



Agenzia Nazionale per le Nuove Tecnologie,
l'Energia e lo Sviluppo Economico Sostenibile



Ministero dello Sviluppo Economico

RICERCA DI SISTEMA ELETTRICO

Modellazione dei fenomeni di dispersione di contaminanti attraverso
le barriere protettive di un deposito di rifiuti radioattivi e
metodologia di analisi probabilistica del rischio associato alla
costruzione ed operazione del deposito stesso - Fase 3

E. Zio, F. Cadini, J. De Sanctis, D. Avram

Report RdS/2011/116

MODELLAZIONE DEI FENOMENI DI DISPERSIONE DI CONTAMINANTI ATTRAVERSO LE BARRIERE PROTETTIVE DI UN DEPOSITO DI RIFIUTI RADIOATTIVI E METODOLOGIA DI ANALISI PROBABILISTICA DEL RISCHIO ASSOCIATO ALLA COSTRUZIONE ED OPERAZIONE DEL DEPOSITO STESSO - FASE 3

E. Zio, F. Cadini, J. De Sanctis, D. Avram - POLIMI

Settembre 2011

Report Ricerca di Sistema Elettrico

Accordo di Programma Ministero dello Sviluppo Economico – ENEA

Area: Governo, Gestione e sviluppo del sistema elettrico nazionale

Progetto: Nuovo nucleare da fissione: collaborazioni internazionali e sviluppo competenze in materia nucleare

Responsabile Progetto: Paride Meloni, ENEA



CIRTEN

Consorzio Interuniversitario per la Ricerca TEcnologica Nucleare

POLITECNICO DI MILANO
DIPARTIMENTO DI ENERGIA

***Modellazione dei fenomeni di dispersione di contaminanti attraverso le barriere
protettive di un deposito di rifiuti radioattivi e metodologia di analisi
probabilistica del rischio associato alla costruzione ed operazione del deposito
stesso - Fase 3***

AUTORI

E. Zio, F. Cadini, J. De Sanctis, D. Avram

CERSE-POLIMI RL 1401/2011

Lavoro svolto in esecuzione della linea progettuale LP4 punto A1
AdP MSE - ENEA "Ricerca di Sistema Elettrico" - PAR2008-09
Progetto 1.3 – "Nuovo Nucleare da Fissione".



RINGRAZIAMENTI

Gli autori desiderano ringraziare l'ing. Alfredo Luce dell'ENEA per aver fornito suggerimenti e stimoli nelle varie fasi della stesura di questo rapporto, per le utili discussioni intercorse, per le spiegazioni ed i chiarimenti in merito ai problemi incontrati ed infine per la lettura critica del presente documento ed i miglioramenti suggeriti.





INDICE

1. INTRODUZIONE	8
1.1. <i>Motivazioni del lavoro</i>	8
1.2. <i>Obiettivi del lavoro</i>	9
1.3. <i>Contesto del lavoro</i>	11
2. SVILUPPO DI MODELLI PROBABILISTICI (E RELATIVI CODICI DI SIMULAZIONE) PER LA STIMA DELLE DOSI DA RILASCIO DI ELEMENTI RADIOATTIVI DA UN DEPOSITO INGEGNERISTICO SUPERFICIALE	14
2.1. <i>Consolidamento e validazione dei moduli di modellazione sviluppati e dei relativi codici di simulazione</i>	14
2.1.1. Il codice AMBER	14
2.1.2. Approccio modulare a differenti scale	14
2.2. <i>Rilascio di radionuclidi nel limite di solubilità</i>	17
2.3. <i>“Ibridizzazione” con modelli deterministici per il trasporto di contaminanti nelle acque di sottosuolo</i>	34
2.3.1. Un modello integrato di <i>Performance Assessment</i> per un deposito di scorie radioattive	35
2.3.2. Uno schema di simulazione integrato per la <i>Performance Assessment</i> dei depositi di scorie radioattive	45
2.4. <i>Definizione di un caso studio realistico e proposta di una procedura pratica per l’analisi di sensitività e propagazione delle incertezze</i>	60
3. CONCLUSIONI E SVILUPPI FUTURI	66
APPENDICE A	69
APPENDICE B	73
APPENDICE C	80
APPENDICE D	86
APPENDICE E	91







1. INTRODUZIONE

1.1. Motivazioni del lavoro

Il confinamento dei rifiuti radioattivi costituisce un importante problema di sicurezza per l'industria nucleare, con notevole impatto sull'opinione pubblica.

Il presente lavoro si propone di contribuire allo sviluppo della sicurezza nella gestione dei rifiuti radioattivi in Italia, attraverso lo studio di metodologie di analisi quantitative per la valutazione delle prestazioni di contenimento di un deposito ingegneristico di rifiuti radioattivi a medio-bassa attività.

Il lavoro è inserito in quanto previsto dal Piano Annuale delle attività oggetto dell'Accordo di Collaborazione fra ENEA e CIRTEN, nell'ambito dell'Accordo di Programma MSE-ENEA, tema di ricerca n. 5.2.5.8 "Nuovo nucleare da fissione"; linea progettuale *LP4, Obiettivo A1*.

Il prodotto finale dell'attività vuole fornire la base scientifica sulla quale ricreare, aggiornare e consolidare le competenze del sistema Italia nella materia in oggetto.



1.2. Obiettivi del lavoro.

La **prima annualità** della collaborazione ENEA – Politecnico di Milano è consistita nella sintesi e nella catalogazione sistematica delle informazioni esistenti a livello nazionale ed internazionale sui rifiuti radioattivi e sulle strutture preposte al loro smaltimento in termini di:

- Metodologie per la valutazione delle prestazioni di sicurezza dei depositi
- Comunicazione del rischio associato alla gestione dei depositi
- Formazione

Successivamente, l'attività si è focalizzata sullo sviluppo di un approccio computazionale modulare per la valutazione delle prestazioni di sicurezza di un deposito ingegneristico superficiale di rifiuti radioattivi. In generale, l'approccio si fonda su:

- Lo sviluppo di un modello stocastico a compartimenti per l'analisi del trasporto di radionuclidi alle differenti scale di deposito (near-field e far-field);
- L'“ibridizzazione” del suddetto modello stocastico con modelli deterministici per il trasporto di contaminanti nelle acque di sottosuolo;
- L'investigazione di meta-modelli empirici più snelli per l'eventuale sostituzione di alcuni dei moduli per l'analisi di sicurezza, particolarmente onerosi dal punto di vista computazionale, al fine di poter effettuare in modo computazionalmente efficace la propagazione delle incertezze e le analisi di sensitività.

La **seconda annualità** della collaborazione si è focalizzata sulla prima di queste attività. In particolare, sono stati sviluppati i seguenti moduli:

- A. Sviluppo di un modello di *Probabilistic Safety Assessment 0-D*, “snello”, del rilascio da un deposito superficiale, per stime di prima approssimazione “veloci”.
- B. Sviluppo di un modello stocastico a compartimenti **1-D** di un deposito superficiale per la stima dei rilasci in zona insatura.

e il loro **accoppiamento** con



- C. Modelli semi-analitici del trasporto di radionuclidi in acque di sottosuolo
- D. Modelli stocastici a compartimenti **1-D** e **2-D** del trasporto in acque di sottosuolo applicati al caso studio “ENEA”.

Nella terza annualità, sono stati portati avanti:

- Il consolidamento e la validazione dei moduli di modellazione sviluppati, e relativi codici di simulazione;
- L’“ibridizzazione” dei suddetti modelli stocastici con modelli deterministici per il trasporto di contaminanti nelle acque di sottosuolo
- L’estensione dei moduli di modellazione del rilascio e trasporto di radionuclidi a specifici processi di particolare rilevanza per la valutazione delle prestazioni di sicurezza del deposito;
- L’applicazione della metodologia a casi studio più complessi e realistici rispetto a quelli semplificati già esaminati.

Le attività relative a quest’ultima annualità sono l’oggetto del presente rapporto.



1.3. Contesto del lavoro

La valutazione di sicurezza di un deposito di superficie di rifiuti radioattivi di seconda categoria si basa su un approccio multidisciplinare alla definizione del sistema di contenimento ed alla sua analisi sistematica per investigare gli effetti di eventi che ne influenzano il comportamento. La descrizione del sistema di contenimento richiede informazioni sulle caratteristiche dei rifiuti, il progetto di deposito e le proprietà del sito ospitante, e costituisce la base per lo sviluppo del modello concettuale del deposito, degli scenari della sua evoluzione e della valutazione quantitativa del possibile rilascio e migrazione dei radionuclidi.

Il sistema di contenimento di un deposito superficiale è costituito da barriere artificiali e naturali il cui obiettivo è prevenire il rilascio dei radionuclidi e ritardare la loro successiva migrazione nelle falde acquifere ed eventualmente nella biosfera [1].

La valutazione delle prestazioni di sicurezza di tali barriere, sia nella fase progettuale del deposito sia in quella operativa, è un'attività complessa che richiede [2][3][4]: i) l'identificazione degli scenari che influenzano il comportamento del deposito durante la sua vita; ii) la stima delle probabilità con cui questi scenari possono verificarsi; iii) la stima delle conseguenze associate al rilascio dei radionuclidi, espresse tipicamente in termini di dose assorbita dal gruppo critico; iv) la valutazione delle incertezze associate alle stime precedentemente menzionate.

In questo contesto, l'analisi quantitativa dei processi di migrazione dei radionuclidi attraverso le barriere sino alle principali vie di esposizione assume un ruolo fondamentale.

Un'analisi approfondita dovrà necessariamente essere estesa alla scala dell'intero deposito, considerando gli effetti macroscopici dovuti alla disposizione spaziale dei fusti contenenti i rifiuti radioattivi all'interno delle strutture del deposito [5][6] ed all'eterogeneità dei materiali [7][8][9]. Per esempio, l'assunzione di una sorgente puntiforme per il rilascio dei radionuclidi, spesso adottata per semplicità computazionale, può portare a stime poco accurate delle prestazioni di sicurezza del deposito, a causa di interazioni non-lineari tra i radionuclidi rilasciati dai differenti fusti nello stesso flusso d'acqua di falda, che possono provocare differenze, anche di diversi ordini di grandezza, nei



tempi di attraversamento dei radionuclidi nelle barriere del deposito. In pratica, i costi computazionali dell'analisi sarebbero proibitivi se questa dovesse essere effettuata attraverso l'estensione all'intera scala del deposito dei codici usati per la descrizione dettagliata dei processi di trasporto alla scala del singolo fusto.

Inoltre, diversi enti nazionali regolatori stanno imponendo nuove normative di riferimento per il controllo e la messa in sicurezza dei depositi di scorie nucleari, che impongono la stima della dose assorbita da gruppi di popolazione opportunamente definiti come critici, e delle incertezze associate alla stima, sia aleatorie (stocasticità nell'evoluzione del sistema) che epistemiche (mancanza di conoscenza dei valori dei parametri del modello) [2]. Anche il calcolo delle stime, e relative incertezze, potrebbe condurre a notevoli sforzi computazionali se dovessero venire utilizzati i classici codici per il calcolo del flusso e del trasporto degli inquinanti.

Un approccio che sembra percorribile per gestire con efficacia le problematiche sopra esposte, è quello di procedere attraverso una modellazione a compartimenti della migrazione dei radionuclidi, a differenti scale del deposito e della geosfera. I modelli dettagliati di calcolo sarebbero applicati a piccoli domini per caratterizzare il processo di migrazione in un singolo compartimento; i risultati di questa modellazione verrebbero a loro volta utilizzati come ingressi di modelli di deposito e di geosfera a più ampi compartimenti, basati su una più grossolana discretizzazione, meno onerosa dal punto di vista computazionale.

In questo contesto di modelli a compartimenti, spesso sono introdotte ipotesi Makoviane semplificative per modellare analiticamente la stocasticità dei processi di trasferimento [5][6][10][11].

Nella precedente annualità è stato introdotto l'approccio di simulazione Monte Carlo per modellare la migrazione dei radionuclidi attraverso le barriere del deposito ed il successivo loro trasporto attraverso la geosfera (Sezione 2.1). Lo schema di simulazione consente di descrivere gli aspetti realistici della dinamica del sistema, senza le difficoltà derivanti dalla necessità di trovare soluzioni analitiche o numeriche, e di tenere in considerazione le incertezze aleatorie relative alla stocasticità del processo di migrazione.



Gli approcci di simulazione Monte Carlo classici sono tuttavia limitati dal fatto che la vita di ogni singolo radionuclide viene simulata in maniera indipendente. Questo è ragionevole per situazioni in cui il rilascio dei radionuclidi può considerarsi avvenire in una matrice solida in maniera congrua o istantanea, o più in generale quando non ci sono correlazioni tra i rilasci dei radionuclidi e tra i loro cammini ('random walks') durante il percorso di migrazione nel mezzo. D'altra parte, in casi realistici si osservano interferenze tra le differenti sorgenti di rilascio e la propagazione della piuma di contaminante: pertanto, è necessario poter considerare il rilascio dei radionuclidi e l'evoluzione della loro vita anche in dipendenza dal campo di concentrazione del mezzo nel quale avviene il loro trasporto [12][13][14].

In quest'ottica, nel corso della corrente annualità si è proceduto all'estensione metodologica dei moduli di modellazione del rilascio e trasporto di radionuclidi per includere quei processi fisici che implicano la generazione di "random walk" correlati: in particolare il problema è stato affrontato con riferimento al processo di rilascio di radionuclidi con limite di solubilità, che è un fenomeno di particolare rilevanza per la valutazione delle prestazioni di sicurezza del deposito (Sezione 2.2).

Nell'approccio intrapreso si è considerato che quando nelle analisi si è interessati ad evidenziare gli effetti di un particolare fenomeno/processo, è utile concentrare gli sforzi di modellazione su di esso, utilizzando strumenti consolidati e condivisi per la descrizione di tutto il resto. Nell'ottica di uno sviluppo modellistico a compartimenti, è dunque fondamentale che i moduli di modellazione stocastica sviluppati siano in grado di interfacciarsi con moduli già disponibili e validati. Nella Sezione 2.3, ad esempio, sono illustrate due applicazioni in cui due diversi modelli Monte Carlo di rilascio di radionuclidi alla scala del deposito sono accoppiati ai codici MODFLOW e MT3DMS [15][16] per la soluzione dei flussi e del trasporto dei radionuclidi in falda acquifera.

Come anticipato in precedenza, l'analisi quantitativa dei processi di migrazione dei radionuclidi attraverso le barriere sino alle principali vie di esposizione per la stima delle dosi assorbite non può prescindere dalla contestuale valutazione di quanto i risultati di tali analisi sono incerti e di quali sono le principali fonti di questa incertezza. A questo proposito, nella Sezione 2.4 è presentata una procedura pratica per l'analisi di sensitività e la propagazione delle incertezze, ed un caso studio realistico in cui le proprietà idrauliche e chimiche dell'acquifero nel quale avviene il trasporto sono derivate da misure sul campo in un sito di smaltimento di rifiuti radioattivo.



2. SVILUPPO DI MODELLI PROBABILISTICI (E RELATIVI CODICI DI SIMULAZIONE) PER LA STIMA DELLE DOSI DA RILASCIO DI ELEMENTI RADIOATTIVI DA UN DEPOSITO INGEGNERISTICO SUPERFICIALE

2.1. Consolidamento e validazione dei moduli di modellazione sviluppati e dei relativi codici di simulazione

Nei seguenti Paragrafi sono descritti in maniera sintetica le principali caratteristiche dei moduli di modellazione sviluppati nelle precedenti annualità ed il loro consolidamento all'interno dell'attività di ricerca sulla *Performance Assessment* dei depositi superficiali di scorie radioattive di media e bassa attività.

2.1.1. Il codice AMBER

- Modellazione mono-dimensionale a compartimenti del deposito e della geosfera attraverso il codice AMBER.
- Sviluppo di una modellazione di *Performance Assessment* generale (dal deposito alla dose al gruppo di popolazione opportunamente definito come critico).
- Applicazione del modello al caso studio del deposito di scorie radioattive studiato da ENEA nel 1997.
- Redazione del rapporto: “*Modellazione dei fenomeni di dispersione di contaminanti attraverso le barriere protettive di un deposito di rifiuti radioattivi e metodologia di analisi probabilistica del rischio associato alla costruzione ed operazione del deposito stesso - Fase 2 - Il codice AMBER*”.

2.1.2. Approccio modulare a differenti scale

1. Modello 0-D del rilascio da un deposito superficiale di rifiuti radioattivi.



- Modello affidabilistico 0-D del rilascio da un deposito accoppiato con un modello semi-analitico 1-D di trasporto in falda acquifera per una veloce e preliminare stima della dose al gruppo critico.
- Sviluppo in **MATLAB** del codice di simulazione Monte Carlo e di un codice numerico per il trasporto in falda.
- Applicazione del modello al caso studio del deposito di scorie radioattive studiato da ENEA nel 1997.
- Pubblicazioni su riviste ed atti di convegni internazionali:
 - *Cadini, D. Avram, E. Zio, A. Luce, A. Taglioni (2010). Monte Carlo simulation-based reliability model for the PSA of a radioactive waste repository. (pp. 43- 50). In: Summer Safety & Reliability Seminars - SSARS 2010. Gdansk, Poland.*
 - *Cadini, D. Avram, E. Zio, A. Luce, A. Taglioni (2010). Preliminary evaluation of a radioactive waste repository safety performance by a Monte Carlo simulation-based reliability model KERNTECHNIK, (pp. 316- 321), 6.*

2. Modello di trasporto stocastico 1-D di un deposito superficiale di scorie radioattive

- Modello a compartimenti 1-D del trasporto dei radionuclidi da un deposito superficiale.
- Sviluppo in **MATLAB** del codice di simulazione Monte Carlo.
- Applicazione del modello al caso studio del deposito di scorie radioattive studiato da ENEA nel 1997.
- Pubblicazioni su riviste ed atti di convegni internazionali:
 - *Cadini, J. De Sanctis, T. Girotti, E. Zio, A. Luce, A. Taglioni (2010). Monte Carlo estimation of radionuclide release at a repository scale ANNALS OF NUCLEAR ENERGY, (pp. 861- 866), 37.*
 - *Cadini, J. De Sanctis, E. Zio, D. Avram, T. Girotti, A. Luce, A. Taglioni (2009). Monte Carlo Simulation of a Compartment Model of Radionuclide Migration At a Radioactive Waste Repository. (pp. 1- 6). In: ICEM2009. October 11-15, 2009, Liverpool, UK.*



- *Cadini, J. De Sanctis, T. Girotti, E. Zio, A. Luce, A. Taglioni (2010). A Monte Carlo Simulation Model for Radionuclide Migration at the Repository Scale. (pp. 1- 5). In: PSAM 10, June 7-11, 2010, Seattle, USA.*

3. Modello stocastico di trasporto 2-D nella falda acquifera

- Modello concettuale 2-D del trasporto dei radionuclidi in falda acquifera.
- Sviluppo in **MATLAB** di un codice di simulazione Monte Carlo di trasporto.
- Applicazione del modello al caso studio del deposito di scorie radioattive studiato da ENEA nel 1997.
- Pubblicazioni su riviste internazionali:
 - *Cadini, J. De Sanctis, T. Girotti, E. Zio, A. Luce, A. Taglioni (2010). Monte Carlo-based assessment of the safety performance of a radioactive waste repository RELIABILITY ENGINEERING & SYSTEM SAFETY, (pp. 859- 865), 95.*



2.2. Rilascio di radionuclidi nel limite di solubilità.

Nelle classiche simulazioni Monte Carlo del rilascio e migrazione dei radionuclidi, la creazione e la vita di ogni singolo radionuclide viene simulata in maniera indipendente. Questo è ragionevole per situazioni in cui si possa considerare che i radionuclidi siano rilasciati da una matrice solida in maniera congrua o istantanea o, più in generale, quando non ci siano correlazioni tra i vari rilasci dei radionuclidi e tra i loro cammini ('random walks') nel mezzo poroso. D'altra parte, poiché in molti casi realistici si osservano interferenze tra le differenti sorgenti e/o durante la propagazione della piuma di contaminante, risulta importante poter considerare eventuali dipendenze dal campo di concentrazione nel mezzo nel quale avviene il trasporto [12][13][14].

Per trattare queste situazioni, e' stato adottato uno schema di simulazione Monte Carlo sviluppato precedentemente da alcuni degli autori di questo testo [17]. In particolare, in questa Sezione viene mostrato come lo schema di simulazione sia capace di descrivere un fenomeno non-lineare, quale per esempio la migrazione dei radionuclidi sotto la condizione di limite di solubilità. Di seguito, viene presentata i) una validazione del metodo con un'applicazione ad un caso studio di letteratura basata su una semplice rappresentazione di un rilascio deterministico su un dominio formato da due compartimenti [18]; ii) l'applicazione ad una discretizzazione più dettagliata del fusto di contenimento dell'inquinante e le linee guida di risoluzione delle problematiche di carattere modellistico, computazionale e statistico che sono associate alla simulazione Monte Carlo non-lineare.

La Sezione è organizzata nel seguente modo: nel Paragrafo 1 viene presentato lo schema di simulazione Monte Carlo non-lineare per il rilascio e la migrazione dei radionuclidi; nel Paragrafo 2 viene presentata la validazione su un caso studio di letteratura e la successiva applicazione ad una più dettagliata rappresentazione del fusto di contenimento dei radionuclidi; ed infine, nel Paragrafo 3 vengono date alcune conclusioni.

1 Simulazione Monte Carlo non-lineare

A scopo illustrativo, consideriamo un dominio bi-dimensionale discretizzato in $N = N_x \times N_y$ compartimenti (Figura 1), dove N_x ed N_y sono rispettivamente il numero di compartimenti lungo



l'asse x e l'asse y . Un compartimento addizionale $N + 1$ è aggiunto per rappresentare l'ambiente in cui il dominio è incorporato. Per semplicità di illustrazione e senza perdere la caratterizzazione del processo di rilascio, il decadimento radioattivo è stato trascurato; la sua inclusione nello schema di simulazione Monte Carlo non-lineare, comunque, non impone particolari modifiche del modello.

$n_x = 1$	$n=1$	2	...	N_y
2	$N_y + 1$	$N_y + 2$...	$2N_y$
3	\vdots	\vdots	\vdots	\vdots
\cdot	\cdot	\cdot	\cdot	$\cdot \cdot \cdot$
\cdot	\cdot	\cdot	\cdot	$\cdot \cdot \cdot$
N_x				$N = N_x \cdot N_y$
	$n_y = 1$	2	...	N_y

Figura 1: Matrice $N_x \times N_y$ di N compartimenti.

Denotiamo con $X_m(t)$ la variabile di stato rappresentante la posizione al tempo t del m -esimo radionuclide nella matrice dei compartimenti, per esempio, $X_m(t) = n$ implica che al tempo t la m -esima particella è nel compartimento n , $n = 1, 2, \dots, N + 1$ [19]. Sotto ipotesi semplificate, il processo stocastico della migrazione dei radionuclidi attraverso i compartimenti può essere modellato da un processo di Markov continuo nel tempo [19] la cui soluzione è il vettore di probabilità $\mathbf{P}(t) = [P_1(t) \ P_2(t) \ \dots \ P_{n+1}(t)]$, dove $P_n(t)$ è la probabilità di trovare un radionuclide nello stato n al tempo t (in Appendice A sono riportati i dettagli del modello).

Tuttavia, in molti casi realistici, per esempio in caso di non - omogeneità nello spazio e nel tempo [20], le soluzioni analitiche sono difficili da ottenere, se non impossibili. In queste situazioni è possibile ricorrere alla simulazione Monte Carlo del processo stocastico di migrazione di un grande numero M di radionuclidi nel dominio $N_x \times N_y$. La simulazione prevede il ripetuto campionamento dei tempi di nascita dei radionuclidi dalle sorgenti di rilascio e dei loro tempi di transizione tra i compartimenti del mezzo in cui avviene il trasporto.

Come accennato nell'Introduzione, il classico schema di simulazione Monte Carlo per la migrazione dei radionuclidi, simula la creazione e la vita di ogni singola particella come



indipendente l'una dall'altra. Questo non è applicabile per quelle situazioni in cui le interferenze tra i rilasci dalle sorgenti e/o l'evoluzione della piuma di contaminate fanno sì che questi dipendano dal campo di concentrazione del mezzo in cui avviene il trasporto [12][13][14].

Per poter considerare le dipendenze nei cammini casuali delle particelle dal campo di concentrazione nel mezzo, è stato adottato lo schema di simulazione proposto in [12]. Per chiarezza, supponiamo che le M particelle siano generate simultaneamente al tempo $t = 0$: la generalizzazione al caso di una sorgente distribuita nel tempo è triviale. Il tempo di simulazione T d'interesse per l'analisi è discretizzato in N_{t1} intervalli temporali $\Delta t_1 = \frac{T}{N_{t1}}$, indicizzati $k_1 = 1, 2, \dots, N_{t1}$. La simulazione di un generico cammino casuale è sviluppata nella seguente maniera. A $t = 0$, viene campionata la prima transizione del processo di migrazione tra i compartimenti (tempo t_1 e direzione) [20]. Se t_1 cade nel primo intervallo, per esempio, $t_1 < \Delta t_1$, allora la transizione è accettata e la particella radionuclide si sposta alla cella immediatamente adiacente nella direzione campionata; altrimenti, il radionuclide rimane nello stesso compartimento di origine; il tempo viene aggiornato a $t = \Delta t_1$. Il campionamento delle transizioni che si verificano (o no) tra $t = 0$ e $t = \Delta t_1$ è ripetuto per tutte le M particelle generate a $t = 0$ e le distribuzioni di probabilità che governano i processi di migrazione stocastica sono aggiornati considerando lo stato del nuovo sistema $\mathbf{X}(t) = [X_1(t) \ X_2(t) \ \dots \ X_M(t)]$ ottenuto al tempo t (per esempio, la distribuzione spaziale delle particelle al tempo t).

Questo metodo di simulazione consente di considerare le dipendenze e le interazioni tra i vari cammini casuali simulati, poiché le probabilità delle particelle che si muovono nei compartimenti diventano dipendenti dal numero delle particelle presenti. E' da notare che multiple transizioni in uno stesso intervallo temporale non sono permesse, poiché altrimenti l'aggiornamento delle probabilità prenderebbe in considerazione solo lo stato finale raggiunto; come esempio, si consideri una particella che compia una transizione ad un compartimento adiacente all'inizio dell'intervallo temporale e poi compia una seconda transizione in un compartimento differente subito prima della fine dello stesso intervallo temporale: l'aggiornamento delle distribuzioni di probabilità prenderà in considerazione soltanto lo stato finale raggiunto dalla particella alla fine dell'intervallo temporale, trascurando però il fatto che la particella ha visitato più compartimenti nello stesso intervallo di



tempo ed introducendo pertanto un errore di approssimazione. D'altra parte, la larghezza dell'intervallo Δt_1 deve essere sufficientemente piccolo affinché la probabilità di compiere transizioni multiple sia trascurabile [21].

