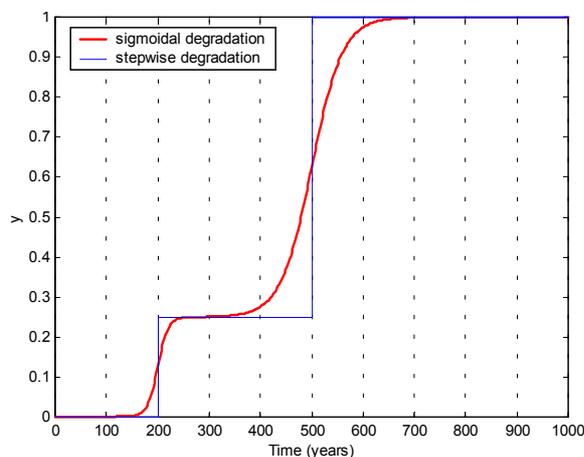


Figura 4.2 – Modello di degradazione sigmoidale utilizzato nella simulazione Monte Carlo.

Nella Tabella 4.3 sono riportati i parametri fisici e idraulici che caratterizzano il trasporto di Pu-238 e U-234 attraverso il modulo nel caso in studio [10]. Sostituendo questi parametri nelle equazioni (13) - (14) si ottengono i ratei di transizione Monte Carlo necessari per simulare i processi di trasporto attraverso il modulo ENEA (Tabella 4.4). Nei primi tempi, i ratei di transizione in avanti, $\pi_p(z \rightarrow z-l, t)$, ed indietro, $\pi_p(z \rightarrow z+l, t)$, sono molto simili in quanto il trasporto dei contaminanti attraverso materiali integri si limita ad una bassa diffusione molecolare, mentre il trasporto per advezione è trascurabile. Con il procedere del tempo, le proprietà di ritenzione dei materiali degradano ed il trasporto advettivo diventa predominante.

Per quanto riguarda il rilascio dei radionuclidi dal fusto, cioè la trasformazione dei trapponi inizialmente contenuti in solutoni, è stato ipotizzato che sia dovuto esclusivamente al processo di lisciviazione, trascurando il rilascio per dissoluzione e diffusione. Il rilascio per lisciviazione avviene quando l'acqua di

infiltrazione asporta i radionuclidi dalla superficie dei rifiuti condizionati. Il rilascio di questi radionuclidi nell'acqua di poro è limitato o ritardato da diversi processi geochimici come l'adsorbimento, l'assorbimento, l'adesione e lo scambio ionico. I risultati di questi processi è espresso dal coefficiente di partizione k_d .

Temporal period [y]	1. Concrete	2. Grout	3. Waste drum
Density (ρ_b) [kg/m³]			
0 - 200	1600	1600	1500
Hydraulic conductivity (K) [mm/y]			
0 - 200	3,15E+00	3,15E+00	3,15E+02
200 - 500	3,15E+02	3,15E+02	1,26E+05
> 500	1,57E+06	1,57E+06	1,57E+06
Porosity (n)			
0 - 200	0,18	0,18	0,3
200 - 500	0,25	0,25	0,35
> 500	0,35	0,35	0,35
Partition coefficient k_d [m³/kg] - Pu			
0 - 200	2,00E+00	2,00E+00	2,00E-01
200 - 500	2,00E+00	2,00E+00	2,00E-01
> 500	1,00E+00	1,00E+00	2,00E-01
Partition coefficient k_d [m³/kg] - U			
0 - 200	5,00E+00	5,00E+00	2,00E+00
200 - 500	5,00E+00	5,00E+00	2,00E+00
> 500	1,00E+00	1,00E+00	2,00E+00
Hydrodynamic dispersion (D) [mm²/y]			
0-200	3,15E+04	3,15E+04	3,16E+04
200-500	3,27E+04	3,27E+04	3,83E+04
500 - >	1,60E+06	1,60E+06	1,19E+07
Geometric dimension [mm]			
	150 / 170	135	1100

Tabella 4.3 – Parametri fisici ed idraulici del modulo.

