

Kärnbränslecykelns slutsteg

Använt kärnbränsle – KBS-3

- I Allmänt
- II Geologi
- III Barriärer**
- IV Säkerhet

Kärnbränslecykelns slutsteg

Använt kärnbränsle – KBS-3

III Barriärer

SKBF/KBS

Svensk Kärnbränsleförsörjning AB/Avdelningen för
Kärnkraftsavfallens Behandling och Slutförvaring

INNEHÅLLSFÖRTECKNING FÖR SAMTLIGA VOLYMER

VOL 1	ALLMÄNT
1	INLEDNING
1.1	Bakgrund
1.2	Generella principer
1.3	Rapportens uppläggning
1.4	Underlagsmaterial
2	HANTERINGSGÅNG OCH SLUTFÖRVARETS FUNKTION
2.1	Allmänt
2.2	Hanteringsgång
2.3	Slutförvarets funktion
2.4	Lokaliseringssynpunkter
2.5	Förläggningsdjup
2.6	Flexibilitet och utvecklingsmöjligheter
3	ANVÄNT BRÄNSLE
3.1	Förutsättningar
3.2	Använt kärnbränsle, allmänt
3.3	Beskrivning av referensbränslet
3.4	Radioaktivitet och resteffekt i använt kärnbränsle
3.5	Variationer och osäkerheter i data
4	ANLÄGGNINGAR OCH UTRUSTNINGAR
4.1	Allmänt
4.2	Transportsystem
4.3	Centralt lager för använt bränsle, CLAB
4.4	Inkapslingsstation
4.5	Slutförvar för använt bränsle
4.6	Tidplan
	REFERENSER

VOL II GEOLOGI

5 PLATSUNDERSÖKNINGAR

- 5.1 Bakgrund och syfte
- 5.2 Omfattning
- 5.3 Undersökningsprogram
- 5.4 Undersökningsmetoder
- 5.5 Databehandling och redovisning

6 BERGETS GRUNDVATTENRÖRELSER

- 6.1 Berggrunden som vattenledande medium
- 6.2 Mätmetoder
- 6.3 Beräkningsmodeller
- 6.4 Förändringar av grundvattenförhållandena på lång sikt

7 GRUNDVATTNETS OCH SPRICKSYSTEMENS KEMI

- 7.1 Kristallint berg som geokemiskt system
- 7.2 Grundvattenkemi i granitisk berggrund
- 7.3 Spricksystemens mineralogi och kemi i granitisk berggrund
- 7.4 Påverkan av yttre faktorer
- 7.5 Dataunderlag
- 7.6 Referensdata

8 BERGGRUNDENS NATURLIGA FÖRÄNDRINGAR

- 8.1 Bakgrund och översikt
- 8.2 Berggrundsutvecklingen och dess tidsramar
- 8.3 Bergskedjebildning
- 8.4 Landhöjning
- 8.5 Blockrörelser och vulkanism
- 8.6 Jordskalv
- 8.7 Förskjutningar inom bergblocken
- 8.8 Mineralisering
- 8.9 Nedisning

REFERENSER

VOL III SPRIDNING

9 BUFFERT- OCH ÅTERFYLLNADSMATERIAL

- 9.1 Allmänt
- 9.2 Buffertmateriallets egenskaper
- 9.3 Buffertmateriallets funktion
- 9.4 Återfyllningsmaterial
- 9.5 Pluggning av borrhål och försegling av tunnlar och schakt
- 9.6 Materialkontroll

- 10 KAPSEL OCH KAPSELKORROSION
 - 10.1 Kapselns funktion
 - 10.2 Materialval
 - 10.3 Tillverkningsteknik och kontroll
 - 10.4 Mekanisk påverkan på kapseln
 - 10.5 Kemisk påverkan på kapseln
 - 10.6 Kapselns livslängd och genombrottens fördelning i tiden

- 11 BRÄNSLE OCH BRÄNSLEUPPLÖSNING
 - 11.1 Bränsleupplösningens betydelse
 - 11.2 Karaktärisering av bränslematrisen och
 nuklidfördelning i bränslet
 - 11.3 Experimentella undersökningar
 - 11.4 Modeller för bränsleupplösning
 - 11.5 Diskussion och slutsatser

- 12 RADIONUKLIDKEMI I GRUNDVATTENMILJÖ
 - 12.1 Aktinidernas kemi
 - 12.2 Klyvningsprodukternas kemi
 - 12.3 Kolloidbildning
 - 12.4 Organiska komplex
 - 12.5 Löslighet
 - 12.6 Sorptionsprocesser
 - 12.7 Radionuklidsorption på geologiska system
 - 12.8 Sorption av kolloidala specier och makromolekyler
 - 12.9 Referensdata

- 13 NUKLIDSPRIDNING I NÄROMRÅDET
 - 13.1 Allmänt
 - 13.2 Transport genom korrosionsprodukter och lerbarriärer
 - 13.3 Konsekvenser av radiolys och vätgasbildning
 - 13.4 Utsläpp av nuklider från närområdet
 - 13.5 Utsläpp från förvar för metalledar
 - 13.6 Modeller och data
 - 13.7 Referensdata

- 14 NUKLIDSPRIDNING I BERGET
 - 14.1 Allmänt om fördröjningsmekanismer
 - 14.2 Fysikalisk modell
 - 14.3 Verifikation av fysikalisk modell
 - 14.4 Matematisk modell
 - 14.5 Tillförlitligheten av dataunderlaget

- 15 SPRIDNING OCH EXPOSITION I BIOSFÄREN
 - 15.1 Allmänt om betydelsen av spridning i biosfären
 - 15.2 Beskrivning av recipienter och ekologiska mekanismer
 - 15.3 Spridningsprocesser och exponeringsvägar
 - 15.4 Modellprinciper
 - 15.5 Val av beräkningsmodell - BIOPATH
 - 15.6 Databas och osäkerheter
 - 15.7 Långtidsperspektiv på spridningen
 - 15.8 Resultat

- 16 STRÅLDOSER OCH HÄLSOEFFEKTER
- 16.1 Allmänt beträffande dosbelastningen
- 16.2 Dostyper
- 16.3 Databas och beräkningsmodeller
- 16.4 Effekter av joniserande strålning
- 16.5 Referensdata

REFERENSER

VOL IV SÄKERHET

- 17 SÄKERHETSMÄSSIGA PRINCIPER
- 17.1 Allmänna förutsättningar
- 17.2 Kvalitetskrav och kvalitetssäkring
- 17.3 Strålskyddsprinciper
- 17.4 Strålskyddsnormer
- 17.5 Säkerhetsmässiga grunder för bedömning av förvarssystemets funktion

- 18 PLATSSPECIFIKA DATA
- 18.1 Allmänt
- 18.2 Fjällveden
- 18.3 Gideå
- 18.4 Kamlunge
- 18.5 Svartboberget
- 18.6 Resultat från undersökningar i andra områden

- 19 RADIOLOGISK SÄKERHET UNDER DRIFT
- 19.1 Allmänt
- 19.2 Transporter
- 19.3 Centralt lager för använt bränsle, CLAB
- 19.4 Inkapslingsstation
- 19.5 Hantering vid slutförvaret
- 19.6 Sammanfattning

- 20 DET SLUTNA FÖRVARETS SÄKERHET
- 20.1 Allmänt
- 20.2 Troligt händelseförlopp
- 20.3 Grundvattenomsättning i berg och buffert
- 20.4 Kapsellivslängd
- 20.5 Frigörelse av radioaktiva ämnen
- 20.6 Nuklidtransport i geosfären
- 20.7 Biosfärsspridning och dosberäkning
- 20.8 Sammanfattning

- 21 MISSÖDEN OCH EXTREMA HÄNDELSE
- 21.1 Allmänt
- 21.2 Berggrunds rörelser
- 21.3 Kriticitet i slutförvaret
- 21.4 Krigshandlingar och sabotage
- 21.5 Inträngning i förvaret
- 21.6 Övrigt

22	SAMMANFATTANDE SÄKERHETSBEDÖMNING
22.1	Allmänt
22.2	Säkerheten i hanteringskedjan
22.3	Slutförvarets långsiktiga säkerhet
22.4	Slutsatser

REFERENSER

INNEHÅLLSFÖRTECKNING

VOLYM III BARRIÄRER

9	BUFFERT- OCH ÅTERFYLLNADSMATERIAL	9:1
9.1	Allmänt	9:1
9.2	Buffertmaterialalets egenskaper	9:1
9.2.1	Allmänt	9:1
9.2.2	Sammansättning	9:3
9.2.3	Densitet	9:5
9.2.4	Kemisk stabilitet	9:5
9.2.5	Hydraulisk konduktivitet och diffusivitet	9:5
9.2.6	Bärighet	9:6
9.2.7	Svälltryck	9:7
9.2.8	Värmeledningsförmåga	9:7
9.2.9	Jonbyteskapacitet	9:8
9.3	Buffertmaterialalets funktion	9:9
9.4	Återfyllningsmaterial	9:11
9.5	Pluggning av borrhål och försegling av tunnlår och schakt	9:11
9.6	Materialkontroll	9:13
10	KAPSEL OCH KAPSELKORROSION	10:1
10.1	Kapselns funktion	10:1
10.2	Materialval	10:1
10.3	Tillverkningsteknik och kontroll	10:3
10.3.1	Förslutning med elektronstrålesvetsning	10:3
10.3.2	Förslutning med het isostatisk pressning	10:4
10.3.3	Kvalitetskrav och kvalitetskontroll	10:4
10.4	Mekanisk påverkan på kapseln	10:5
10.4.1	Kvarblivna spänningar från tillverkningen	10:5
10.4.2	Yttre krafter	10:6
10.4.3	Inre krafter	10:6

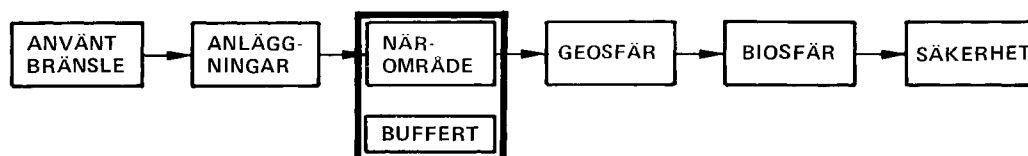
10.5	Kemisk påverkan på kapseln	10:6
10.5.1	Kemisk miljö	10:6
10.5.2	Korrosionsprocesser, allmänt	10:7
10.5.3	Syrekorrosion	10:8
10.5.4	Sulfidkorrosion	10:9
10.5.5	Kloridkorrosion	10:9
10.5.6	Oxidation med sulfat	10:9
10.5.7	Spänningskorrosion	10:10
10.5.8	Angreppets form och tillväxt	10:10
10.6	Kapselns livslängd och genombrottens fördelning i tiden	10:11
11	BRÄNSLE OCH BRÄNSLEUPPLÖSNING	11:1
11.1	Bränsleupplösningens betydelse	11:1
11.2	Karaktärisering av bränslematrisen och nuklidfördelning i bränslet	11:1
11.3	Experimentella undersökningar	11:2
11.3.1	Cesium och jod	11:2
11.3.2	Strontium och övriga fissionsprodukter	11:2
11.3.3	Uran och övriga aktinider	11:4
11.4	Modeller för bränsleupplösning	11:4
11.4.1	Matrisupplösning baserat på uppmätta lakstigheter	11:4
11.4.2	Matrisupplösning baserat på uppmätta koncentrationer i laklösningarna	11:5
11.5	Diskussion och slutsatser	11:7
12	RADIONUKLIDKEMI I GRUNDVATTENMILJÖ	12:1
12.1	Aktinidernas kemi	12:1
12.1.1	Torium	12:2
12.1.2	Uran	12:2
12.1.3	Neptunium	12:3
12.1.4	Plutonium	12:4
12.1.5	Americium	12:5
12.2	Klyvningsprodukternas kemi	12:5
12.2.1	Cesium	12:6
12.2.2	Strontium, radium	12:6
12.2.3	Lantanider	12:6
12.2.4	Zirkonium, niob, nickel	12:6
12.2.5	Teknetium	12:6
12.2.6	Jod	12:7
12.2.7	Tenn, palladium	12:7
12.3	Kolloidbildning	12:8
12.4	Organiska komplex	12:9
12.5	Löslighet	12:9

12.6	Sorptionsprocesser	12:12
12.6.1	Fysikalisk adsorption	12:13
12.6.2	Elektrostatisk interaktion	12:13
12.6.3	Kemisorption	12:13
12.6.4	Substitution	12:13
12.6.5	Utfällning - mineralisering	12:14
12.6.6	Fördelningskoefficientbegreppet	12:14
12.7	Radionuklidsorption på geologiska system	12:14
12.7.1	Tre- och fyrvärda aktinider - lantanider	12:15
12.7.2	Fem- och sexvärda aktinider	12:16
12.7.3	Cesium, strontium	12:16
12.7.4	Teknetium	12:16
12.7.5	Jod	12:16
12.7.6	Fördelningskoefficienter	12:16
12.8	Sorption av kolloidala specier och makromolekyler	12:20
12.8.1	Sanna kolloider	12:20
12.8.2	Pseudokolloider	12:20
12.8.3	Humus- och fulvosyrakomplex	12:21
12.9	Referensdata	12:23
13	NUKLIDSPRIDNING I NÄROMRÅDET	13:1
13.1	Allmänt	13:1
13.2	Transport genom korrosionsprodukter och lerbarriärer	13:3
13.2.1	Instationära skedet	13:4
13.2.2	Stationära skedet	13:7
13.3	Konsekvenser av radiolys och vätgasbildning	13:11
13.3.1	Inverkan på kapsel och bränsle	13:12
13.3.2	Radiolysens inverkan på nuklidvandring i lera och berg	13:14
13.3.3	Vägasutveckling vid radiolysen	13:17
13.3.4	Vätgasbildande korrosion - kopparkapseln	13:17
13.4	Utsläpp av nuklider från närområdet	13:18
13.5	Utsläpp från förvar för metalldelar	13:20
13.5.1	Allmänt	13:20
13.5.2	Kemisk miljö i förvaret	13:20
13.5.3	Korrosion	13:20
13.5.4	Löslighet för nickel och niob	13:21
13.5.5	Uttransport av nickel och niob	13:21
13.6	Modeller och data	13:22
13.7	Referensdata	13:22

14	NUKLIDSPRIDNING I BERGET	14:1
14.1	Allmänt om fördröjningsmekanismer	14:1
14.2	Fysikalisk modell	14:3
14.2.1	Inledning	14:3
14.2.2	Vattenflöden och hastigheter	14:4
14.2.3	Nuklidernas transport i sprickorna	14:5
14.2.4	Inträngning i bergmatrisen	14:7
14.2.5	Dispersionsmekanismer	14:11
14.2.6	Avklingning	14:12
14.3	Verifikation av fysikalisk modell	14:12
14.3.1	Inledning	14:12
14.3.2	Laboratorieförsök	14:13
14.3.3	Fältförsök	14:14
14.3.4	Naturliga evidens för lösta ämnens vandring i kristallint berg	14:17
14.4	Matematisk modell	14:17
14.4.1	Inledning	14:17
14.4.2	Ekvationer	14:18
14.4.3	Lösning av ekvationerna och verifikation av lösningsmetodik	14:19
14.4.4	Ett centralt beräkningsfall	14:21
14.5	Tillförlitligheten av dataunderlaget	14:23
14.5.1	Modell och data	14:23
14.5.2	Potentiella snabba spridningsmekanismer	14:25
15	SPRIDNING OCH EXPOSITION I BIOSFÄREN	15:1
15.1	Allmänt om betydelsen av spridning i biosfären	15:1
15.2	Beskrivning av recipienter och ekologiska mekanismer	15:2
15.2.1	Brunn	15:2
15.2.2	Insjö	15:3
15.3	Spridningsprocesser och exponeringsvägar	15:3
15.4	Modellprinciper	15:4
15.4.1	Matematisk modell	15:4
15.4.2	Modellens reservoarer	15:5
15.5	Val av beräkningsmodell - BIOPATH	15:5
15.5.1	Modellstruktur	15:5
15.5.2	Internexponering	15:6
15.5.3	Externexponering	15:8
15.5.4	Befolkning och befolkningstillväxt	15:9

15.6	Databas och osäkerheter	15:9
15.6.1	Databas	15:9
15.6.2	Val av exponeringsvägar	15:10
15.6.3	Numerisk approximation	15:11
15.6.4	Variationer i utbytet mellan ekosystemets olika reservoarer	15:12
15.6.5	Variationer i dietsammansättning och upptag via näringsskedjor	15:13
15.6.6	Dotterprodukter i sönderfallskedjor	15:13
15.6.7	Jämförelser mot tillstånd och förlopp i naturen	15:14
15.7	Långtidsperspektiv på spridningen	15:14
15.7.1	Långsiktiga variationer avseende mark och vatten	15:14
15.8	Resultat	15:16
16	STRÅLDOSER OCH HÄLSOEFFEKTER	16:1
16.1	Allmänt beträffande dosbelastningen	16:1
16.2	Dostyper	16:2
16.2.1	Individdos	16:2
16.2.2	Kollektivdos	16:2
16.2.3	Dosinteckning	16:2
16.3	Databas och beräkningsmodeller	16:3
16.3.1	Databas och modellval	16:3
16.3.2	Dosomvandlingsfaktorer enligt ICRP	16:4
16.3.3	Åldersberoende	16:4
16.3.4	Övriga antaganden	16:6
16.4	Effekter av joniserande strålning	16:7
16.4.1	Hälsoeffekter	16:7
16.4.2	Risikfaktorer avseende organ och vävnader	16:9
16.5	Referensdata	16:9
	REFERENSER	R:1

9 BUFFERT- OCH ÅTERFYLLNADSMATERIAL



Detta kapitel behandlar det lermaterial, här kallat buffertmaterial, som appliceras mellan kapsel och berg i deponeringshål, samt den lera/sandblandning med vilken tunnlar och schakt återfylls vid försegling av förvaret.