Al successivo intervallo temporale, da Δt_1 a $2\Delta t_1$, per ogni particella, il tempo t_2 della seconda transizione e la sua direzione sono campionati dalle distribuzioni di probabilità aggiornate sulla base delle distribuzioni spaziali delle particelle ottenute a $t = \Delta t_1$. Di nuovo, se $t_2 < 2\Delta t_1$ la transizione è accettata e la particella si sposta; altrimenti il radionuclide rimane nello stesso compartimento; il tempo viene aggiornato a $t = 2\Delta t_1$.

Il cammino casuale di ogni particella radionuclide viene simulato attraverso questa procedura sino a quando il tempo t raggiunge il tempo di simulazione finale T o la particella esce dal dominio arrivando al compartimento assorbente $N + 1$, rappresentante l'“ambiente”. Un diagramma di flusso della procedura precedentemente esposta è mostrato in Figura 2

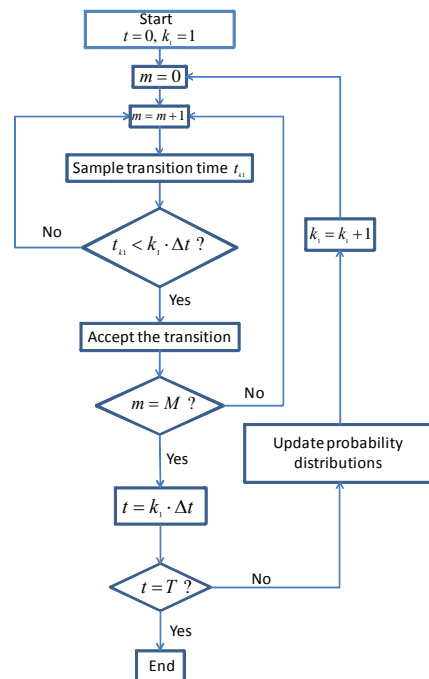


Figura 2: Diagramma di flusso della simulazione Monte Carlo non-lineare.

Per ottenere una stima delle concentrazioni dipendenti dal tempo $C(n, t)$ [mol/m³] in un generico compartimento n al tempo t , è stata fatta una discretizzazione ausiliaria di T in $N_{t2} \leq N_{t1}$



intervalli temporali, così che $L = \frac{\Delta t_2}{\Delta t_1}$ sia un intero (Figura 3). E' stato associato un contatore $Count(n, k_2)$ ad ogni compartimento $n = 1, 2, \dots, N + 1$ e ad ogni intervallo temporale discreto $k_2 = 1, 2, \dots, N_{t_2}$. Durante la simulazione, un 1 è aggiunto nel contatore $Count(n, k_2)$ se durante il suo cammino casuale una particella radionuclide risiede in un compartimento n all'intervallo temporale k_2 . La griglia di discretizzazione ausiliaria più ampia è necessaria poiché gli intervalli temporali di simulazione Δt_1 sono in generale piccoli (per avere probabilità di multi - transizione trascurabile), così che il numero di particelle nel compartimento n nell'intervallo temporale k_1 è anch'esso piccolo, producendo una stima statisticamente insoddisfacente, mentre, al contrario, non è così per il numero cumulato di quelle particelle presenti in n negli L intervalli di tempo di larghezza Δt_1 contenuti in $[(k_2 - 1)\Delta t_2, k_2\Delta t_2]$.

Dopo aver simulato M cammini casuali, i valori accumulati nei contatori $Count(n, k_2)$ sono normalizzati ad M per stimare le probabilità dipendenti dal tempo $P_n(k_2)$ dell'occupazione del compartimento n [20][21][22]:

$$P_n(k_2) \cong \frac{Count(n, k_2)}{M} \quad (1)$$

Quindi, la concentrazione dei radionuclidi dipendente dal tempo $C(n, k_2)$ [mol/m³] può essere stimata come:

$$C(n, k_2) \cong P_n(k_2) \cdot \frac{Q_0}{\Delta S \cdot \Delta z} \cong \frac{Count(n, k_2)}{M \cdot \Delta V} \quad (2)$$

dove Q_0 [mol] è l'inventario totale dei radionuclidi, ΔS [m²] è la superficie del compartimento e Δz [m] è la sua profondità.

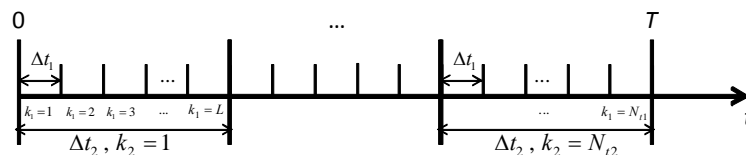


Figura 3: Discretizzazione temporale.



2 Rilascio nel limite di solubilità

In quanto segue, applichiamo lo schema di simulazione presentato nel Paragrafo 1 al processo non-lineare di rilascio nel limite di solubilità. In termini generali, la solubilità è la proprietà di una sostanza chimica solida, liquida o gassosa, chiamata soluto, di dissolversi in un solvente liquido a formare una soluzione omogenea [23]. La solubilità di una sostanza fondamentale dipende dalle caratteristiche del solvente come dalle condizioni ambientali di temperatura e pressione. La misura della solubilità di una sostanza in uno specifico solvente è misurata attraverso il “limite di solubilità”, che è la concentrazione di saturazione per cui aggiungendo altro soluto la concentrazione della soluzione rimane costante [23]. Per molti radionuclidi, il limite di solubilità può rappresentare un importante meccanismo di ritardo nel rilascio al di fuori del confinamento del deposito [23]. Perciò, i limiti di solubilità sono rilevanti nella *Performance Assessment* di un deposito di scorie radioattive. Poiché è difficile ottenere una misura accurata del limite di solubilità ben rappresentante le condizioni in sito, un comune approccio per stimare le solubilità è quello di far ricorso ai dati chimici e termodinamici [23]. Tuttavia, la matrice solida in cui è incapsulato il materiale radioattivo ed il materiale di riempimento tra i fusti all'interno del deposito sono formati da un mix di sostanze chimiche complesse (per esempio, calcestruzzo, bentonite, grout, ecc.) le cui proporzioni sono soggette a grandi incertezze. Inoltre, mentre alcune caratteristiche chimiche, come il pH e le concentrazioni di carbonato, possono spesso essere ben determinate da appropriati modelli chimici [23], altri parametri chiave delle condizioni di ossido-riduzione possono essere solo approssimati sotto determinate assunzioni; questo pone ulteriori difficoltà nei problemi concernenti la modellazione ed introduce nuove fonti d'incertezza.

2A Problemi di modellazione

Il rilascio dal fusto in condizioni di limite di solubilità deve essere descritto e simulato come dipendente dal campo di concentrazione dei radionuclidi nel mezzo solvente. Dal punto di vista della simulazione Monte Carlo, ciò implica che, ad ogni istante di tempo, la migrazione delle particelle radionuclidi attraverso il fusto dipende dalla distribuzione delle particelle a quel dato tempo.



In ciò che segue, è stato applicato lo schema di simulazione Monte Carlo esposto nel Paragrafo 1 ad un caso studio di letteratura [18]. Il modello concettuale di un fusto saturato è rappresentato da due compartimenti omogenei, rappresentanti la fase solida e liquida (acqua) nella matrice cementizia in cui è incastonato l'inquinante, rispettivamente con aree A_s e A_w ed altezza h_s e h_w . Queste ipotesi semplificatrici sono state fatte in quanto i compartimenti della fase solida e della fase liquida hanno la stessa grandezza, $h_s = h_w$, $A_s = A_w$ e $V_s = V_w$ [18]. Le concentrazioni dei radionuclidi nei due compartimenti al tempo t sono denotate rispettivamente con $C_s(t)$ e $C_w(t)$ [mol/m³]. Per poter derivare delle semplici soluzioni analitiche del problema è stata presa in considerazione solo la componente verticale del trasporto advettivo dei radionuclidi (senza effetti diffusivi), con la fase liquida caratterizzata da una velocità di Darcy q_w [m/y] [18].

Per semplicità, ma senza perdere in generalità, in [18] i radionuclidi sono inizialmente assunti essere presenti solo nella fase solida del fusto e, in maniera conservativa non è stato considerato nessun fattore di ritardo nella migrazione, $K_d = 0$ e $R_d = 1$.

Quando il rilascio non viene limitato dal limite di solubilità dello specifico radionuclide C_{sl} , per esempio, $C_w(t) < C_{sl}$, la concentrazione della fase liquida può essere ottenuta risolvendo due equazioni differenziali del primo ordine accoppiate basate sulla conservazione della massa in due compartimenti [18]:

$$C_w(t) = \frac{C_{s0}}{\theta_w R_w} \frac{\lambda_s}{(\lambda_w - \lambda_s)} \frac{V_s}{V_w} (e^{-\lambda_s t} - e^{-\lambda_w t}) \quad (3)$$

dove C_{s0} è la concentrazione iniziale nella fase solida, cioè $C_{s0} = Q_0 / V_s$, θ_w è la porosità,

$\lambda_s = \frac{A_s u_s}{V_s}$ [1/y] è il rateo di dissoluzione dalla fase solida al compartimento della fase liquida, dove

u_s [m/y] è la velocità di dissoluzione e $\lambda_w = \frac{A_w q_w}{V_w \theta_w R_w}$ [1/y] è il rateo di trasferimento fuori dal

compartimento della fase liquida. Nella [18], sotto l'ipotesi di "rilascio rapido" in cui la transizione di dissoluzione è controllata dallo stesso rateo di percolazione che controlla il rilascio per



lisciviazione dal fusto, in cui il rateo di dissoluzione λ_s è assunto uguale a λ_w , la concentrazione della fase liquida diventa:

$$C_w(t) = \frac{C_{s0}}{\theta_w R_w} \frac{V_s}{V_w} \lambda_w t e^{-\lambda_w t} \quad (4)$$

Questa soluzione è affetta da una grande dispersione numerica, dovuta ad una discretizzazione più grossolana del dominio di migrazione in soli due compartimenti [24][25][26].

D'altra parte, quando il rilascio è imposto dal limite di solubilità, allora si ha che $C_w(t) = C_{sl}$ sino a quasi tutto il completo svuotamento del fusto, cioè quando $C_s(t) = C_{sl}$; successivamente $C_w(t)$ rapidamente tende a zero in accordo con la (4), con $C_{s0}(t) = C_{sl}$.

La Tabella 1 riassume i parametri idrogeologici usati nel caso studio preso in considerazione [18].

Tabella 1: Valori dei parametri idrogeologici usati per il caso studio [18].

PARAMETRO	VALORE
θ_w	0.08
K_d [m ³ /kg]	0
q_w [m/y]	$6.7 \cdot 10^{-3}$
h_w [m]	1
A_w [m ²]	1

Per la descrizione del processo di migrazione sono state fatte le seguenti ipotesi:

- i) Il dominio è costituito da un vettore mono-dimensionale di $N_x \times N_y = 1 \times 2$ compartimenti corrispondenti alle regioni solide e liquide del fusto (Figura 4).
- ii) La sorgente dei radionuclidi nel compartimento della fase solida è assunta essere istantanea.
- iii) Le transizioni tra i compartimenti della fase solida e della fase liquida sono distribuite in accordo con la $f_T(t) = \lambda_s e^{-\lambda_s t}$, cioè una distribuzione esponenziale con parametro uguale al rateo di dissoluzione dalla fase solida, $\lambda_s = \lambda_w = 8.38 \cdot 10^{-2} \text{ y}^{-1}$.



iv) Il tempo di transizione tra il compartimento della fase liquida e l'ambiente è assunto essere distribuito esponenzialmente con parametro λ_w .

La prima simulazione Monte Carlo è stata fatta simulando la migrazione di $M = 10^4$ particelle di ^{239}Pu rilasciate "rapidamente" dal fusto e senza considerare il limite di solubilità del ^{239}Pu . L'inventario totale del ^{239}Pu incapsulato nella matrice cementizia del fusto è assunto essere pari a $Q_0 = 1/239$ mol, cioè 1g. L'orizzonte temporale considerato della simulazione è di $T = 10^2$ y, diviso in $N_{t1} = 10^3$ intervalli temporali di larghezza $\Delta t_1 = 1.0 \cdot 10^{-1}$ y: questi valori sono stati determinati attraverso una procedura di tipo "trial and error" basata sulla convergenza dei risultati.

La Figura 5 mostra un accordo soddisfacente tra la concentrazione normalizzata stimata come $\frac{C_w(t) \cdot V_w}{Q_0}$ nel compartimento della fase liquida ottenuta tramite lo schema di simulazione (linea punteggiata) e quella ottenuta analiticamente in [18] (linea continua). I risultati della simulazione sono stati ottenuti con $N_{t2} = 10^2$ istanti temporali egualmente spazati di $\Delta t_2 = 1$ y.

La Figura 6 mostra la stima del Monte Carlo non-lineare (linea punteggiata) del flusso di uscita

$\phi_w(t) \cong \frac{\text{Count}(N+1, k_2)}{\Delta t_2} \cdot \frac{Q_0}{M}$ [mol/y] dal fusto con $M = 5 \cdot 10^5$ particelle di ^{239}Pu quando si

prende in considerazione l'esistenza del limite di solubilità del ^{239}Pu , $C_{sl} = 2.3 \cdot 10^{-7}$ [mol/l] [27].

Per questa simulazione l'orizzonte temporale di $T = 3 \cdot 10^3$ y è stato diviso in $N_{t1} = 1.44 \cdot 10^5$ intervalli temporali di larghezza $\Delta t_1 = 2.08 \cdot 10^{-2}$ y: di nuovo, questi valori sono stati ricavati attraverso una procedura di tipo "trial and error". I risultati sono mostrati utilizzando $N_{t2} = 3 \cdot 10^2$ intervalli temporali ugualmente spazati da $\Delta t_2 = 10$ y; essi sono in accordo con quelli ottenuti in [18], dove il flusso di uscita era euristicamente approssimato da una funzione a gradino di ampiezza

$\phi_w = A_w q_w C'_{sl} \cong 1.54 \cdot 10^{-6}$ [mol/y] e durata $\Delta t_{sl} = \frac{h_w C_{s0}}{q_w C'_{sl}} \cong 2.72 \cdot 10^3$ y, con $C'_{sl} = C_{sl} \theta_w$.

La flessibilità della simulazione Monte Carlo consente di ottenere delle descrizioni più realistiche. Come esempio, la Figura 6 mostra la stima del flusso in uscita $\phi_w(t)$ ottenuto attraverso la



simulazione Monte Carlo del limite di solubilità di $M = 5 \cdot 10^5$ particelle di ^{239}Pu (linea continua), dove il fusto è stato discretizzato in un vettore di $N_x \times N_y = 10 \times 2$ compartimenti (Figura 4); la prima colonna del vettore rappresenta la fase solida delle scorie e la seconda colonna la fase liquida attraversata da un flusso puramente advettivo. I radionuclidi sono rilasciati da ogni compartimento della fase solida nell'adiacente compartimento della fase liquida; allora, i radionuclidi iniziano la migrazione advettivamente dal compartimento della fase liquida, in cui erano stati inizialmente iniettati, attraverso i restanti compartimenti inferiori della fase liquida, sino all'ambiente. Così, una volta nella fase liquida, i radionuclidi possono fare le transizioni solo negli adiacenti compartimenti inferiori, fino a quando non escono dal dominio di migrazione. Il rateo di transizione tra i compartimenti della fase liquida e dall'ultimo compartimento della fase liquida all'ambiente sono identici, $\lambda_w = N_y \cdot q_w / (\theta_w h_w)$. Di nuovo, nel caso di "rilascio rapido", il rateo di transizione dal compartimento della fase solida a quello adiacente della fase liquida è $\lambda_s = \lambda_w$. In base ad una procedura di "trial and error", l'orizzonte temporale di $T = 3 \cdot 10^3$ y è stato diviso in $N_{t1} = 3.6 \cdot 10^5$ intervalli temporali di larghezza $\Delta t_1 = 8.30 \cdot 10^{-3}$ y, mentre $N_{t2} = 3 \cdot 10^2$ e $\Delta t_2 = 10$ y. La stima del flusso d'uscita nell'ambiente mostra un transitorio decrescente più ripido alla fine dell'intervallo, rispetto al caso semplice di $N_x \times N_y = 1 \times 2$ (linea punteggiata), dovuto alla minore dispersione numerica per la più raffinata discretizzazione del dominio [24][25]; come conseguenza, il tempo di interruzione del flusso di uscita (approssimativamente $2.78 \cdot 10^3$ y) è più vicino al valore di riferimento di $2.72 \cdot 10^3$ y rispetto a quello ottenuto con una discretizzazione meno raffinata (approssimativamente $2.73 \cdot 10^3$ y).

Altre simulazioni con un crescente numero di compartimenti, i cui risultati non sono qui mostrati per brevità, dimostrano che ad un'ulteriore riduzione della dispersione numerica corrispondono tempi computazionali più elevati.

Le differenze dei risultati ottenuti con discretizzazioni più raffinate non sono significative dal punto di vista dell'analisi di sicurezza, però ci si aspetta che in casi più realistici, per esempio, geometrie più complesse ed eterogeneità, la dispersione numerica introdotta da una discretizzazione più rozza del dominio possa produrre imprecisioni che non possono essere ignorate nell'ambito dello studio delle prestazioni di sicurezza di un deposito di scorie nucleari [24][25]. A questo proposito, lo



schema di simulazione Monte Carlo presentato offre la flessibilità di modellazione necessaria non solo per trattare più realistici domini ad una scala più raffinata, come mostrato prima, ma anche per considerare la distribuzione dei tempi di residenza delle particelle in ogni compartimento [20].

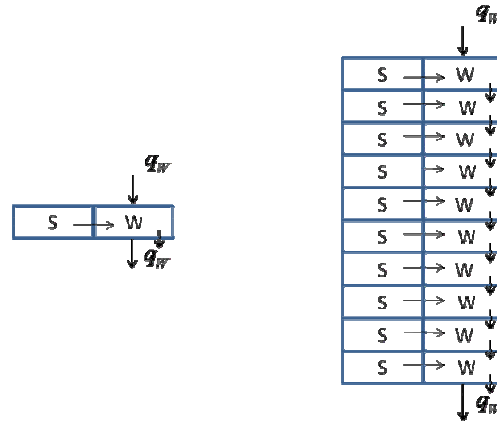


Figura 4: Rappresentazione a compartimenti del fusto di scorie radioattive. $N = 1 \times 2$ compartimenti (sinistra) e $N = 10 \times 2$ compartimenti (destra).

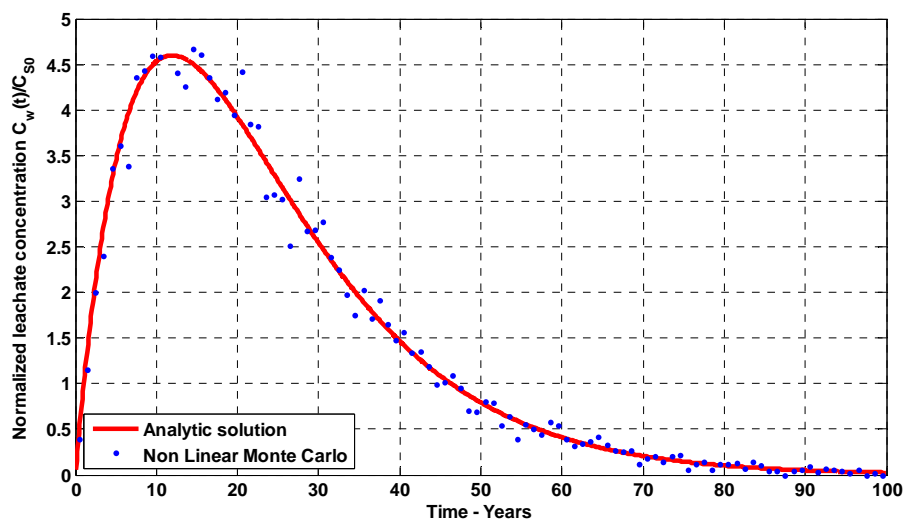


Figura 5: Concentrazione normalizzata lisciviata attraverso la simulazione Monte Carlo (linea punteggiata) e soluzione analitica del modello a due compartimenti [18] (linea continua).

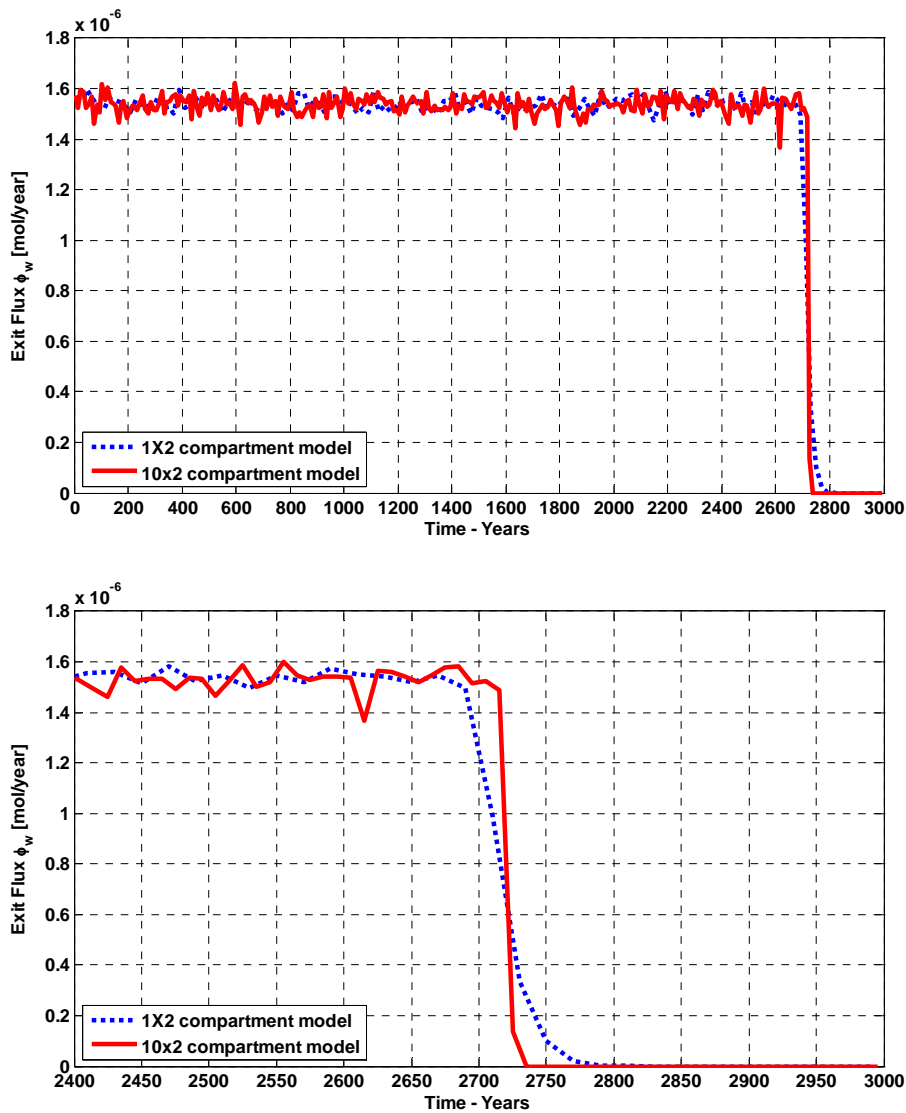


Figura 6: Alto: stima del flusso in uscita dal fusto nell'ambiente del ^{239}Pu con rilascio nel limite di solubilità $C_{sl} = 2.3 \cdot 10^{-7}$ [mol/l]; $N = 1 \times 2$ (linea punteggiata) e $N = 10 \times 2$ (linea continua). Basso: zoom sulla zona del transitorio decrescente.

2B Problemi computazionali

Come anticipato alla fine del Paragrafo 1, l'intervallo temporale di simulazione Δt_1 deve essere scelto sufficientemente piccolo affinché la probabilità di transizioni multiple nello stesso intervallo temporale sia trascurabile. Deve essere trovato un buon compromesso tra una soddisfacente approssimazione dei suddetti processi stocastici ed un accettabile tempo computazionale. Dato che i tempi di transizione sono esponenzialmente distribuiti con parametro λ_w , in accordo con la

distribuzione di Poisson, la probabilità di transizioni multiple nell'intervallo Δt_1 può essere espressa come:

$$\begin{aligned}
 p_{mult} &= 1 - \frac{e^{-\lambda_w \Delta t_1} \cdot (\lambda_w \Delta t_1)^0}{0!} - \frac{e^{-\lambda_w \Delta t_1} \cdot (\lambda_w \Delta t_1)^1}{1!} = \\
 &= 1 - e^{-\lambda_w \Delta t_1} (1 + \lambda_w \Delta t_1)
 \end{aligned} \tag{5}$$

La probabilità p_{mult} è una funzione monotona crescente di Δt_1 : così, come è previsto, più stretto è l'intervallo temporale, più piccolo è p_{mult} e più accurate sono le stime. Tuttavia, la scelta di Δt_1 dipende anche dalla discretizzazione spaziale del dominio, infatti, dato che $\lambda_w = N_y \cdot q_w / (\theta_w h_w)$, la probabilità p_{mult} cresce con il crescere del numero N_y dei compartimenti in cui è discretizzato il dominio, per cui, richiedendo una riduzione dell'intervallo Δt_1 , si ha un ulteriore aumento dei tempi computazionali.