Transition rate π_p [1/year]							
Temporal period [y]	1. Concrete		2. Grout		3. Waste drum		
	$\pi_p(z \rightarrow z+1)$	$\pi_p(z \rightarrow z-1)$	$\pi_p(z \rightarrow z+1)$	$\pi_p(z \rightarrow z-1)$	$\pi_p(z \rightarrow z+1)$	$\pi_p(z \rightarrow z-1)$	
0 - 200	1,7724E+01	1,7716E+01	1,7724E+01	1,7716E+01	7,9002E-01	7,8803E-01	Pu - 238
200 - 500	2,5956E+01	2,5199E+01	2,5956E+01	2,5199E+01	1,2172E+00	1,0153E+00	
> 500	1,2079E+04	5,4406E+03	1,2079E+04	5,4406E+03	5,2527E+02	1,7121E+02	
Δz (mm)	2,00E-01		2,00E-01		2,00E+00		
Temporal period [y]	1. Concrete		2. Grout		3. Waste drum		
	$\pi_p(z \rightarrow z+1)$	$\pi_p(z \rightarrow z-1)$	$\pi_p(z \rightarrow z+1)$	$\pi_p(z \rightarrow z-1)$	$\pi_p(z \rightarrow z+1)$	$\pi_p(z \rightarrow z-1)$	
0 - 200	4,4308E+01	4,4290E+01	4,4308E+01	4,4290E+01	7,8931E+00	7,8732E+00	U - 234
200 - 500	6,4886E+01	6,2994E+01	6,4886E+01	6,2994E+01	1,2160E+01	1,0143E+01	
> 500	1,2079E+04	5,4406E+03	1,2079E+04	5,4406E+03	5,2471E+03	1,7103E+03	
Δz (mm)	2,00E-01		2,00E-01		2,00E+00		

Tabella 4.4 – Ratei di transizione Monte Carlo.

Ipotizzando che la lisciviazione dei radionuclidi avvenga in condizioni stazionarie di infiltrazione si può scrivere la seguente espressione [10]:

$$\lambda_l = \frac{q}{h_w(\theta_w + \rho_w k_d)} \quad (17)$$

dove q è la velocità di Darcy attraverso il rifiuto condizionato; θ_w il contenuto di umidità nel fusto; ρ_w la densità (bulk density) del fusto; k_d il coefficiente di partizione e h_w l'altezza del fusto. Nella Tabella 4.5 sono riportati i valori dei ratei di lisciviazione per il Pu-238 e per l'U-234 ipotizzando il fusto saturo ($\theta_w=1$).

Radionuclide	Time [y]	Leaching rate λ_l [y ⁻¹]
Pu-238	0 - 200	3,6204E-06
	200 - 500	3,6708E-04
	> 500	6,4374E-01
U-234	0 - 200	3,6172E-05
	200 - 500	3,6669E-03
	> 500	6,4307E+00

Tabella 4.5 – Ratei di lisciviazione per i radionuclidi Pu-238 e U-234.

5. Risultati

In questa Sezione vengono presentati e discussi i risultati ottenuti dalla simulazione Monte Carlo del trasporto del Pu-238 e del suo figlio U-234 attraverso il modulo.

Nella Figura 5.1 è riportata la distribuzione di probabilità di trovare una particella di Pu-238 intrappolata nella regione del fusto ($z=1526 \div 2075$) in funzione del tempo. Nella Figura 5.1 (a) è riportata la probabilità di trovare una particella di Pu-238 intrappolata in una qualunque zona del fusto in funzione del tempo, mentre nella Figura 5.1 (b) è riportata la probabilità di trovare una particella di Pu-238 intrappolata nelle diverse zone del fusto in funzione del tempo. Quest'ultima probabilità risulta uniforme nelle varie zone del fusto per tutti i tempi, grazie all'ipotesi di omogeneità spaziale del termine di sorgente.

La probabilità di trovare una particella di Pu-238 intrappolata nel fusto decresce nel tempo in seguito al decadimento radioattivo e alla lisciviazione. Durante i primi 200 canali temporali la probabilità decresce lentamente in seguito alla trasformazione delle particelle di Pu-238 in particelle di U-234. Successivamente, la decrescita diviene più rapida in quanto i processi di lisciviazione diventano più significativi nel trasporto di particelle di Pu-238 fuori dalla regione del fusto.