9.1 ALLMÄNT

Buffertmaterialets uppgift är att utgöra en mekanisk och kemisk skyddszon runt kapseln samt begränsa intransporten av korrosiva ämnen från grundvatten till kapselyta och i ett senare skede begränsa uttransporten av lakade radioaktiva ämnen från kapseln.

Återfyllningen i tunnlar och schakt har till uppgift dels att bevara den mekaniska stabiliteten hos de utsprängda utrymmena, dels att återställa de hydrologiska förhållandena i området.

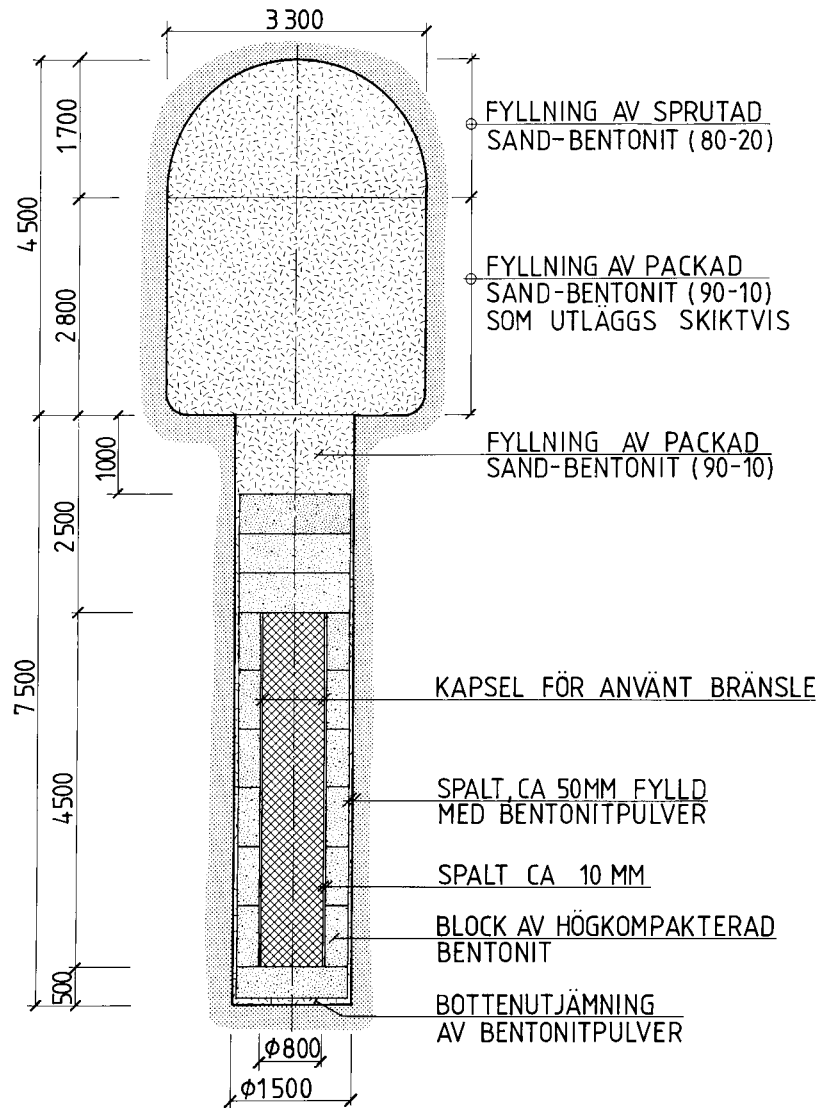
I figur 9-1 visas hur buffertmaterialet appliceras i deponeringshål och tunnlar.

9.2 BUFFERTMATERIALETS EGENSKAPER

9.2.1 Allmänt

Genom att använda ren bentonit med hög densitet erhåller man ett buffertmaterial, som har mycket låg hydraulisk konduktivitet och diffusivitet och som i övrigt har följande önskvärda egenskaper:

- god bärighet, så att kapseln hålls i sitt läge i deponeringshållet
- god värmeledningsförmåga, så att den värme som bränslet i kapseln avger överförs till berget utan att kapseln eller buffertmaterialet får för hög temperatur



Figur 9-1. Principskiss för deponering.

- långtidsstabilitet, så att materialet bibehåller sina egenskaper under den mycket långa tid som slutförvarets funktion skall vidmakthållas.

Materialet bör inte innehålla komponenter, som på ett avgörande sätt kan öka korrosionstakten hos kopparkapseln. En pH-buffrande funktion är önskvärd ur korrosionssynpunkt och härvidlag är bentonit gynnsam: pH är ca 8-9 i vattenmättat tillstånd. Bentonit har vidare god jonbytesförmåga, så att positivt laddade radionuklider som kan läcka ut från kapseln fördröjs.

Bentonit med hög densitet karakteriseras av förmågan att svälla kraftigt vid vattenupptagning. Vid förhindrad svällning uppkommer i stället ett högt svälltryck /9-1/. Denna egenskap leder

till självläkning och homogenisering och förhindrar att vattenförande passager uppkommer i materialet. På grund av svälltrycket tränger bentoniten till viss del också in i och tillsluter sprickor, som kan finnas i deponeringshålets väggar.

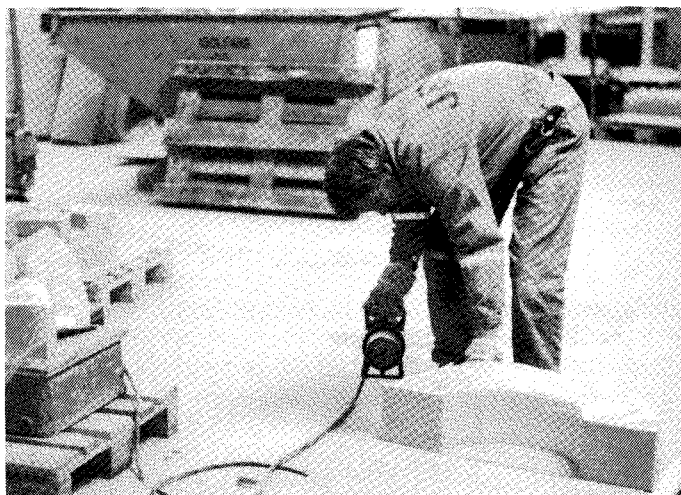
De för buffertmaterialets funktion grundläggande egenskaperna är beroende av att en tillräckligt hög densitet erhålls i deponeringshålet. Bentoniten appliceras därför i deponeringshålen i form av högkompakterade block. Under inverkan av inträngande grundvatten sväller bentoniten, varvid de spalter och hålrum, som finns efter appliceringen, fylls ut. Svällningen begränsas av det omgivande berget och av fyllningen i den ovanför liggande tunneln, så att en tillräckligt hög densitet bibehålls. Bentonitens vattenupptagning sker långsamt och motverkas också i viss mån av värmen från kapseln.

Även om en hög densitet hos buffertmaterialet är önskvärd, finns det en övre gräns, eftersom för höga svälltryck kan ge icke önskvärda spänningar i det omgivande berget. Den valda utformningen ger en densitet av 2,0 - 2,1 ton/m³, vilket bedöms vara ett lämpligt värde med hänsyn till materialets funktion. Den medför dessutom ett relativt enkelt tillverknings- och appliceringsförfarande.

9.2.2 Sammansättning

Bentonit är den geologiska beteckningen på i naturen förekommande av vulkaniska askor bildade leror. De är rika på svällande lermineral, såsom smektit, varav montmorillonit är en vanlig variant. Sådana leror har ett flertal användningsområden, såväl inom gjuteri- och oljeborrningstekniken som inom byggnadstekniken och finns kommersiellt tillgängliga i olika former. Som referensmaterial har valts en bentonit med beteckningen Volclay MX-80, som utvinns i Wyoming och South Dakota, USA. Andra typer av naturlig eller syntetiskt framställd smektit kan också användas. MX-80 är en smektit natriumbentonit som till 90% består av mineralet montmorillonit, med natrium som dominerande adsorberad jon. Med denna jonbeläggning fås de bästa tätnings- och svällningsegenskaperna men även bentoniter mättade med kalcium kan ha tillfredsställande egenskaper /9-2/. Sålunda ger kommersiellt tillgängliga kalciumbentoniter ungefär samma svälltryck som natriumbentonit vid de densiteter det är fråga om i högkompakterat tillstånd. Den hydrauliska konduktiviteten är dock ca fem gånger högre och förmågan till homogenisering sämre än hos natriumbentonit. Partiellt jonbyte från natrium till kalcium kan inträffa i deponeringshålen, men den härav betingade ökningen i hydraulisk konduktivitet blir utan praktisk betydelse /9-3/.

De kemiska huvudkomponenterna i Volclay MX-80 är kisel och aluminium. Till detta kommer mindre mängder natrium, magnesium och järn samt kalcium och kalium.



Figur 9-2. Isostatiskt pressad bentonit kan formas till block med regelbunden form som sedan kan byggas ihop med god passning.

Kornstorleken för granulat är ca 0,07 - 0,8 mm och kompaktdensiteten 2,7 ton/m³. För en mera detaljerad redovisning av bentonitens egenskaper och strukturella uppbyggnad, se /9-4/.

Bentonit kan innehålla organiskt material, som kan ha betydelse för kapselkorrosion, se kapitel 10. Halten av detta material bör ej överstiga 200 mg/kg bentonit. Överskrids denna halt bör bentoniten renas, vilket kan ske genom uppvärmning i luft till 425°C under 15 timmar. Försök har visat att en sådan värmebehandling inte påverkar bentonitens svällningsegenskaper.

9.2.3 Densitet

Bentoniten appliceras i deponeringshålet i form av tillpassade block (fig 9-2), som pressats under ca 100 MPa tryck. Den spalt, som måste finnas mellan blocken och berget för att möjliggöra appliceringen, fylls med löst bentonitpulver. Fyllningen kan anpassas med hänsyn till önskad slutdensitet hos det vattenmättade materialet. Skrymdensiteten för lufttorrt material är 2,1 - 2,2 ton/m³ för blocken och ca 1,2 ton/m³ för pulvret i spalterna. Medeldensiteten, när all bentonit i deponeringshålet vattenmättats och svällningen färdigutbildats, blir 2,0 - 2,1 ton/m³. Den bestäms av den volymökning som blir följden av att fogarna mellan blocken fylls igen och bentoniten i spalterna (se fig 9-1) komprimeras, samt av att bentonit från deponeringshålet något trycker undan och komprimerar den ovanförliggande tunnelns sand/bentonitfyllning.

9.2.4 Kemisk stabilitet

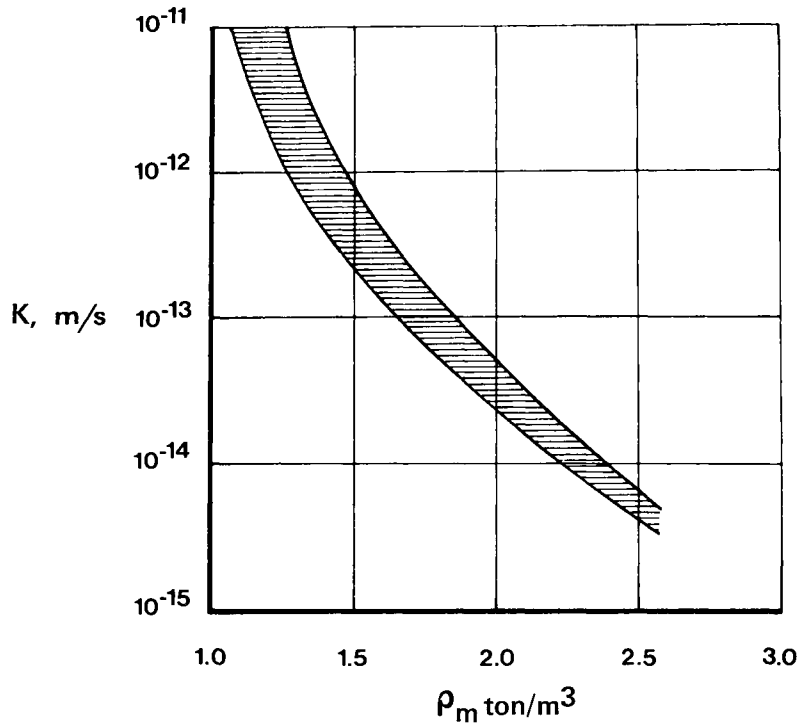
Bentonitlager, som i naturen varit utsatta för temperatur, grundvattenförhållanden och tryck liknande dem som råder i slutförvaret, visar att smektitmineralen kan förutsättas förbli kemiskt stabila under de tidsrymder, som buffertmaterialet måste bibehålla de egenskaper, som är väsentliga för slutförvarets funktion. Sålunda har det visats att den dominerande delen av smektitinnehållet kommer att vara kemiskt intakt under mer än en miljon år, om temperaturen inte är över 100°C /9-4, 9-5/. Med denna temperaturbegrensning kommer också andra icke önskvärda kemiska förändringar, såsom cementering genom kvartsutfällning, att bli försumbara /9-4/.

9.2.5 Hydraulisk konduktivitet och diffusivitet

Smektitrika lerors hydrauliska konduktivitet (permeabilitet) som funktion av densiteten är känd från såväl litteraturen som från omfattande laboratorieundersökningar med olika bentoniter /9-3/.

Det generella sambandet illustreras av diagrammet i fig 9-3. Vid en densitet av 2,0 ton/m³ är konduktiviteten ca 5×10^{-14} m/s. Detta innebär att materialet är praktiskt taget ogenomträngligt för vattenflöde sedan full vattenmättnad uppnåtts.

Den låga konduktiviteten gör att diffusion blir den helt dominerande mekanismen för transporter av joner genom buffertmaterialet. Diffusionsegenskaperna hos högkompakterad bentonit har bestämts i laboratorieförsök och det har härvid visats att variationer i skrymdensiteten inom området 1,6 - 2,1 ton/m³ har ringa betydelse /9-6/. Däremot spelar jonstorleken och laddningen en avgörande roll för den hastighet med vilken jonen diffunderar /9-7/. Sålunda visar det sig att icke-sorberande joner (anjoner),



Figur 9-3. Förhållandet mellan hydraulisk konduktivitet (K) och skrymdensitet (ρ_m) för vattenmättad natriumbentonit vid rumstemperatur. Bandet täcker de variationer som orsakas av inverkan av varierande salthalt i porvattnet och spridningen av experimentella mätdata.

såsom jodid och klorid, migrerar mycket långsamt. Diffusionskoefficienterna för dessa joner är mindre än $6 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$.

Katjoner migrerar snabbare och här framgår inverkan av jonstorleken tydligt; diffusionskoefficienten för strontium är högst $5 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$, medan den för cesium är högst $8 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$.

9.2.6 Bärighet

De block av högkompakterad bentonit som appliceras i deponeringshålet har god bärförmåga. Till utseendet och för känslan liknar materialet täljsten. Skjuvhållfastheten är jämförbar med den för sedimentära bergarter. Vattenkvoten, dvs förhållandet mellan vattnets vikt och fasta substansens vikt, hos blocken före appliceringen i deponeringshålen är ca 10%. Vid full vattenmättnad av bentoniten i deponeringshålen blir vattenkvoten ca 25%.

Bärigheten är en funktion av materialets densitet. Vid den medeldensitet som bentoniten får i deponeringshålen vid full vattenmättnad, $2,0 - 2,1 \text{ ton/m}^3$, blir den av tyngdkraften förorsakade nedsjunkningen av kapseln efter en miljon år mindre än 10 mm /9-8/. Även vid en skrymdensitet av endast $1,5 \text{ ton/m}^3$ är bärförmågan tillräcklig för att kapseln inte ens på mycket lång sikt skall

sjunka ned genom hela det underliggande bentonitskiktet. Det innebär att bentoniten har tillräcklig bärförmåga även vid osannolikt stora materialförluster ut i berget /9-9/.