La Figura 7 mostra le stime del flusso di uscita per $N = 10 \times 2$ compartimenti del fusto ottenuti simulando $M = 5 \cdot 10^5$ particelle con $\Delta t_1 = 8.30 \cdot 10^{-3}$ y ($p_{mult} = 2.43 \cdot 10^{-5}$, linea continua), $\Delta t_1 = 1.25 \cdot 10^{-1}$ y ($p_{mult} = 5.10 \cdot 10^{-3}$, linea punteggiata) e $\Delta t_1 = 1$ y ($p_{mult} = 2.05 \cdot 10^{-1}$, linea tratteggiata). La fine dell'ultima simulazione si trova oltre l'orizzonte temporale $T = 3 \cdot 10^3$ y. Per questa discretizzazione spaziale del dominio, risultati soddisfacenti possono essere ottenuti quando $p_{mult} < 10^{-4}$, e $\Delta t_1 < 1.70 \cdot 10^{-2}$ y. E' possibile notare che, per crescenti valori di Δt_1 la fine temporale del flusso cresce e, di conseguenza, l'ampiezza del flusso di uscita decresce: questo è dovuto al fatto che, con probabilità crescente, lo schema non-lineare ferma le particelle che altrimenti dovrebbero migrare più velocemente compiendo transizioni multiple nello stesso Δt_1 ; in questa maniera, artificialmente, viene rallentato il processo.

In conclusione, la larghezza dell'intervallo temporale influisce sulla capacità dei processi stocastici simulati attraverso lo schema Monte Carlo non-lineare per tenere conto delle interazioni dei vari cammini casuali. Una generica linea guida per scegliere un adeguato valore di Δt_1 può essere quella di derivare le espressioni delle probabilità delle transizioni multiple in funzione del caso specifico nello stesso intervallo temporale, e poi scegliere le loro soglie attraverso una procedura di tipo "trial



and error” fino alla convergenza delle stime. Sfortunatamente, i corrispondenti valori degli intervalli temporali implicano tempi computazionali molto elevati, che per le simulazioni mostrate sopra, vanno dalle decine di minuti a parecchie ore, utilizzando un computer con una CPU di 2 Ghz Intel Dual Core con 2Gb di RAM.

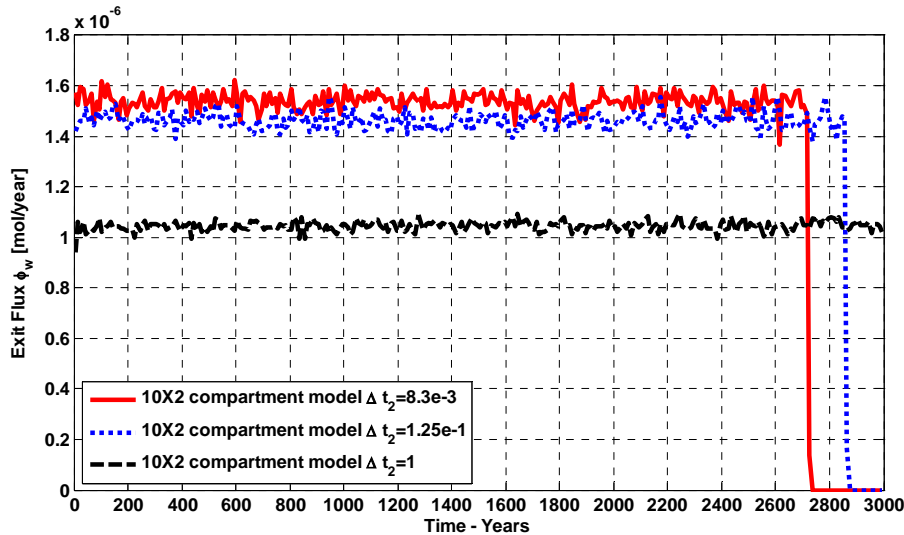


Figura 7: Stime del flusso in uscita dal fusto del ^{239}Pu con un rilascio nel limite di solubilità di $C_{sl} = 2.3 \cdot 10^{-7}$ [mol/l] e $N = 10 \times 2$, $\Delta t_1 = 8.30 \cdot 10^{-3}$ y (linea continua), $\Delta t_1 = 1.25 \cdot 10^{-1}$ y (linea punteggiata) e $\Delta t_1 = 1$ y (linea tratteggiata).

2C Problemi statistici

L'effetto del numero delle particelle simulate M sulla varianza delle stime, viene esaltato nello schema delle simulazioni non-lineari nel limite di solubilità. Infatti, l'esistenza di una soglia della concentrazione dei radionuclidi in ogni compartimento della fase liquida implica che il numero massimo di particelle in un compartimento ad ogni intervallo temporale sia

$$M_{sl} = \text{ceil} \left(\frac{V_w \theta_w C_{sl} \cdot M}{Q_0 N_y} \right),$$

dove $\text{ceil}(x)$ arrotonda il valore di x al numero intero vicino più grande per ottenere, così, un numero intero di particelle in accordo con lo schema di simulazione. Il

valore di M può diventare molto piccolo, producendo i) delle potenziali fluttuazioni statistiche molto grandi ed ii) una poco accurata rappresentazione del limite di solubilità.



La Figura 8 mostra le stime del flusso in uscita dal fusto per $N = 10 \times 2$ compartimenti del dominio ottenuti simulando $M = 5 \cdot 10^5$ ($M_{sl} = 220$ particelle, linea continua), $M = 5 \cdot 10^4$ ($M_{sl} = 22$ particelle, linea tratteggiata) e $M = 10^4$ ($M_{sl} = 5$ particelle, linea punteggiata) particelle con $\Delta t_1 = 8.30 \cdot 10^{-3}$ y.

Come previsto, anche se le stime hanno un andamento regolare utilizzando la discretizzazione ausiliaria con $\Delta t_2 = 10$ y, le ultime due simulazioni mostrano grandi fluttuazioni statistiche, mentre l'ultima simulazione mostra anche una diminuzione dei tempi di uscita della curva, dovuta ad una rappresentazione più grossolana del limite di solubilità C_{sl} ; infatti, il valore (non arrotondato) di M_{sl} è approssimativamente di 4.39, mentre il limite assegnato è di 5 particelle. Così, sovrastimando il limite di solubilità, si producono dei valori medi più grandi del flusso in uscita ed uno svuotamento del fusto più veloce. Questi effetti non sono stati evidenziati nelle stesse simulazioni effettuate senza considerare il limite di solubilità (Figura 9).

Questi problemi possono essere evitati verificando che il limite di solubilità sia rappresentato in ogni compartimento da un numero sufficiente di particelle. Per questa discretizzazione del dominio di migrazione, un risultato soddisfacente può essere ottenuto approssimativamente quando $M_{sl} > 15$ particelle.

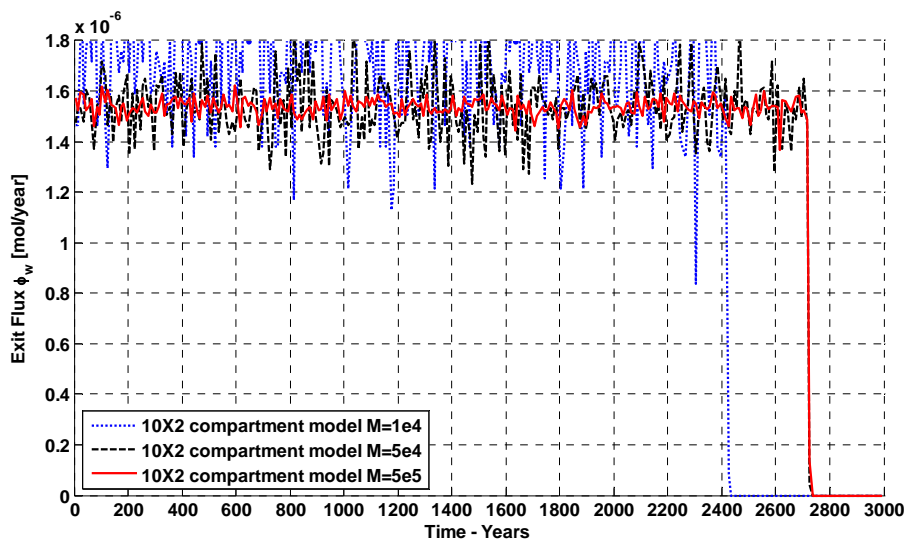


Figura 8: Stime del flusso in uscita dal fusto del ^{239}Pu con un rilascio nel limite di solubilità di $C_{sl} = 2.3 \cdot 10^{-7}$ [mol/y], $N = 10 \times 2$ e $\Delta t_1 = 8.30 \cdot 10^{-3}$ y. $M = 5 \cdot 10^5$, (linea continua), $M = 5 \cdot 10^4$, (linea tratteggiata) e $M = 10^4$ (linea punteggiata) particelle.

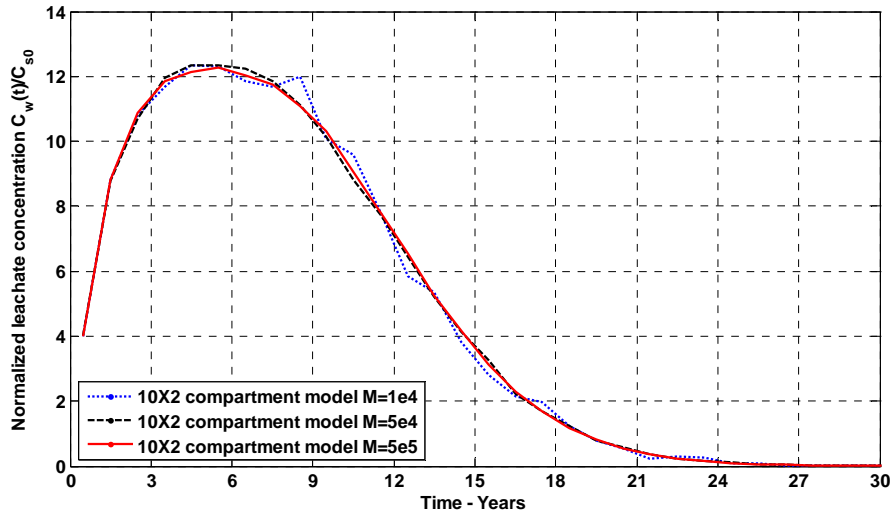


Figura 9: Stime del flusso in uscita dal fusto del ^{239}Pu con un rilascio senza limite di solubilità e $N = 10 \times 2$ e $\Delta t_1 = 8.30 \cdot 10^{-3}$ y. $M = 5 \cdot 10^5$ (linea continua), $M = 5 \cdot 10^4$ (linea tratteggiata) e $M = 10^4$ (linea punteggiata) particelle.

3 Conclusioni

In questa Sezione, abbiamo presentato uno schema di simulazione Monte Carlo per i processi non-lineari del rilascio del contaminante radioattivo. Una discretizzazione temporale ausiliaria è stata introdotta per aumentare i campioni statistici e migliorare la robustezza delle stime. Il fenomeno non-lineare del rilascio con limite di solubilità è stato considerato come esempio.

Oltre al ben noto problema della dispersione numerica, dovuto alla discretizzazione spaziale del dominio, sono emerse le seguenti questioni dovute alla non-linearità del rilascio con limite di solubilità: i) il numero degli intervalli nella discretizzazione del tempo ed ii) il numero delle particelle simulate.

La scelta dei valori di questi parametri richiede la soluzione di un problema di ottimizzazione mirata a minimizzare sia i tempi computazionali sia gli errori nelle stime. In questo lavoro, questo problema è stato affrontato attraverso una procedura empirica di tipo “*trial and error*”, guidata da alcune considerazioni fisiche sugli effetti non-lineari; un ulteriore approfondimento potrebbe



focalizzare l'attenzione sull'incorporamento dello schema non-lineare Monte Carlo in un algoritmo evolutivo avanzato ed ottimizzato. I grandi tempi computazionali necessari per ripetute simulazioni Monte Carlo potrebbero anche spingere allo sviluppo di adeguati meta-modelli per approssimare le stime del rilascio sulla base delle caratteristiche geometriche e fisiche del processo di migrazione dei radionuclidi.



2.3. “Ibridizzazione” con modelli deterministici per il trasporto di contaminanti nelle acque di sottosuolo

Un deposito di rifiuti radioattivi è formato sia da barriere artificiali che naturali (geologiche). Queste hanno lo scopo di prevenire il rilascio dei radionuclidi e/o di ritardare la loro migrazione nella falda acquifera ed eventualmente nella biosfera [1][28][29]. In generale, nel caso di un deposito per rifiuti a bassa e media attività si fa affidamento soprattutto sulle barriere artificiali (barriere ingegneristiche), mentre per i depositi di rifiuti ad alta attività e lunga vita le barriere di riferimento sono quelle naturali (depositi geologici).

Come discusso nei precedenti rapporti, una *Performance Assessment* (PA) quantitativa è tipicamente sviluppata per creare le confidenze richieste nella funzione di contenimento in sicurezza delle scorie nucleari di un deposito. La PA viene sviluppata prendendo in considerazione gli scenari incidentali che potrebbero portare ad un rilascio del materiale radioattivo fuori dal deposito e conseguentemente raggiungere le principali vie d’ingestione della popolazione. La valutazione tipicamente comporta: i) l’identificazione degli scenari che influenzano il comportamento del deposito durante la sua vita; ii) la stima delle probabilità con cui questi scenari possono verificarsi; iii) la stima delle conseguenze associate al rilascio dei radionuclidi, espresse tipicamente in termini di dose assorbita dal gruppo critico; iv) la valutazione delle incertezze associate alle stime precedentemente menzionate [2][3][4].

In questo contesto, l’analisi quantitativa e concettuale dei processi di migrazione dei radionuclidi attraverso le barriere e le dinamiche che governano la diffusione dei radionuclidi nella geosfera sino alle principali vie di esposizione assumono un ruolo fondamentale.

La mancanza di una precisa conoscenza dei processi fisici coinvolti e dei valori dei parametri associati non consentono una completa descrizione dei (a) meccanismi di rilascio dei radionuclidi dalla matrice cementizia in cui sono incapsulati, e (b) dei processi di trasporto attraverso le barriere ingegneristiche e naturali. Un approccio probabilistico, allora, sembra essere percorribile per poter trattare le incertezze provenienti dall’analisi. Questo richiede un effettivo accoppiamento dei modelli probabilistici utilizzati nell’analisi del rilascio dal deposito e della conseguente migrazione dei radionuclidi nella geosfera.



2.3.1. Un modello integrato di *Performance Assessment* per un deposito di scorie radioattive

Spesso, l'informazione accessibile non consente una chiara comprensione dei meccanismi che governano il rilascio dei radionuclidi fuori dalla matrice cementizia in cui sono incapsulati e dei processi di trasporto attraverso le barriere ingegneristiche. In questi casi, un approccio di *Probabilistic Safety Assessment* può essere necessario per modellare propriamente le incertezze associate [30][31][32][33][34][35]. Questo deve essere opportunamente interfacciato con un' appropriata modellazione del trasporto nella falda acquifera dei radionuclidi rilasciati dal deposito.

In questa Sezione, viene proposto un approccio modellistico che accoppia la stima Monte Carlo delle distribuzioni dei tempi di rottura delle barriere del deposito e l'associato rateo di rilascio dei radionuclidi con un modello dettagliato della risoluzione del flusso e del trasporto dei radionuclidi in falda acquifera con i codici MODFLOW e MT3DMS [15][16]. L'obiettivo è quello di fornire uno schema snello e modulare per eseguire puntuali valutazioni delle prestazioni delle barriere ingegneristiche e naturali in uno schema semplificato di calcoli che consente un'analisi relativamente veloce e leggera, offrendo anche la flessibilità necessaria a descrivere con realismo i processi di rottura e di trasporto.

Per facilità di illustrazione e senza perdere in generalità, lo schema di modellazione è stato applicato facendo riferimento ad uno scenario di evoluzione nominale, considerando i processi di degrado delle barriere sia durante la fase di smaltimento dei rifiuti sia dopo la chiusura definitiva del deposito [30][36]. L'andamento della rottura delle barriere ingegneristiche, può essere influenzato dai fenomeni di infiltrazione dell'acqua e di degrado.

La Sezione è organizzata come segue: nel Paragrafo 1 viene introdotto lo schema di modellazione affidabilistico per un sistema a barriere multiple del deposito, con riferimento ad un semplificato caso di deposito superficiale [30]; all'interno di questo schema, viene sviluppato un approccio di simulazione Monte Carlo per stimare il rilascio; nel Paragrafo 2 vengono accoppiati i moduli per il calcolo del rilascio dal deposito e di flusso e trasporto nella falda acquifera con riferimento ad un caso studio; infine, la flessibilità della metodologia viene dimostrata includendo nella modellazione alcuni meccanismi complessi di degradazione delle barriere ingegneristiche; nel Paragrafo 3 sono riportate alcune conclusioni.



Di seguito, viene fatto riferimento ad un progetto tipico di deposito ingegneristico superficiale per lo smaltimento di rifiuti radioattivi a bassa e media attività [30]. Dopo un appropriato condizionamento, i rifiuti sono opportunamente immobilizzati con una speciale malta cementizia (manufatti) e messi in fusti di acciaio speciali (contenitori); i fusti sono disposti su un pavimento di cemento e rinforzati con un materiale appropriato, il quale garantisce stabilità strutturale e migliora la capacità di isolamento; un coperchio in calcestruzzo assicura la protezione a lungo termine contro le infiltrazioni delle acque piovane. Infine, il rilascio finale dei radionuclidi in falda acquifera al di sotto del deposito è ritardato dall'attraversamento della zona insatura. Perciò, le strutture del deposito e il sito naturale nel quale esso è collocato possono essere rappresentate come una sequenza di barriere artificiali e naturali atte a prevenire la contaminazione della falda acquifera dai rifiuti radioattivi ed il successivo rilascio della dose ad un opportuno ben definito gruppo critico.

Il modello affidabilistico considera le barriere ingegneristiche come componenti binari caratterizzati da due stati: *di funzionamento*, se le barriere sono efficaci nell'impedire la migrazione dei radionuclidi, e di *guasto*, se le proprietà di contenimento delle barriere sono deteriorate [30]. La rottura di una barriera è dovuta principalmente all'azione dell'acqua che infiltrandosi nella struttura a causa delle precipitazioni piovose, accelera il processo di degrado della barriera stessa ed il trasporto dei radionuclidi attraverso i pori e/o le fratture del deposito e del sito, verso la falda acquifera. La stima del rilascio dei radionuclidi nelle acque sotterranee si basa sulla rottura sequenziale delle barriere: la rottura del *top cover* (barriera *a*) è dovuta sia all'infiltrazione delle acque piovane sia al suo naturale degrado nel tempo; questo porta al fatto che l'acqua raggiunge i contenitori (barriera *b*) iniziando il processo di corrosione; poi l'acqua interagisce con i manufatti radioattivi (barriera *c*) e per via del fenomeno della lisciviazione i radionuclidi sono trasportati dall'acqua attraverso il *backfill* (barriera *d*) raggiungendo così il *bottom cover* (barriera *e*), la cui rottura permette ai radionuclidi di uscire dal deposito; infine, i radionuclidi sono trasportati attraverso la zona insatura (barriera *f*).

In [30], la rottura della *i*-esima barriera è modellata come un evento stocastico il cui tempo di occorrenza è distribuito secondo una distribuzione esponenziale con rateo costante, λ_i [37]:



$$f_i(t) = \lambda_i e^{-\lambda_i t} \quad i = a, b, \dots, f. \quad (6)$$

E' possibile interpretare il modello probabilistico di guasto del deposito come un modello affidabilistico a sei componenti (le barriere) in una configurazione di *stand-by* freddo [37], ad esempio, a ciascun componente è richiesto di adempiere alla sua funzione protettiva nel momento in cui avviene la rottura del componente precedente nella sequenza fisica sopra illustrata. In questo contesto, la distribuzione del tempo di rottura del deposito, ad esempio, la distribuzione del tempo di rilascio dei radionuclidi nella falda acquifera, può essere determinata analiticamente come [30][37]:

$$f_s(t) = \left(\prod_{i=a, \dots, f} \lambda_i \right) \left(\sum_{i=a, \dots, f} \frac{e^{-\lambda_i t}}{\prod_{j \neq i} (\lambda_j - \lambda_i)} \right). \quad (7)$$

Sotto l'ipotesi di un riempimento del deposito costante nel tempo fino ad un certo tempo T [y] di chiusura dell'impianto e trascurando, per semplicità, i radionuclidi generati dalle catene di decadimento di altri elementi radioattivi presenti nel deposito, il rateo di rilascio R_d [Bq/y] di un solo tipo di radionuclide nelle acque sotterranee, durante il periodo di smaltimento, è [30]:

$$R_d(t) = S_d(t) \cdot f_s(t) \quad (8)$$

dove $S_d(t) = \frac{Q}{\lambda_r} (1 - e^{-\lambda_r t})$ [Bq] rappresenta l'inventario del radionuclide all'istante di tempo t dopo l'inizio delle procedure di smaltimento (l'indice d sta per 'disposal', smaltimento in inglese), Q è il rateo di smaltimento del radionuclide [Bq/y] e λ_r è il rateo di decadimento radioattivo del tipo di radionuclide considerato. Dall'altra parte, il rateo di rilascio R_p [Bq/y] in falda dopo la chiusura del deposito al tempo T è:

$$R_p(t) = S_p(t) \cdot f_s(t+T) \quad (9)$$



dove $S_p(t) = S_d(T) \cdot e^{-\lambda_r t}$ [Bq] è l'inventario del radionuclide all'istante di tempo t dopo la chiusura dell'impianto (l'indice p sta per 'post-closure' in inglese).

Altri meccanismi che riguardano il degrado delle barriere protettive possono essere presi in considerazione per la stima dei rilasci dei radionuclidi in falda acquifera e della conseguente dose assorbita dal gruppo critico; questo può modificare le assunzioni riguardo le distribuzioni esponenziali dei tempi di rottura. Ciò si risolve in una soluzione computazionalmente onerosa delle dosi e delle distribuzioni dei tempi di rottura.

Per superare i problemi associati alla difficoltà di trovare una soluzione analitica del modello probabilistico del deposito, adottiamo un approccio basato sul metodo di simulazione Monte Carlo. L'orizzonte temporale T_{miss} (tempo di simulazione) durante il quale è previsto che il deposito mantenga la sua integrità e compia la sua funzione di contenimento, è discretizzato in N_t canali di larghezza Δt ed un contatore di stato è associato ad ogni canale $j = 1, 2, \dots, N_t$; un grande numero, N , di evoluzioni del deposito sono state poi simulate mediante il campionamento dei tempi di rottura di ciascuna barriera dalle relative distribuzioni. In ogni simulazione, il contatore $Cntr(j)$ associato al canale temporale j entro il quale avviene la rottura dell'impianto di smaltimento è aumentato di uno. Alla fine delle N simulazioni, la funzione di densità di probabilità (pdf) $f_s(t)$ del tempo di rottura del deposito può essere stimata come:

$$f_s(t) \approx \frac{Cntr(j)}{N \cdot \Delta t} = \hat{f}_s(t) \quad j \cdot \Delta t < t < (j+1) \cdot \Delta t, \quad (10)$$

mentre i corrispondenti rilasci fuori dal deposito prima e dopo la sua chiusura possono essere stimati rispettivamente come $\hat{R}_d(t) = S_d(t) \cdot \hat{f}_s(t)$ e $\hat{R}_p(t) = S_p(t) \cdot \hat{f}_s(t+T)$.

Le concentrazioni dipendenti dal tempo [Bq/m³] dei radionuclidi che costituiscono l'input nel sistema della falda acquifera prima ($C_d(x,t)$) e dopo ($C_p(x,t)$) la chiusura del deposito, possono essere valutate attraverso un appropriato codice di calcolo del flusso e del trasporto. Per semplicità,



abbiamo utilizzato il pacchetto di simulazione MODFLOW [15][16] con cui è stato modellato un acquifero 1-D con un dominio discretizzato in N_{gw} celle di lunghezza l .

La stima attraverso la simulazione Monte Carlo del rilascio dal deposito ed il modello di falda acquifera sono stati collegati imponendo una condizione al contorno tale per cui per ogni intervallo temporale Δt , la concentrazione nella cella sorgente (per esempio, la cella dove è posizionato il deposito) viene posta uguale a:

$$C_{source}(x_{source}, t) = \frac{\hat{R}_{d,p}(t) \cdot \Delta t}{l \cdot A}, \quad (11)$$

dove A è la sezione trasversale della falda acquifera.

Infine, considerando uno scenario che porti all'ingestione d'acqua potabile, la dose $D(x, t)$ [mSv/y] ad un individuo del gruppo critico si può stimare come:

$$D(x, t) = C_{d,p}(x, t) \cdot \gamma \cdot \delta, \quad (12)$$

dove $C_{d,p}$ è la concentrazione prima e dopo la chiusura del deposito, γ (l/giorno) è la quantità media d'acqua potabile consumata all'anno e δ (mSv/Bq) è il fattore di conversione di dose per ingestione [30][43].

2 Risultati

L'approccio di simulazione Monte Carlo proposto nel precedente Paragrafo è stato applicato al caso studio [30] considerando una sola specie di radionuclide, il ^{239}Pu . Questo particolare radionuclide è stato scelto poiché rappresenta un rischio a lungo termine per l'ambiente, data la sua radioattività e tossicità. Ovviamente, la stima del rilascio dell'attività radioattiva, in termini di concentrazione, è prevista che sia mantenuta al di sotto dei limiti di sicurezza prescritti dalla IAEA [1][30]. In [30] le barriere ingegneristiche e naturali sono state caratterizzate da distribuzioni esponenziali dei tempi di rottura con i parametri di Tabella 2.



In uno scenario realistico, l'andamento dei tempi di rottura delle barriere ingegneristiche potrebbe essere influenzato da altri fenomeni in aggiunta all'infiltrazione delle acque ed al semplice degrado. Queste dinamiche di degradazione strutturale possono essere incluse nel modello attraverso un'adeguata scelta delle distribuzioni di probabilità, per esempio, sulla base di effettivi esperimenti [36].

Per i nostri propositi, il degrado per invecchiamento delle barriere ingegneristiche può essere descritto attraverso la distribuzione Weibull [37]:

$$f_i(t) = \alpha_i \beta_i t^{\alpha_i - 1} e^{-\beta_i t^{\alpha_i}} \quad i = a, b, \dots, e \quad (13)$$

rendendo impraticabile l'approccio semi-analitico proposto in [30].

La Tabella 3 mostra i valori dei parametri α_i, β_i usati nella simulazione. La scelta delle densità di probabilità Weibull privilegia tempi di rottura più brevi rispetto a quelli delle densità di probabilità esponenziali (6).