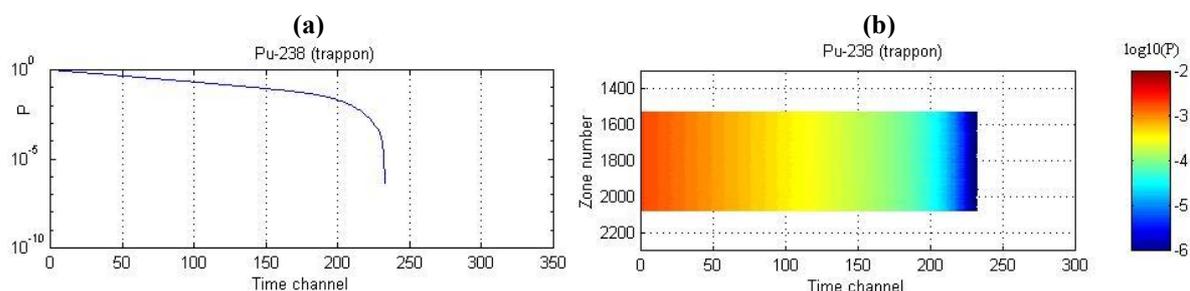


Figura 5.1 – (a) Distribuzione di probabilità di trovare una particella di Pu-238 intrappolata in una qualunque zona del fusto in funzione del tempo. (b) Distribuzione di probabilità di trovare una particella di Pu-238 intrappolata nelle diverse zone del fusto in funzione del tempo.

Nelle Figura 5.2 (a) e (b) sono riportate le distribuzioni di probabilità di trovare una particella solutone di Pu-238 all'interno dell'intero modulo. Si può notare che il Pu-238 rimane confinato nella regione del fusto per i primi 200 canali temporali grazie alle buone proprietà di confinamento dei materiali del modulo. Durante questo periodo di tempo, il movimento del Pu-238 è governato principalmente dalla diffusione molecolare. Successivamente, in seguito ai processi di degrado il flusso d'acqua che attraversa il modulo cresce aumentando così il trasporto per advezione dei radionuclidi in soluzione. Questo comportamento è chiaramente mostrato in Figura 5.2 (b) dove è riportata la distribuzione di probabilità di trovare una particella solutone nelle diverse zone del modulo in cinque differenti istanti temporali: il Pu-238 è distribuito uniformemente nella regione del fusto nei primi 100 canali temporali; successivamente, con l'aumento del flusso d'acqua, i solutoni sono trasportati attraverso il fondo del fusto nel grout e, successivamente (nei canali temporali 200 e 225), attraverso il calcestruzzo all'esterno del modulo.