Bentonit i kontakt med vatten i en spricka i berget kring deponeringshålet sväller och tränger ut i sprickan. Utträngningen i sprickan beror på att svälltrycket i sprickan avtar med avståndet från borrhållsväggen. Utträngningen motverkas av ett strömningssmotstånd beroende på inre krafter i bentonitmaterialiet samt på friktionen mot sprickväggarna.

Om strömningssmotståndet försummas för alla sprickor kommer utträngningshastigheten enbart att begränsas av vattenupptagningen. Antas berget kring ett deponeringshål ha 15 sprickor med maxvidd av 0,5 mm, kommer bentoniten att tränga ut mindre än 3 m under en miljon år. Högst 0,2 m³ bentonit rymmes i denna bergvolym, dvs ca 2% av bentonitvolymen i hålet /9-9/.

En beräkning med fem gånger flera sprickor och fem gånger större sprickvidd men med strömningssmotstånd kvar i sprickor som är mindre än 1 mm ger att 3 m³ bentonit med densiteten 1,5 ton/m³ fyller och därmed tätar sprickorna i hålets närhet. Denna volym bentonit motsvarar en densitetsminskning av bentoniten i deponeringshålet från 2,05 ton/m³ till ca 1,9 ton/m³. /9-9/

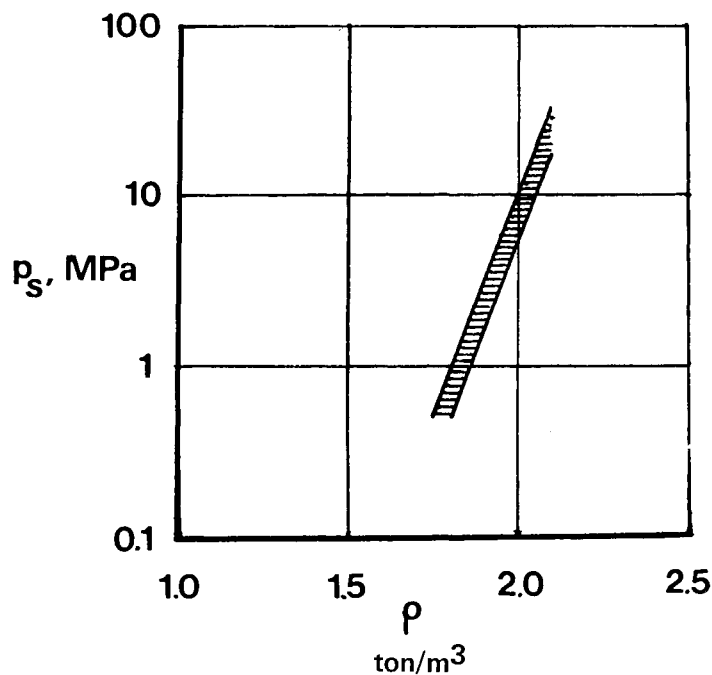
Strömmande grundvatten kan inte transportera bort lerpartiklar i sådan mängd att det får betydelse för densiteten hos bentoniten i deponeringshålet. Vattenhastigheten i sprickor med en vidd mindre än 0,5 mm är i storleksordningen 0,1 à 1 mm/s. Denna hastighet är inte tillräcklig för att mekaniskt loss göra bentonitpartiklar även i den lösaste gel i aktuella grundvatten /9-9/.

9.2.7 Svälltryck

Bentonit, som tar upp vatten vid förhindrad svällning, utövar ett svälltryck som är en funktion av materialets densitet. För MX-80 har sambandet svälltryck/densitet fastställts vid omfattande försök och jämförts med teoretiska beräkningar /9-1/. Vid en skrymdensitet av 2,0 - 2,1 ton/m³, blir svälltrycket ca 10 MPa, vilket verifierats av storskaliga fältförsök i Stripa gruva. Ett svälltryck av denna storleksordning är lämpligt dels för att det i huvudsak återställer det ursprungliga spänningstillståndet i berget, som omger deponeringshålen, dels för att det ger en tillräckligt hög svällningspotential. Fig 9-4 visar det generella sambandet mellan skrymdensitet och svälltryck.

9.2.8 Värmeledningsförmåga

Värmeledningstalet hos lufttorr högkompakterad bentonit med en skrymdensitet av 2,1 ton/m³ och en vattenkvot av ca 5 - 14% har



Figur 9-4. Samband mellan svälltryck (P_s) och skrymdensitet (ρ). Bandet täcker ungefär de variationer som orsakas av skillnader i grundvattensammansättning.

bestämts till 0,96 - 1,15 W/(m·K). /9-10/ Motsvarande värden på värmekapacitiveteten är 2,02 - 2,56 MJ/(m³·K). I deponeringshålen kommer vatten att tränga in i bentoniten, vilket leder till att värmeledningsförmågan ökar till 1,5 W/(m·K). Under en övergångstid kommer värmeledningstalet att vara lägre på grund av spalter mellan bentonitblock, kapsel och berg samt viss uttorkning av bentoniten närmast kapseln. Mätningar i laboratorium /9-11/ och i fältförsök i Stripa visar att effektiva värmeledningstalet blir ca 0,75 W/(m·K). Kapslarnas högsta temperatur beräknas bli 80°C (jfr avsnitt 4.5.4), vilket innebär en god marginal till 100°C och att smektitmineralens kemiska stabilitet bevaras /9-4/.

9.2.9 Jonbyteskapacitet

På grund av sin höga halt av lermineralet montmorillonit har bentonit en betydande förmåga att genom jonbyte fördröja vissa nuklider. Dessa frågor behandlas i kapitel 12.

9.3 BUFFERTMATERIALETS FUNKTION

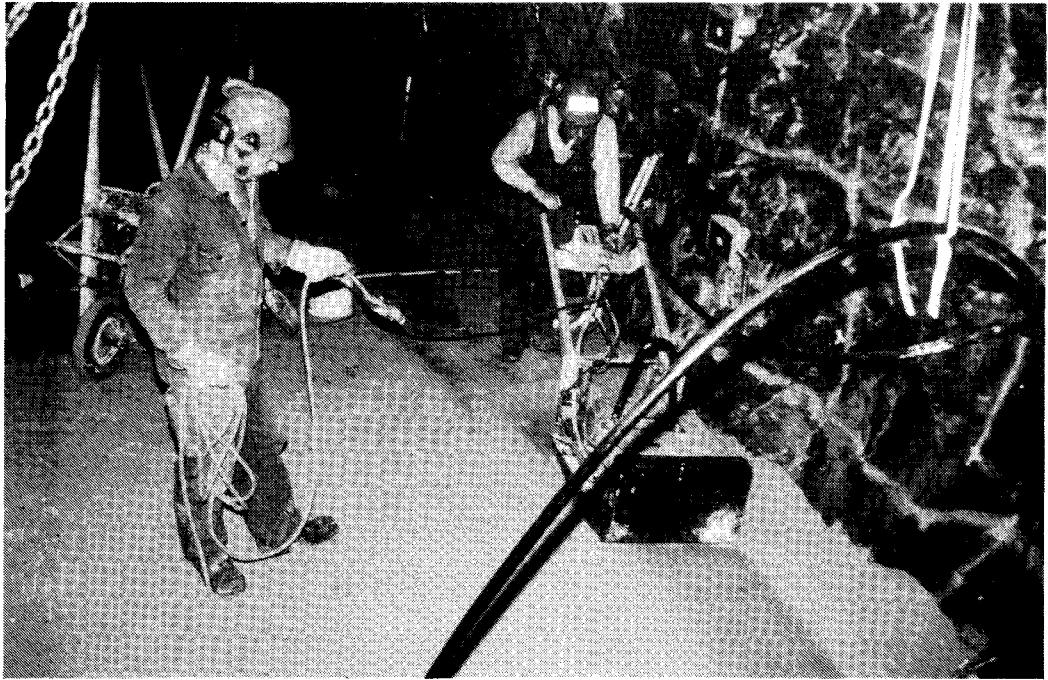
Efter deponeringen kommer vatten att tränga in i deponeringshålen. Vattenupptagningen i bentoniten sker relativt långsamt; i flertalet hål dröjer det flera år tills full vattenmättnad uppnås och i vissa hål kan det dröja flera tiotal år. Om ytvatten i tunnlar hindras strömma in i deponeringshålet, kommer vattenmättnad i normalfallet inte att hinna inträffa under tiden före återfyllning av en förvaringstunnel. Ytvatten avskärmas genom att man gjuter en betongplatta med sarg före borrhningen av hålet, vilket förses med täckning sedan det fyllts med kapsel och bentonit. Betongen och täckningen avlägsnas strax före tunnelfyllningens anbringande. Tendenser till alltför snabb svällning kan, om det visar sig behövt, bemästras under tiden tills tunnelåterfyllning skall ske genom stämpling mellan täckning och tunneltak.

I samband med vattenupptagningen alstras så kallad bevättningsvärme, som leder till viss temperaturförhöjning. Upptagningen av vatten ger emellertid samtidigt en ökning av värmeledningsförmågan och bevättningsvärmets inverkan kan därför inte urskiljas från inverkan av värmen från kapseln. Det bekräftas av de pågående fältförsöken i Stripa.

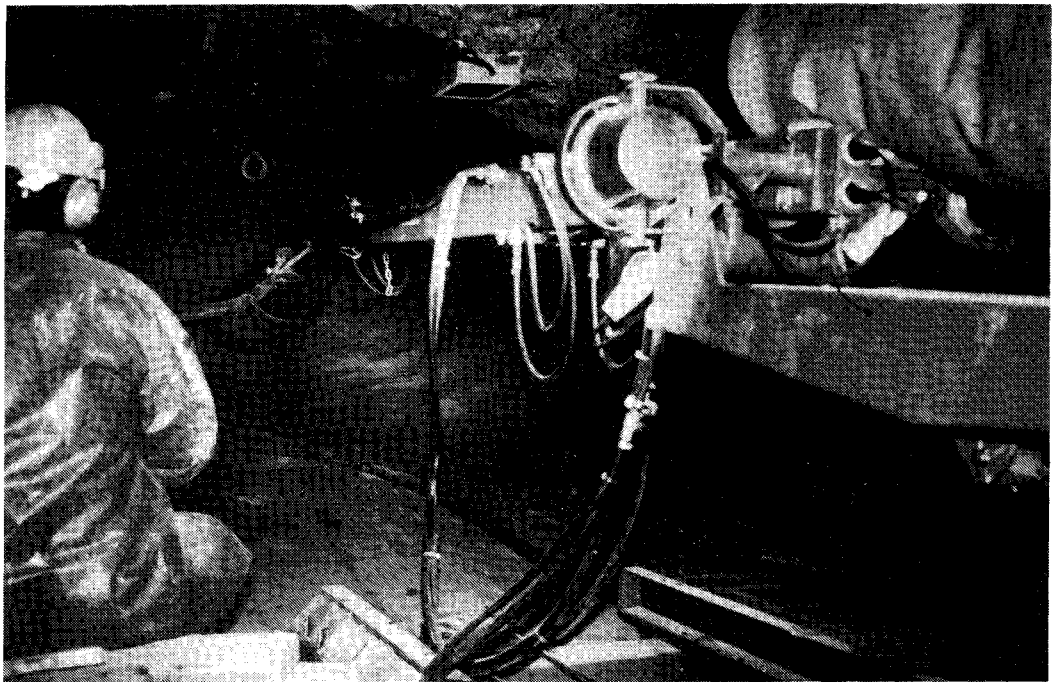
När slutförvaret förseglats återställs de ursprungliga grundvattenförhållandena efter hand. Vatten får då tillträde också från överliggande tunnel och tas upp av den högkompakterade bentoniten. Allteftersom bentonitens vattenupptagning fortskrider, minskar dess hydrauliska konduktivitet, vilket gör att vattenupptagningen går allt långsammare.

Svälltrycket gör att bentonit pressas in i och tätar sprickor i hålväggarna. I bentonit, som trängt in i en spricka, avtar svälltrycket snabbt med avståndet från hålväggen genom att densiteten hos bentoniten i sprickan avtar. I de sprickor (sprickvidd < 0,5 mm), som kan mynna i ett deponeringshål, medför väggfriktionen att bentonitens inträngning avstannar efter några decimeter. Yttre delen av den inträngande bentoniten bildar under inverkan av kalciumjonerna i grundvattnet en stabil gel, vilket innebär att borttransporten av lerpartiklar från sprickor genom grundvat-
tenerosion blir oväsentlig /9-9/.

Till följd av svällningen kommer den högkompakterade bentoniten i deponeringshålen att tränga upp några dm i sand/bentonitfyllningen i tunneln ovanför. Den tidigare angivna, slutliga densiteten av 2,0 - 2,1 ton/m³ har beräknats med hänsyn till denna volymökning. Densiteten kan bli något lägre i deponeringshålets övre del och högre i nedre delen. Skillnaderna blir dock ej så stora att det påverkar buffertmaterialets funktion. Någon inträngning av buffertmaterialet i sand/bentonitfyllningens porer liknande den i sprickor kan ej ske, då porstorleken är alltför liten.



a)



b)

Figur 9-5. Återfyllning med sand/bentonit i tunnel vid fältförsök i Stripa, a)skiktvis packning med vibrering, b) sprutning med utrustning för sprutbetong.

Vid en ogynnsam ursprunglig spänningsfördelning och sprickorientering i berget kan svälltrycket vidga vissa sprickor. Det kan emellertid visas att denna inverkan endast sträcker sig över några meter i längd och ger upphov till en obetydlig bentonitförlust. Buffertmaterialalets densitet påverkas därför endast marginellt /9-9/.

9.4 ÅTERFYLLNINGSMATERIAL

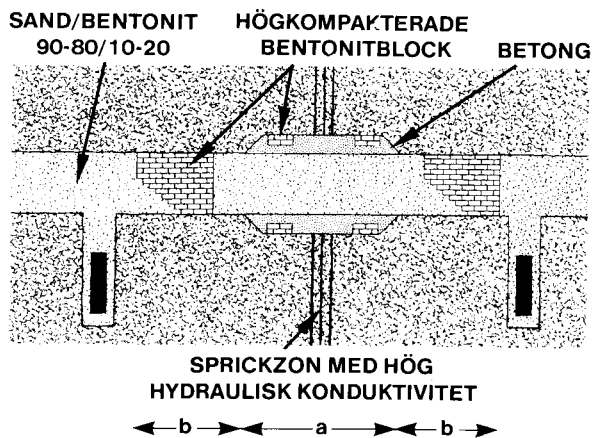
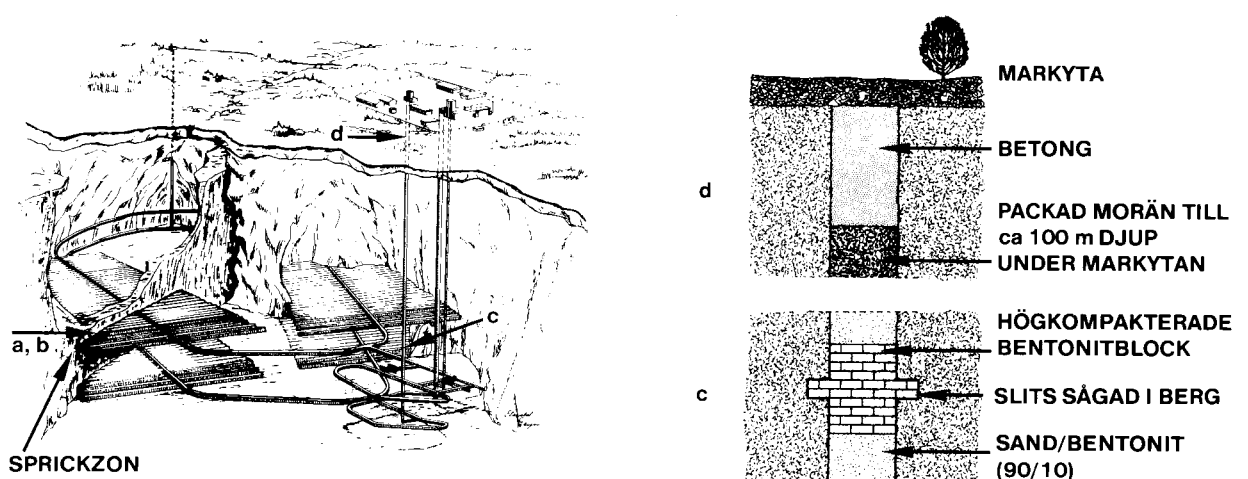
Slutförvarets tunnlar och schakt återfylls med bentonitbaserade material, vars främsta uppgifter är att utgöra ett långtidsbeständigt stöd för berget samt att återställa de hydrauliska förhållandena i området. Återfyllningen skall därför ha minst lika låg hydraulisk konduktivitet som den bergmassa den ersätter. För detta ändamål användes lämpligen en homogen blandning av 10-20% bentonitpulver och resten sand med lämplig korngradering /9-2/. Blandning och homogenisering görs med fördel i stora blandare och anbringandet sker lämpligen i lager som packas med ett flertal överfarter. Närmast taket fylls tunneln genom insprutning av massan. Erfarenheter från packningar vid fältförsök i Stripa, se fig 9-5, visar att densiteten 1,8 - 2,2 ton/m³ resp 1,1 - 1,8 ton/m³ uppmätts med dessa packningsmetoder, varvid vattenhalten varit 8 - 13% resp 11 - 22% /9-12/.