Tabella 2: Parametri stocastici di rottura delle barriere ingegneristiche e naturali del deposito [30]

Tipo	Barriera	Rateo di rottura λ_r (1/y)
a	Top cover	0.04
b	Waste container	0.08
c	Waste form	0.0034
d	Backfill	0.034
e	Bottom cover	0.067
f	Unsaturated zone	$1/R_d T_r$
<i>R</i> è il fattore di ritardo e $T_r = z/U_z$ (Tabella 5) è il tempo di attraversamento		

Tabella 3: Parametri della distribuzione Weibull dei tempi di rottura

Tipo	Barriera	α	β (1/y)
a	Top cover	1.3	0.04
b	Waste container	1.3	0.08
c	Waste form	1.3	0.0034
d	Backfill	1.3	0.034
e	Bottom cover	1.3	0.067
f	Unsaturated zone	1	$1/R_d T_r$
<i>R_d</i> = fattore di ritardo; <i>T_r</i> = tempo di attraversamento			

E' stata eseguita una simulazione Monte Carlo con $N = 30 \cdot 10^6$ differenti evoluzioni del deposito



su un tempo di simulazione di $T_{miss} = 10^7$ y. Quest'ultimo è stato diviso in $N_t = 10^6$ canali temporali con larghezza $\Delta t = 10$ y. Alla fine degli N cammini casuali simulati, i valori accumulati nei contatori consentono di stimare la distribuzione di probabilità, $f_s(t)$, dei tempi di rottura del deposito (10) ed i corrispondenti rilasci $R_d(t)$ (8) e $R_p(t)$ (9) (Figura 10).

Trascurando per semplicità i radionuclidi del ^{239}Pu che sono generati dalle catene di decadimento degli altri radionuclidi presenti nel deposito, $C_d(x,t)$ e $C_p(x,t)$ [Bq/m^3] sono stimati attraverso una simulazione 1-D del trasporto in falda acquifera con le condizioni al contorno date dal rilascio $R_d(t)$, prima della chiusura del deposito, e $R_p(t)$, dopo la chiusura dello stesso. A questo scopo, un dominio 1-D rappresentante una falda acquifera di lunghezza totale di 3 Km è stato discretizzato in $N_{gw} = 150$ celle, ciascuna di lunghezza $l = 20$ m. Il deposito, assunto come un punto sorgente in accordo con [15], è stato posizionato a 400 m a valle del confine del dominio, per ridurre gli effetti di bordo. Le Tabelle 4 e 5 mostrano i parametri fisici e geometrici usati nella simulazione.

La Figura 11 mostra un accordo soddisfacente tra la dose $D(x,t)$ [mSv/y] (12) assorbita per ingestione d'acqua potabile in un pozzo situato a 1.6 Km di distanza a valle del deposito calcolata con il codice MODFLOW e MT3DMS (linea continua) e quella calcolata con la soluzione semi-analitica 1-D, con sorgente puntiforme, presentata in [30] (linea punteggiata).

La Figura 12 mostra l'evoluzione nel tempo del picco di dose, stimato con il presente metodo, in 5 differenti pozzi, il primo è stato posizionato a 400 m a valle del deposito, mentre, gli altri 4 a 400 m l'uno dall'altro. La significativa diminuzione del valore del picco di dose è dovuta agli effetti combinati del decadimento radioattivo del ^{239}Pu e dalla sua dispersione durante il trasporto in falda acquifera.

Tabella 4: Parametri dipendenti dal tipo di radionuclide [30]

Nuclide	Tempo di dimezzamento $T_{1/2}$ (y)	Rateo di smaltimento dei rifiuti radioattivi Q (Bq/y)	Gamma di valori per K_d (ml/g)	Valore di riferimento di K_d (ml/g)
^{239}Pu	$2.44 \cdot 10^4$	$1.59 \cdot 10^{10}$	$10^3 - 10^4$	$2 \cdot 10^3$
K_d rappresenta il coefficiente di distribuzione dei radionuclidi per l'argilla				



Tabella 5: Parametri indipendenti dal tipo di radionuclide [30]

Parametro	Valore di riferimento	Unità
Spessore della zona insatura (z)	0.02	m
Velocità di attraversamento della zona insatura (U_z)	$1.157 \cdot 10^{-10}$	m/s
Densità di massa (ρ_b)	$1.7 \cdot 10^6$	g/m^3
Porosità efficace (θ)	0.3	–
Velocità dell'acqua di falda (U_x)	$1.157 \cdot 10^{-6}$	m/s
Sezione trasversale della falda (A)	$1.0 \cdot 10^2$	m^2
Dispersività	1	m
Distanza longitudinale del pozzo dal deposito (x)	$1.6 \cdot 10^3$	m
Fine delle operazioni di smaltimento (T)	50	y
Ingestione d'acqua potabile per anno (γ)	2.2	l/day
Fattore di conversione della dose per ingestione (δ)	$1.57 \cdot 10^{-5}$	mSv/Bq

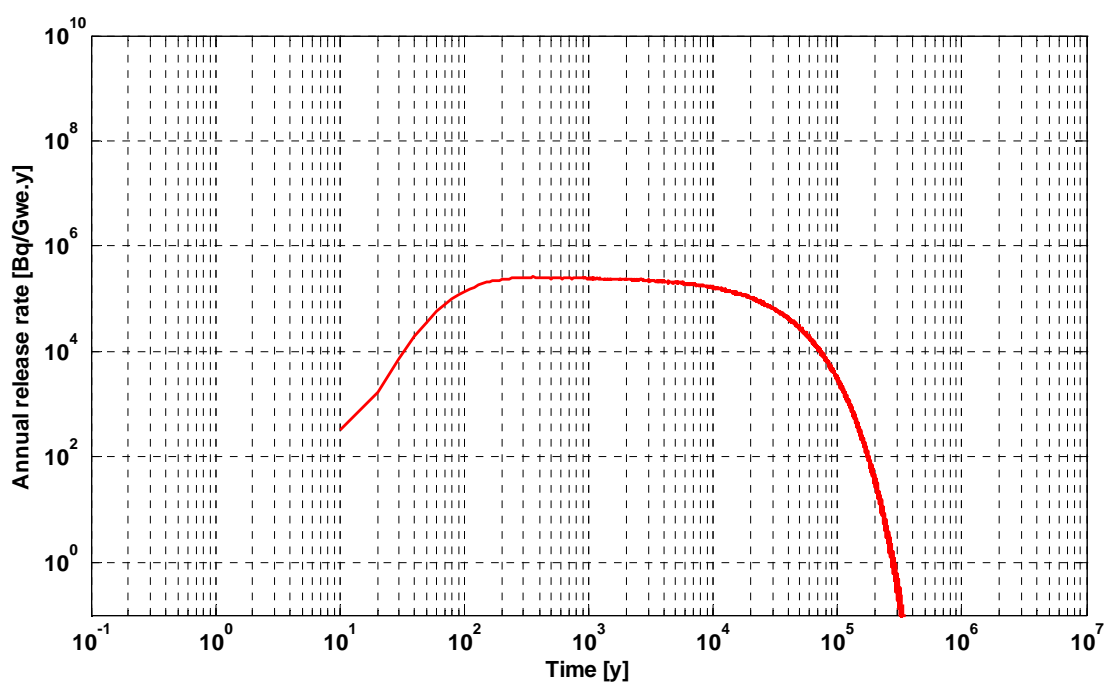


Figura 10: Distribuzione Weibull dei tempi di rottura delle barriere ingegneristiche: rateo di rilascio stimato per il ^{239}Pu .

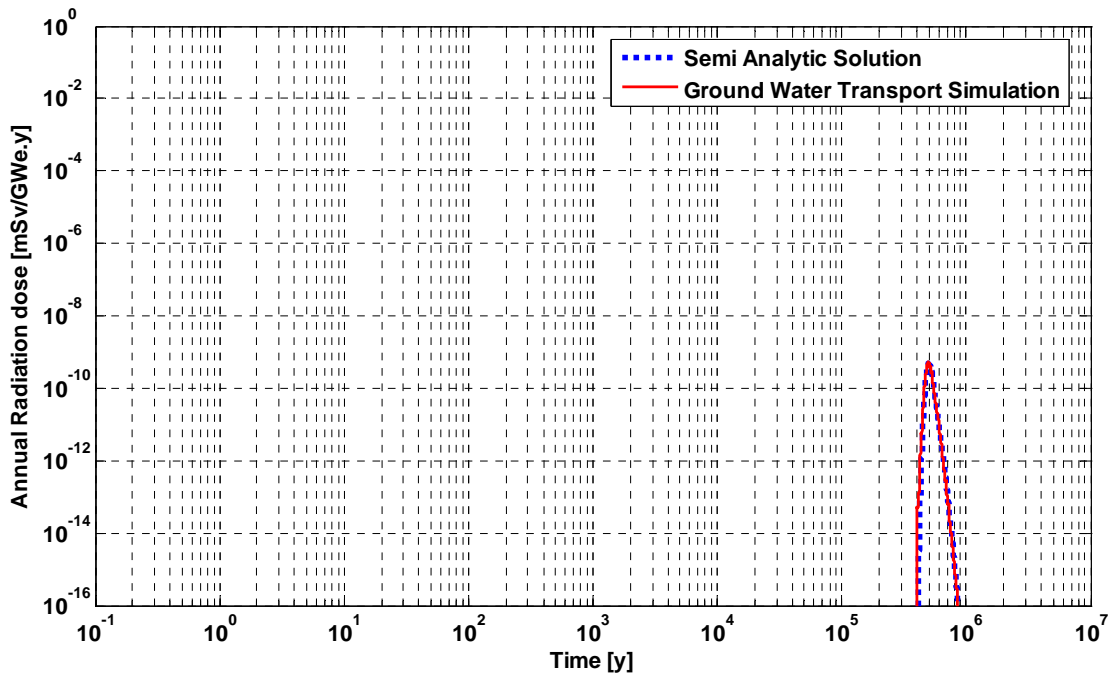


Figure 11: Distribuzione Weibull dei tempi di rottura delle barriere ingegneristiche: dose corrispondente per ingestione d'acqua potabile prelevata in un pozzo sito a 1.6 Km di distanza a valle dell'area del deposito.

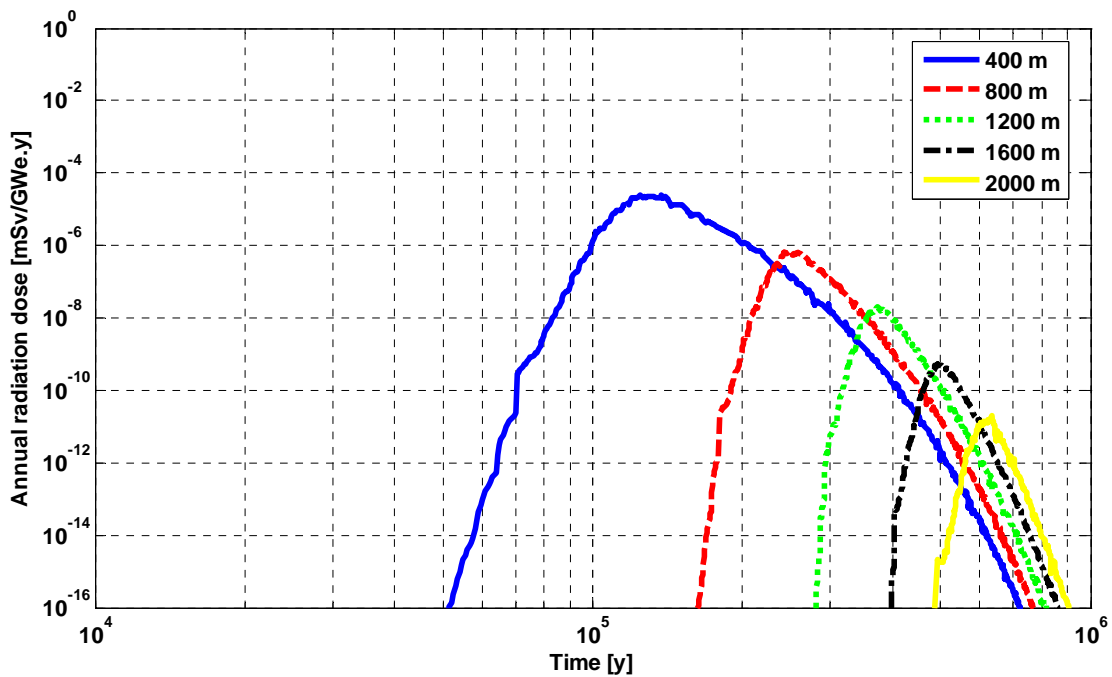


Figure 12: Evoluzione temporale del picco di dose in 5 differenti pozzi situati a differenti distanze dal deposito.

3 Conclusioni

La *Performance Assessment* di un deposito di scorie radioattive mira a verificare la conformità delle dosi attese ad un gruppo di popolazione, definito come critico, ai limiti imposti dalla legge dagli enti regolatori nazionali, prendendo in considerazione le relative incertezze. A questo scopo, sono stati usati dei modelli predittivi per descrivere la migrazione dei radionuclidi attraverso le barriere ingegneristiche, tipicamente dovuta all'infiltrazione delle acque che lisciviando i radionuclidi dalla matrice cementizia in cui sono incapsulati li trasporta attraverso le barriere e conseguentemente nella falda acquifera fino alle principali vie d'ingestione.

La casualità dei processi coinvolti e le incertezze epistemiche associate nella modellazione, possono essere propriamente "catturate", utilizzando uno schema di modellazione probabilistico per la valutazione delle prestazioni di sicurezza delle barriere ingegneristiche e naturali di cui è composto un deposito. Sotto condizioni realistiche, la complessità della modellazione richiesta, rende poco percorribile, se non impossibile, un approccio analitico al problema. Al contrario, la simulazione Monte Carlo offre la flessibilità necessaria per descrivere realisticamente i fenomeni che accadono.

In questa Sezione, è stato accoppiato un modello affidabilistico basato sul metodo Monte Carlo con un codice di risoluzione numerica, MODFLOW e MT3DMS, del flusso e del trasporto dei radionuclidi in falda acquifera per una preliminare valutazione delle prestazioni di sicurezza di un deposito di scorie nucleari. La semplicità del modello ha permesso la facilità di calcolo, mentre la sua flessibilità ha consentito di considerare complessi aspetti fisici di modellazione.

Lo schema di simulazione proposto è stato applicato ad un semplice caso studio preso dalla letteratura, opportunamente modificato per poter considerare il realistico fenomeno di invecchiamento delle barriere del deposito.



2.3.2. Uno schema di simulazione integrato per la *Performance Assessment* dei depositi di scorie radioattive

In questa Sezione, viene proposto un originale schema di modellazione modulare che accoppia un modello a compartimenti di migrazione dei radionuclidi alla scala del deposito basato sul metodo Monte Carlo, chiamato, MASCOT (*Monte Carlo Analysis of Subsurface Contaminant Transport*) [20] con i codici MODFLOW e MT3DMS [15][16], utilizzati nella precedente Sezione.

Le caratteristiche principali dello schema proposto sono: (1) l'uso delle simulazioni Monte Carlo per modellare la migrazione dei radionuclidi all'interno del deposito, consentendo di poter considerare facilmente caratteristiche più realistiche quali, per esempio, geometrie complesse ed eterogeneità; e (2) la possibilità di adottare un codice numerico ampiamente diffuso e testato per fornire delle descrizioni realistiche delle dinamiche del trasporto dei radionuclidi nelle falde acquifere alla scala della geosfera, dal punto in cui vengono rilasciati sino alle possibili vie di assorbimento umano. In più, il livello di dettaglio di descrizione del problema offerto da entrambi i metodi, a spese di un aggiuntivo lieve sforzo modellistico supplementare, permette di utilizzare in maniera più diretta i parametri fisici misurati piuttosto che fare affidamento su delle ipotesi conservative; questo può condurre ad analisi più oggettive, mirate ad identificare i possibili margini di miglioramento nella progettazione del deposito, a patto che sia sempre eseguita un'analisi di propagazione delle incertezze.

Queste caratteristiche sono state evidenziate attraverso l'applicazione ad un realistico, seppur sintetico, caso studio, sviluppato tramite la sintesi delle idee progettuali alla base di un progetto di deposito superficiale italiano [38][39] [43] e delle caratteristiche idrogeologiche reali di un sito di un deposito operativo in Spagna [40].

La Sezione è organizzata nel seguente modo: nel Paragrafo 1 viene illustrato il modello a compartimenti basato sulle simulazioni Monte Carlo per la migrazione dei radionuclidi con riferimento al caso studio [20][38][39]; nel Paragrafo 2, viene descritto l'accoppiamento tra il modello a compartimenti Monte Carlo ed il modello d'analisi per il flusso e trasporto in falda acquifera; nel Paragrafo 3 vengono fornite alcune conclusioni sulle capacità della procedura proposta.



1 Stima del rilascio dei radionuclidi da un deposito superficiale attraverso la simulazione Monte Carlo.

In ciò che segue, viene presentato il modello a compartimenti basato sul metodo Monte Carlo dell'Appendice A [20] con l'applicazione per la stima del rilascio dei radionuclidi da un progetto concettuale di deposito superficiale studiato da ENEA [38]. Il progetto ha similarità con quello attualmente in funzione ad El Cabril, Spagna [40].

E' stata considerata una rappresentazione mono-dimensionale del deposito lungo la direzione verticale. Per uno scopo dimostrativo, il flusso ed il trasporto della falda acquifera sono descritti in un dominio bi-dimensionale su un piano orizzontale.

Le principali strutture di contenimento di un impianto di smaltimento sono i fusti, i moduli o *containers*, le celle e le unità di smaltimento; queste costituiscono un insieme di barriere multiple atte a contrastare la filtrazione dell'acqua e la migrazione dei radionuclidi. I fusti (Figura 13, sinistra) consistono in dei contenitori d'acciaio in cui il materiale radioattivo è incapsulato in una matrice solida di calcestruzzo. Il diametro del fusto è di 0.791 m e la sua altezza è di 1.1 m, per una capacità volumetrica totale di circa 400 l. Il modulo, contenente 6 fusti (Figura 13, destra), è una cassa di calcestruzzo, chiusa e sigillata con un tetto di calcestruzzo; lo spazio vuoto tra un fusto e l'altro è riempito da un materiale speciale, cioè il grout. Le dimensioni esterne del modulo sono: 3.05 m di lunghezza, 2.09 m di larghezza e 1.7 m d'altezza, mentre le dimensioni interne sono: 2.75 m di lunghezza, 1.79 m di larghezza e 1.37 m d'altezza. I moduli sono inseriti in matrici di $5 \times 6 \times 8$ in celle di calcestruzzo costruite appena sotto il naturale piano di campagna, ma sopra il livello normale della falda acquifera (Figura 14). Quindi, l'unità di smaltimento è una struttura di calcestruzzo che incorpora una fila di 6 - 10 celle, mentre la totalità del deposito in generale è costituita da alcune unità di smaltimento, tipicamente disposte in file parallele, in cui ognuna di esse rappresenta un sistema indipendente che può essere costruito e gestito individualmente senza interferire con le altre unità.



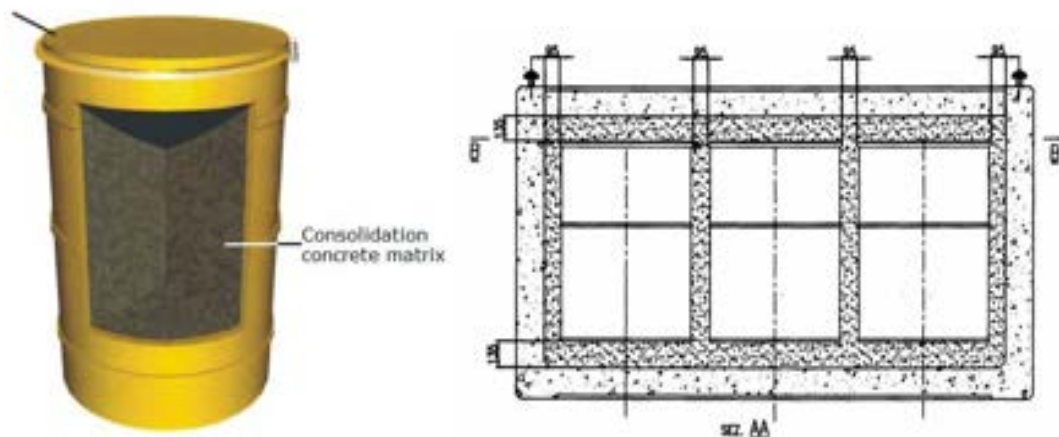


Figura 13: Progetto concettuale del fusto (sinistra) e del modulo (destra) [17].

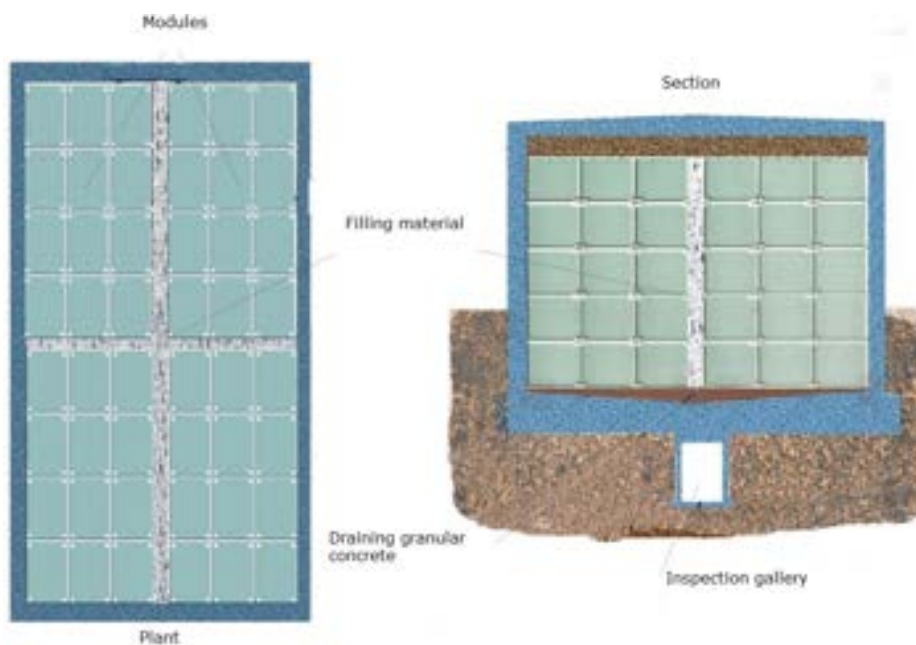


Figura 14: Disposizione di 5x6x8 moduli in una cella [17].

Senza perdere in generalità, abbiamo fatto le seguenti assunzioni semplificative [38]: i) i moduli sono identici, ii) il trasporto di massa è prevalentemente verticale e iii) è presente una simmetria nel processo di diffusione laterale. La stima della probabilità del rilascio nella zona insatura al di sotto del deposito può essere dunque ridotta ad un problema mono-dimensionale di stima del rilascio da una sola colonna di cinque moduli identici

La colonna verticale del deposito è rappresentata da un vettore mono-dimensionale di 4 compartimenti. Le transizioni dei radionuclidi attraverso i compartimenti sono descritte

stocasticamente. Sotto l'ipotesi che il processo di migrazione sia Markoviano, i ratei di transizione costanti possono essere identificati, per esempio, comparando le equazioni che governano il modello con quelle classiche del modello di advezione/dispersione [41]. Poichè le caratteristiche del trasporto possono essere non-Fickiane, altri tipi di distribuzioni possono essere usati per tenere in considerazione la complessità dei processi che possono essere osservati. In questi casi, i parametri più rilevanti al trasporto dovrebbero essere stimati attraverso analisi dati dettagliate e modelli con scale temporali e spaziali a cui avviene il processo [6].

Nello schema di modellazione adottato, ogni compartimento corrisponde ad un modulo della colonna, con l'eccezione del modulo più in alto, che non viene attraversato dai radionuclidi rilasciati dagli altri moduli e servendo solo come sorgente per i moduli inferiori [38].

Ad ogni compartimento è stata assegnata una sorgente di radionuclidi (S), la cui distribuzione dei tempi coincide con quella del rilascio del modulo superiore. La distribuzione dei tempi di transizione (anche indicata come *crossing time*, CT) delle particelle radionuclidi al prossimo compartimento può essere ragionevolmente assunta uguale alla distribuzione dei tempi che i radionuclidi impiegano per'attraversare un modulo dalla parte superiore alla parte inferiore. La rappresentazione concettuale alla base di questo schema è mostrata in Figura 15.

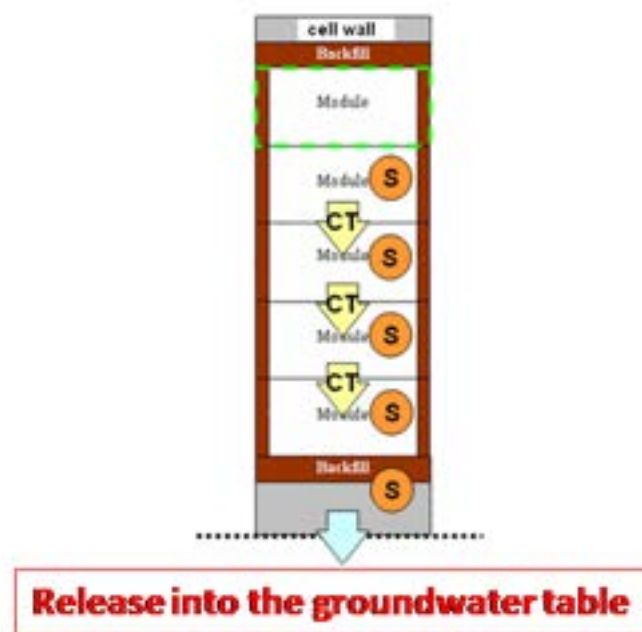


Figura 15: Schema concettuale del modello a compartimenti proposto alla scala del deposito; un compartimento è stato associato ad un singolo modulo, escludendo il primo. S=sorgente; CT= *crossing time*. La migrazione dei radionuclidi avviene prevalentemente nella direzione verticale.



Il termine sorgente dei moduli e le distribuzioni dei tempi di transizione (*crossing time*) sono stimati attraverso delle simulazioni numeriche di dettaglio eseguite con il codice Monte Carlo MASCOT [17][42].

La migrazione di un grande numero di particelle di ^{239}Pu attraverso un modulo è stato simulato sulla base delle funzioni delle distribuzioni di probabilità che descrivono i processi, tenendo in considerazione le proprietà chimico-fisiche dei radionuclidi e del sistema ospitante [12]. Lo schema di simulazione permette di considerare geometrie complesse ed eterogeneità nelle proprietà chimico-fisiche del mezzo attraverso cui le particelle sono dislocate. La Figura 16 raffigura una griglia mono-dimensionale discretizzata in 3500 celle, adottata per caratterizzare la struttura del modulo. La distribuzione iniziale dei radionuclidi nella matrice cementizia dove sono incapsulati è assunta essere uniforme. La stima del termine di sorgente e la distribuzione dei tempi di transizione sono riportati in Figura 17. Questi grafici sono stati ottenuti simulando la migrazione di 5500 particelle per garantire la convergenza statistica dei risultati.