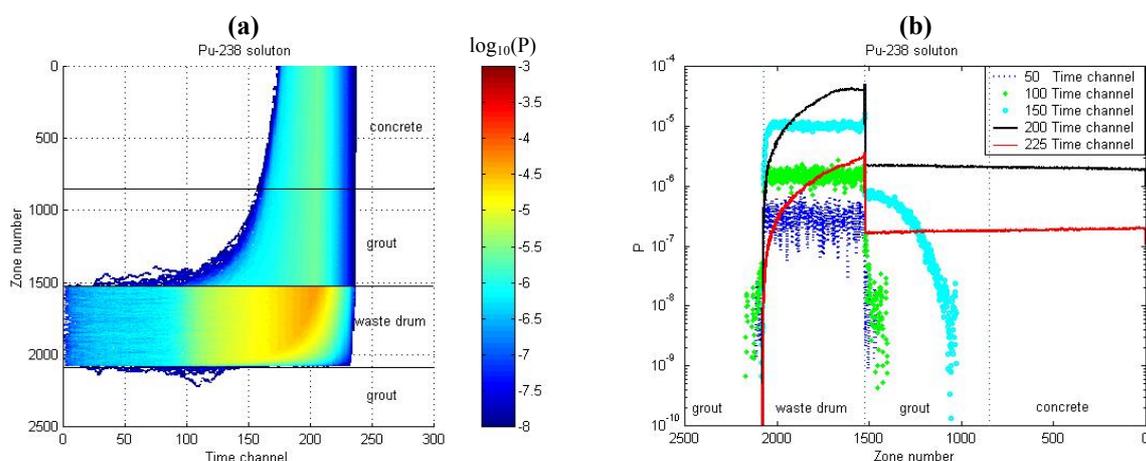


Figura 5.2 – (a) Distribuzione di probabilità di trovare una particella solutone di Pu-238 all'interno del modulo in funzione del tempo. (b) Distribuzione spaziale della probabilità di trovare una particella solutone di Pu-238 all'interno del modulo in 5 differenti istanti temporali.

Nella Figura 5.3 (a) è riportata la distribuzione di probabilità per una particella di Pu-238 di uscire dal fondo del modulo in funzione del tempo: i tempi di uscita del Pu-238 sono concentrati tra il 170° ed il 240° canale temporale, (340,380) anni dalla fine del periodo di controllo istituzionale, periodo di tempo durante il quale si ha una significativa degradazione dei materiali del modulo. Nella Figura 5.3 (b) è riportata la distribuzione di probabilità integrata nel tempo di trovare una particella di Pu-238 all'esterno del modulo. La decrescita di questa probabilità nel tempo è dovuta ai processi di decadimento.

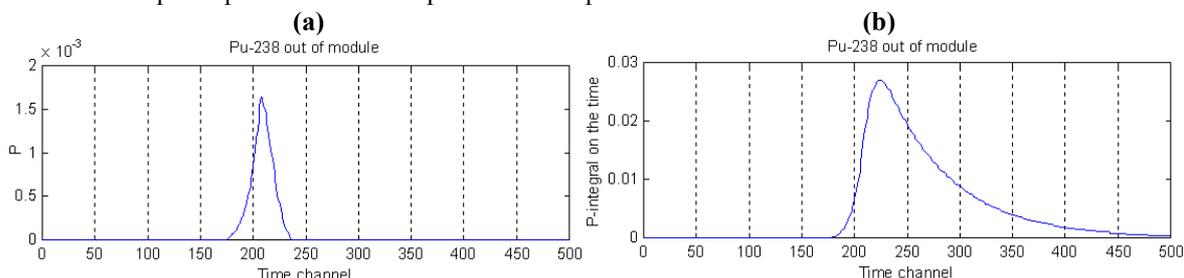


Figura 5.3 – (a) Distribuzione di probabilità di una particella di Pu-238 di uscire dal fondo del modulo in funzione del tempo. (b) Integrale della distribuzione di probabilità di trovare una particella di Pu-238 all'esterno del modulo.

In Figura 5.4 (a) è riportata la distribuzione di probabilità di trovare una particella di U-234, generata dal decadimento del Pu-238, intrappolata in una qualunque zona del fusto ($z=1526\div 2075$). Si può osservare, durante i primi 100 canali temporali, una crescita della probabilità di trovare una particella trappone di U-234 nel fusto dovuto al decadimento del Pu-238 ed ai bassi ratei di rilascio per lisciviazione. Successivamente, la probabilità decresce in seguito all'aumento della lisciviazione delle particelle di U-234 e di Pu-238 dovuto alla variazione delle caratteristiche fisiche delle barriere del modulo. In Figura 5.4 (b) è riportata la probabilità di trovare una particella di Pu-238 intrappolata nelle diverse zone del fusto in funzione del tempo; tale probabilità risulta uniforme nelle varie zone del fusto per tutti i tempi grazie all'ipotesi di omogeneità spaziale del termine di sorgente.