Den hydrauliska konduktiviteten hos bentonitsandblandningen uppgår till högst 10⁻⁹ m/s /9-10/.

9.5 PLUGGNING AV BORRHÅL OCH FÖRSEGLING AV TUNNLAR OCH SCHAKT

Även om slutförvaret förläggs i ett utvalt bergparti med låg sprickfrekvens, får man räkna med att tunnlar på några ställen kommer att korsa partier av berg med förhöjd grundvattenföring. Sådana partier utnyttjas inte för deponering och isoleras från omgivningen på så sätt som visas i fig 9-6. Schakten återfylls till största delen med samma återfyllningsmaterial som tunnlar, dock den övre delen med betong och morän. Pluggar med högkompakterad bentonit utförs i kombination med slitsar för tätning av den bergzon som kan ha påverkats av sprängningen. Liksom i deponeringshålen sväller den högkompakterade bentoniten och skapar en tät kontakt med berget samtidigt som en viss förskjutning av anslutande fyllningsmassor sker, tills ett jämviktsläge uppkommer. Slutdensiteten beräknas bli 1,9 - 2 ton/m³ hos den högkompakterade bentoniten, vilket ger en hydraulisk konduktivitet av 10⁻¹² m/s eller mindre, vilket motsvarar ett mycket tätt berg.

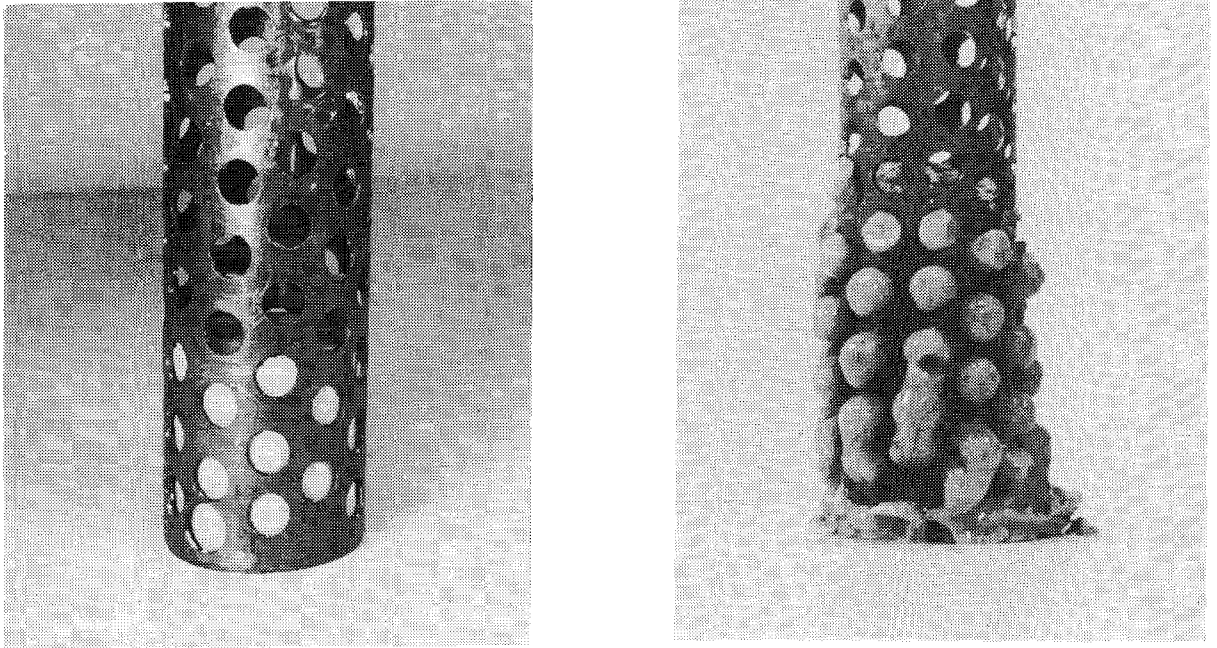
För tätning av borrhål, som borrhats i samband med förundersökningar av olika slag, införs högkompakterade cylindriska bentonitkutsar i hålen. Kutsarna anbringas i rör, som skarvas och



- Isolering av sprickzon med hög hydraulisk konduktivitet från tunnel i slutförvaret. Tunneln medger transporter under deponeringstiden och återfylls efter det att deponeringen utförts i denna tunnel.
- Återfyllning med pluggar av högkompakterade bentonitblock som staplas i samband med skiktvis packning och sprutning av sand/bentonitblandning.
- Återfyllning av schakt med plugg av högkompakterade bentonitblock som staplas i samband med skiktvis packning av sand/bentonitblandning.
- Återfyllning av övre del av schakt med skiktvis packning av morän och med plugg av betong.

Figur 9-6. Pluggar med högkompakterad bentonit i slutförvarets tunnlar och schakt.

skjuts in successivt i hålen. Rören är till ca 50% perforerade med hål med diametern ca 1 cm. Vid vattenupptagning sväller bentoniten ut och fyller borrhålet som en homogen massa med en slutdensitet av 1,7 - 2,0 ton/m³, se fig 9-7 /9-13/. Där borrhålen passerar starkt uppsprucket berg, där det finns risk för materialförlust, kan man använda kutsar av sand/bentonit eller magnesiumoxid. Den förstnämndas innehåll av grövre korn blockerar spricköppningar. Magnesiumoxiden hydratiseras, sväller och bildar tätslutande stabila pluggar av Mg(OH)₂ (brucit).



Figur 9-7. Perforerat metallrör med kutsar av högkompakterad bentonit. Vänstra bilden före ned-sänkning i vatten. Högra bilden efter 24 timmar i vatten.

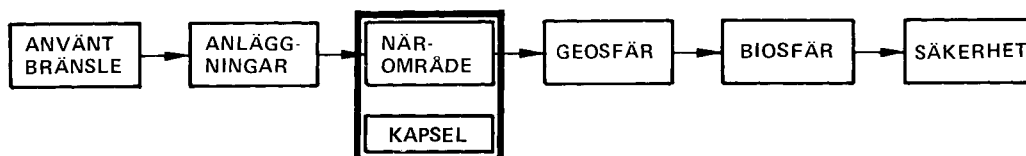
9.6 MATERIALKONTROLL

Kommersiell bentonit kan användas som utgångspunkt för framställning av block av högkompakterad bentonit. Bentoniter med större inslag av vissa mineral, t ex kalcit, grafit och pyrit, bör dock undvikas. De egenskaper som framför allt är önskvärda, dvs låg hydraulisk konduktivitet, god svällningsförmåga och jonbyteskapacitet, står i proportion till smektithalten. Det är därför gynnsamt att använda så smektitrik bentonit som möjligt. Följande kriterier och kontrollmoment bör tillämpas:

1. Lerhalten (andelen partiklar mindre än 2 μm) bör vara minst ca 80 viktprocent. Detta kontrolleras med slammingsanalys.
2. Smektitmineral bör utgöra minst 70% av lerfraktionen. Mineralidentifiering görs med röntgendiffraktionsanalys. Löpande leveranskontroll görs med hjälp av flytgränsbestämning ($W_L > 250\%$) eller likvärdig metod.
3. Halten sulfider och organiskt material skall vardera vara lägre än 200 mg/kg (jfr kapitel 10). Kontrolleras med kemisk analys.

Den bentonit av typ Volclay MX-80, som utprovats inom KBS, uppfyller dessa krav, varvid emellertid värmebehandling har erfordrats för att minska halten av sulfider och organiskt material till ovan angivna värde.

10 KAPSEL OCH KAPSELKORROSION



Detta kapitel beskriver grunderna för valet av kapselmateriäl, tillämpliga metoder för tillverkning och kontroll samt den mekaniska och kemiska påverkan som slutförvaringen kan ge. Kapitlet avslutas med en bedömning av den minsta tid det kommer att ta för kapslar med olika vägg tjocklek att penetreras.

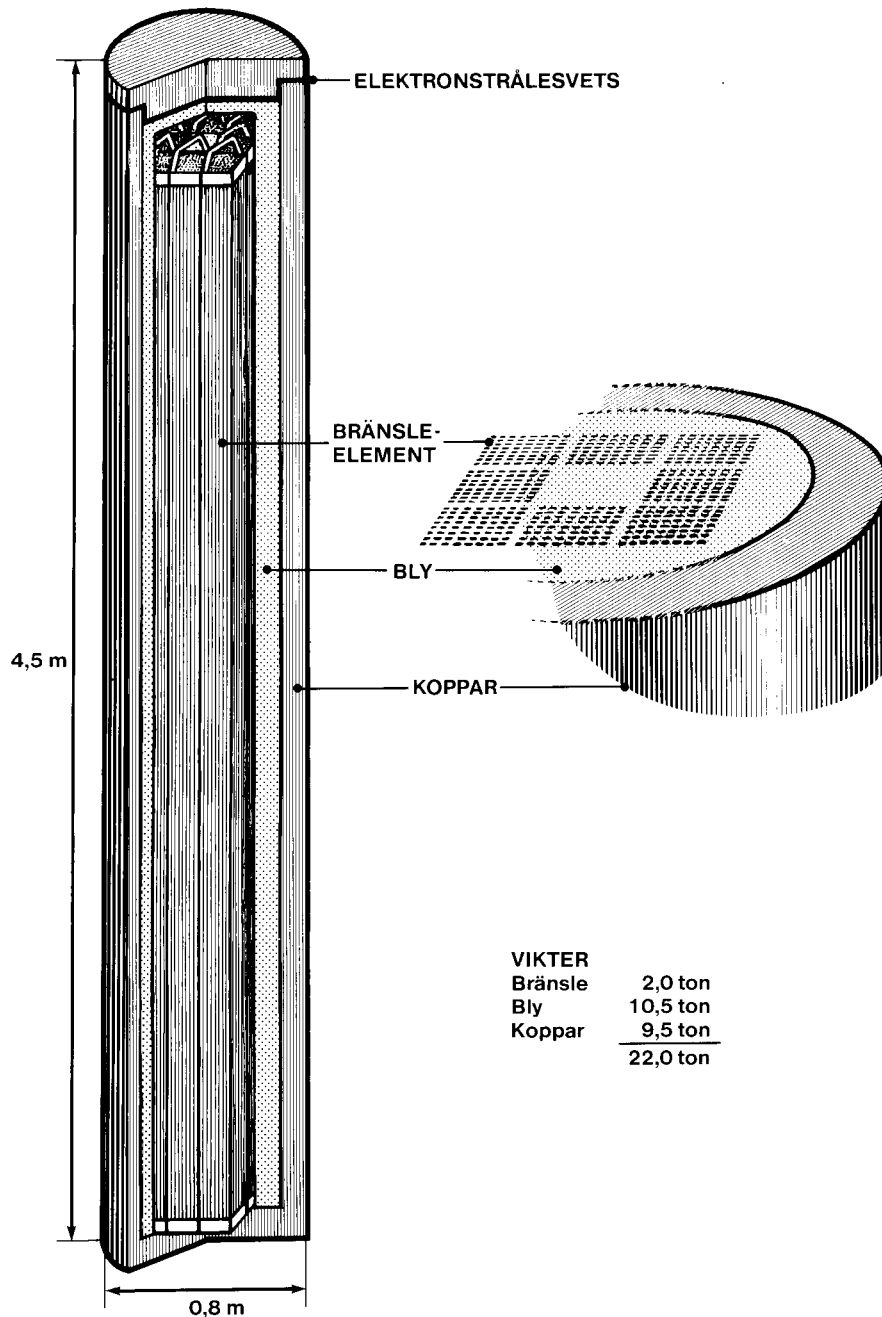
10.1 KAPSELNS FUNKTION

Kapselns uppgift är att under lång tid helt innesluta det använda bränslet och därmed förhindra spridning av radioaktiva ämnen med grundvattnet. Först när kapseln penetrerats genom korrosion eller om kapselbrott orsakats av mekaniska påkänningar kan sådan spridning ske.

Kapselns vägg tjocklek är avgörande för vid vilken tidpunkt penetration på grund av korrosion tidigast kan förutses äga rum. Variationer inom ett slutförvar av grundvattenflöde, grundvattensammansättning, och korrosionsangreppets karaktär leder till en avsevärd utspridning i tiden av de enskilda kapselgenombrotten. Förutom att en större vägg tjocklek leder till en större livslängd hos kapslarna, leder den också till en större utspridning i tiden av de enskilda kapselgenombrotten. Dessa förhållanden samt avklingningstakten hos de radioaktiva ämnena i bränslet utgör grunden för val av vägg tjocklek hos kapseln.

10.2 MATERIALVAL

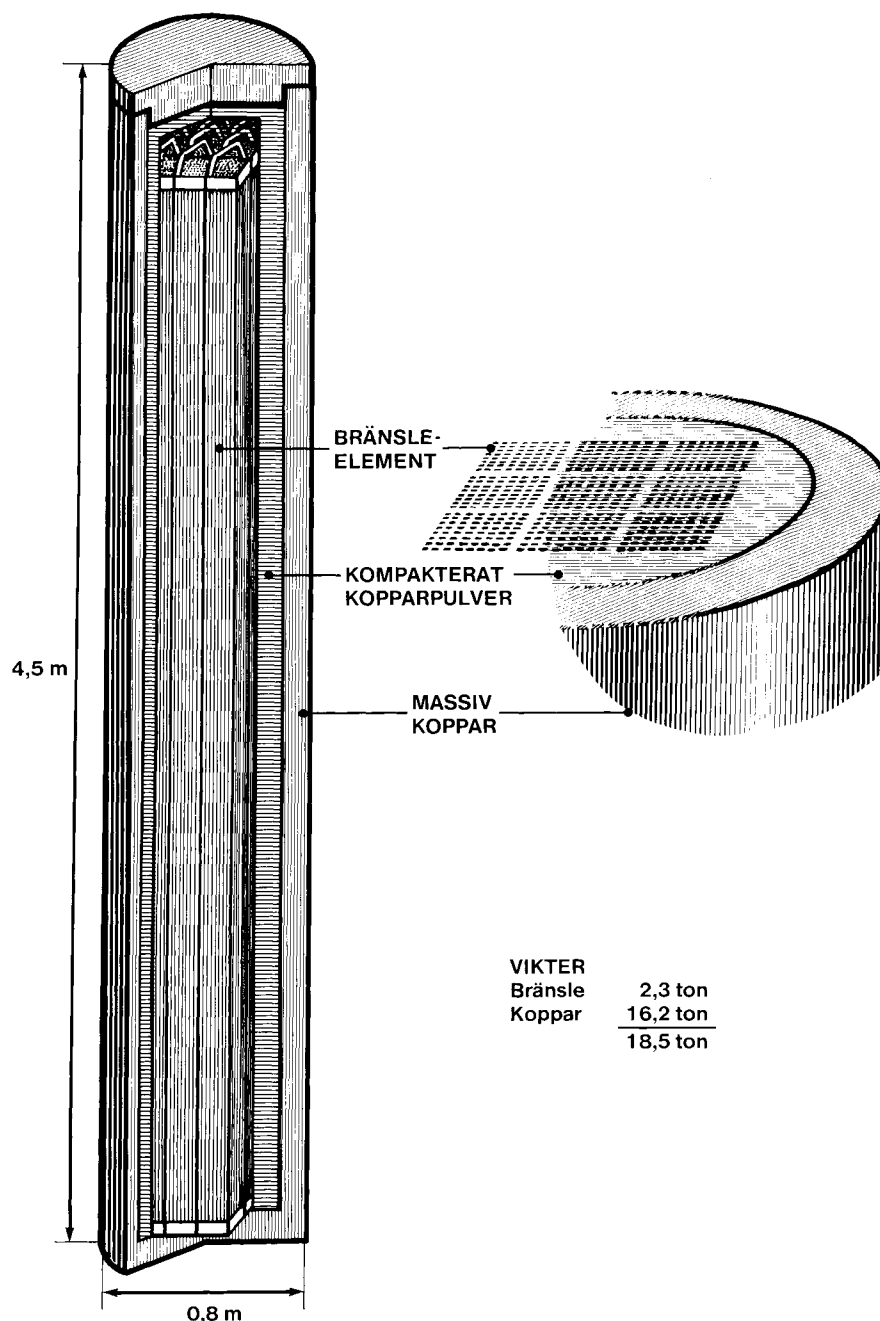
I slutförvaret kommer påverkan på kapslarna att bestämmas av den kemiska miljö som råder i deponeringshålet. Grundvattensammansättningen är här av grundläggande betydelse. Eftersom mycket höga krav ställs på kapslarnas livslängd vore det önskvärt att ha tillgång till ett kapselmateriäl, som är termodynamiskt stabilt i den aktuella miljön. Korrosionskinetiska data skulle då inte behöva värderas i samband med livstidsbedömningen. Koppar



Figur 10-1. Svetsad kopparkapsel.