	1
Concrete	850
	851
Backfill	1525
	1526
Waste Drum	
	2075
	2076
Backfill	2750
	2751
Concrete	3500

Figura 16: Discretizzazione mono-dimensionale del modulo.

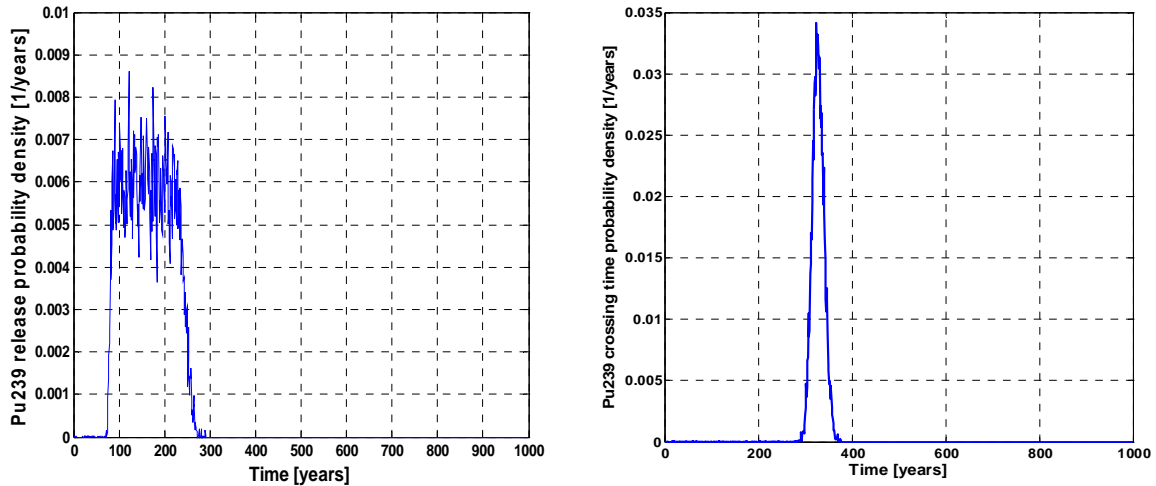


Figura 17: Funzione di densità di probabilità del rilascio del ^{239}Pu dal modulo (sinistra) e funzione di densità di probabilità dei tempi di attraversamento del ^{239}Pu di un modulo (destra).

Il termine di sorgente e le distribuzioni dei tempi di transizione descritti sopra non consentono di fare affidamento sulla rappresentazione classica Markoviana della migrazione dei radionuclidi attraverso i compartimenti della colonna del deposito. Questo rende obbligatoria l'adozione di schemi di approssimazione numerica per stimare le probabilità, $P_n(t)$, che un radionuclide cada nel compartimento n al tempo t , $n = 1, 2, \dots, N + 1$ ($N + 1$ indica il compartimento appartenente alla falda acquifera). Come visto nella Sezione precedente, la simulazione Monte Carlo offre una praticabile alternativa per stimare le probabilità, $P_n(t)$ e, conseguentemente, la funzione della densità di probabilità di rilascio dei radionuclidi nel sistema della falda acquifera, $pdf_{out}(t)$. Il processo di migrazione stocastica di un grande numero, M , di particelle radionuclidi nei 4 compartimenti è stato simulato campionando ripetutamente i) la densità di probabilità della sorgente che genera i radionuclidi in ogni compartimento, e ii) la distribuzione di probabilità delle loro transizioni attraverso i compartimenti.

Il cammino casuale di ogni radionuclide viene simulato o fino a quando la particella esce dal dominio nell' $N + 1$ -esimo compartimento, rappresentante "l'ambiente", che è uno stato assorbente da cui le particelle non possono più uscire, o fino a quando la vita della particella non supera l'orizzonte temporale T dell'analisi. Il tempo di simulazione T è discretizzato in N_t intervalli di tempo uguali; un contatore $Count(n, k)$ è stato associato ad ogni compartimento $n = 1, 2, \dots, N + 1$ e ad ogni intervallo di tempo $k = 1, 2, \dots, N_t$. Durante la simulazione, il contatore $Count(n, k)$ viene

aumentato di un'unità se il radionuclide occupa, durante il suo cammino casuale, il compartimento n al tempo k . Alla fine della simulazione degli M cammini casuali delle particelle radionuclidi, i valori accumulati nei contatori permettono di stimare la probabilità dipendente dal tempo $P_n(k)$ di occupazione di un compartimento come:

$$P_n(k) \cong \frac{\text{Count}(n,k)}{M}. \quad (14)$$

In maniera analoga, la funzione densità di probabilità può essere stimata come:

$$pdf_{out}(t) \cong \frac{\text{Count}(N+1,k)}{M \cdot \Delta t}; \quad k\Delta t < t < (k+1)\Delta t. \quad (15)$$

Qualora le ipotesi sopra elencate siano rilassate, non si può più assumere che la migrazione dei radionuclidi avvenga in un modello a compartimenti mono-dimensionale. Tuttavia, il modello concettuale può facilmente essere esteso a sistemi a due o tre dimensioni, seppur con costi computazionali maggiori, principalmente dovuti ad un' applicazione ripetuta del codice MASCOT per stimare i termini sorgenti e le distribuzioni dei tempi di attraversamento associati a moduli non identici.

Per i risultati quantitativi, qui presentati, la stima del rilascio dalla colonna del deposito è stata eseguita attraverso una simulazione Monte Carlo di $M = 5500 \cdot 5 = 27500$ particelle del radionuclide del ^{239}Pu . E' stato verificato che questo numero di particelle permette di ottenere la convergenza statistica delle quantità d'interesse stimate. Le particelle sono inizialmente distribuite omogeneamente tra i compartimenti della colonna e sono rilasciate in accordo con la distribuzione della sorgente. Inoltre, questo particolare radionuclide è stato scelto perché rappresenta, come già sottolineato nel presente rapporto, un rischio a lungo termine per l'ambiente a causa della sua radioattività ($T_{1/2} = 2.411 \cdot 10^4$ y) e tossicità.

I tempi di transizione della particelle tra un compartimento e l'altro sono campionati dalla distribuzione dei tempi di attraversamento (CT) del modulo. L'orizzonte temporale $T = 1000$ y è diviso in $N_t = 1000$ intervalli temporali di larghezza uniforme $\Delta t = 1$ y. Per semplicità, abbiamo



adottato le ipotesi conservative che i) l'azione protettiva del tetto e della pavimentazione di calcestruzzo e del materiale di riempimento del modulo e della cella possa essere trascurata; ii) l'intera colonna sia satura d'acqua e sia applicato un battente idraulico costante all'estremità superiore del modulo più alto di 0.15 m, cosicchè il battente idraulico all'estremità superiore della colonna è $h(z=5 \cdot 1.7 \text{ m}) = 5 \cdot 1.7 + 0.15 = 8.65 \text{ m}$; iii) il battente idraulico all'estremità inferiore della colonna sia $h(z=0) = 0$; iv) ogni modulo abbia un gradiente idraulico costante di $\Delta h / \Delta z = 1.0176$, dove $\Delta h = 8.65 \text{ m}$ e $\Delta z = 5 \cdot 1.7 \text{ m} = 8.5 \text{ m}$ è l'altezza della colonna; v) il decadimento radioattivo del ^{239}Pu e la generazione di altri radionuclidi proveniente dalla sua catena di decadimento siano trascurati e vi) la migrazione del ^{239}Pu avvenga sotto le ipotesi di isoterma lineare [38]; vii) la migrazione dei radionuclidi del ^{239}Pu nei moduli del deposito sia modellata trascurando il meccanismo del rilascio con limite di solubilità e viii) che il processo del trasporto nella forma colloidale del ^{239}Pu non venga preso in considerazione nella modellazione. Il codice MASCOT consente di considerare anche questi ultimi processi (come specificato in [17]), e le ipotesi sopra esposte sono state adottate per semplicità.

La probabilità di rilascio dal dominio a 4 compartimenti, (colonna dei 5 moduli) è mostrata nella Figura 18. I cinque picchi rappresentano il rilascio dei cinque moduli ritardati dall'attraversamento del compartimento inferiore. Il primo picco è il contributo inalterato del rilascio dell'ultimo modulo inferiore della colonna. Gli effetti macroscopici della fila dei moduli sono i) il progressivo ritardo dei rilasci nella zona insatura sotto il deposito e ii) il progressivo allargamento dei rilasci dovuti ai processi di diffusione lungo la direzione verticale.



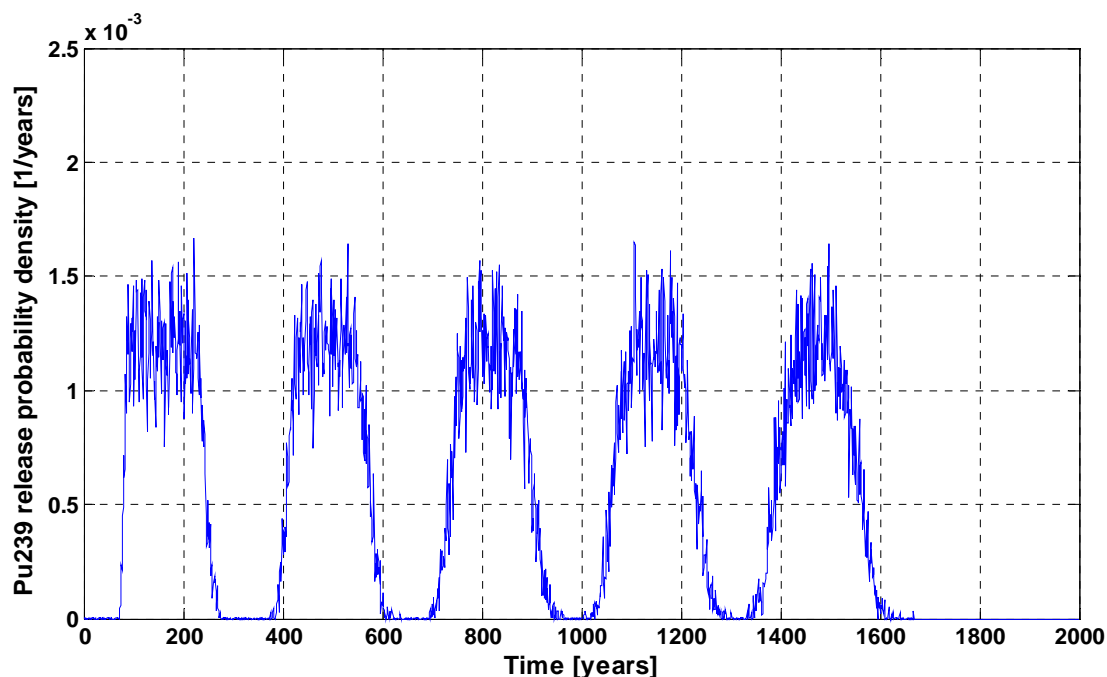


Figura 18: La funzione densità di probabilità del rilascio del ^{239}Pu dalla colonna dei 5 moduli ottenuta attraverso il modello dettagliato in [17].

2 Trasporto nella falda acquifera e stima della dose

Il modello a compartimenti basato sulla simulazione Monte Carlo del Paragrafo 1 è stato accoppiato al modello deterministico MODFLOW + MT3DMS per simulare la migrazione dei radionuclidi in un mezzo poroso saturo [15][16] e per stimare la dose attesa dovuta al rilascio dal deposito superficiale. Le caratteristiche della geosfera sono state ricavate da [43]. La geosfera in esame è un'area tipicamente carsica ed è praticamente libera dalla circolazione di acque superficiali. I pochi canali di drenaggio trasportano acqua per brevi periodi dell'anno dopo periodi di pioggia intensa, per il resto del tempo rimangono secchi. In pratica, il grande numero di fratture nell'argilla crea una complessa rete di canali per il trasporto d'acqua che consente l'infiltrazione, principalmente in direzione verticale, per raggiungere la falda acquifera. Attraverso alcuni test sperimentali in loco, lo spessore della zona insatura si prospetta essere di circa 500/600 m.

I radionuclidi, una volta rilasciati fuori dal deposito, iniziano la loro migrazione attraverso la zona insatura sino ad arrivare nel piano di falda. La Figura 19 mostra uno schema 3D del generico processo di migrazione dei radionuclidi a causa dell'acqua di filtrazione (*i*) da un ipotetico deposito



superficiale (R), attraverso lo strato di zona insatura di profondità L^U , sino alla falda acquifera (G) [43].

Per semplicità, e per gli scopi del nostro esempio, assumiamo che il tempo di permanenza nella regione parzialmente satura e la frangia capillare siano trascurabili rispetto al tempo di permanenza nella falda acquifera. Questo può anche essere considerato come un'ipotesi di lavoro anche in presenza di un serbatoio di falda superficiale. Pertanto consideriamo che il rilascio dei radionuclidi avvenga direttamente in zona satura. Questa ipotesi può essere vista (in generale) come conservativa, in quanto porta a sovrastimare le concentrazioni di inquinante osservate a valle del deposito.

E' stato sviluppato un modello bi-dimensionale, MODFLOW + MT3DMS, con la proiezione del deposito su un vettore 2-D rappresentante il dominio d'interesse su cui viene calcolato il flusso ed il trasporto dei radionuclidi. La Figura 20 mostra un disegno della griglia computazionale adottata, insieme con le condizioni al contorno per la simulazione del flusso e del trasporto, così come la posizione del termine sorgente (R) e la posizione dei pozzi di osservazione (A, B, C, D).

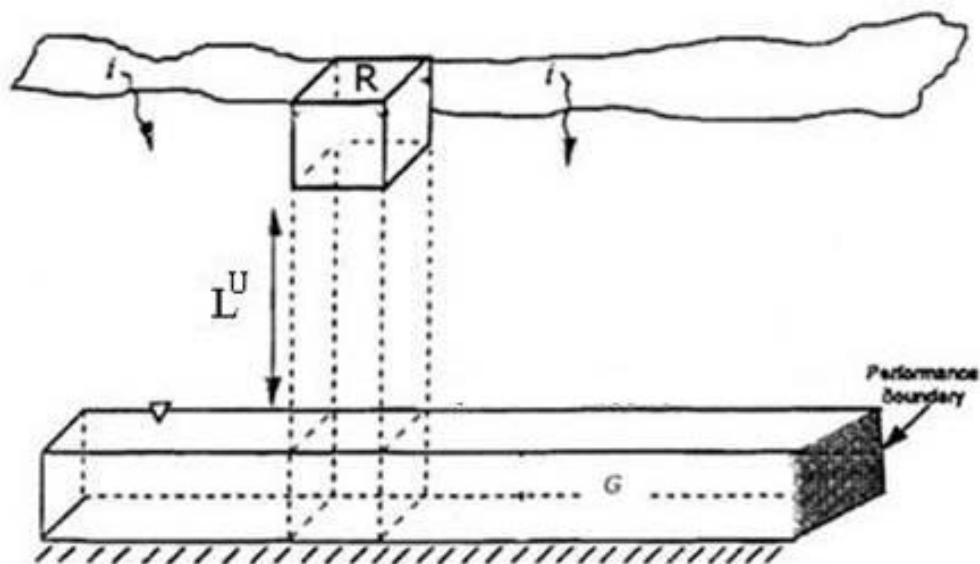


Figura 19: Modello concettuale del percorso di percolazione dell'acqua [43].

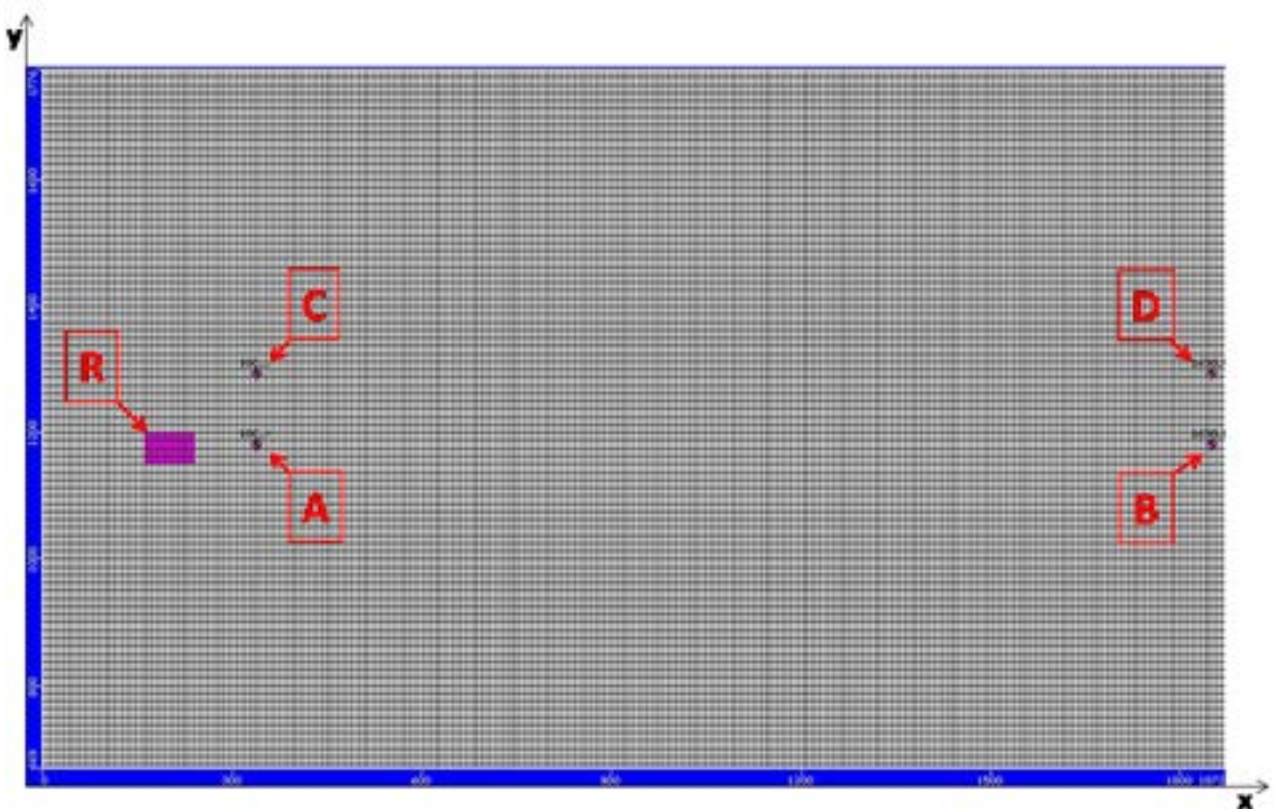


Figura 20: Zoom di una parte del dominio 2-D della falda e del deposito. R indica la posizione del deposito. I pozzi di osservazione posizionati in A e B sono allineati lungo una linea parallela all'asse x e passante per il deposito. I pozzi in C e D sono posizionati lateralmente al deposito. All'estremità superiore ed inferiore del dominio non è stata imposta nessuna condizione di flusso. E' stata considerata una differenza di carico idraulico costante da destra verso sinistra del dominio.

In [43], si suppone che la migrazione dei radionuclidi nella falda acquifera avvenga in una zona argillosa con un alto numero di fratture, che mostra estesi fenomeni carsici. Le caratteristiche idrologiche principali e le proprietà idrauliche del sito sono state stimate con opportune combinazioni di tecniche geofisiche e test idraulici attraverso carotaggi in loco. La Tabella 6 fornisce i valori dei parametri idraulici per il presente caso studio. La migrazione del ^{239}Pu nella falda acquifera è stato assunto che avvenga sotto le condizioni di isoterma lineare.

Tabella 6: Parametri idraulici del dominio della falda acquifera [43].

Velocità media di Darcy (q_{gw})	316 [m/y]
Densità di massa del mezzo poroso (ρ_b)	2500 [Kg/m ³]
Porosità (θ)	0.3
Coefficiente di partizione del ^{239}Pu (K_d)	$2 \cdot 10^{-3}$ [l/mg]



Operativamente, un dominio di $L_x \times L_y = 1872 \text{ m} \times 2000 \text{ m}$ posto su un piano orizzontale che include sia la proiezione del deposito sul dominio rappresentante la falda acquifera che i pozzi di osservazione (100 m e 1600 m a valle della fine del deposito), è stato diviso in $K = 360 \times 280$ celle uguali, tali che ognuna delle 12×4 celle sotto la proiezione dell'area del deposito riceva il rilascio di un *cluster* di 4×3 colonne, ognuna delle quali è composta da 5 moduli. La celle sorgenti sono assegnate come condizioni al contorno per MODFLOW+MT3DMS assumendo una “*recharge concentration*”: il flusso di massa dell'inquinante, dipendente dal tempo, viene dunque iniettato nel mezzo poroso in accordo con un'opportuna discretizzazione temporale del flusso uscente dal deposito stimato attraverso simulazione Monte Carlo. Nel nostro caso studio, il flusso d'acqua entrante [m^3/y] nel mezzo poroso è costante ed uguale a:

$$\Phi_{in} = q_d \cdot S, \quad (16)$$

dove $q_d = 2.12 \cdot 10^1$ [m/y] è il flusso d'acqua di Darcy alla fine della colonna dei 5 moduli ed S [m^2] è l'area della cella sorgente, mentre l'associata concentrazione dei radionuclidi [Bq/m^3] è

$$C_{in}(t) = A_0 \frac{pdf_{out}(t)}{\Phi_{in}}, \quad (17)$$

dove $A_0 = 1.6 \cdot 10^{10}$ [Bq] è l'attività totale del ^{239}Pu nel deposito corrispondente all'inventario Italiano al tempo $t = 0$ ed assunto uniformemente distribuito [44] e la $pdf_{out}(t)$ [y^{-1}] è la funzione densità di probabilità del rilascio dal dominio formato dai 4 compartimenti (colonna dei 5 moduli) stimata in accordo con la (15). Vale la pena notare che il basso livello di attività totale dell'inventario di ^{239}Pu giustifica l'assunzione fatta di non considerare il rilascio nel limite di solubilità, dato che la concentrazione di ^{239}Pu nel deposito superficiale è

$$C_{rep}^{Pu239} \cong \frac{\lambda A_0}{N_A V_{rep}} = 2.96 \cdot 10^{-14} < C_{sl}^{Pu239} = 2.30 \cdot 10^{-4} \text{ [mol}/\text{m}^3].$$

In assenza di dati di campo aggiuntivi e per lo scopo del nostro esempio, il dominio del flusso è stato modellato come un *continuum* equivalente caratterizzato da una conduttività uniforme, K . Per quest'ultima è stato assunto il valore di riferimento di 10^{-5} [m/s], che è consistente con la natura



del mezzo poroso fratturato. E' stato imposto un gradiente unitario per ottenere una velocità di Darcy di $q_{gw} = 3.16 \cdot 10^2$ [m/y]. La migrazione è modellata attraverso una classica equazione di Advezione – Dispersione in presenza di un coefficiente di partizione K_d uniformemente distribuito. In assenza di un tracciante diretto, ed in accordo con le comune ipotesi sui valori dei parametri dispersivi (apparenti) su scala locale, la dispersività longitudinale è stata assunta pari a $\alpha_L = 10$ m, mantenendo la dispersività trasversale uguale a $\alpha_T = \alpha_L / 10$.

La scelta di questi valori è compatibile con i requisiti sul numero di Peclet, per limitare la dispersione numerica.

La grande differenza tra la velocità di Darcy nel deposito, q_d e la sua controparte nell'acquifero, q_{gw} , è dovuta al fatto che i rilasci dal deposito sono stimati sotto molte ipotesi conservative che, comunque, non influiscono sulla generalità del metodo.

Sulla base delle concentrazioni di ^{239}Pu stimate, $C_{gw}(m,t)$ [Bq/m³], in un blocco m dell'acquifero ($m = 1, 2, \dots, M$) al tempo t , l'intensità di dose, D_{gw} [Sv/y], a cui la popolazione umana può essere esposta attraverso l'ingestione d'acqua potabile, può essere stimata come [43]:

$$D_{gw}(m,t) = C_{gw}(m,t) \cdot ING_w \cdot DC_{ing} \quad (18)$$

Qui, $ING_w = 7.3 \cdot 10^{-1}$ [m³/y] è la quantità media di acqua potabile ingerita per anno e $DC_{ing} = 15.7 \cdot 10^{-9}$ [Sv/Bq] è il fattore di conversione per ingestione del ^{239}Pu [43]. La Figura 21 mostra le stime dell'intensità delle dosi di ^{239}Pu all'uomo come funzione del tempo considerando il percorso dell'acqua potabile nelle seguenti posizioni:

- punti A (Figura 21, alto-sinistra) e B (Figura 21, alto-destra) di Figura 20, rispettivamente posizionati a 100 m e 1600 m a valle del deposito, lungo un asse parallelo al flusso advettivo e passante per il punto medio trasversale del deposito;
- punti C (Figura 21, basso-sinistra) e D (Figura 21, basso-destra) di Figura 20, rispettivamente posizionati a 100 m e 1600 m a valle del deposito, ad una distanza



trasversale di 112 m dall'asse parallelo al flusso advettivo e passante per il punto medio trasversale del deposito.

Notiamo che gli effetti del decadimento radioattivo del ^{239}Pu sono trascurati sull'orizzonte temporale preso in considerazione. L'intensità delle dosi del ^{239}Pu nei pozzi centrali (A, B) sono solo leggermente più grandi di quelli laterali (C, D). Questo è principalmente dovuto i) al relativo alto valore del coefficiente di distribuzione (K_d) del ^{239}Pu e, ii) alla perturbazione indotta nella direzione del flusso della falda acquifera dal flusso di percolazione del contaminante che esce dal deposito.

Vale la pena notare che il tempo medio di percorrenza nell'area compresa tra il deposito ed i pozzi posizionati a 100 m è relativamente breve (approssimativamente 100 anni) e nessuna diffusione dei radionuclidi rilasciati può essere apprezzata. D'altronde, gli effetti della diffusione eliminano quasi completamente gli effetti dei 5 picchi nella zona di osservazione distante 1600 m dal deposito e la memoria di come i moduli siano stati posizionati nel deposito viene persa completamente.