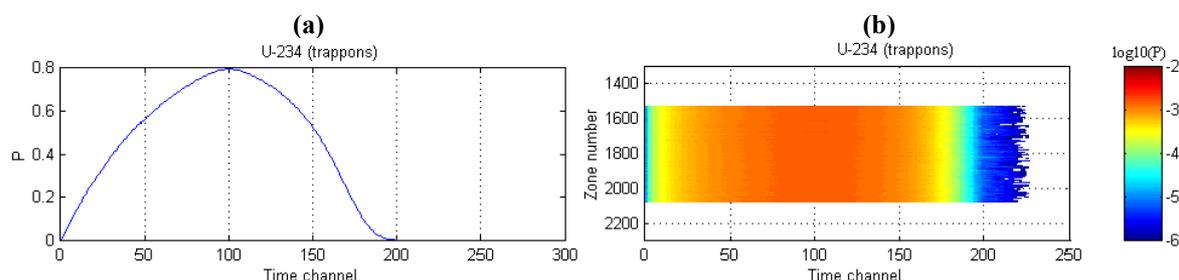


Figura 5.4 - (a) Distribuzione di probabilità di trovare una particella di U-234 intrappolata in una qualunque zona del fusto in funzione del tempo. (b) Distribuzione di probabilità di trovare una particella di U-234 intrappolata nelle diverse zone del fusto in funzione del tempo.

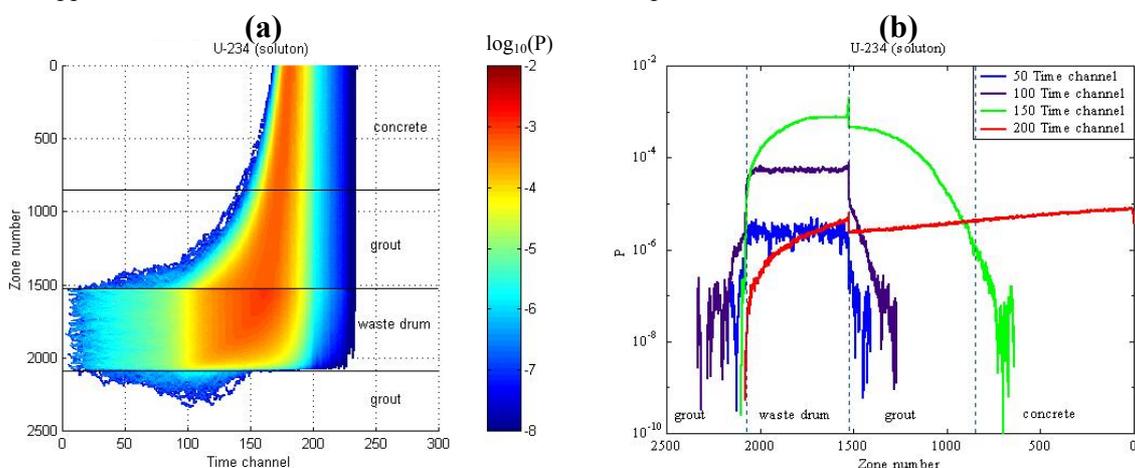


Figura 5.5 - (a) Distribuzione di probabilità di trovare una particella soluzione di U-234 all'interno del modulo in funzione del tempo. (b) Distribuzione spaziale della probabilità di trovare una particella soluzione di U-234 all'interno del modulo in 5 differenti istanti temporali.

Per quanto concerne le particelle solutoni di U-234, le Figure 5.5 (a) e (b) mostrano un comportamento simile al Pu-238 (Figure 5.2 (a) e (b)) eccetto per i valori della probabilità che risultano essere maggiori per l'U-234. Questo è dovuto al fatto che il rateo di decadimento dell'U-234 può essere considerato trascurabile rispetto al rateo di decadimento del Pu-238.

In Figura 5.6 (a) è riportata la distribuzione di probabilità di una particella di U-234 di uscire dal fondo del modulo. Tutta l'uscita dell'U-234 dal modulo avviene tra il canale temporale 170° e il 200° con un picco di probabilità di $8 \cdot 10^{-2}$. In Figura 5.6 (b) è riportata la distribuzione di probabilità, integrata nel tempo, di trovare una particella U-234 generata dal decadimento del Pu-238, all'esterno del modulo. La crescita di questa probabilità non raggiunge l'unità in quanto un piccolo numero di particelle di Pu-238 fuoriescono dal modulo prima di decadere ad U-234. Questa probabilità, a differenza di quanto visto nel caso precedente, non diminuisce nel tempo grazie al trascurabile valore del rateo di decadimento.