är det ädlaste av de vanliga konstruktionsmaterialen. Den är termodynamiskt stabil i rent vatten. Detta innebär att i grundvattnet kommer korrosionen av koppar att bestämmas av tillförseln av i vattnet lösta korrosiva ämnen. Dessa är huvudsakligen löst syre och för reducerande grundvattenförhållanden, löst sulfid.

Olegerad koppar har därför valts som kapselmateriäl. Av dels korrosionsbeständighetsskäl, dels tillverkningstekniska skäl har två typer av syrefri koppar studerats, dels s k Oxygen Free High Conductivity Copper (OFHC), dels syrefri fosfordesoxiderad koppar med hög elektrisk ledningsförmåga (PHC).



Figur 10-2. Kopparkapsel framställd med het isostatisk pressning.

10.3 TILLVERKNINGSTEKNIK OCH KONTROLL

Som framgått av avsnitt 4.4 finns det två alternativa inkapslingsförfaranden, dels ett alternativ där kapseln fylls med bly och försluts med elektronstrålesvetsning och dels ett alternativ där kapseln fylls med kopparpulver och försluts, samtidigt som kopparpulvret kompakteras, med het isostatisk pressning (HIP). I båda alternativen är kapseln förtillverkad av syrefri smidd koppar.

10.3.1 Förslutning med elektronstrålesvetsning

Vid alternativet elektronstrålesvetsning fylls utrymmet mellan bränslepatronerna och koppurväggen med bly. Mängden bränsle i en

kapsel bestäms av bränslets resteffekt (jfr avsnitt 4.4.2). Efter att blyets överyta planbearbetats, påläggs ett lock (se fig 10-1) som fastsvetsas radiellt med elektronstrålesvetsning /10-2/.

10.3.2 Förslutning med het isostatisk pressning

Vid alternativet het isostatisk pressning fylls utrymmet mellan bränslet och kopparkapseln med kopparpulver, som packas genom vibrering till en nivå motsvarande lockets underkant, se fig 10-2. Därefter läggs locket på och kapseln med lock placeras i en tunnväggig behållare. Efter att luften pumpats ut, pressas behållaren och kopparpulver och kapsel vid 500°C och 150 MPa till en homogen kropp. Därvid sintras samtidigt locket ihop med kapseln /10-1/.

10.3.3 Kvalitetskrav och kvalitetskontroll

För att upprätthålla säkerhet och drifttillgänglighet i inkapslingsstationen och säkerhet i slutförvaret krävs en effektiv kvalitetskontroll. Till denna kontroll hör dels kvalitetsövervakning av leveranser av råmaterial och halvfabrikat, dels övervakning av processer och kvalitetskontroll av slutprodukterna.

I anslutning till projekteringen och konstruktionen av utrustningarna för kapseltillverkning förutses såväl tillverknings- som kontrollmetoder bli utvecklade och testade i pilotupställningar.

Kontroll och övervakning av färdiga kapslar och råmaterial som koppar och bly genomförs med etablerade kvalitetskontrollmetoder.

Ankomstkontroll av råmaterial kan omfatta

- kemisk analys av grundmaterial
- mekanisk och metallografisk kontroll av grundmaterial
- okulärkontroll av ytor och ultraljudkontroll av gods

Processkontroll kan omfatta

- övervakning och registrering av produktionsparametrar

Kontroll av kapseln kan omfatta

- okulärkontroll av kapselns ytor och fogar
- dimensionskontroll
- ultraljudkontroll av fogar

Registrerade avvikelser från normala processparametrar skall föranleda mer omfattande kontroll och eventuell kassering av slutprodukten, dvs den felaktigt utförda processen görs om.

Det mest kritiska momentet i kapseltillverkningen är förslutningen av kapseln. Kontroll av förslutningen tänks ske, dels med okulärkontroll för att fastställa att fogens ytteryta är slät och porfri och dels med ultraljudkontroll av de djupare delarna av fogen.

Kontrollmetodiken anpassas till tillämpad fogteknik för att detektera de mest sannolika defekterna. För en varm isostatpressad fog är dessa bristande bindning (laminering) mellan två plana ytor. En elektronstrålesvetsad fog förväntas i första hand kunna ha defekter i form av porer, antingen i nära sfärisk form eller som utdragna (cylindriska) kaviteter /10-2/.

Prov med ultraljudkontroll har visat att man genom 100 mm tjock koppar och med immersionsprovning med fokuserat ultraljud kan detektera porer (kaviteter) med en diameter mindre än 2 mm /10-3/.

10.4 MEKANISK PÅVERKAN PÅ KAPSELN

I koppargodset kommer att förekomma mekaniska spänningar, som kan ha sitt ursprung i såväl tillverkning och hantering som förhållandena i slutförvaret. Beroende på tillverkningsteknik är dessa mekaniska spänningar något olika för den svetsade kapseln och den hetisostatpressade kapseln.

10.4.1 Kvarblivna spänningar från tillverkningen

Genom anspänningsglödning kan utgångsmaterialet, dvs den tomma kapseln och locket göras spänningsfria före fyllning och förslutning. Vid hetisostatpressning kommer emellertid kompakteringen av kopparpulvret tillsammans med skillnaderna i värmeutvidgning mellan koppar och bränsleelement att ge upphov till kvarstående spänningar i ytan av kapseln efter kylning till jämviktstemperatur. Dessa spänningar är så stora att man måste förutsätta att koppargodset deformeras plastiskt. Beräkningar har visat att kapseln får ringspänningar på 45-105 MPa, medan axialspänningarna blir ca 120 MPa/10-1/, dvs klart under brottgränsen för koppar (för mjukglödgad koppar ca 225 MPa, för kalldragen koppar ca 450 MPa).

För den svetsade kapseln kan kvarstående spänningar uppkomma i samband med påsvetsningen av locket. Det är rimligt att förutsätta att dessa spänningar är så stora att godset deformeras plastiskt i svetszonen och att storleken på spänningarna är jämförbara med vad man får vid hetisostatisk pressning.

10.4.2 Yttre krafter

Vattenupptagning och svällning av bentoniten tillsammans med det hydrostatiska trycket på deponeringsdjupet ger upphov till ett nära isostatiskt tryck på maximalt ca 15 MPa. För den isostatpressade kapseln, som under tillverkningen varit utsatt för ett betydligt högre tryck (ca 150 MPa), kommer detta yttre tryck snarast att minska dragspänningarna i koppargodset och leder alltså knappast till ökade mekaniska påkänningar på kapseln.

Den svetsade blyfyllda kapseln får förutsättas ha porer i blyfyllning, dels på grund av ofullständig blyfyllning och dels på grund av att ett tomrum måste lämnas mellan blyets överyta och lockets underkant för att lockpåsättning och igensvetsning skall kunna genomföras problemfritt. Det yttre trycket leder då till att blyet genom krypning fyller dessa porer med resultatet att kopparkapseln kan deformeras. Spänningarna orsakade av yttre kraft bedöms ligga klart under brottgränsen för koppar.

10.4.3 Inre krafter

Under slutförvaringstiden kommer ett inre tryck av helium att byggas upp på grund av alfasönderfall i bränslestavarna. Detta heliumövertryck kommer i de mest ogynnsamma fallen (PWR bränsle 45 MWd/kgU /10-4/) att uppgå till ca 16 MPa efter 10^6 år. Detta är ungefär samma tryck som det yttre trycket på kapseln från bentoniten och det hydrostatiska trycket på ca 500 m djup. Heliumutvecklingen i bränslet kommer alltså inte att ge upphov till spänningar i kapseln, som överstiger de initiala kapselspanningarna orsakade av hetisostatpressningen respektive elektronstrålesvetsningen.

10.5 KEMISK PÅVERKAN PÅ KAPSELN

10.5.1 Kemisk miljö

Eftersom koppar är stabilt i rent vatten kan korrosion endast orsakas av ämnen lösta i grundvattnet. Kapselns kemiska miljö definieras av den kemiska sammansättningen på det grundvatten, som kommer i kontakt med kapseln, och dessutom av buffertmassans sammansättning. Övriga parametrar, som kan påverka korrosionen, är temperatur och tryckförhållanden i förvaret.

Avfallets värmeutveckling ger upphov till en förhöjd temperatur intill kapseln. Den maximala temperaturen, ca 80°C, nås 50 - 400 år efter deponeringen beroende på förvarsutförningen. Efter några tusen år har temperaturen sjunkit till ca 50°C.

Det hydrostatiska trycket motsvarande 500 m grundvattendjup är ca 5 MPa. Detta skall adderas till den omgivande buffertmassans svälltryck på 5 - 10 MPa.

Sammansättningen på det vatten, som står i kontakt med kapseln, bestäms dels av sammansättningen på det regionala grundvattnet i deponeringsområdet och dels av sammansättningen på buffertmassan. Vid kapseltjocklekar på flera centimeter kommer radiolys av vatten inte att ge någon påverkan av betydelse /10⁻⁵/.

Sammansättningen av det grundvatten som använts vid korrosionsbedömningarna finns angivet i tabell 10-1. Dessa värden grundar sig på analysresultat från vattenprovtagningar i undersökta områden, se kapitel 7.

Tabell 10-1. Förutsatt sammansättning av djupa granitiska grundvatten (halter i mg/l)

pH	7 - 9
Eh(V)	0 - (- 0,45)
HCO ₃ ⁻	90 - 275
SO ₄ ²⁻	0,5 - 15
NO ₃ ⁻	0,01 - 0,05
Cl ⁻	4 - 15 ¹⁾
HS ⁻	0 - 0,5
Ca ²⁺	10 - 40
Fe ²⁺	0,02 - 5
Fe (tot)	1 - 5
NH ₄ ⁺	0,05 - 0,2
TOC	1 - 8

1) Bedömning har gjorts även för kloridhalter upp till 35 000 mg/l.

10.5.2 Korrosionsprocesser, allmänt

Korrosion är en redoxprocess där metaller oxideras. Reaktionen kan ske antingen elektrokemiskt eller genom direkt kemisk attack. Koppar är termodynamiskt stabil i rent vatten, eftersom vätejoner inte är ett tillräckligt starkt oxidationsmedel.

Vätejoner kan emellertid tjäna som oxidant under förutsättning att bildade kopparjoner binds i en förening med mycket låg fri

energi (lägre än kopparsulfid). En sådan förening är kopparsulfid. Finns sulfidjoner närvarande kan därför kopparkorrosion ske i en omfattning som motsvarar tillgången på sulfid.

Den genomgång av förutsättningarna för korrosionsreaktioner vid kopparytan som redovisas i /10-5/ visar att fritt syre och sulfid, är de enda ämnen som i praktiken kan orsaka korrosion. Rent termodynamiskt kan visserligen också sulfat fungera som oxidant under bildning av kopparsulfid om reaktionen är kopplad med en oxidation av t ex tvåvärt järn till trevärt. Geologisk evidens gör det emellertid sannolikt att denna reaktion i praktiken inte alls äger rum (den är kinetiskt hämmad). Detta senare gäller även en annan termodynamiskt möjlig oxidant, nämligen nitrat. Halten nitrat är dessutom så låg att denna oxidant inte torde be- höva beaktas /10-5/.

Eftersom vattenflödet genom det mycket täta buffertmaterialet är försumbart sker materialtransport enbart genom diffusion.

Utöver dessa allmänna korrosionsfenomen kan även viss lokaliserad korrosion uppträda. Dessa har identifierats som spaltkorrosion, spänningskorrosionssprickning och gropfrätning.

10.5.3 Syrekorrosion

Fritt syre saknas i stort sett i grundvatten i berg på stora djup. Detta beror på förekomsten av tvåvärt järn i mineraler i berget. Konservativt har den högsta halten löst syre i aktuella grundvattnet satts till 0,1 ppm. Detta ger med flödet 1 l/(m²·år) en maximal mängd genom syre oxiderad koppar på mindre än 3 kg på en miljon år.

Utöver den mängd syre, som tillförs med grundvattnet, blir relativt stora mängder luftsyre instängda i buffertmassans porer vid förseglingen av förvaret. Den dominerande mängden luftsyre finns i bentonitsandblandningen i tunneln ovanför deponeringshålen. Detta syre kommer att reagera med Fe(II) i berget. Syret vandrar lättare till tunnelväggen och diffunderar in några mm i berget än det diffunderar 2,5 m genom kompakterad lera i hålet till kapseln. Beräkningar visar att endast några få procent av syret i tunneln (några få mol O₂) kommer att nå kopparkapseln. Detta kan oxidera mindre än 0,5 kg koppar /10-5/.

Ytterligare bidrag till oxidanttillförseln kommer från radiolytisk sönderdelning av vatten på grund av gammastrålningen från avfallet. På grund av skärmningen från kopparbehållaren och rekombinationsreaktioner blir denna effekt emellertid relativt begränsad. I närvaro av järn(II) skulle mängden oxiderad koppar på grund av radiolys vara mindre än 10 kg på en miljon år för en kapsel med en väggtjocklek på 60 mm. Om väggtjockleken ökas till 100 mm eller mer blir oxidationen genom radiolys helt försumbar.

När kapseln genombrutits kan även α -strålningen ge upphov till radiolys. Efter det första genombrottet tillskrivs dock inte kapseln någon barriärfunktion.

10.5.4 Sulfidkorrosion

Liksom för syrekorrosion kan man indela den av sulfid orsakade korrosionen i två bidrag; dels sulfid tillförd genom grundvattnet och dels sulfid från buffertmaterial och tunnelfyllning. Liksom för syre är emellertid också sulfidtillgången i djupa grundvattnen begränsad, bland annat genom närvaron av järn, som binder sulfiden som svårlöslig järnsulfid /10-6/.

Utöver den sulfid, som kommer genom grundvatten och buffertmassa, kan sulfid teoretiskt bildas genom mikrobiologisk reduktion av sulfat i grundvatten och bentonit. Denna reduktion kräver närvaro av nedbrytbart organiskt material, som dels kan tänkas tillföras genom grundvattnet, men som även finns tillgängligt i buffertmassan (konservativt uppskattat till maximalt 200 mg/kg). Den totala mängd sulfid som kan finnas tillgänglig genom direkttillförsel och mikrobiell aktivitet motsvarar en korrosion av ca 25 kg koppar per kapsel och en miljon år.

Buffertmaterialet innehåller (efter eventuellt oxiderande värmebehandling) mycket små mängder sulfid; ca 200 mg/kg, huvudsakligen som svårlöslig pyrit. Denna sulfidmängd kan korrodera maximalt ca 3,5 kg koppar.

Det sammanlagda bidraget till kopparkorrosionen från sulfid från tunnlar, deponeringshål och grundvattenflödet skulle på en miljon år uppgå till högst 30 kg.

10.5.5 Kloridkorrosion

Vätejoner kan oxidera koppar i närvaro av Cl^- vid lågt pH-värde. Sådant kan tänkas uppkomma i vissa spalter och porer, där det sålunda finns risk för spaltkorrosion. Detta kan undvikas genom att tillse att inga utvändiga spalter eller porer finns i kapselkonstruktionen. Den spalt, som finns mellan buffertmassan och kapselväggen, bedöms dock ej leda till spaltkorrosion, eftersom buffertmassan hindrar uppkomsten av lågt pH-värde i denna spalt.

10.5.6 Oxidation med sulfat

Utredningar har visat att reduktion av sulfat till sulfid i frånvaro av katalysator förlöper så extremt långsamt vid temperaturer under 200°C , att oxidationen är försumbar även under geologiska tidsperioder. Sulfat har därför bedömts som en osannolik oxidant vid förvarsförhållanden. Reaktionen är därutöver begrän-

10:10

sad av tillgången till tvåvärt järn. Vid det till synes osannolika antagandet att denna reaktion äger rum kan korrosionen nedbringas genom en granitplugg i hålets mynning för att begränsa diffusionsarean från tunneln, eller genom val av en svavelfattig bentonitkvalitet.

Den enda kända katalysatorn för sulfatreduktion är mikrobiologisk katalys. Mikroorganismerna kräver dock för sin livsprocess tillgång till organiskt material. Vid överskott på sulfat blir då tillgången på organiskt material bestämmande för korrosionens omfattning, som tagits i beaktande i 10.6.4.