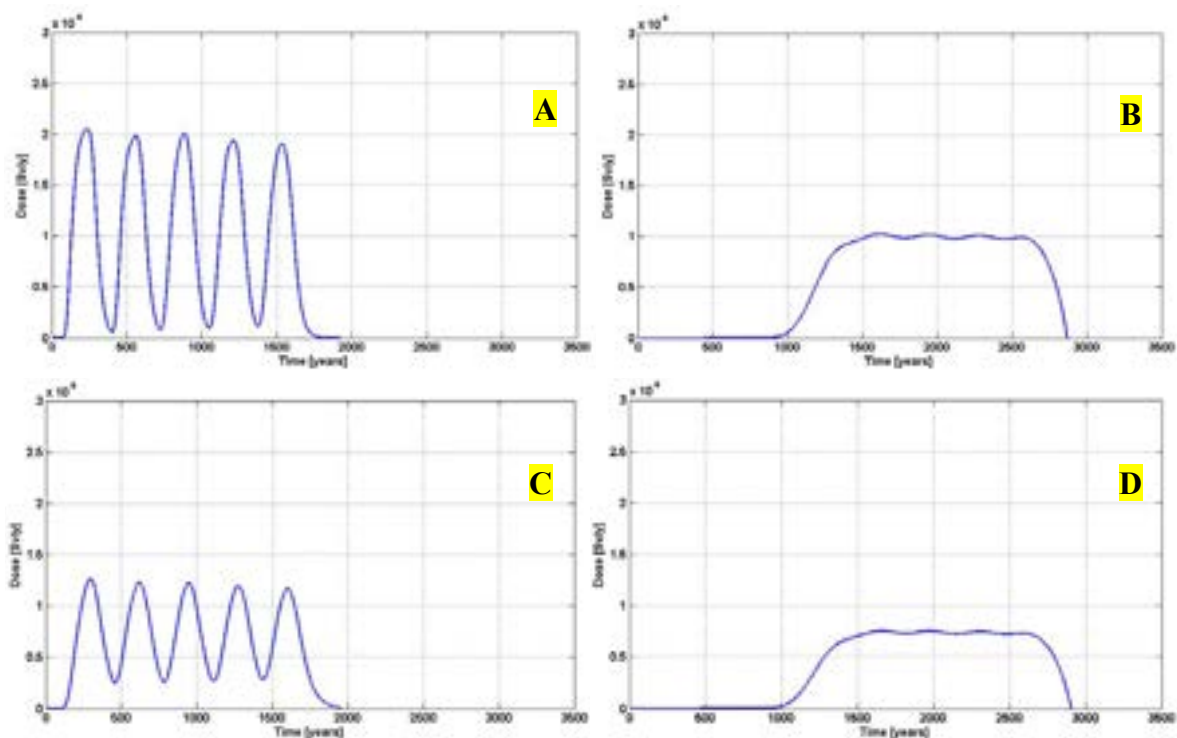


Figura 21: Intensità delle dosi attese alla popolazione umana in funzione del tempo, considerando le vie dell'acqua potabile posizionate nei punti A, B, C e D di Figura 20.

3 Conclusioni

In questa Sezione abbiamo presentato uno schema computazionale integrato che accoppia il modello a compartimenti basato sulla simulazione Monte Carlo per la migrazione dei radionuclidi alla scala del deposito (MASCOT) con modelli standard deterministici per il calcolo del flusso e del trasporto in falda acquifera alla scala della geosfera (MODFLOW e MT3DMS). In generale, il principale vantaggio dell'approccio è la sua modularità, per esempio, l'intercambiabilità e l'interconnettività dei modelli che, a seconda dell'obiettivo dell'analisi, può essere appropriatamente scelto per identificare i processi fisici sottostanti e le relative condizioni al contorno. In particolare, lo schema da noi presentato sfrutta pienamente i vantaggi dati dalla possibilità di i) poter considerare le complesse ed eterogenee strutture del deposito con lo schema di simulazione offerto dall'approccio modulare Monte Carlo, e ii) di ottenere rilevanti informazioni sulla caratterizzazione dettagliata della falda acquifera con l'utilizzo delle tecniche dei codici numerici ampiamente conosciuti e largamente utilizzati. Quest'ultime includono le distribuzioni eterogenee degli esistenti litotipi ed i relativi parametri idro-geo-chimici, che potrebbero eventualmente essere modellati come dei processi stocastici. La ricerca in questa direzione è in via di sviluppo. Infine, le future ricerche saranno focalizzate sull'identificazione delle principali sorgenti d'incertezza associate al proposto modello e sullo sviluppo di un appropriato schema per studiare la loro propagazione e sull'analisi di sensitività (locale e/o globale) del modello.



2.4. Definizione di un caso studio realistico e proposta di una procedura pratica per l'analisi di sensitività e propagazione delle incertezze

La presente Sezione contiene la definizione delle principali caratteristiche di un deposito di rifiuti radioattivi, del sito e della geosfera nel quale è immerso e la proposta di una procedura pratica per l'analisi di sensitività e propagazione delle incertezze. La definizione del caso studio è principalmente basata su un concetto di deposito che fu oggetto di studio da parte dell'ENEA [43], corroborata da esperienze simili a livello internazionale [45], e già descritta nella Sezione precedente.

Il caso studio si intende riferito ad un deposito "chiuso", cioè terminata la fase di riempimento del deposito ed a conclusione delle attività di sigillamento della struttura.

La presente Sezione è così strutturata: nel Paragrafo 1 vengono definite le caratteristiche fisiche delle acque di sottosuolo (groundwater) principali responsabili del trasporto di radionuclidi nella geosfera; nel Paragrafo 2 viene presentato un metodo pratico l'analisi di sensitività di alcuni dei principali parametri geologici che caratterizzano la geosfera e la propagazione delle incertezze per le stime delle dosi ai gruppi di popolazione, opportunamente definiti come critici.

1 Modellazione del trasporto in acque di sottosuolo

Una volta rilasciati dal deposito (vedi Sezione precedente), i radionuclidi trasportati dall'acqua migrano attraverso la zona insatura e raggiungono infine la falda acquifera o zona satura. La stima dell'andamento temporale delle concentrazioni dei radionuclidi nella zona satura e la definizione dei "percorsi" di assunzione di dose permettono di valutare l'intensità della dose rilasciata ad un gruppo o individuo critico opportunamente definito.

Nel caso studio qui presentato, per semplicità, il trasporto di radionuclidi in zona insatura, al di sotto delle strutture del deposito, è modellato come un ritardo temporale costante. Successivi sviluppi potranno analizzare questo fenomeno di trasporto in maggior dettaglio fisico, qualora il suo contributo dovesse risultare rilevante per la valutazione di prestazione di sicurezza.



Per quanto riguarda il trasporto di radionuclidi nella zona satura, l'assunzione principale consiste nel considerare che il trasporto avvenga in un dominio bidimensionale rettangolare di $2000 \text{ m} \times 2000 \text{ m}$.

I parametri fisici che caratterizzano il trasporto dei radionuclidi in tale dominio si riferiscono al sito del deposito di El Cabril, in Spagna [45]. I valori utilizzati per la definizione del caso studio sono ottenuti attraverso l'applicazione di tecniche di analisi statistica ai dati ricavati da particolari misure sperimentali condotte sui 30 pozzi di prelievo situati sul territorio.

In particolare, la *permeabilità idraulica* del terreno è stata caratterizzata attraverso il variogramma sperimentale di tale parametro [46]. Il variogramma risulta da un'analisi statistica delle tendenze di fondo della distribuzione dei punti campionari ed ha le seguenti caratteristiche:

- è basato su un concetto di autocorrelazione spaziale dei dati;
- descrive in modo statistico l'andamento della variabile d'interesse sul territorio, misurando il grado di cambiamento dei dati campionari nello spazio;
- è in grado di tenere conto di eventuali andamenti non lineari, quali ad esempio anisotropie del terreno e trend;
- rappresenta un modello statistico della morfologia dello spazio.

Nel caso studio di riferimento preso in esame, i parametri del variogramma risultano essere [46]:

- Nugget = -7.13
- Partial Sill = 1.21
- Range = 50 m

Dopo una opportuna discretizzazione del dominio bidimensionale che rappresenta la zona satura, il campo di permeabilità idraulica è ricavato inserendo i parametri del variogramma precedentemente descritti come input del modello GCOSIM3D [47]. Attraverso tale modello è possibile campionare un valore di permeabilità idraulica dalla distribuzione statistica derivabile dal variogramma, per ogni cella del dominio in esame. La Figura 27 (sinistra) mostra una singola realizzazione del campo



di permeabilità, espressa in gradazioni di colore dal blu (permeabilità bassa) al rosso (permeabilità alta).

Gli altri parametri fisici utilizzati nella definizione del caso studio e ricavati dai dati sperimentali sono:

- la dispersività longitudinale, assunta pari a 100 m;
- la densità di massa del terreno, assunta pari a 1700 Kg/m^3 ;
- la differenza di carico idraulico tra monte e valle, assunta pari a 400 m.

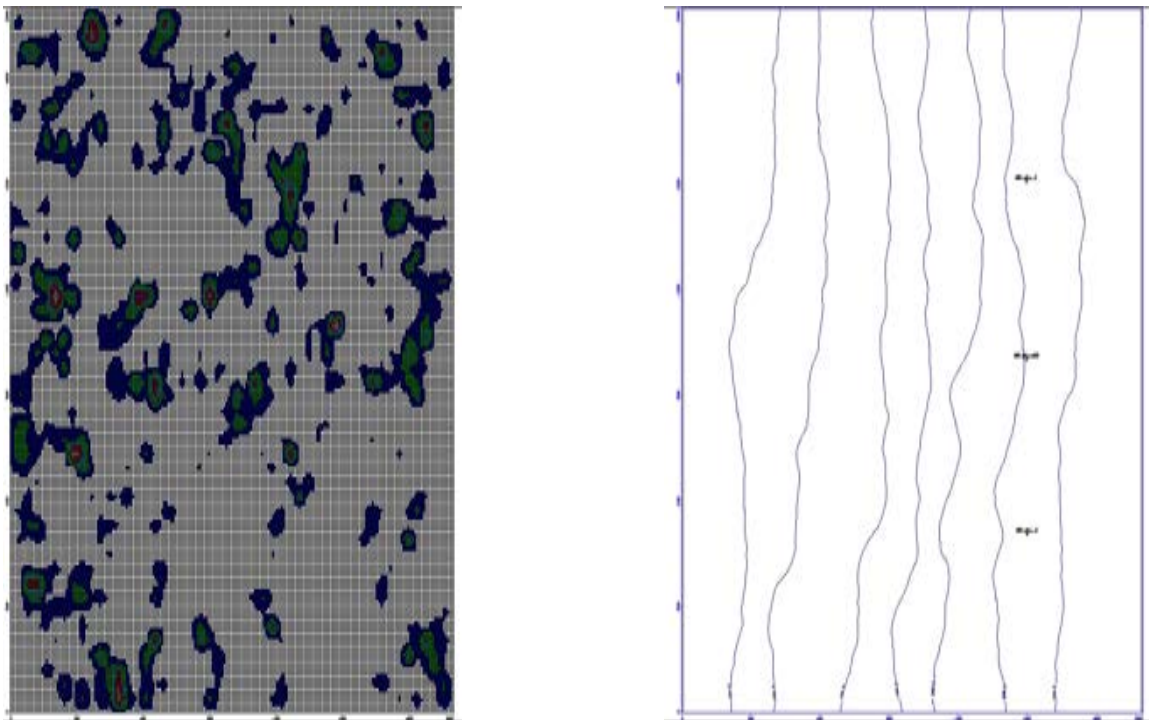


Figura 27: Campo di permeabilità idraulica (sinistra) e linee equipotenziali del carico idraulico e distribuzione spaziale dei pozzi di prelievo (destra).

In analogia con la disposizione reale del deposito nel sito di El Cabril [45], il deposito (R) descritto nel precedente Paragrafo è disposto nel dominio bi-dimensionale come illustrato in Figura 28.

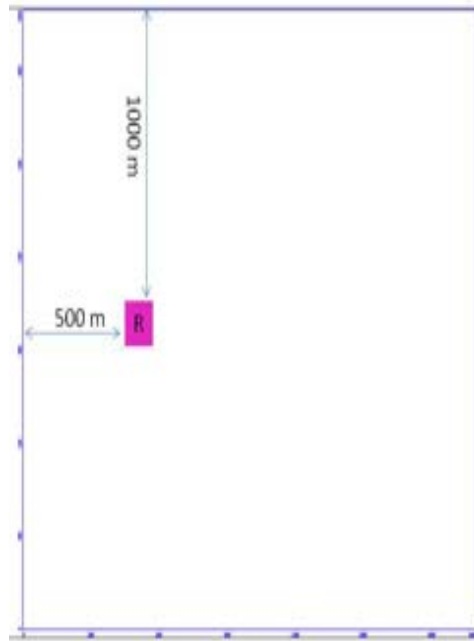


Figura 28: Collocamento spaziale del deposito nel dominio bi-dimensionale.

2 Metodo pratico per l'analisi di sensitività e propagazione delle incertezze

In riferimento al caso studio descritto nel precedente Paragrafo 1, qui presentiamo un metodo pratico per ottenere una veloce ed affidabile analisi di sensitività dei principali parametri geologici che caratterizzano la propagazione dell'inquinante nella geosfera e delle incertezze nella stima delle dosi ai gruppi di popolazione opportunamente definiti come critici

I valori dei principali parametri che caratterizzano la geosfera e che giocano un ruolo chiave nella migrazione dei radionuclidi, spesso sono conosciuti con una grande incertezza. L'incertezza deriva principalmente dalla difficile conoscenza delle proprietà del terreno, delle condizioni idrauliche dello stesso e dalle proprietà chimico-fisiche dei radionuclidi.

L'analisi di sensitività si focalizza sullo studio di tre importanti parametri: la lunghezza di correlazione λ della conduttività idraulica, utilizzata nell'analisi del variogramma sperimentale (vedi Paragrafo 2), la dispersività longitudinale α della falda acquifera ed il coefficiente di partizione K_d caratterizzante ciascun radionuclide. I valori di questi parametri sono stati scelti come distribuiti uniformemente all'interno di intervalli di valori realistici.

In generale, l'analisi di sensitività consiste nel cercare di quantificare quanto la variazione di ciascun parametro influisce nella stima dell'incertezza della dose. In questa proposta pratica di analisi si è scelto, senza perdere in generalità, che i tre parametri possano assumere solo tre differenti valori (minimo, nominale e massimo) all'interno del loro dominio, come mostrato in Tabella 7.

Tabella 7: Valori dei parametri incerti.

PARAMETTRO	MIN	NOMINALE	MAX	UNITA'	SIMBOLO
Lunghezza di correlazione della conduttività idraulica	40	70	100	m	λ
Dispersività longitudinale	50	100	150	m	α
Coefficiente di partizione	0.001	0.002	0.003	l/mg	K_d

Gli effetti di tale variazione vengono calcolati attraverso un indice di sensitività, opportunamente definito che dipenderà dal valore medio del picco di dose, calcolato ad una certa distanza dal deposito.

La procedura può essere sintetizzata nei seguenti punti operativi:

- i) inserire il valore nominale della lunghezza di correlazione λ nel file di input di GCOSIM3D [47] per ottenere un campo di conduttività attraverso un processo di generazione stocastico. Ogni campo di conduttività, generato con lo stesso valore del parametro λ , è statisticamente identico. Per rendere l'analisi più robusta dal punto di vista statistico, per lo stesso valore di λ , devono essere generati molti campi fino a quando il valore medio del picco di dose, calcolato come media progressiva in funzione del numero delle generazioni, non arrivi a convergenza su un valore stabile;
- ii) variare, una volta stabilito il numero necessario di campi di conduttività da realizzare per la stabilità statistica, i tre parametri, per ottenere un insieme di triplette (λ, α, K_d) corrispondenti ciascuna ad una differente caratterizzazione del modello della geosfera;
- iii) calcolare, per ciascuna tripletta dei valori dei parametri e per ciascuna realizzazione del campo di conduttività, il flusso ed il trasporto dei radionuclidi nella geosfera attraverso l'utilizzo dei codici di simulazione MODFLOW e MT3DMS [15][16];



- iv) definire l'indice di sensitività attraverso il metodo “*nominal range sensitivity*” [48], in cui gli effetti della variazione degli input sull'output del modello possono essere quantificati come la differenza della media del picco di dose calcolata facendo variare un parametro sui suoi due valori estremi e mantenendo i valori dei restanti altri parametri fissi sui loro valori nominali.

Formalmente l'indice di sensitività può essere espresso come:

$$U_R(x_i) = \tilde{d}_{peak}(x_i^+, x_{j \neq i}^0) - \tilde{d}_{peak}(x_i^-, x_{j \neq i}^0), \quad (19)$$

dove \tilde{d}_{peak} , è il valore medio del picco di dose calcolato ad una certa distanza dalla sorgente (deposito), x_i^+, x_i^- sono i valori estremi di uno dei parametri presi nell'intervallo di variabilità e $x_{j \neq i}^0$ sono i valori nominali degli altri rimanenti parametri (Tabella 7).

E' bene notare che l'indice di sensitività $U_R(x_i)$ così come definito, è più che un indice locale di sensitività, poiché esso è stato calcolato in corrispondenza dei valori estremi di ogni parametro di input, ma non può neanche essere definito globale perché la variazione dei parametri viene fatta una alla volta. La stima di $U_R(x_i)$ ai soli valori estremi non permette un'analisi dettagliata dell'andamento del modello su tutto l'intero spazio di variabilità dei parametri. Tuttavia, questo metodo può essere utilizzato per una preliminare analisi di sensitività e di incertezze in quei casi in cui le condizioni idro-fisico-chimiche sono tali che il calcolo del flusso e del trasporto dei radionuclidi nella geosfera risulta essere computazionalmente molto oneroso.



3. CONCLUSIONI E SVILUPPI FUTURI

L'obiettivo principale della valutazione delle prestazioni di sicurezza di un deposito di rifiuti radioattivi è quello di verificare la conformità delle stime delle dosi attese al gruppo critico con i limiti imposti dalla legge dagli Enti Nazionali Regolatori, tenendo opportunamente in conto le incertezze associate.

A questo proposito, sono stati sviluppati modelli stocastici per descrivere i) il rilascio dei radionuclidi, ii) la migrazione dei radionuclidi attraverso le barriere del deposito, dovuta tipicamente al moto di percolazione delle acque di infiltrazione, iii) il successivo trasporto attraverso la falda acquifera sino a raggiungere le principali vie di esposizione per l'uomo.

L'accuratezza di queste stime dipende dal grado di realismo dei modelli utilizzati a tale scopo, la complessità dei quali rende poco praticabile, se non impossibile, un approccio di soluzione analitica. Nella presente ricerca, il ricorso al metodo di simulazione Monte Carlo ha offerto la flessibilità necessaria per la soluzione di modelli stocastici di rilascio e di trasporto dei radionuclidi che tenessero in conto aspetti realistici dei fenomeni coinvolti.

In particolare, nel lavoro del presente rapporto, gli approcci Monte Carlo sono stati proposti per modellare i processi di rilascio dei radionuclidi dai fusti nelle condizioni di limite di solubilità. Lo schema è stato dapprima validato su un semplice caso di letteratura. Successivamente, l'applicazione ad una versione più realistica del caso studio ha posto in evidenza le seguenti problematiche associate alle non-linearità intrinseche del fenomeno di rilascio limitato dalla solubilità dei radionuclidi: i) il numero di passi della discretizzazione temporale e ii) il numero di storie simulate. In generale la scelta dei valori di questi parametri richiederebbe la soluzione di un problema di ottimizzazione che porti alla minimizzazione delle spese computazionali e dell'errore di stima. In questo lavoro, tale problema è stato affrontato tramite procedure del tipo "trial and error" empiriche, guidate da considerazioni fisiche sugli effetti non lineari.



Inoltre, questo rapporto ha presentato i risultati delle ibridizzazioni tra due diversi modelli stocastici di migrazione dei radionuclidi attraverso le barriere del deposito e un modello deterministico per il successivo trasporto attraverso la falda acquifera.

Nella prima applicazione, un modello Monte Carlo affidabilistico delle barriere del deposito è stato accoppiato ai codici deterministici MODFLOW e MT3DMS per la soluzione del flusso e del trasporto in una falda acquifera rappresentata da un dominio mono-dimensionale. L'accoppiamento ha permesso di effettuare veloci stime preliminari delle prestazioni di sicurezza di un deposito superficiale in termini di dose rilasciata. La flessibilità del metodo Monte Carlo ha nel contempo permesso di tenere in conto di fenomeni di invecchiamento delle barriere altrimenti difficilmente gestibili da un punto di vista modellistico.

Nella seconda applicazione, un modello Monte Carlo a compartimenti per la migrazione dei radionuclidi alla scala del deposito (MASCOT) è stato accoppiato agli stessi codici deterministici di cui sopra (MODFLOW e MT3DMS) per il trasporto dei radionuclidi in una falda acquifera rappresentata in un dominio bi-dimensionale.

In generale, il vantaggio delle ibridizzazioni risiede nella modularità, e cioè l'intercambiabilità e l'interconnettività dei modelli che, a seconda degli obiettivi dell'analisi, possono essere opportunamente scelti per catturare i processi fisici sottostanti e le relative condizioni al contorno. In sintesi, lo schema presentato si avvantaggia della possibilità di i) includere la descrizione delle complesse ed eterogenee strutture del deposito attraverso il metodo di simulazione offerto dall'approccio modulare Monte Carlo e ii) assimilare le informazioni rilevanti sulla caratterizzazione dettagliata dell'acquifero attraverso codici numerici deterministici ben noti ed estesamente utilizzati.

Infine, è stato presentato un caso studio realistico di un acquifero bi-dimensionale le cui caratteristiche sono state definite sulla base di informazioni derivate da misurazioni sul campo, ed è stata proposta una procedura pratica di analisi di sensitività ed incertezze. E' prevedibile che il ricorso a descrizioni realistiche più dettagliate del caso studio, renderà le analisi più pesanti dal punto di vista computazionale. In quest'ottica, nell'ambito dello schema di analisi proposto, si prevede di esplorare la possibilità di utilizzare modelli surrogati che approssimino la risposta dei



modelli dettagliati con un errore controllabile e velocità di calcolo anche di ordini di grandezza inferiori.

In prospettiva, la prosecuzione dell'attività riguarderà principalmente i seguenti argomenti:

- Analisi di incertezze e di sensitività:
 - Tecniche di velocizzazione delle simulazioni stocastiche del trasporto (per esempio, *Subset Sampling*).
 - Tecniche di velocizzazione delle simulazioni deterministiche del trasporto (per esempio, regressioni non-lineari attraverso l'utilizzo dei *Local Gaussian Processes* e *Polynomial Chaos Expansion*).
 - Analisi degli effetti della variabilità spazio-temporale dei parametri del modello.
 - Modelli probabilistici per la diffusione nella biosfera (realistici modelli probabilistici delle vie critiche di propagazione dei radionuclidi, catene alimentari e conseguenze radiologiche).
- Metodologia integrata di *Performance Assessment*, considerando tutti i compromessi tra sicurezza, impatti ambientali, funzioni logistiche e costi.
- Modellazioni di specifici fenomeni:
 - Flusso e trasporto in mezzi fratturati.
 - Trasporto colloidale.
 - Accoppiamento dei processi Termici, Idraulici e Meccanici.
 - Correlazioni incrociate e dipendenze tra i parametri di trasporto.

Inoltre, si procederà all'estensione e specificazione della metodologia per l'analisi di depositi geologici profondi.



APPENDICE A

Per scopo illustrativo, è stato considerato un mezzo bi-dimensionale discretizzato in $N = N_x \times N_y$ compartimenti (Figura A1), dove N_x e N_y sono, rispettivamente, il numero di compartimenti lungo gli assi x e y . Un compartimento aggiuntivo $N + 1$ è stato inserito per rappresentare l'ambiente in cui il dominio è immerso. Per semplicità di illustrazione, e senza perdere nella caratterizzazione del processo di rilascio, il decadimento radioattivo è stato trascurato, l'inclusione nella simulazione Monte Carlo non implica particolari problemi.

$n_x = 1$	n=1	2	...	N_y
2	$N_y + 1$	$N_y + 2$...	$2N_y$
3	⋮	⋮	⋮	⋮
⋮	⋮	⋮	⋮	⋮
⋮	⋮	⋮	⋮	⋮
N_x				$N = N_x \cdot N_y$
	$n_y = 1$	2	...	N_y

Figura A1: Matrice $N_x \times N_y$ di N compartimenti.

Denotiamo con $X_m(t)$ la variabile di stato rappresentante la posizione al tempo t della m -esimo radionuclide nella matrice dei compartimenti, per esempio, $X_m(t) = n$ implica che al tempo t la m -esima particella è nel compartimento n , $n = 1, 2, \dots, N + 1$ [19]. Sotto assunzioni semplificate, il processo stocastico della migrazione dei radionuclidi attraverso i compartimenti può essere modellato da un processo di Markov continuo nel tempo [19] la cui soluzione è il vettore di probabilità $\mathbf{P}(t) = [P_1(t) \ P_2(t) \ \dots \ P_{n+1}(t)]$, dove $P_n(t)$ è la probabilità di trovare un radionuclide nello stato n al tempo t .

Attraverso le proprietà di Markov [25][26], se il radionuclide è in uno stato (compartimento) i al tempo t (p.es., $X(t) = i$), la probabilità di raggiungere lo stato j al tempo $t + \nu$ non dipende dagli stati (compartimenti) $X(u)$ visitati dal radionuclide al tempo u prima di t (p.es., $0 < u < t$); in altre



parole, dato lo stato presente (compartimento) $X(t)$ occupato dal radionuclide, il suo andamento futuro è indipendente dal passato [24][25][26]:

$$P[X(t+\nu) = j | X(t) = i, X(u) = x(u), 0 < u < t] = P[X(t+\nu) = j | X(t) = i]. \quad (A1)$$

Le probabilità condizionate

$$P[X(t+\nu) = j | X(t) = i] \quad i, j = 1, 2, \dots, N+1, \quad (A2)$$

sono chiamate le transizioni di probabilità di un processo di Markov.