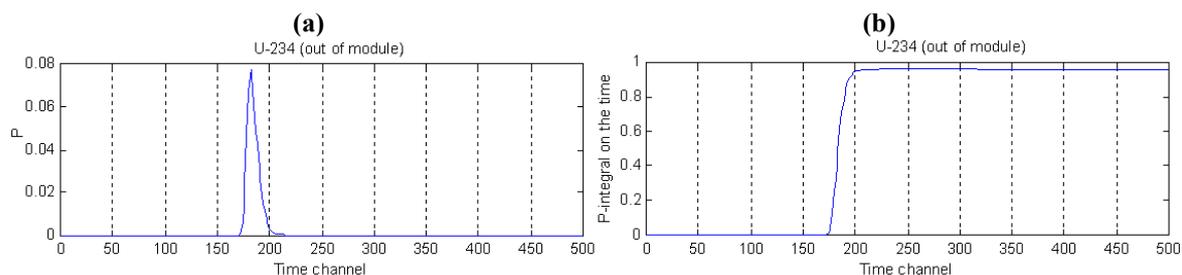


Figura 5.6 – (a) Distribuzione di probabilità di una particella di U-234 di uscire dal fondo del modulo in funzione del tempo. (b) Distribuzione di probabilità integrata di trovare una particella di U-234 all'esterno del modulo.

6. Conclusioni

Nel presente lavoro è stato illustrato un modello stocastico, basato sulla teoria dei processi stocastici di ramificazione di Kolmogorov e Dmitriev, per simulare il trasporto di contaminanti attraverso mezzi porosi. La simulazione esplicita di tutti i processi che coinvolgono il contaminante durante il trasporto permette di ottenere una maggiore aderenza alle situazioni reali. Ad esempio, nell'applicazione presentata, al modulo di confinamento di rifiuti radioattivi progettato da ENEA, la modellizzazione del degrado dei materiali di confinamento non ha presentato ulteriori complicazioni e sforzi computazionali. Anche un'analisi di incertezza potrebbe essere inclusa in modo abbastanza diretto, campionando i parametri del modello da opportune distribuzioni.

La generalità del modello proposto lo rende applicabile anche per lo studio dei fenomeni di dispersione e trasporto di inquinanti tossici da depositi o serbatoi di stoccaggio.

Riferimenti

- [1] PAGIS, *Performance Assessment of Geological Isolation Systems for Radioactive Waste*, Commission of the European Communities, **1988**.
- [2] W.Miller, R.Alexander, N.Chapman, I.McKinley, J. Smellie, *Geological disposal of radioactive waste and natural analogues*, Waste Magement Series, Vol. 2, Pergamon, **2000**.
- [3] Savage D., *The scientific and regulatory basis for the geological disposal of radioactive waste*. John Wiley & sons, **1995**.
- [4] Freeze R.A. and Cheny J.A., *Groundwater*, Prentice-Hill inc, Englewood Cliff, New Jersey, **1979**.
- [5] Bear J., *Dynamics of Fluids in Porous Media*. American Elsevier Publisher, NY, **1972**.
- [6] Marseguerra, M., Zio E., *Modelling the Transport of Contaminants in Groundwater as a Branching Stochastic Process*, Ann. Nucl. Energy **24** (8), pp. 625-644, **1997**.
- [7] Kolmogorov A. N. and Dmitriev N. A. (1947), *C. r. Acad. Sci. URSS*, **56**, 1.
- [8] Lee Y., Lee K.J., *Nuclide transport of Decay Chain in the Fractured Rock Medium: A Model Using Continuous Time Markov Process*, Ann. Nucl. Energy, **22** (2), pag. 71, **1995**.
- [9] *Centro di deposito definitivo dei rifiuti a bassa attività*, ENEA **2000**.
- [10] ISAM, MDWG, WD01, *Working Material. Model Formulation, Implementation and Data for Safety Assessment of Near Surface Disposal Facilities*. Reproduced by the IAEA. Vienna,