10.5.7 Spänningskorrosion

Undersökningar av känsligheten för spänningskorrosionssprickning med den sk konstanttöjningsmetoden har visat att både OFHC-koppar och PHC-koppar har en viss spänningskorrosionskänslighet i nitrihaltiga vattenlösningar /10-7/. Nitrihalter av betydelse förekommer inte i de för slutförvaret aktuella grundvattnen. Spänningskorrosionssprickning bedöms därför som osannolik för kapslar av OFHC-koppar eller PHC-koppar under de deponeringsförhållanden som preciserats.

10.5.8 Angreppets form och tillväxt

På grund av den låga tillförseln av oxidanter till kapseln har endast de lokala korrosionsangreppen avgörande betydelse för kapselns livslängd. Den viktigaste lokala korrosionen är då gropfrätningen.

Erfarenhetsmässigt kan sambandet mellan frätgropsdjup (P) och tid uttryckas med ekvationen /10-5/

$$P = A(t-t_0)^n$$

där t_0 är inkubationstiden innan gropfrätningen startar

A är en konstant

n är en konstant med värde mellan 0 och 1.

Denna ekvation visar att tillväxthastigheten för en frätgrop avtar med tiden.

Tiden för genomfrätning ökar starkt med vägg tjockleken och vid tillräckligt tjock vägg förväntas frätgropens tillväxt praktiskt taget avstanna med tiden. Det fortsatta angreppet sker då så att befintliga gropar tillväxer på bredden och nya frätgropar initieras. Vid extremt tjocka väggar får angreppet därför närmast karaktären av en bortfränt ytzon med variationer i djupet.

Kvoten mellan frätgropsdjup och medelfrätning kallas gropfrätningensfaktor och det största värde på gropfrätningensfaktor som observerats vid exponering av koppar i jord är 25. Detta värde kan betraktas som mycket konservativt och undersökningar av arkeologiskt material, nativ koppar och s k jordtag för åskledare har visat att ett sannolikt högsta värde för gropfrätningensfaktor är 5 /10-5/.

Utifrån tillgänglig kopparyta hos varje kapsel och tillförseln av oxidanter har medelfrätningen på varje kopparkapsel kunnat beräknas som funktion av exponeringstiden. Ur medelfrätningen har maximala frättdjupet beräknats genom att multiplicera med gropfrätningensfaktor. Beräkningarna har genomförts för ett sannolikt fall med den högsta gropfrätningensfaktor satt till 5 och ett ogynnsamt fall med den högsta gropfrätningensfaktor 25. Resultaten redovisas i tabell 10-2.

Tabell 10-2. Maximala frätgropsdjup (mm) vid olika tider och för olika kapseltjocklekar.

Exponeringstid (år)	10 ³		10 ⁴		10 ⁵		10 ⁶	
Gropfrätningensfaktor	5	25	5	25	5	25	5	25
Kapseltjocklek	Frätgropsdjup (mm)							
10 mm	0,6	3,0	0,7	3,3	1,1	5,8	5,5	penetrerad
60 mm	0,6	3,0	0,6	3,0	0,9	4,5	3,6	18
100 mm	0,6	3,0	0,6	3,0	0,9	4,5	3,5	17
200 mm	0,6	3,0	0,6	3,0	0,9	4,5	3,4	17

10.6 KAPSELNS LIVSLÄNGD OCH GENOMBROTTENS FÖRDELNING I TIDEN

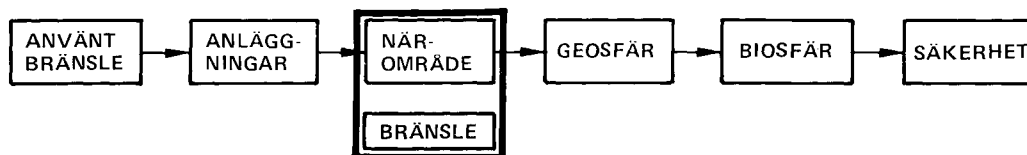
Den expertgrupp, som behandlat kapselkorrosion har sammanfattat resultaten av sina beräkningar enligt tabell 10-3.

Genomfrätning kommer inte att ske samtidigt för alla kapslar, utan avsevärd spridning kan förväntas beroende på variationer i det omgivande bergets sprickighet, tunnlarnas fyllning, bentonitens föroreningsgrad, grundvattnets sammansättning etc.

Tabell 10-3. Kapselns livslängd för olika vägg tjocklekar enligt /10-5/.

Vägg tjocklek (mm)	Tid till första genomfrätning (år)	
	Sannolikt fall	Ogynnsamt fall
10	$>10^6$	10^5
60	$>10^6$	$>10^6$
100	$>10^6$	$>10^6$
200	$>10^6$	$>10^6$

11 BRÄNSLE OCH BRÄNSLEUPPLÖSNING



I detta kapitel redovisas mekanismer och egenskaper som påverkar upplösningen av radioaktiva ämnen i det använda kärnbränslet om detta kommer i kontakt med grundvatten.

11.1 BRÄNSLEUPPLÖSNINGENS BETYDELSE

Det använda bränslet själv utgör den innersta av de barriärer som ingår i slutförvarets barriärsystem. Om kopparkapseln penetreras medför bränslematrisens (urandioxidens) låga löslighet en begränsning av spridningstakten för de långlivade radionukliderna, främst aktiniderna.

11.2 KARAKTÄRISERING AV BRÄNSLEMATRISEN OCH NUKLIDFÖRDELNINGEN I BRÄNSLET

Efter bestrålning i reaktorn är bränslekutsarna starkt sönderspruckna. Under driften då bränslet varit utsatt för förhöjd temperatur (1 200°C - 1 300°C) kan gasformiga klyvningsprodukter ha migrerat till korngränserna och bildat bubblor. Detta kan i en del fall även ge upphov till öppen porositet. Cesium, jod och även t ex tellur kan delvis medfölja fissionsgaserna och anrikas i bränslets porer eller spalten mellan kuts och hölje.

Vissa besläktade metaller, som teknetium, molybden, rutenium, rhodium och palladium kan bilda metalliska inneslutningar huvudsakligen vid korngränserna, men ibland också i anslutning till porer. Mängden av dessa inneslutningar är okänd, men bildningen anses bero på faktorer som driftstemperatur, utbränning och förhållandet syre-metall i bränslet.

Aktiniderna förekommer i fast lösning i UO_2 -matrisen, med en anrikning mot ytan av bränslekutsen. Detta beror på att aktinider-

na till övervägande del bildas genom absorption av epitermiska neutroner och att flödet av dessa är störst i ytan på bränslekutsen. Den högsta halten aktinider finns därför i en smal zon i kutsens periferi.

11.3 EXPERIMENTELLA UNDERSÖKNINGAR

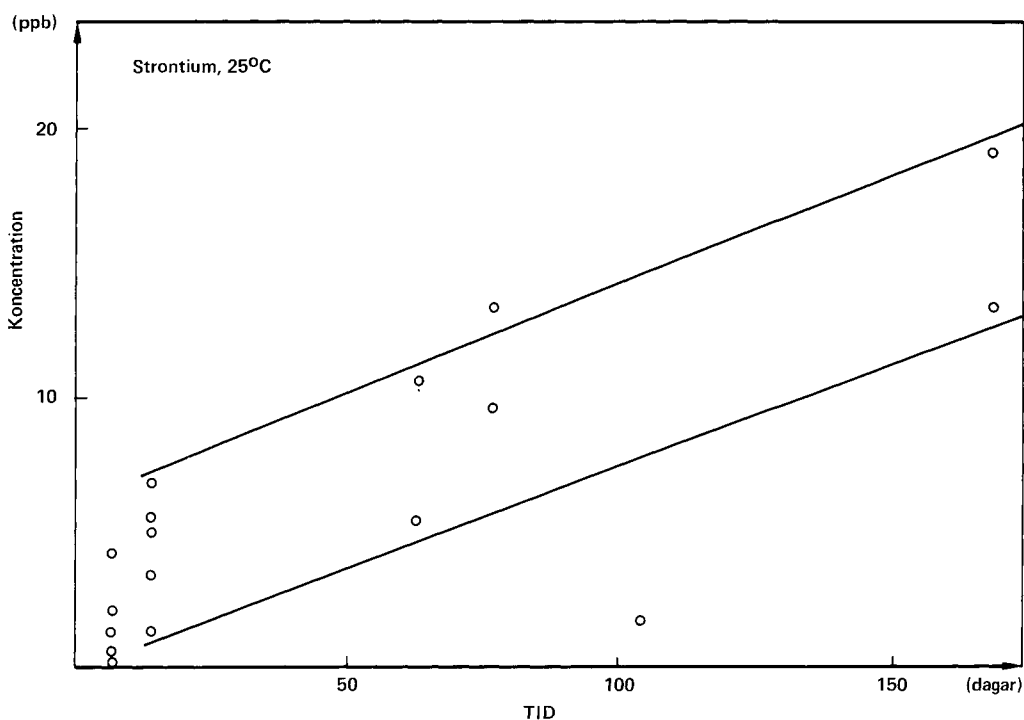
Relativt få undersökningar av korrosion/lakning av använt kärnbränsle har gjorts. Vid sidan av de svenska insatserna /11-1, 11-2/ har undersökningar utförts av AECL, Whiteshell Nuclear Research Establishment, Kanada /11-3 till 11-6/, Battelle, Pacific Northwest Laboratory, USA /11-7, 11-8/ och Los Alamos Scientific Laboratory, USA /11-9/. Undersökningarna har varit av två slag; dels mer grundläggande studier av korrosionen av UO_2 under oxiderande förhållanden /11-10, 11-11/, dels rena laknings/korrosionsprov på utbränt kärnbränsle. Under såväl oxiderande /11-1, 11-2, 11-3, 11-4, 11-7, 11-8/ som reducerande förhållanden /11-2, 11-6/. Resultaten av dessa försök som genomförts under i övrigt rätt skiftande förhållanden visar i huvudsak samma tendenser.

11.3.1 Cesium och jod

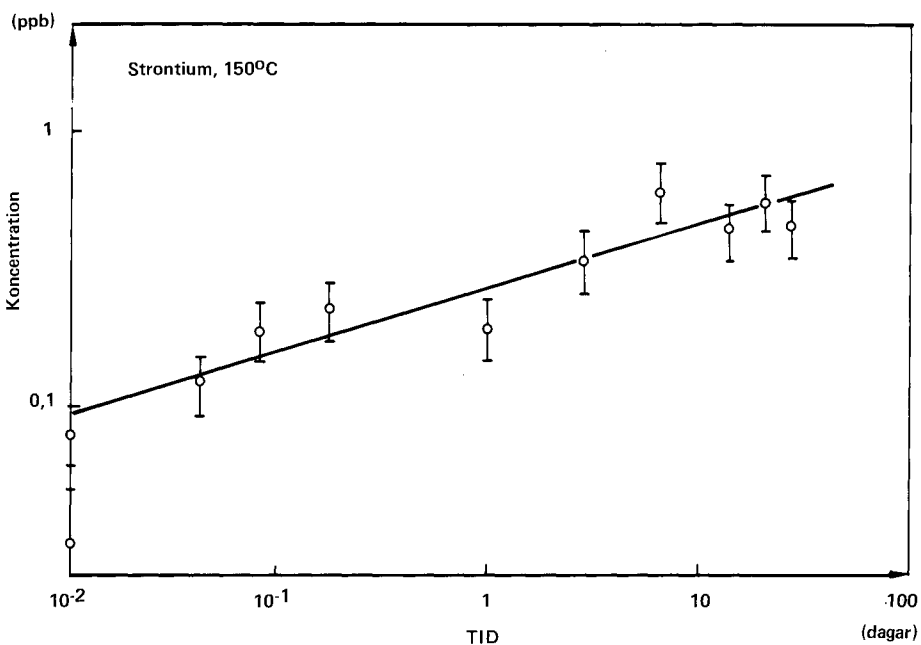
Cesium, som delvis segregerat till spalten mellan bränslekutsar och zircaloyhölje, lakas selektivt och för oskadat bränsle från normal drift kan på några veckor en eller några procent av hela cesiuminventariet i bränslet lakas ut /11-2, 11-3, 11-6/. En mindre andel av BWR-stavarna från normal drift har visat sig ha högre frigörelse av fissionsgaser och erfarenhetsmässigt följer frigörelse av cesium och jod fissionsgaserna. Dessa stavar skulle därför kunna släppa ända upp till 10% av cesium- och jodinventariet på några veckor. För PWR-bränsle kan för ett mindre antal av bränslestavarna ända upp till 30% av cesium- och jodinventariet vara snabbt tillgängligt.

11.3.2 Strontium och övriga fissionsprodukter

Strontium frigörs i långsammare takt än cesium och jod. Halten av strontium i laklösningen ökar med tiden, se figurerna 11-1 och 11-2. Lakhastigheten i de svenska försöken är omkring $3 \times 10^{-6} \text{ d}^{-1}$ som andel av inventariet utlakat per dag /11-2/. Typiska lakhastigheter i de kanadensiska undersökningarna är $1 \times 10^{-7} \text{ d}^{-1}$ för de flesta av fissionsprodukterna /11-6/. Resultaten från Battelle och Los Alamos /11-7, 11-8, 11-9/ är rapporterade i enheter, som är svåra att överföra till "del av inventariet per dag", vilket försvårar en jämförelse. Ett överslag visar emellertid att även dessa resultat ligger i samma intervall som de svenska och kanadensiska värdena. Avvikelser på en till en och en



Figur 11-1. Koncentration av löst strontium i lakvatten (grundvatten) som funktion av kontakttid. (Från data ur /11-2/).



Figur 11-2. Koncentration av löst strontium i lakvatten (grundvatten) som funktion av kontakttid. (Från /11-6/).

halv tiopotens mellan resultaten från olika laboratorier kan förklaras med olikheter mellan bränsleproverna, som t ex utbränning, specifik yta etc.

Strontium tycks ha en relativt homogen fördelning i allt uran-dioxidbränsle och strontiumlakningen, med undantag för en förhöjd initial lakhastighet, har därför föreslagits som ett mått på upplösningshastigheten för bränslematrisen /11-2, 11-6/.

11.3.3 Uran och övriga aktinider

Uran och aktiniderna visar oregelbundenheter vid lakningen. Lakhastigheten avtar med tiden och ett mättnadstillstånd uppnås vid relativt låga koncentrationer /11-2, 11-9, 11-11/. De lakhastigheter för uran som observerats i de svenska försöken ligger under 10^{-7} d^{-1} och för plutonium omkring 10^{-9} d^{-1} /11-2/. De kanadensiska undersökningarna uppvisar lakrater för uran omkring $5 \times 10^{-8} \text{ d}^{-1}$ och för plutonium omkring 10^{-8} d^{-1} /11-6/. För Battelle och Los Alamos gäller även här att det är svårt att direkt jämföra pga andra enheter, men ett överslag visar återigen att resultaten är av samma storleksordning /11-7, 11-8, 11-9/.

De undersökningar som gjorts på bränsle under reducerande förhållanden visar, att upplösningstakten för utbränt bränsle är lägre i reducerande miljö /11-2, 11-6/. Mätt som lakhastigheten för ^{90}Sr sjunker upplösningshastigheten med en faktor 30 /11-2/. Koncentrationen av uran i lösning ligger på några tiotals ppb. Detta är högre halt än vad man kan förvänta sig utifrån termodynamiska överväganden, men de indikerar att under reducerande förhållanden kommer bränsleupplösningen att gå avsevärt långsammare än under ovan angivna oxiderande förhållanden.

11.4 MODELLER FÖR BRÄNSLEUPPLÖSNING

11.4.1 Matrisupplösning baserat på uppmätta lakhastigheter

Under syrefria (reducerande) förhållanden är UO_2 mycket stabil och svårlöslig i vatten. De mekanismer för reaktion mellan UO_2 och vatten under oxiderande förhållanden, som föreslagits, innebär en oxidation och upplösning med utfällning av nya fasta uran(VI)föreningar /11-6, 11-10/. Skulle detta även gälla för upplösning av utbränt bränsle i kontakt med grundvatten innebär det att ämnen inneslutna i urandioxidmatrisen skulle kunna frigöras kontinuerligt i takt med omvandlingen av matrisen från fyrvärd oxid till nya fasta uran(VI)föreningar, även om halten uran i lösning inte ökar. Denna omvandling styrs då bland annat av oxidanttillförseln, som är nödvändig för att oxidera uran(IV) till uran(VI). Utöver oxidanter, som tillförts med grundvattnet kan man för närvarande inte utesluta att en viss tillförsel av oxiderande ämnen sker på grund av radiolys av det vatten, som kommer i kontakt med exponerat bränsle.