Se le probabilità di transizione non dipendono dagli istanti temporali t e $t+\nu$ ma solo dalla larghezza dell'intervallo ν , allora il processo di Markov si dice omogeneo:

$$P[X(t+\nu) = j | X(t) = i] = p_{ij}(\nu) \quad t, \nu > 0 \text{ and } i, j = 1, 2, \dots, N+1. \quad (A3)$$

Sotto queste ipotesi, può essere dimostrato [49] che il tempo stocastico T_{ij} in cui il radionuclide rimane nello stato (compartimento) i prima di compiere una transizione allo stato (compartimento) j è distribuito esponenzialmente con parametro λ_{ij} . Conseguentemente, la probabilità del processo di compiere una transizione dallo stato (compartimento) i allo stato (compartimento) j in un intervallo ν è [49]:

$$p_{ij}(\nu) = 1 - e^{-\lambda_{ij}\nu}. \quad (A4)$$

Considerando un intervallo di tempo $\nu = \Delta t$ sufficientemente piccolo tale che solo una transizione può avvenire ed applicando l'espansione di Taylor all'equazione (A4), il primo termine della probabilità di transizione dal compartimento i al compartimento j può essere scritto come:

$$p_{ij}(\Delta t) = P[X(t+\Delta t) = j | X(t) = i] = \lambda_{ij} \cdot \Delta t + O(\Delta t), \quad (A5)$$



dove λ_{ij} è la distribuzione della probabilità condizionata della transizione dallo stato i allo stato j condizionato nell'essere nello stato i , e $\lim_{\Delta t \rightarrow 0} \frac{O(\Delta t)}{\Delta t} = 0$. Così, la probabilità condizionata di una transizione dallo stato i allo stato j nell'intervallo di tempo Δt è $\lambda_{ij} \cdot \Delta t$, mentre il numero atteso dei radionuclide che sono migrati dal compartimento i al compartimento j nell'intervallo di tempo $(t, t + \Delta t)$ è $M \cdot P_i(t) \cdot \lambda_{ij} \cdot \Delta t$, dove M è il numero totale di radionuclidi nel sistema e $P_i(t) \cdot \lambda_{ij} \cdot \Delta t$ è la probabilità incondizionata di una transizione da i a j in $(t, t + \Delta t)$.

Il processo di migrazione può essere allora probabilisticamente descritto attraverso il seguente sistema di equazioni differenziali ordinarie:

$$\frac{d\mathbf{P}}{dt} = \mathbf{P}(t) \cdot \mathbf{\Lambda}, \quad (\text{A6})$$

dove

$$\mathbf{\Lambda} = \begin{bmatrix} -\sum_{j=2}^{N+1} \lambda_{1j} & \lambda_{12} & \cdots & \lambda_{1N+1} \\ \lambda_{21} & -\sum_{\substack{j=1 \\ j \neq 2}}^{N+1} \lambda_{2j} & \cdots & \lambda_{2N+1} \\ \cdots & \cdots & \cdots & \cdots \end{bmatrix}, \quad (\text{A7})$$

è la matrice dei ratei di transizione.

In principio, l'equazione (A6) può essere risolta analiticamente per trovare la probabilità degli stati $\mathbf{P}(t)$, per dati valori dei ratei di transizione dei compartimenti λ_{ij} (A7).

Tuttavia, in casi realistici, alcune delle ipotesi sopra esposte devono essere rilassate per poter tenere in considerazione le non-omogeneità dello spazio e del tempo [12][20]. In tali casi, i tempi di transizione tra i compartimenti possono essere non più descritti da distribuzioni esponenziali con parametro costante λ_{ij} e le soluzioni analitiche sono difficili se non impossibili, da ottenere, in



questi casi, si deve ricorrere a metodi di approssimazione numerica. Una alternativa percorribile può essere data dall'utilizzo della simulazione Monte Carlo.



APPENDICE B

Il seguente programma, sviluppato in codice MATLAB, calcola il rilascio dell'inquinante radioattivo da un deposito superficiale attraverso una modellazione di *Probabilistic Safety Assessment 0-D* per stime “veloci” di prima approssimazione. Tale codice è stato utilizzato nel lavoro di ricerca descritto nel Paragrafo 2.1 del rapporto tecnico della linea progettuale *LP4 punto C3 dell'AdP ENEA MSE inerente alla Fase 2* e nel sotto Paragrafo 2.3.1 del rapporto tecnico della linea progettuale *LP4 punto C3 dell'AdP ENEA MSE inerente alla Fase 3*.

```
% *****
% NEAR SURFACE RADIOACTIVE WASTE DISPOSAL
% *****
% Six barriers MTTF (year):
%         top cover of deposit - [10,50] -
%         waste container - [5,25] -
%         wasteform - [30,4000] -
%         backfill - [12,55] -
%         bottom cover of deposit- [6,26] -
%         near-field geosphere - [10,50]
% *****
% EXPONENTIAL
% -----
% f(t) = alfa*beta*t^(alfa-1)*exp(-beta*t^alfa)
% F(t) = 1-exp(-beta*t^alfa)
% t = -(1/beta)*log(1-rand)
% alfa = 1
% beta = lambda
% -----
% *****
% WEIBULL
% -----
% f(t) = alfa*beta*t^(alfa-1)*exp(-beta*t^alfa)
% F(t) = 1-exp(-beta*t^alfa)
% -----

clear all
% close all
clc

rand('state', 85336);

% CPU time used to compute the simulation
% -----
tcpu = cputime;      % returns the CPU time that had been used

% Mission time
% *****
Tmiss = 10e6;
```



```

dt = 1e1;           % time step in arbitrary units
Nt = Tmiss/dt;     % number of time steps
tidx = dt*[0:1:Nt-1]'; % time ticks

Ns = 30e6;         % experiments number
Nbars = 6;         % number of engineered barriers

% Failure states and parameters
% *****
z = 2; % [cm]
Uz = 1.157e-8*31536000; % [cm/y]
Kd = 2000; % [ml/g]
rhob = 1.7; % [g/cm3]
theta = 0.3;
Rd = (1+Kd*rhob/theta);
Tr = z/Uz;
NFCT = Rd*Tr; % near-field crossing time

state_ini = zeros(1,Nbars);

pdf_failure = zeros(1,Nt);
counts = zeros(1,Nt);
% t_failure = zeros(Nbars,Nt); % vector of failure times of the barriers

% Particle cycle
% *****
for i = 1:Ns

    % Cold stand-by
    % -----
    lambda = [(1/25) (1/12.5) (1/300) (1/30) (1/15) (1/NFCT)];...
              (1/25) 0 0 0 0 0];

    % For HOT stand-by modify the second row of lambda ->(1/25) 0 0 0 (1/75) 0];

    % For Weibull modify the "1" of alfa to 1.3; use lambda for the Cold
    % stand-by case

    alfa = 1*ones(2,Nbars);
    beta = lambda;
    state = state_ini;
    t_old = 0; % starting time of a new sampling of failure times; it is
updated with the minimum failure time for the following sampling

    while (sum(state(1,:)) ~= Nbars)

        % sampling failure times
        % -----

        t_temp = zeros(1,Nbars);
        for l = 1:Nbars
            if beta(2,l) ~= 0
                if l == Nbars % near-field acts like a cold stand-by barrier
                    t_temp(l) = t_old + (-1/beta(1,l))*log(1-rand);
                else

```



```

        t_temp(1) = t_old + (-(1/beta(2,1))*log(1-
rand))^(1/alfa(2,1));
    end
    else
        t_temp(1) = 1e30;
    end
end

[t, barr] = min(t_temp);
if t > Tmiss
    break
else
    t_old = t;
%     t_failure(barr,(floor(t/dt)+1)) = t_failure(barr,(floor(t/dt)+1))
+ 1;
end

% state(3,barr) = 0;
beta(2,barr) = 0;
state(1,barr) = 1; % The barrier is failed
if sum(state(1,:)) ~= Nbars
    a = find(state(1,:) ~= 1); % The first not failed barrier
    beta(2,min(a)) = beta(1,min(a)); % comes into play from cold stbby
%     beta(1,min(a)) = 0;
    alfa(2,min(a)) = alfa(1,min(a)); % comes into play from cold stbby
%     alfa(1,min(a)) = 0;
else
    counts(1:floor(t/dt)+1) = counts(1:floor(t/dt)+1) +
ones(1,floor(t/dt)+1);
    pdf_failure(floor(t/dt)+1) = pdf_failure(floor(t/dt)+1) + 1;
end

end

% Percentage of computation
% -----

if (mod(i, (Ns/100)) == 0)
    percentage = floor(i/((Ns-1)/100));
    clc;
    display(['Computation at ' int2str(percentage*1) '%']);
    display(['Still ' int2str((cputime-tcpu)/i*(Ns-i)/60) ' minutes to end
simulation']);
end

end % for

tic
% CANALI LINEARI
% *****

% Normalizing the pdf
% -----
pdf_failure = pdf_failure/(Ns*dt);

% Reliab = counts(1:Nt)/Ns;

```



```

% Failure = 1-Reliab;

% Pu-239
% -----
td = 50;
td_index = floor(td/dt);
Q = 1.59*1e10;
GWeY = 50;
half_life = 2.44*1e4;
lambda_p = log(2)/half_life;

Sd = zeros(1,td_index);
Sp = zeros(1,Nt-td_index);
Release = zeros(1,Nt);

for j = 1:td_index
    Sd(j) = (Q*dt/lambda_p)*(1-exp(-lambda_p*j*dt));
    Release(j) = Sd(j)*pdf_failure(j)/((GWeY/td)*dt);
end

for j = 1:Nt-td_index
    Sp(j) = Sd(td_index) * exp(-lambda_p*j*dt);
    Release(j+td_index) = Sp(j)*pdf_failure(j+td_index)/(GWeY/td*dt);
end

% PDF + Release calculated analytical
% -----

pdf_exp = zeros(1,Nt);
lambda_exp = [(1/25) (1/12.5) (1/300) (1/30) (1/15) (1/NFCT)];

for k = 1:Nt
    for i = 1:length(lambda_exp)
        dif_lambda = find( (find(lambda_exp)~=i) ==1); % finds indexes different
    from i
        pdf_exp(k) = pdf_exp(k) + exp(-
lambda_exp(i)*k*dt)/(prod(lambda_exp(dif_lambda)-lambda_exp(i)));
    end
    pdf_exp(k) = pdf_exp(k)*prod(lambda_exp);
end

Release_exp = zeros(1,Nt);

for j = 1:td_index
    Sd(j) = (Q*dt/lambda_p)*(1-exp(-lambda_p*j*dt));
    Release_exp(j) = Sd(j)*pdf_exp(j)/((GWeY/td)*dt);
end

for j = 1:Nt-td_index
    Sp(j) = Sd(td_index) * exp(-lambda_p*j*dt);
    Release_exp(j+td_index) = Sp(j)*pdf_exp(j+td_index) /((GWeY/td*dt);
end

```



```

% Radionuclide CONCENTRATION in groundwater calculated analytical
% *****

% lambda_p, Kd, Rho_b (rhob), Theta_g (theta) --> defined above

Rg = (1+Kd*rhob/theta);
Ux = 1.157e-4*31536000; % [cm/y] - ground water velocity
Dx = 1.157e-2*31536000; % [cm^2/y] - Dispersion coeff.
Ux_1 = Ux/Rg;          % [m/y] - retarded ground water velocity
Dx_1 = Dx/Rg;          % [] - retarded longitudinal dispersion coeff.
xx = 1.6e5;            % [cm] - distance from deposit
A = 1e6;               % [m^2] - aquifer cross sectional area

theta_g = theta;

Cg_d_p_failure = zeros(1,Nt); % calculated with Monte Carlo [Bq/cm^3]
Cg_d_p_exp = zeros(1,Nt);     % calculated analytically [Bq/cm^3]
Cg = zeros(1,Nt);

Cg(1) = exp(-lambda_p*1*dt)*exp(-(xx-Ux_1*1*dt)^2/(4*Dx_1*1*dt))/...
        (2*pi*A*Rg*theta*sqrt(Dx_1*1*dt));
Cg_d_p_failure(1) = Cg(1)*Release(1);
Cg_d_p_exp(1) = Cg(1)*Release_exp(1);

for t = 2:td_index
    Cg(t) = exp(-lambda_p*t*dt)*exp(-(xx-Ux_1*t*dt)^2/(4*Dx_1*t*dt))/...
            (2*pi*A*Rg*theta_g*sqrt(Dx_1*t*dt));
    for tau = 1:t-1
        Cg_d_p_failure(t) = Cg_d_p_failure(t) + Cg(tau) * Sd(t-tau) *
pdf_failure(t-tau);
        Cg_d_p_exp(t) = Cg_d_p_exp(t) + Cg(tau) * Sd(t-tau) * pdf_exp(t-tau);
    end
end

for t = td_index+1:Nt
    Cg(t) = exp(-lambda_p*t*dt)*exp(-(xx-Ux_1*t*dt)^2/(4*Dx_1*t*dt))/...
            (2*pi*A*Rg*theta*sqrt(Dx_1*t*dt));
    for tau = 1:td_index-1
        Cg_d_p_failure(t) = Cg_d_p_failure(t) + Cg(tau)*Release(td_index-tau)*dt;
        Cg_d_p_exp(t) = Cg_d_p_exp(t) + Cg(tau)*Release_exp(td_index-tau)*dt;
    end
    for tau = td_index:t-1
        Cg_d_p_failure(t) = Cg_d_p_failure(t) + Cg(tau)*Release(td_index+(t-
tau))*dt;
        Cg_d_p_exp(t) = Cg_d_p_exp(t) + Cg(tau)*Release_exp(td_index+(t-
tau))*dt;
    end
end

% RADIATION DOSE calculated analytical
% *****

```



```

water_intake = 2.2*365*10^3; % [ml/y]
ing_dose_coef = 1.57e-5; % [mSv/Bq]

Dose_failure = zeros(1,Nt); % [mSv/GWe.y]
Dose_exp = zeros(1,Nt); % [mSv/GWe.y]

Dose_failure = Cg_d_p_failure.*(water_intake*ing_dose_coef);
Dose_exp = Cg_d_p_exp.*(water_intake*ing_dose_coef);

toc

% *****
% Figures
% *****

% figure
% hold on
% plot(tidx, pdf_failure, '-m', 'Linewidth', 0.5);
% grid
% plot(tidx, pdf_exp, '-k', 'Linewidth', 1.5);
% xlabel('Time [y]')
% ylabel('PDF of failure times')

figure
loglog(tidx, Release, '-g', 'Linewidth', 2);
hold on
loglog(tidx, Release_exp, '-.k', 'Linewidth', 1);
axis([1e-1 1e7 1e-1 1e10])
xlabel('Time [y]')
ylabel('Annual release rate [Bq/GWe.y]')
legend('Monte Carlo', 'Semi-analytic solution', '', 0);

% figure
% loglog(tidx, Cg_d_p_failure, '-m');
% hold on
% loglog(tidx, Cg_d_p_exp, '-k', 'Linewidth', 1);
% axis([1e1 1e7 1e-16 1e0])
% xlabel('Time [y]')
% ylabel('Concentration Bq/ml / GWe.y')

figure
loglog(tidx, Dose_failure, '-g', 'Linewidth', 2.5);
hold on
loglog(tidx, Dose_exp, '-.k');
axis([1e-1 1e7 1e-16 1e0])
xlabel('Time [y]')
ylabel('Annual radiation dose [mSv/GWe.y]')
legend('Monte Carlo', 'Semi-analytic solution', '', 0);

% figure
% loglog(tidx, Dose_failure-Dose_exp, '-r');
% hold on
% axis([1e-1 1e7 1e-16 1e0])
% xlabel('Time [y]')
% ylabel('\Delta radiation dose [mSv/GWe.y]')
%

```



```
% figure
% loglog(tidx, Dose_failure, '-g', 'Linewidth', 2.5);
% hold on
% loglog(tidx, Dose_exp, '-.k');
% loglog(tidx, Dose_failure-Dose_exp, '-.r', 'Linewidth', 1.5);
% axis([1e-1 1e7 1e-16 1e0])
% xlabel('Time [y]')
% ylabel('Annual radiation dose [mSv/GWe.y]')
% legend('Monte Carlo','Semi-analytic solution','Effect of aging', '', 0);
```



APPENDICE C

Il seguente programma, sviluppato in codice MATLAB, calcola il rilascio dell'inquinante radioattivo da un deposito superficiale attraverso una modellazione a compartimenti basata su una simulazione Monte Carlo del trasporto dei radionuclidi. Tale codice è stato utilizzato nel lavoro di ricerca così come descritto nel Paragrafo 2.2 del rapporto tecnico della linea progettuale *LP4 punto C3 dell'AdP ENEA MSE inerente alla Fase 2*.

```
% Questo codice prende in ingresso l'uscita del MASCOT (source &
% cross_time) e simula la migrazione dei radionuclidi ne deposito

clc;
clear all; close all;
rand('state', 77548);

% Input section
% -----

num_time_steps = 2000; % Tmiss/deltat;
deltat = 1;
Tmiss = num_time_steps*deltat;
Nx = 4; % numero compartimenti in direzione x
Ny = 1; % numero compartimenti in direzione y
K = Nx*Ny;
P_connect = 1; % probabilità di connessione
num_moduli = 5;
num_blocchi = 1; % num blocchi di simulazione
CONT_AMB = zeros (num_blocchi,num_time_steps);

% Initial compartments source
% -----

s = [1 2 3 4];
S = length(s);
% S = length(s);

% SOURCE DISTRIBUTION
% -----

% Mascot Source
% -----
load source.txt;
k_max_source = length(source);
num_particelle = [source zeros(1,num_time_steps-length(source))];
Np_tot = sum(num_particelle);
source_norm = source/Np_tot;

% Auxiliary matrix of Nx*Ny compartments
```



```

% -----

comp = 0;
for x = 1:Nx
    for y = 1:Ny
        comp = comp + 1;
        C(x,y) = comp;
    end
end
Compartimenti = C;

% Transition probabilities
% -----

% Prob(2) = 0.075;
% Prob(3) = 0.375;
% Prob(4) = 0.18;
% Prob(5) = 0.18;
% Prob(1) = 1-Prob(2)-Prob(3)-Prob(4)-Prob(5);

% Transition rates
% -----

% Trans(1)= 0;
% Trans(2)= -(log(1-Prob(2)))/deltat;
% Trans(3)= -(log(1-Prob(3)))/deltat;
% Trans(4)= -(log(1-Prob(4)))/deltat;
% Trans(5)= -(log(1-Prob(5)))/deltat;
Trans(1) = 0;
Trans(2) = 0;%sx
Trans(3) = 0;%dx
Trans(4) = 0;%up
Trans(5) = 1;%dw

% Fractures cicle
% -----

tcpu = cputime;
for n = 1:num_blocchi

    % Transition rates's matrix
    % -----

    LAMBDA = zeros (K+1);
    for ii = 1:K
        for jj = 1:K
            if ii==jj
                LAMBDA(ii,jj) = Trans(1);
            end
            if (ii==jj+1) & ii ~= C(:,1)
                LAMBDA(ii,jj) = Trans(2);
            end
            if (ii==jj-1) %& ii ~= C(:,Ny)
                LAMBDA(ii,jj) = Trans(3);
            end
            if (ii==jj+Ny)

```



```

        LAMBDA(ii,jj) = Trans(4);
    end
    if (ii==jj-Ny)
        LAMBDA(ii,jj) = Trans(5);
    end
end
end
for jj = K+1
    for ii = 1:Ny
        LAMBDA(ii,jj)= Trans(4);
    end
end
for ii = K-(Ny-1):K
    LAMBDA(ii,jj)= Trans(5);
end
A = C(:,1);
B = C(:,Ny);
for jj = K+1
    for i = 1:Nx
        ii = A(i);
        LAMBDA(ii,jj) = Trans(2);
    end
    for i = 1:Nx
        ii = B(i);
        LAMBDA(ii,jj) = Trans(3);
    end
    LAMBDA(1,K+1) = Trans(2)+ Trans(4);
    LAMBDA(Ny,K+1) = Trans(3)+ Trans(4);
    LAMBDA(K-(Ny-1),K+1) = Trans(2)+ Trans(5);
    LAMBDA(K,K+1) = Trans(3)+ Trans(5);
end
jj_old = 2;
for ii = 1:K
    for jj = jj_old:K
        r = rand;
        if r < (1-P_connect)
            LAMBDA(ii,jj) = 0;
            LAMBDA(jj,ii) = 0;
        end
    end
    jj_old = jj_old + 1;
end

% Particles's cicles
% -----
contatori = zeros(Nx,Ny,num_time_steps);
cont_amb = zeros(1, num_time_steps);

for k_source = 1:k_max_source

    for p = 1:num_particelle(k_source)

        for xx = 1:S    % S = num compartimenti

            ii = s(xx);
            if ii-(Ny*(floor(ii/Ny))) == 0
                x_init = floor(ii/Ny);
            end
        end
    end
end

```



```

        y_init = Ny;
    else
        x_init = floor(ii/Ny) + 1;
        y_init = ii-(Ny*(floor(ii/Ny)));
    end
    % end compartments initialization
    x = x_init;
    y = y_init;

    k = k_source;
    t = (k_source-1)*deltat;
    while (ii < K+1)
        x_old = x;
        y_old = y;
        k_old = k;
%         t = t-[(1/sum(LAMBDA(ii,:)))*log(1-rand)]; % extration
transition's times

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%% CAMPIONAMENTO DEI TEMPI DI TRASIZIONE
%% questa sezione è stata inserita per estrarre i tempi di transizione da
%% un modulo al successivo dal cross_time.

        cdf = 0;
        r = rand;
        for i = 1:length(cross_time)
            cdf = cdf + cross_time_norm(i);
            if r <= cdf
                deltat_out = i*deltat;

                break
            end
        end
        t = t+deltat_out;

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

        if (t > Tmiss)
            for k_ind = k_old+1:num_time_steps
                contatori(x_old,y_old,k_ind) =
contatori(x_old,y_old,k_ind) + 1;
            end
            break
        end
        k = ceil(t/deltat);
        if k ~= k_old
            for k_ind = k_old+1:k
                contatori(x_old,y_old,k_ind) =
contatori(x_old,y_old,k_ind) + 1;
            end
        end
        cdf = 0;
        r = rand;
        for jj = 1:K+1 % jj - arrive's compartment
            cdf = cdf + LAMBDA(ii,jj)/sum(LAMBDA(ii,:));
            if r <= cdf
                ii = jj; % new strat's compartment
            end
        end
    end
end

```



```

        if ii-(Ny*(floor(ii/Ny))) == 0
            x = floor(ii/Ny);
            y = Ny;
        else
            x = floor(ii/Ny) + 1;
            y = ii-(Ny*(floor(ii/Ny)));
        end
        if ii == K+1
            cont_amb(k) = cont_amb(k)+1;
        end
        break
    end
end
end % while ii

end % for xx

end % for p

% Percentage of computation
% -----
if (mod(k_source, (num_time_steps/100)) == 0)
    percentage = floor(k_source/((num_time_steps-1)/100));
    clc;
    display(['Computation at ' int2str(percentage*1) '%']);
    display(['Still ' int2str((cputime-tcpu)/k_source*(num_time_steps-
k_source)/60) ' minutes to end simulation']);
end

end % for k_source

% NORMALIZATION
% -----
TOT = cumsum(cont_amb);
num_particelle_immesse = 0;
for k = 1:num_time_steps
    num_particelle_immesse = num_particelle_immesse + num_particelle(k) * S;
    CONT_AMB(n,k) = TOT(k)/num_particelle_immesse;
end

end % for n

CONT_AMB_avg = mean (CONT_AMB);
CONT_AMB_std = std (CONT_AMB);

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

% Plot section
% -----
figure(1)
plot([1:num_time_steps],CONT_AMB);
grid;
axis([0 num_time_steps 0 1]);
xlabel('Time steps');
ylabel('Fraction in the environment');

```





APPENDICE D

Il seguente programma, sviluppato in codice MATLAB, calcola la propagazione dell'inquinante radioattivo nelle acque di sottosuolo e stima la dose attesa al gruppo critico rilasciata da un deposito superficiale attraverso una modellazione a compartimenti basata su una simulazione Monte Carlo del trasporto dei radionuclidi. Tale codice è stato utilizzato nel lavoro di ricerca così come descritto nel Paragrafo 2.3 del rapporto tecnico della linea progettuale *LP4 punto C3 dell'AdP ENEA MSE inerente alla Fase 2*.

```
% Questo codice è stato utilizzato per simulare la migrazione delle particelle
% nei vari compartimenti del groundwater dopo essere state rilasciate fuori dal
% deposito
```

```
clc;
clear all; close all;
rand('state', sum(100*clock));

% Inizializzazione Variabili
% -----
num_time_steps = 10000; % Tmiss/deltat;
deltat = 1;
Tmiss = num_time_steps*deltat; % 400;

Nx = 20; % Nx matrice di compartimenti
Ny = 35; % Ny matrice di compartimenti
K = Nx*Ny; % numero di compartimenti--->stati
Np_tot = 10000; % numero particelle

% Generazione matrice ausiliaria di Nx*Ny compartimenti
% -----

comp = 0;
for x = 1:Nx
    for y = 1:Ny
        comp = comp + 1;
        C(x,y) = comp;
    end
end
Compartimenti = C;

% Probabilità di transizione nei compartimenti
% -----

Prob = [0.19 0.075 0.375 0.18 0.18];

% Ratei di transizione
% -----
```



```

Trans(1)= 0;
Trans(2)= -(log(1-Prob(2)))/deltat;
Trans(3)= -(log(1-Prob(3)))/deltat;
Trans(4)= -(log(1-Prob(4)))/deltat;
Trans(5)= -(log(1-Prob(5)))/deltat;

% Matrice dei ratei di transizione
% -----

LAMBDA = zeros (K+1);
for ii = 1:K
    for jj = 1:K
        if ii==jj
            LAMBDA(ii,jj) = Trans(1);
        end
        if (ii==jj+1) & ii ~= C(:,1)
            LAMBDA(ii,jj) = Trans(2);
        end
        if (ii==jj-1) & ii ~= C(:,Ny)
            LAMBDA(ii,jj) = Trans(3);
        end
        if (ii==jj+Ny)
            LAMBDA(ii,jj) = Trans(4);
        end
        if (ii==jj-Ny)
            LAMBDA(ii,jj) = Trans(5);
        end
    end
end
for jj = K+1
    for ii = 1:Ny
        LAMBDA(ii,jj)= Trans(4);
    end
end
for ii = K-(Ny-1):K
    LAMBDA(ii,jj)= Trans(5);
end
A = C(:,1);
B = C(:,Ny);
for jj = K+1
    for i = 1:Nx
        ii = A(i);
        LAMBDA(ii,jj) = Trans(2);
    end
    for i = 1:Nx
        ii = B(i);
        LAMBDA(ii,jj) = Trans(3);
    end
    LAMBDA(1,K+1) = Trans(2)+ Trans(4);
    LAMBDA(Ny,K+1) = Trans(3)+ Trans(4);
    LAMBDA(K-(Ny-1),K+1) = Trans(2)+ Trans(5);
    LAMBDA(K,K+1) = Trans(3)+ Trans(5);
end
jj_old = 2;
for ii = 1:K
    for jj = jj_old:K
        r = rand;
        if r < 0.2
            LAMBDA(ii,jj) = 0;
        end
    end
end