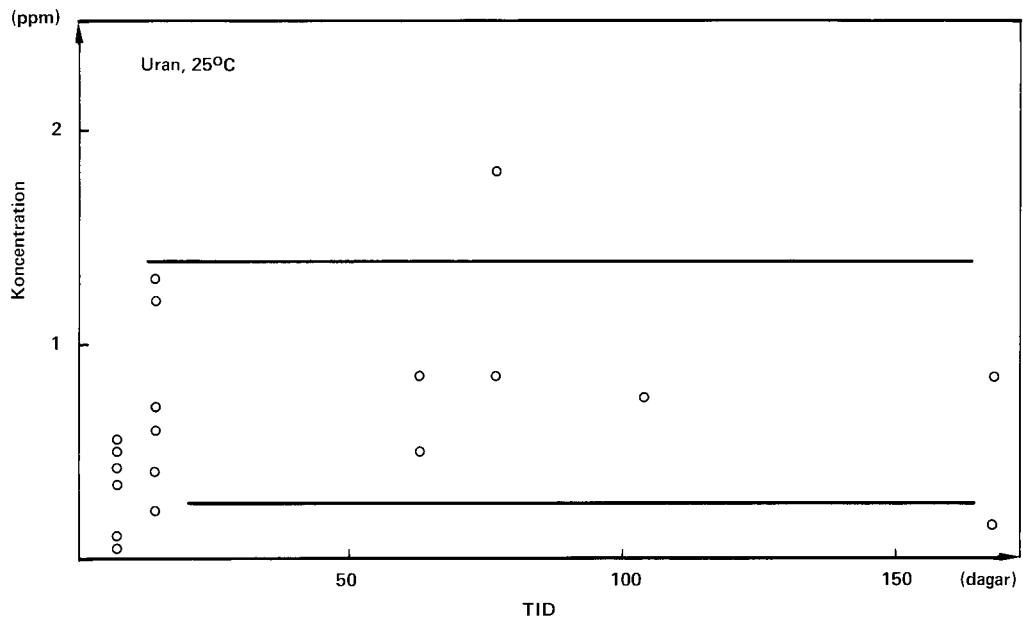
Frigörelsen av ^{90}Sr , som bör vara tämligen jämnt fördelad i bränslematrisen, kan användas som mått på matrisomvandlingen vid lakförsök. Även övriga nuklider kan i princip frigöras samtidigt med upplösningen av den ursprungliga uran(IV)oxidmatrisen men i realiteten kommer man att få en betydande medfällning med de nya uran(VI)föreningarna. Detta gäller främst aktiniderna som är kemiskt mycket lika uran. Experimentellt har detta verifierats för medfällning av plutonium i uran /11-12/. För de ämnen som i likhet med aktiniderna tenderar att medfällas med uran styrs således frigörelsen till lösningen av själva nettoupplösningen av uran i den mån dessa ämnen i själva verket inte har mycket lägre löslighet än uran själv. Upplösningen av den fasta uranmatrisen, vare sig den har omvandlats eller inte, benämns i fortsättningen matrisupplösning och är styrd av uranlösligheten. Övriga ämnen antas därvid jämnt fördelade i de fasta uranfaserna och frigöres i takt med nettoupplösningen av uran. En snabbare frigörelse av lättlösliga ämnen med ringa tendens att bindas i fasta uranfaser kan emellertid inte uteslutas.

De strontium-lak hastigheter, som uppmätts för högutbränt bränsle (~40 MWd/kg U) under oxiderande förhållanden och relativt korta experimenttider, är ungefär $3 \times 10^{-6} \text{ d}^{-1}$. Detta motsvarar en omvandlingstid på ca 1 000 år för hela bränslemängden i en kapsel. Långtidsexperiment (upp till 900 dagar /11-5, 11-8/) visar emellertid en successivt sjunkande lak hastighet för strontium under de första 300 dagarna av experimentet. Efter ca 300 dagar är lak hastigheten för Sr ungefär en 100-del av begynnelsevärdet, vilket ger en motsvarande längre omvandlingstid för hela bränslemängden. De lak hastigheter som uppmätts för uran ger en upplösningstid på cirka 30 000 år, medan lak hastigheterna för plutonium och americium skulle leda till fullständig utlakning av plutonium- och americiuminventariet på 200 000 - 300 000 år. Detta förutsätter emellertid fri tillgång till vatten och med tanke på att vattenomsättningen i förvaret är mycket låg, 0,2 - 1,6 l per kapsel och år (jfr kapitel 13), kommer med denna upplösningshastighet koncentrationen av uran och aktinider i vattnet snabbt nå mättnad.

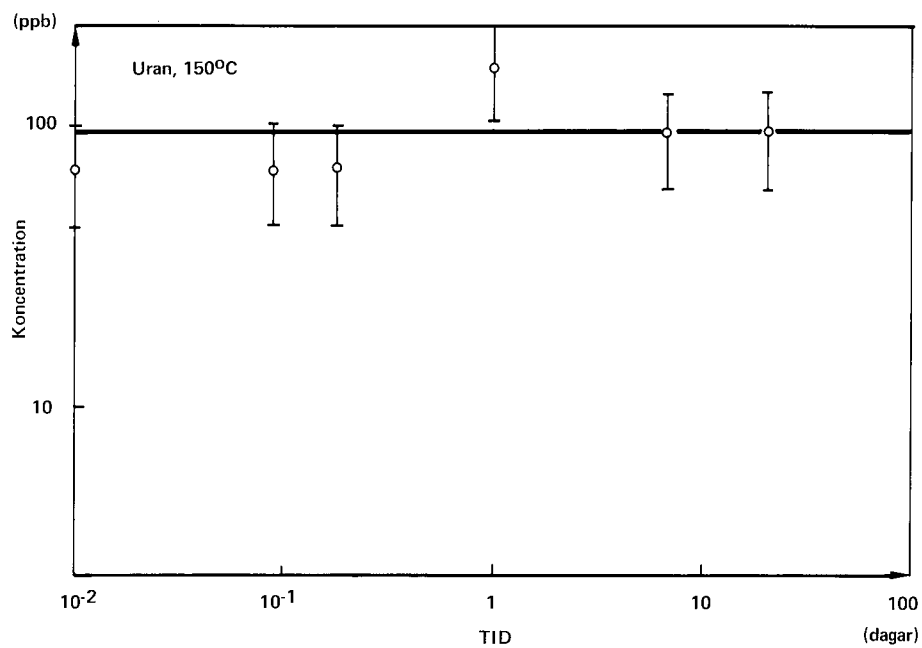
11.4.2 Matrisupplösning baserat på uppmätta koncentrationer i laklösningarna

Lösligheten av uran under oxiderande förhållanden bestäms till stor del av halten karbonat som är den viktigaste komplexbildaren i grundvattnet (se kapitel 12).

I de undersökningar av bränslelakning, som gjorts, har man inte i något fall kommit nära den teoretiska löslighetsgränsen (360 mg/l vid en total karbonathalt av 275 mg/l) för uran /11-2, 11-4, 11-6, 11-9, 11-11/. De halter, som uppmätts vid rumstemperatur har varit i intervallet 0,5 - 10 ppm. Det finns dessutom indikationer på att halten uran i lösning är konstant eller till och



Figur 11-3. Koncentration av löst uran i lakvatten (grundvatten) som funktion av kontakttid. (Från data ur /11-2/).



Figur 11-4. Koncentration av uran i laktösning (grundvatten) som funktion av kontakttid. (Från /11-6/).

med minskar vid långa kontakttider mellan grundvatten och uran /11-2, 11-6/ (se figurerna 11-3 och 11-4). Denna låga synbarliga löslighet kan bero på sorptionsfenomen, med återutfällning av

uran och aktinider på bränslekutsar och zircaloyhölje, eller på en faktisk sänkning av lösligheten i grundvatten på grund av bildning av svårlösliga uranatfaser. Beräkningar där sådana faser ($\text{Na}_2\text{U}_2\text{O}_7$) antagits existera leder till lösligheter av den storleksordning som observerats /11-13/. Detta antagande styrks av geologiska evidens, där de låga uranhalterna i ytliga, oxiderande, grundvatten förklarats med närvaron av svårlösliga, 6-värda, vittringsmineral från uraninit.

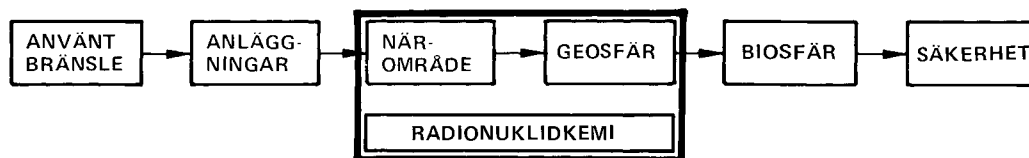
Om dessa observerade låga uranhalter i lakproverna är representativa för situationen i slutförvaret, skulle de leda till upplösningstider på över 10^8 år för uran och de nuklider som är bundna till upplösningen av uran.

11.5 DISKUSSION OCH SLUTSATSER

De två modeller för tolkning av mätdata från bränslelagningsförsök, som beskrivits i föregående avsnitt ger mycket olika upplösningstider för totala bränslemängden i en kapsel; några tiotal tusen år baserat på uppmätta lakhastigheter och 10^8 år baserat på uppmätta uranhalter i lakproverna.

I slutförvaret är vattenomsättningen mycket låg. Upplösningshastigheten för urandioxidmatrisen kommer därför att bestämmas av tillgången på vatten och lösligheten för uran i aktuellt vatten, se kapitel 13. Lakhastigheter från lakförsök med god tillgång på vatten är därför inte tillämpliga vid bedömningar av bränsleupplösningshastigheten i slutförvaret.

12 RADIONUKLIDKEMI I GRUNDTVATTENMILJÖ



I detta kapitel behandlas de radioaktiva ämnenas kemiska egenskaper i grundvattenmiljö. Löslighets- och sorptionsdata diskuteras liksom bildning av kolloider och komplex.

12.1 AKTINIDERNAS KEMI

Aktiniderna utgör en egen grundämnesgrupp i periodiska systemet. Som framgår av tabell 12-1 kan U, Np och Pu alla förväntas föreligga i flera oxidationstillstånd i grundvattenmiljö.

De kemiska egenskaperna är helt skilda för olika oxidationstillstånd av samma aktinid. Däremot har olika aktinider i samma oxidationstillstånd mycket snarlika egenskaper. Några i detta sammanhang avgörande skillnader föreligger alltså ej mellan Pu(III), Am(III) och Cm(III) och ej heller inom gruppen U(IV), Np(IV) och Pu(IV). Allmängiltiga slutsatser rörande kemiska egenskaper kan som regel dras ur modellförsök med t ex Am(III) (eller något grundämne i lantanidgruppen, t ex Ce(III), Nd(III), Eu(III), etc), representerande trevärda aktinider, U(IV) (i vissa fall även Th(IV)), representerande fyrvärda aktinider, Np(V), representerande femvärda aktinider och U(VI), representerande sexvärda aktinider /12-1/.

Aktiniderna bildar starka komplex med syreligander (oxider, hydroxider, karbonater, fosfater, sulfater, humussyror etc) liksom med fluorid. Olika oxidationstillstånd hos aktinidatomerna ger olika starka komplex. Hydroxid-, fosfat- och fluoridkomplexen liksom oxiderna är som regel mycket svårlösliga.

Eftersom samtliga de ovan nämnda komplexbildande jonerna är vanligt förekommande komponenter i grundvattensystem är aktinidernas beteende, och därmed också mobilitet och transportegenskaper, starkt beroende av grundvattensammansättningen. En analys av aktuella komplexbildningskonstanter och grundvattensammansätt-

ningar visar dock, att komplexbildningen nästan helt domineras av hydroxid- och karbonatkomplex, samt möjligen av organiska föreningar /12-2, 12-3/. Komplexbildningskonstanter motsvarande bildningen av 1,1-komplex (en ligand per aktinidatom) liksom löslighetsprodukter är sammanställda i tabell 12-2 /12-4/.

Förväntade aktinidspecier i grundvattenmiljö har sammanställts i tabell 12-3 och diskuteras separat för varje element nedan. Totala beräknade lösligheter sammanfattas i tabell 12-6.

Tabell 12-1. Oxidationstillstånd för aktiniderna i vattenlösning.

Element	Oxidationstillstånd ^a				
	III	IV	V	VI	VII
Th		+			
Pa		(+)	⊕		
U		⊕	⊕ ^b	⊕ ^b	
Np	(+)	⊕	+	(+)	(+)
Pu	⊕	⊕	+	+	(+)
Am	⊕	(+)	(+)	(+)	
Cm	+				

^a + = kan existera i vattenlösning vid pH 7-9.

(+) = extrema betingelser krävs för existens vid pH 7-9.

⊕ = förväntade tillstånd i ostörda djupa grundvatten i kristallint berg (jfr kapitel 7).

^b Vid höga karbonathalter.

12.1.1 Thorium

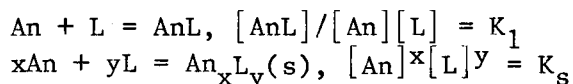
Thorium föreligger i fyrvärt tillstånd oberoende av redoxpotentialen i grundvatten. Hydrolysisprodukter dominerar och totala lösligheten begränsas av lösligheten för oxiden $\text{ThO}_2(\text{s})$ /12-5/.

12.1.2 Uran

Under oxiderande förhållanden existerar uran enbart i sexvärt tillstånd med oxider eller möjligen silikat- eller fosfatkomplex som löslighetsbegränsande fasta föreningar. Den totala lösligheten domineras dock av anjoniska komplex av typen $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_x^{2-2x}$ redan vid pH 5-6 eller högre vid de karbonathalter, som är aktuella i grundvattensystem /12-6, 12-7/.

Under reducerande betingelser begränsas lösligheten av $UO_2(s)$. Fortfarande kan sexvärda karbonatkomplex dominera vid pH över 6-8, dock med en låg totalkoncentration. Vid lägre pH kan fyrvärda hydroxidkomplex liksom femvärd UO_2^+ förväntas.

Tabell 12-2. Komplexbildningskonstanter och löslighetsprodukter publicerade under de tio senaste åren för aktiniderna U, Np, Pu och Am i olika valenstillstånd (III-VI).



Ligand	log K_1 (-log K_s)			
	III	IV	V	VI
OH^-	5-7 (22-25)	12-14 (> 47)	4-5 (8-9)	8-9 (22-25)
CO_3^{2-}	5-6 (31-33)		~ 5	10-11 (14)
F^-	3-4 (10)	8-9 (24-28)	4	5-6
Org ^a	7-9	13-16		7-9

^a Humus- eller fulvosyra; pH-beroende bindningskonstanter.

I djupa grundvatten dominerar fyrvärt uran vid låga potentialer (lägre än 0,24 - 0,06pH) och/eller låga totala karbonathalter. Dessa betingelser är inte ovanliga i djupa vatten. Vid högre potentialer och/eller höga karbonathalter dominerar sexvärt uran ($UO_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$), dock med UO_2 som löslighetsbegränsande fast fas (jfr figur 12-1).

12.1.3 Neptunium

Den fyrvärda oxiden $\text{NpO}_2(s)$ är löslighetsbegränsande fast fas både under oxiderande och reducerande betingelser. I oxiderande system dominerar femvärda karbonatkomplex av typen $\text{NpO}_2(\text{CO}_3)_x^{1-2x}$, jämte NpO_2^+ .

Reducerande förhållanden ger hydrolysisprodukter, huvudsakligen $\text{Np}(\text{OH})_4$.

Tabell 12-3. Dominerande oorganiska aktinidspecier i lösning (Grundvattensystem, pH 7-9).

Element	Reducerande betingelser, Fe(II)	Oxiderande betingelser, O ₂
Th	Th(OH) ₄	Som för red
Pa	Pa(V)-hydrolysp ^a	Som för red
U	U(OH) ₄ , UO ₂ ⁺ UO ₂ (CO ₃) _x ^{2-2x} , x=1-3	UO ₂ (CO ₃) _x ^{2-2x} , x=1-3 (UO ₂) ₃ (CO ₃) ₆ ⁶⁻
Np	Np(OH) ₄	NpO ₂ ⁺ NpO ₂ (CO ₃) _x ^{1-2x} , x=1-3
Pu	Pu(CO ₃) _x ^{3-2x} , x=1-3 Pu(OH) _y ^{3-y} , y=1,2 Pu(OH) ₄	Pu(OH) ₄ PuO ₂ ⁺
Am	Am(CO ₃) _x ^{3-2x} , x=1-3 Am(OH) _y ^{3-y} , y=1,2	Som för red
Cm	b	b

^a Möjligen inslag av Pa(IV).

^b Analog med Am.

12.1.4 Plutonium

Under oxiderande betingelser är PuO₂(s) löslighetsbegränsande fast fas med Pu(OH)₄ som dominerande specie i lösning vid pH 6-9. Vid lägre pH är den femvärda PuO₂⁺ sannolikt dominerande. En oxidation till Pu(VI) kräver högt pH, hög karbonathalt och närvaro av ett relativt starkt oxidationsmedel /12-4/.