```



```

        LAMBDA(jj,ii) = 0;
    end
end
jj_old = jj_old + 1;
end

%%% Inizializzazione della sorgente dei radionuclidi nel groundwater.%%%

load saturated_source.txt;
k_max_source = length (saturated_source);%length(source);
Np_tot = 10000;
source = saturated_source * Np_tot;
num_particelle = [source zeros(1,num_time_steps-length(source))];
source_norm = source/sum(source);
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%% Ciclo transizione delle particelle %%%%%%%%%

contatori = zeros(Nx,Ny,num_time_steps);
cont_amb = zeros(1, num_time_steps);
tcpu = cputime;
s=[284,285,286,287,288,289,290,291,292,293,294,295;319,320,321,322,323,324,325,3
26,327,328,329,330;354,355,356,357,358,359,360,361,362,363,364,365;389,390,391,3
92,393,394,395,396,397,398,399,400;]
S = length(s);

for c=1:S

for k_source=1:k_max_source

    for p = 1:num_particelle(k_source)

        ii = s(c);
        if ii-(Ny*(floor(ii/Ny))) == 0
            x_init = floor(ii/Ny);
            y_init = Ny;
        else
            x_init = floor(ii/Ny) + 1;
            y_init = ii-(Ny*(floor(ii/Ny)));
        end
        % end compartments initialization
        x = x_init;
        y = y_init;

        k = k_source;
        t = (k_source-1)*deltat;
        while (ii < K+1)
            x_old = x;
            y_old = y;
            k_old = k;
            t = t-[(1/sum(LAMBDA(ii,:)))*log(1-rand)];
            if (t > Tmiss)

```



```

        for k_ind = k_old+1:num_time_steps
            contatori(x_old,y_old,k_ind) = contatori(x_old,y_old,k_ind)
+ 1;
        end
        break
    end
    k = ceil(t/deltat);
    if k ~= k_old
        for k_ind = k_old+1:k
            contatori(x_old,y_old,k_ind) = contatori(x_old,y_old,k_ind)
+ 1;
        end
    end
    cdf = 0;
    r = rand;
    for jj = 1:K+1      % jj - compartimento di arrivo
        cdf = cdf + LAMBDA(ii,jj)/sum(LAMBDA(ii,:));
        if r <= cdf
            ii = jj; % il nuovo compartimento di partenza
            if ii-(Ny*(floor(ii/Ny))) == 0
                x = floor(ii/Ny);
                y = Ny;
            else
                x = floor(ii/Ny) + 1;
                y = ii-(Ny*(floor(ii/Ny)));
            end
            if ii == K+1
                cont_amb(k) = cont_amb(k)+1;
            end
            break
        end
    end
end % while ii

% Percentage of computation
% -----
if (mod(p, (Np_tot/100)) == 0)
    percentage = floor(p/((Np_tot-1)/100));
    clc;
    display(['Computation at ' int2str(percentage*1) '%']);
    display(['Still ' int2str((cputime-tcpu)/p*(Np_tot-p)/60) ' minutes
to end simulation']);
end

end % for p

end % for k_source
fract_env = cumsum(cont_amb/Np_tot);

end % for c

% Plot section
% -----

% figure(1)
% plot([1:num_time_steps],fract_env, '.', 'Linewidth', 1.5)
% grid

```



```
% axis([0 num_time_steps 0 1])  
% xlabel('Time steps')  
% ylabel('Fraction in the environment')
```

```
figure(2)  
mesh(contatori(:, :, 60))
```



APPENDICE E

Il seguente programma, sviluppato in codice MATLAB, calcola, nel limite di solubilità, il rilascio dell'inquinante radioattivo dal *Waste Package*, attraverso una modellazione a compartimenti basata su una simulazione Monte Carlo non lineare del trasporto dei radionuclidi. Tale codice è stato utilizzato nel lavoro di ricerca così come descritto nel Paragrafo 2.2 del rapporto tecnico della linea progettuale *LP4 punto C3 dell'AdP ENEA MSE inerente alla Fase 3*.

```
%%% Inizializzazione delle variabili %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

clc;
clear all;
% close all;
rand('state',77548 );
V = 1e3; %volume WP [l]
Ar=1; %m^2 area WP
deltat = 1
Tmiss = 2500;
num_time_steps = ceil(Tmiss/deltat); % Tmiss/deltat;
Nt = num_time_steps;
Np_tot = 1e4;
Nx = 10; % numero compartimenti in direzione x
Ny = 1; % numero compartimenti in direzione y
K = Nx*Ny;
lisciviation_rate =0.0838*Nx; %1/y Source release rate
P_connect = 1;
num_source = Nx;
s = [1:num_source];
S = length(s);
num_particelle=zeros(S,num_time_steps);
lam=0.0838*Nx;
1-exp(-lam*deltat)*(1+lam*deltat)
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

% Auxiliary matrix of Nx*Ny compartments
% -----
tic
comp = 0;
for x = 1:Nx
    for y = 1:Ny
        comp = comp + 1;
        C(x,y) = comp;
    end
end
Compartimenti = C;

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

% Transition rates's matrix
% -----
```



```

Trans(1) = 0;
Trans(2) = 0;%sx
Trans(3) = 0;%dx
Trans(4) = 0;%up
Trans(5) = 0.0838*Nx;%dw
LAMBDA = zeros (K+1);

for ii = 1:K
    for jj = 1:K
        if ii==jj
            LAMBDA(ii,jj) = Trans(1);
        end
        if (ii==jj+1) & ii ~= C(:,1)
            LAMBDA(ii,jj) = Trans(2);
        end
        if (ii==jj-1) %& ii ~= C(:,Ny)
            LAMBDA(ii,jj) = Trans(3);
        end
        if (ii==jj+Ny)
            LAMBDA(ii,jj) = Trans(4);
        end
        if (ii==jj-Ny)
            LAMBDA(ii,jj) = Trans(5);
        end
    end
end
for jj = K+1
    for ii = 1:Ny
        LAMBDA(ii,jj)= Trans(4);
    end
end
for ii = K-(Ny-1):K
    LAMBDA(ii,jj)= Trans(5);
end
A = C(:,1);
B = C(:,Ny);
for jj = K+1
    for i = 1:Nx
        ii = A(i);
        LAMBDA(ii,jj) = Trans(2);
    end
    for i = 1:Nx
        ii = B(i);
        LAMBDA(ii,jj) = Trans(3);
    end
    LAMBDA(1,K+1) = Trans(2)+ Trans(4);
    LAMBDA(Ny,K+1) = Trans(3)+ Trans(4);
    LAMBDA(K-(Ny-1),K+1) = Trans(2)+ Trans(5);
    LAMBDA(K,K+1) = Trans(3)+ Trans(5);
end
jj_old = 2;
for ii = 1:K
    for jj = jj_old:K
        r = rand;
        if r < (1-P_connect)
            LAMBDA(ii,jj) = 0;
            LAMBDA(jj,ii) = 0;
        end
    end
end

```



```

end
jj_old = jj_old + 1;
end
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
% Transizioni non lineari delle particelle nel limite di solubilità
%-----

%Cs = 1e6;
M0 = 1; %massa del plutonio per ogni WP [g]
Cs = (2.3e-7*239*v*0.08/Nx); %limite di solubilità del Plutonio [g]
cont_amb = zeros(1,num_time_steps);
i_particle_counts = zeros(Nx,Ny,num_time_steps);
ii = zeros(S,Np_tot);
zz=zeros(S,Np_tot);
particle_in = Np_tot;
z = zeros(1,num_time_steps);
cdf = zeros(1,Np_tot);
temp = zeros(1,num_time_steps);
N = ((Cs)*Np_tot*S/M0);
ts=zeros(S,Np_tot);
c = floor(N);
diff1 = N-c;
if (diff1 < 0.5)
    N1 = c;
else
    N1 = c+1;
end

for xx = 1:S
    for p = 1:Np_tot
        ii(xx,p) = s(xx);
    end
end
tcpu = cputime;
for k_source = 1:num_time_steps
    temp(k_source) = (k_source)*deltat-deltat/2;
    particle_in = Np_tot*S-sum(z);
    k = k_source;
    for xx = 1:S
        for p = 1:Np_tot
            if (ii(xx,p) < K+1)
                if (k == 1)
                    if (ii(xx,p)-(Ny*(floor(ii(xx,p)/Ny)))) == 0
                        x_init(xx,p) = floor(ii(xx,p)/Ny);
                        y_init(xx,p) = Ny;
                    else
                        x_init(xx,p)= floor(ii(xx,p)/Ny) +1;
                        y_init(xx,p) = ii(xx,p)-(Ny*(floor(ii(xx,p)/Ny)));
                    end
                end
                x(xx,p) = x_init(xx,p);
                y(xx,p) = y_init(xx,p);
            end
            x_old = x(xx,p);
            y_old = y(xx,p);
            Cstar = i_particle_counts(x_old,y_old,k)/(Np_tot*S);

```



```

C_1 = (Cstar)*M0;
if (C_1 <= Cs)

    if (ts(xx,p) == 0 | ts(xx,p)>deltat)
        ts(xx,p)=-[(1/liscivation_rate)*log(1-rand)];

    end

    if (ts(xx,p) <= deltat)
        zz(xx,p)=zz(xx,p)+1;
        if(zz(xx,p)~=2)
            i_particle_counts(x_old,y_old,k) =
i_particle_counts(x_old,y_old,k)+1;
        end
        if(zz(xx,p)>1)
            t = -[(1/sum(LAMBDA(ii(xx,p),:)))*log(1-rand)];
            if (t <= deltat)
                cdf(p) = 0;
                r = rand;
                for jj = 1:K+1
                    cdf(p) =
cdf(p)+LAMBDA(ii(xx,p),jj)/sum(LAMBDA(ii(xx,p),:));
                    if r <= cdf(p)
                        ii(xx,p) = jj;
                        if (ii(xx,p)-(Ny*(floor(ii(xx,p)/Ny))) == 0
& (ii(xx,p)<K+1))

                            x(xx,p) = floor(ii(xx,p)/Ny);
                            y(xx,p) = Ny;
                        elseif (ii(xx,p)-(Ny*(floor(ii(xx,p)/Ny)))
~=0 & (ii(xx,p)<K+1))

                            x(xx,p)= floor(ii(xx,p)/Ny) +1;
                            y(xx,p)= ii(xx,p)-
(Ny*(floor(ii(xx,p)/Ny)));

                        end
                        if (ii(xx,p) == K+1)
                            cont_amb(k) = cont_amb(k)+1;
                        end
                        break
                    end
                end %jj
            end %t
        end %zz

    end % if ts

end %solubility

end %ii

end %p

end %xx

z = sum(cont_amb(:));

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%% Percentage of computation %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

```



```

    if (mod(k_source, (Nt/100)) == 0)
        percentage = floor(k_source/((Nt-1)/100));
        clc;
        display(['Computation at ' int2str(percentage*1) '%']);
        display(['Still ' int2str((cputime-tcpu)/k_source*(Nt-k_source)/60) '
minutes to end simulation']);
    end
    %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

end %k_source

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%% Plot Section %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

amb = [temp(:), 6.7e-3*((cont_amb(:)/(Np_tot*S)/deltat/6.7e-3/Ar))*(M0/239)*Ar];
%flux
%amb = [temp(:), ((cont_amb(:)/(Np_tot*S)/deltat/6.7e-3/Ar))]; %normalized
concentration

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%% Discretizzazione temporale ausiliaria %%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

dt_est = 1;
step_est = ceil(dt_est/deltat);
amb_est = zeros(1,ceil(num_time_steps/step_est));
temp_est = zeros(1,ceil(num_time_steps/step_est));

for i = step_est:step_est:num_time_steps
    sum1 = 0;
    for j = 1:step_est
        sum1 = sum1 + cont_amb(i-j+1);
    end
    sum1 = sum1/step_est;
    amb_est(ceil(i/step_est)) = sum1/(Np_tot*S)/deltat;
    temp_est(ceil(i/step_est)) = ceil(i/step_est)*dt_est-dt_est/2;
end

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

time = toc

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
% Plots %
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

figure (1)
% amb_anal = Trans(5)*exp(-Trans(5)*temp(:)); % Analytic curve pdf
% plot(temp(:), amb_anal, 'b');
% grid on
%hold on
%plot(temp_est(:), 6.7e-3*(amb_est(:)/6.7e-3/Ar)*(M0/239)*Ar,'--b'); %NON Linear
Coarse flux
plot(temp_est(:), (amb_est(:)/6.7e-3/Ar),'-b'); %NON Linear Coarse normalized
concentration
hold on
%plot(amb(:,1), amb(:,2),'-r'); % NON Linear normalized concentration
grid on
hold on
% plot(temp1(:),6.7e-3*pdf,'r') %$Amber

```



```

% for i=1:num_time_steps
%amb_anal(i) = (1/0.08)*(liscivation_rate/(Trans(5)-liscivation_rate))*(exp(-
(liscivation_rate)*temp(i))-exp(-(Trans(5))*temp(i))); %Analytic curve Nureg
%amb_anal(i) = Trans(5)^2*temp(i)*exp(-Trans(5)*temp(i))*(M0/239); %Analytic
flux
%amb_anal(i) = (1/0.08)*Trans(5)*temp(i)*exp(-Trans(5)*temp(i)); %Analytic
normalized concentration lambdas=lambdaw

%end
%hold on
%plot(temp(:), amb_anal(:), '-k');

%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%

```



PUBBLICAZIONI SCIENTIFICHE

Di seguito è riportata una lista dei lavori scientifici riguardanti le attività in oggetto al presente documento e pubblicate su riviste ed atti di congresso di conferenze internazionali:

Riviste Internazionali (5)

1. F. Cadini, J. De Sanctis, T. Girotti, E. Zio, A. Luce, A. Taglioni (2010). Monte Carlo-based assessment of the safety performance of a radioactive waste repository RELIABILITY ENGINEERING & SYSTEM SAFETY, (pp. 859- 865), 95
2. F. Cadini, J. De Sanctis, T. Girotti, E. Zio, A. Luce, A. Taglioni (2010). Monte Carlo estimation of radionuclide release at a repository scale ANNALS OF NUCLEAR ENERGY, (pp. 861- 866), 37
3. F. Cadini, J. De Sanctis, A. Cherubini, E. Zio. Integrated Simulation Framework for the Performance Assessment of Radioactive Waste Repositories, submitted to the ANNALS OF NUCLEAR ENERGY.
4. F. Cadini, D. Avram, E. Zio, A. Luce, A. Taglioni (2010). Preliminary evaluation of a radioactive waste repository safety performance by a Monte Carlo simulation-based reliability model KERNTECHNIK, (pp. 316- 321), 6
5. P. Baraldi, E. Zio, "A comparison between probabilistic and Dempster-Shafer Theory approaches to Model Uncertainty Analysis in the Performance Assessment of Radioactive Waste Repositories". Risk Analysis, Vol 30, 1139-1156, 2010.

Atti di Congresso Internazionale (5)

1. F. Cadini, J. De Sanctis, E. Zio, D. Avram, T. Girotti, A. Luce, A. Taglioni (2009). Monte Carlo Simulation of a Compartment Model of Radionuclide Migration At A Radioactive Waste Repository. (pp. 1- 6). In: ICEM2009. October 11-15, 2009, Liverpool, UK
2. F. Cadini, D. Avram, E. Zio, A. Luce, A. Taglioni (2010). Monte Carlo simulation-based reliability model for the PSA of a radioactive waste repository. (pp. 43- 50). In: SSARS 2010. Gdansk, Poland



3. F. Cadini, J. De Sanctis, T. Girotti, E. Zio, A. Luce, A. Taglioni (2010). A Monte Carlo Simulation Model for Radionuclide Migration at the Repository Scale. (pp. 1- 5). In: PSAM 10. June 7-11, 2010, Seattle, USA
4. F. Cadini, D. Avram, A. Cherubini, J. De Sanctis, E. Zio, A. Guadagnini, M. Riva, A. Luce, A. Taglioni (2010). An Integrated Simulation Model for the Performance Assessment of a Radioactive Waste Repository. (pp. 1- 8). In: XVIII International Conference on Water Resources CMWR 2010. Barcelona, Spain
5. F. Cadini, J. De Sanctis, E.Zio, “Challenges in Monte Carlo Simulation of Non-Linear Radioactive Contaminant Release Processes”, Proceedings of the International High Level Radioactive Waste Conference, IHLRWC, Albuquerque, USA, April, 10-14, 2011

REFERENZE

- [1] IAEA Safety Standards Series No. WS-G-1.1. (1999a). *Safety Assessment for Near Surface Disposal of Radioactive Waste*. IAEA eds., Vienna.
- [2] Helton J.C. and Sallaberry C.J. Computational implementation of sampling-based approaches to the calculation of expected dose in performance assessments for the proposed high-level radioactive waste repository at Yucca Mountain, Nevada. *Reliability Engineering and System Safety* 2009;94(3):699–721.
- [3] Helton, J.C., Sallaberry, J.C. Conceptual basis for the definition and calculation of expected dose in performance assessments for the proposed high-level radioactive waste repository at Yucca Mountain, Nevada. *Reliability Engineering and System Safety*, 2009, 94, 677–698
- [4] Yim, Man-Sung, Simonson, S.A., 2000. Performance assessment models for low level radioactive waste disposal facilities: a review. *Progress in Nuclear Energy* 36 (1), 1–38.
- [5] Kawasaki J.A., Chambre´ P.L. Markov chain model particle migration at the repository scale. In: *Proceedings of Global 2005*, October9–13, Tsukuba, Japan, 2005.
- [6] Kawasaki, D., Ahn, J., 2006. Compartment Model for Particle Migration with Residence Time Distribution. *IHLRWM 2006*, April 30–May 4, Las Vegas, NV.
- [7] Tsujimoto, K., Ahn, J., 2005. Large-scale Simulation of Rock Fracture Network for Mass Transport in Geologic Repository by Earth Simulator. *Global 2005*, October 9–13, Tsukuba, Japan.



- [8] Williams, M.M.R., 1992. A new model for describing transport of radionuclides through fractured rock. *Annals of Nuclear Energy* 19 (10–12), 791–824.
- [9] Williams, M.M.R., 1993. Radionuclide transport in fractured rock a new model: application and discussion. *Annals of Nuclear Energy* 20 (4), 279–297.
- [10] Lee, Y.M., Lee, K.J., 1995. Nuclide transport of decay chain in the fractured rock medium: a model using continuous time markov process. *Annals of Nuclear Energy* 22 (2), 71–84.
- [11] Xu, S. et al., 2007. Criteria for resolution-scales and parameterization of compartmental models of hydrological and ecological mass flows. *Journal of Hydrology* 335, 364–373.
- [12] M. Marseguerra, E. Zio, “Looking at Monte Carlo simulation for describing nonlinear sorption in groundwater contaminant transport”, *Mathematics and Computers in Simulation*, Vol. 55, pp. 167-176, (2001).
- [13] S. Mukhopadhyay et al., “Modeling coupled thermal-hydrological-chemical processes in the unsaturated fractured rock of Yucca Mountain Nevada:Heterogeneity and seepage”, *Phys. and Chem. of the Earth* Vol. 31 pp. 626-633, (2006).
- [14] J. Rutqvist, Chin-Fu Tsang, “Analysis of thermal-hydrologic-mechanical behavior near an emplacement drift at Yucca Mountain”, *J. Contaminant Hydrology* 62-63, pp. 637-652, (2003).
- [15] McDonald, M.G. and Harbaugh, A. W., 1988. A modular three-dimensional finite-difference ground-water flow model, US Geological Survey. *Techniques of Water-resources Investigations* Book 6, 586, (Chapter A1).
- [16] Zheng, C. and Wang, P.P., 1999. MT3DMS: A modular three-dimensional multispecies model for simulation of advection, dispersion and chemical reactions of contaminants in groundwater systems; *Documentation and User’s Guide*. Contract Report SERDP-99-1, U.S. Army Engineer Research and Development Center, Vicksburg, MS.
- [17] M. Marseguerra et al., “Monte Carlo simulation of contaminant release from a radioactive waste deposit”, *Mathematics and Computers in Simulation*, Vol. 62, pp. 421-430, (2003).
- [18] E. Vold, R. Shuman, “Phase two of the source release modeling for the Los Alamos Area G disposal facility performance assessment”, *proceedings of Waste Management ’97*, DOE Conference, Tucson, Az., (March 1997).
- [19] Lee, Y.M. & Lee, K. J., “Nuclide Transport of Decay Chain in the Fractured Rock Medium: a Model Using Continuous Time Markov Process”, *Ann. Nucl. Energy*, Vol. 22 (2), pp. 71-84, (1995).



- [20] F. Cadini et al., “Monte Carlo estimation of radionuclide release at a repository scale”. *Annals of Nuclear Energy*, Vol. 37, pp. 861–866, (2010).
- [21] Zio E. “Computational methods for reliability and risk analysis”. *Series on quality, reliability and engineering statistics*, vol. 14. Singapore: World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd. (2009).
- [22] F. Cadini et al., “A. Monte Carlo–based assessment of the safety performance of a radionuclide waste repository”, *Reliability Engineering & System Safety*, 95, 859–865, (2010).
- [23] H. Wanner, “Solubility data in radioactive waste disposal”, *Pure Appl. Chem.*, Vol.79, No.5, pp. 875-882, (2007).
- [24] Kawasaki, D. & Ahn, J., “Compartment Model for Particle Migration with Residence Time Distribution”, *IHLRWM 2006*, Apr. 30-May 4, Las Vegas, NV, (2006).
- [25] D. Kawasaki et al., “Markov Chain Model Particle Migration at the Repository Scale”, *Global 2005*, Oct. 9-13, Tsukuba, Japan, (2005).
- [26] H. Murakami, J. Ahn, “Development of compartment models with Markov-chain processes for radionuclide transport in repository region”, *Ann. Nucl. Energy*, Vol. 38, pp. 511-519, (2011).
- [27] D. Wes Efurud et al., “Neptunium and Plutonium solubilities in a Yucca Mountain groundwater”, *Environ. Sci. Technol.*, Vol. 32, pp. 3893-3900, (1998).
- [28] “Performance Assessment Models for Low Level Radioactive Waste Disposal Facilities: A Review”, Yim, Man-Sung & Simonson, S.A., *Progress in Nuclear Energy*, 36(1), pp. 1-38, 2000.
- [29] “A Performance Assessment Methodology for Low-Level Radioactive Waste Disposal Facility”, *NUREG-1573*, October 2000.
- [30] Nair, R.N. & Krishnamoorthy, T.M. (1999) Probabilistic safety assessment model for near surface radioactive waste disposal facilities. *Environmental Modelling & Software*, 14, 447–460.
- [31] Pritzker, A. & Gassman, J. (1980), “Application of simplified reliability methods for risk assessment of nuclear waste repository”, *Nuclear Technology*, 48 (3), 289–297, 1980.
- [32] Chang, S.H. & Cho, W.J. (1984). Risk analysis of radioactive waste repository based on the time-dependent hazard rate. *Radioactive Waste Management and the Nuclear Fuel Cycle*, 5 (1), 63–80.
- [33] Cohen, B.L. (1984). A general probabilistic risk assessment for low level waste burial grounds. *Nuclear and Chemical Waste Management*, 5 (1), 39–47.
- [34] Kim, P.O., Cho, W.J. & Chang, S.H. (1988). Probabilistic safety assessment of low-level waste disposal system. *Radioactive Waste Management and the Nuclear Fuel Cycle*, 10, 253.



- [35] Kim, Y.N., Kim, J.K. & Kim, T.W. (1993). Risk assessment for shallow land burial of low-level radioactive waste. *Waste Management*, 13 (8), 589–598.
- [36] Little, R., Avis, J., Calder, N., Garisto, N., Gierszewski, P., Leung, H., Limer, L., Penfold, J., Towler, G., Walke, R. & Walsh, R. (2009). A preliminary postclosure safety assessment of OPG’s proposed L&ILW deep geologic repository, Canada. *Proceedings of the 12th International Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management, ICEM’09/DECOM’09, October 11-15, 2009, Liverpool, UK.*
- [37] Zio, E. (2007). *An Introduction to the Basics of Reliability and Risk Analysis. Series in quality, reliability and engineering statistics, Vol. 13, World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., Singapore.*
- [38] M. Marseguerra, E. Zio, E. Patelli, F. Giacobbo, “Sviluppo di un Modello Stocastico e sua Implementazione in un Codice Monte Carlo”, November 2001, Internal Report, Politecnico di Milano.
- [39] “Gestione dei rifiuti radioattivi”, Guida Tecnica n° 26, ENEA, 1987.
- [40] Zuloaga, P., “New Developments in LLW Management in Spain”, ENRESA, (2006).
- [41] Marseguerra, M. & Zio, E., “Basics of the Monte Carlo Method with Application to System Reliability”, LiLoLe-Verlag GmbH, Hagen, Germany 2002.
- [42] Kolmogorov, A.N., Dmitriev, N.A., 1947, “Stochastic branching processes”, *Doklady Akademi Nauk SSSR* 56 (1), 7–10 (in Russian).
- [43] Quantisci FINAL REPORT TO ENEA: “Preliminary feasibility assessment for near-surface engineered LLW repositories at two sites”.
- [44] ENEA, 2000, “Inventario nazionale dei rifiuti radioattivi”, Task Force per il sito nazionale di deposito dei materiali radioattivi, 3a edizione.
- [45] El Cabril, Internal report.
- [46] E. H. Isaak, R. M. Srivastava, “An introduction to applied geostatistics”, Oxford University Press, Oxford, 1989.
- [47] J. J. Gómez-Hernández, A. G. Journel, Joint sequential simulation of multi-Gaussian field. *Geostatitics Troia ’92*, Ed. Soares, 1, 85-94, 1993.
- [48] M. Granger Morgan and Max Henrion, “Uncertainty”, Cambridge University Press, 1991.
- [49] Papoulis, A. P., 2002. *Probability, random variables and stochastic processes*. New York: McGraw Hill.