Under reducerande förhållanden är plutonium trevärt, möjligen med vissa inslag av fyrvärda specier vid höga pH. Löslighetsbegränsande fast fas är Pu₂(CO₃)₃(s) vid låga pH och PuO₂(s) vid höga pH. Karbonatkomplex av typen Pu(CO₃)_x^{3-2x} dominerar i lösning.

12.1.5 Americium

I grundvatten kan enbart trevärdade americium specier existera med $\text{Am}_2(\text{CO}_3)_3(\text{s})$ som löslighetsbegränsande fas, och möjligen även $\text{Am}(\text{OH})_3(\text{s})$ vid höga pH. Lösningsskemin domineras av karbonatkomplex av typen $\text{Am}(\text{CO}_3)_x^{3-2x}$ (jfr figur 12-1).

12.2 KLYVNINGSPRODUKTERNAS KEMI

I tabell 12-4 har oxidationstillstånden hos några klyvningsprodukter sammanställts, och förväntade specier i grundvattenmiljö ges i tabell 12-5 /12-8, 12-9/.

Tabell 12-4. Oxidationstillstånd för klyvningsprodukter och aktiveringsprodukter i vattenlösning.

Element	Oxidationstillstånd ^a					Övrigt
	I	II	III	IV	V	
Ni		+				
Sr		+				
Zr				+		
Nb				(+)	⊕	
Tc				⊕		+ d
Pd		+				
Sn		⊕		+		
I						⊕ ^e
Cs	+					
Lantanider ^b			⊕	(+) ^c		
Ra		+				

^a Beteckningar som i tabell 12-1

^b T ex Nd, Sm, Eu

^c Ce

^d VII; dominerande oxidationstillstånd i luftat vatten

^e -I, 0

12:6

12.2.1 Cesium

Cesium kan enbart förekomma som icke-komplexbundet Cs^+ i grundvattenmiljö.

12.2.2 Strontium, radium

Både strontium och radium föreligger nästan helt som Sr^{2+} respektive Ra^{2+} . Vid mycket höga pH och karbonathalter kan en liten fraktion av karbonatkomplex av typen MCO_3 erhållas, liksom MSO_4 vid höga sulfathalter. Löslighetsbegränsande fasta föreningar är som regel $\text{SrCO}_3(\text{s})$ respektive $\text{RaSO}_4(\text{s})$.

12.2.3 Lantanider

Liksom för americium är det karbonatkomplexet $\text{M}_2(\text{CO}_3)_3(\text{s})$, och vid höga pH även $\text{M}(\text{OH})_3(\text{s})$, som är löslihetsbegränsande fasta faser. Lösningsskemin domineras av karbonatkomplex.

12.2.4 Zirkonium, niob, nickel

Zirkoniums och de fyrvärda aktinidernas kemiska egenskaper är likartade. Liksom för t ex thorium är dioxiden $\text{ZrO}_2(\text{s})$ löslihetsbegränsande fas. Dominerande specier i lösning är hydrolysisprodukterna $\text{Zr}(\text{OH})_4$ och $\text{Zr}(\text{OH})_5^-$.

Niob är femvärt under både oxiderande och reducerande betingelser och föreligger som hydroxider eller som NbO_4^{3-} eller NbO_3^- . Löslihetsbegränsande fasta faser är NaNbO_3 eller $\text{Ca}(\text{NbO}_3)_2$ och möjligen Nb_2O_5 . En reduktion till fyrvärt tillstånd är osannolik /12-10/.

Nickel är tvåvärt under de aktuella betingelserna. Bildning av hydrolysisprodukter är obetydlig vid pH under 9. Flera potentiella löslihetsbegränsande komplex kan föreligga i grundvattenmiljö, t ex NiO , NiCO_3 , $\text{Ni}_3(\text{PO}_4)_2$ och NiS /12-11/.

12.2.5 Teknetium

Under oxiderande betingelser föreligger teknetium som TcO_4^- i grundvattensystem. En potentiellt löslihetsbegränsande fast fas är Tc_2S_7 , som dock sällan kan förväntas, eftersom sulfidhalten under oxiderande betingelser som regel är för låg.

Under reducerande betingelser är teknetium huvudsakligen fyrvärt (sannolikt som en hydrolyserad produkt) med $\text{TcO}_2(\text{s})$ som löslihetsbegränsande fas. En reduktion ända till elementärt tillstånd är termodynamiskt möjlig i reducerande grundvattenmiljöer /12-12/.

Tabell 12-5. Dominerande oorganiska specier i lösning för några klyvningsprodukter och aktiveringsprodukter (Grundvattensystem, pH 7-9).

Element	Reducerande betingelser, Fe(II)	Oxiderande betingelser, O ₂
C	HCO ₃ ⁻ , CO ₃ ²⁻	Som för red
Ni	Ni ²⁺	Som för red
Sr	Sr ²⁺	Som för red
Zr	Zr(OH) _x ^{4-x} , x=4,5	Som för red
Nb	NbO ₄ ³⁻ , NbO ₃ ⁻ Nb(V)-hydrolyspod	Som för red
Tc	Tc(OH) ₄	TcO ₄ ⁻
Pd	Pd(OH) ₂	Som för red
Sn	Sn(OH) ₂ m fl	Sn(OH) ₂ ²⁺ m fl
I	I ⁻	I ⁻ , I ₂ , IO ₃ ⁻
Cs	Cs ⁺	Som för red
Lantanider	M(CO ₃) _x ^{3-2x} , x=1-3 M(OH) _y ^{3-y} , y=1,2	Som för red (även Ce(OH) ₄)
Ra	Ra ²⁺	Som för red

12.2.6 Jod

Under mildt oxiderande eller reducerande betingelser är I⁻ stabilaste tillståndet i lösning. En oxidation till I₂ eller till IO₃⁻ kan dock åstadkommas /12-13/.

Jodid bildar svårslösliga komplex med vissa övergångselement, t ex koppar, silver, kvicksilver, bly m fl.

12.2.7 Tenn, palladium

Tenn är fyrvärt under oxiderande betingelser med SnO₂ som svårslöslig fas. I neutrala pH-området dominerar hydrolyspanprodukter.

Tenn kan bilda lösliga alkylföreningar i naturliga vatten, men även dessa är starkt hydrolyserade vid pH över 4.

Under reducerande betingelser är tenn tvåvärt. Hydrolysisprodukter dominerar vid pH över 5, och löslighetsbegränsande fasta förening är SnO.

Palladium är tvåvärt under de aktuella betingelserna. Starka komplex bildas med t ex klorid, men hydrolysisreaktioner dominerar vid pH över 5-6 utom vid extremt höga kloridkoncentrationer. Både Pd(OH)₂ och PdO är mycket svårösliga.

12.3 KOLLOIDBILDNING

Många katjoner har en tendens att bilda flerkärniga polymera hydroxider. Speciellt gäller detta för tre- och fyrvärda joner, t ex bland aktiniderna (Am(III), Pu(III), Pu(IV), Th(IV) etc). Polymeriserade hydroxidkomplex kan utbilda aggregat med hög molekylvikt och närmast partikelegenskaper. Höga restladdningar hindrar dessa aggregat, som brukar benämnas sanna kolloider, från ytterligare tillväxt och utfällning genom elektrostatisk repulsion. Härigenom kan skenbart den termodynamiska löslighetsprodukten avsevärt överskridas /12-14, 12-15, 12-16 och 12-17/.

Polymera kolloidala hydroxidspecier som bildas i sura eller neutrala lösningar bär en positiv restladdning. Dessa kolloider tenderar därför att kraftigt sorberas på t ex exponerade silikat- eller oxidtyper, som oftast har en negativ nettoyt-laddning. Denna typ av kolloidala specier representerar närmast ett metastabilt tillstånd. En färsk kolloidal hydroxidutfällning av t ex en fyrvärd hydroxid av plutonium eller thorium övergår gradvis från ett amorft till ett kristallint tillstånd och en långsam tillväxt i partikelstorlek kan observeras. Denna process kan snarast betraktas som ett led i ett spontant utfällningsförlopp. Stabilitet, tillväxt etc hos kolloidala hydroxidaggregat är starkt pH-beroende.

Utfällning och kristallisation av neutrala hydroxidspecier är ur termodynamisk synvinkel ett reversibelt förlopp, även om kinetiken är långsam. En upplösning av en utfälld aktinidhydroxid bör alltså ske, om totalhalten av aktiniden i vattnet sänks. Dock undergår den färsk hydroxidutfällningen av t ex en fyrvärd aktinid (Pu(OH)₄, Np(OH)₄ etc) en långsam successiv dehydratisering, och den då bildade oxiden (PuO₂, NpO₂ etc) har en löslighet som är åtskilliga tiopotenser lägre än för den primära hydroxidfasen.

Bildningen av flerkärniga hydroxidspecier vid låga pH och höga totala metallhalter, t ex för thorium och plutonium i fyrvärt tillstånd är dock inte alltid reversibel. En bildning av termodyna-

miskt stabila högmolekylära aggregat kan ske vid partiell neutralisation av en starkt sur höghaltig lösning. Förutsättningar för en motsvarande process finns ej i ett avfallsförvar, där en långsam utlösning av radionuklider sker, begränsad av uranoxidens termodynamiska löslighet och upplösningsförloppets långsamma kinetik, och vid ett högt pH.

Hydroxidkolloidernas starka tendens att sorberas på fasta ytor och partiklar i lösningen liksom den svårberäknliga kinetiken för övergången från metastabila aggregat med hög ytladdning till termodynamiskt stabila specier har i många system omöjliggjort detaljerade kvantitativa studier av kolloiders egenskaper.

Sorption av kolloidala hydroxidspecier på geologiska material liksom sorption och desorption av radionuklider på naturligt förekommande kolloidala aggregat (t ex lerpartiklar) diskuteras i avsnitt 12.8.

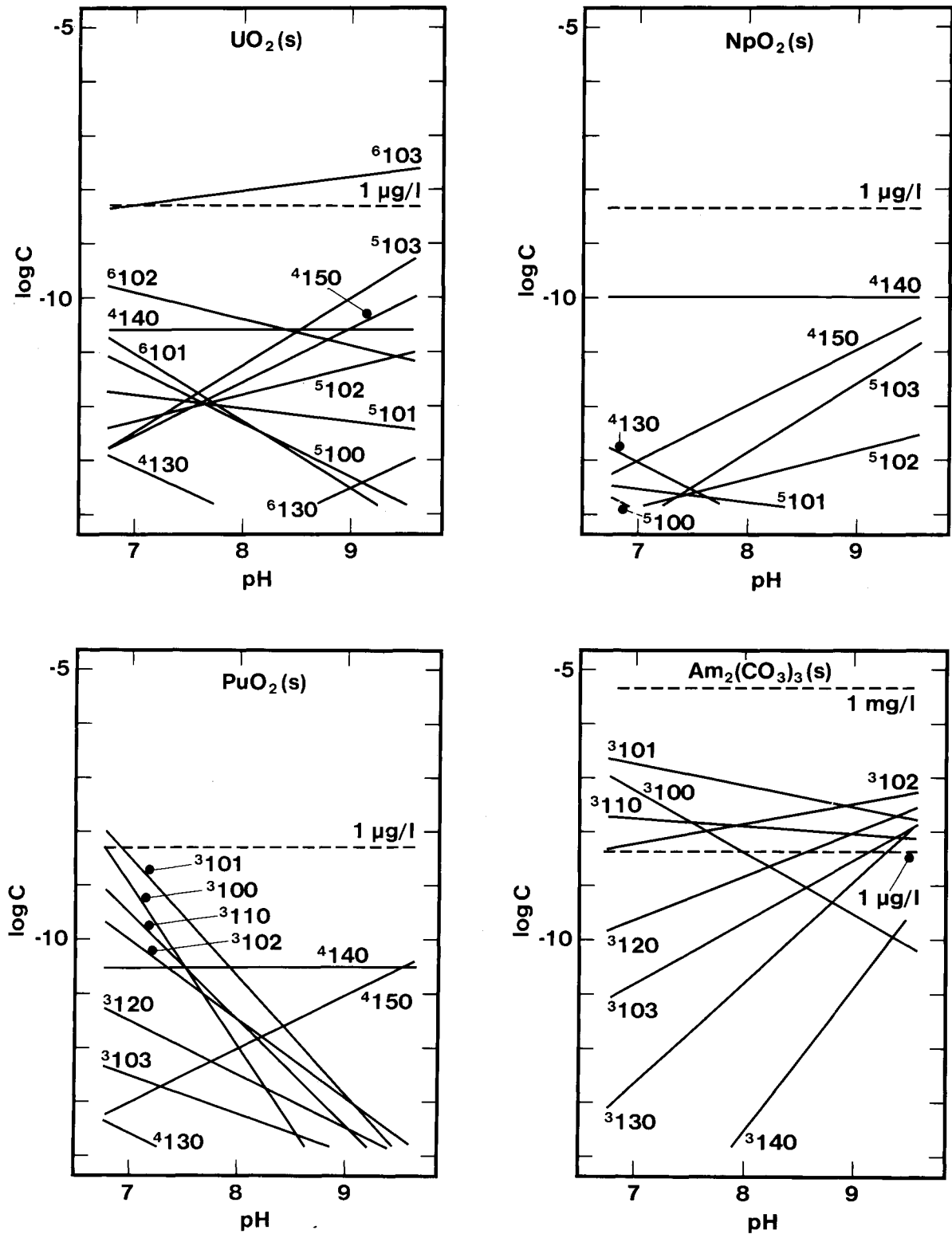
12.4 ORGANISKA KOMPLEX

Högmolekylära humus- och fulvosyror är potentiella metallkomplexbildare, som bildar komplex med aktiniderna jämförbara med hydroxid- och karbonatkomplexen i styrka (se tabell 12-2) /12-18, 12-19/. Djupa grundvatten innehåller organiska ämnen, som regel i haltområdet 1-8 mg/l. En mindre del av den organiska fraktionen utgörs av humussyror och högmolekylära fulvosyror. Den totala kapaciteten av dessa potentiella komplexbildare kan vara av storleksordningen 10^{-5} - 10^{-6} ekv/l, vilket är jämförbart med totala karbonathalten i grundvatten vid pH 7.5-8 och därunder (se kapitel 7).

För aktinider i fyrvärt och sexvärt tillstånd dominerar troligen hydrolysreaktioner respektive karbonatkomplexbildning över bildningen av humus- och fulvosyrakomplex i grundvattenmiljö. För de trevärda aktiniderna däremot (americium, liksom plutonium under starkt reducerande betingelser och låga pH) kan en avsevärd fraktion av de lösliga specierna föreligga som organiska komplex, speciellt vid pH 7 eller därunder /12-3, 12-18 och 12-19/.

12.5 LÖSLIGHET

Den totala halten av aktinider och klyvningsprodukter i grundvattnet bestäms av vilka löslighetsbegränsande fasta faser som kan bildas och halten av potentiella komplexbildare i vattnet. I tabell 12-6 har sammanställts löslighetsdata för aktiniderna och teknetium beräknade ur termodynamiska data, figur 12-1.



Figur 12-1. Beräknade lösligheter och kemisk sammansättning för uran, neptunium, plutonium och americium i reducerande karbonatrikt grundvatten (data från avsnitt 7.6). – (I beteckningen ^{n}abc anger n oxidationstalet, a antalet metallatomer, b antalet hydroxidgrupper och c antalet karbonatgrupper i respektive komplex).

Om den metastabila 1,4-hydroxiden ($\text{Th}(\text{OH})_4$, $\text{U}(\text{OH})_4$, $\text{Np}(\text{OH})_4$ och $\text{Pu}(\text{OH})_4$) ansätts som löslighetsbegränsande fast fas erhålles totala lösligheter, som är flera storleksordningar högre än värdena i tabell 12-6 (se även avsnitt 12-9) /12-3/. Vid utfällning av metallhydroxider kan även medfällning av andra metaller med närliggande jonradie förväntas, trots att löslighetsprodukten för motsvarande hydroxid ej överskrids. Sålunda sker en medfällning av $\text{Pu}(\text{III})$ tillsammans med $\text{U}(\text{OH})_4$ långt under löslighetsprodukten för svårlösliga $\text{Pu}(\text{III})$ -föreningar.

Tabell 12-6. Beräknade lösligheter för aktinider och teknetium i grundvatten. Inom parentes anges löslighetsbegränsande fast förening (se även tabell 12-8).

Element	Maximal halt $\mu\text{g}/\text{l}$	
	Reducerande betingelser, $\text{Fe}(\text{II})$	Oxiderande betingelser, O_2
Tc	0,2(TcO_2)	(Hög) ^a
Th	0,4(ThO_2)	0,4(ThO_2)
U	10 (UO_2)	b
Np	1 (NpO_2)	c
Pu	10 (PuO_2 , $\text{Pu}_2(\text{CO})_3$)	1 ^d (PuO_2)
Am	10 ² ($\text{Am}_2(\text{CO}_3)_3$)	10 ² ($\text{Am}_2(\text{CO}_3)_3$)

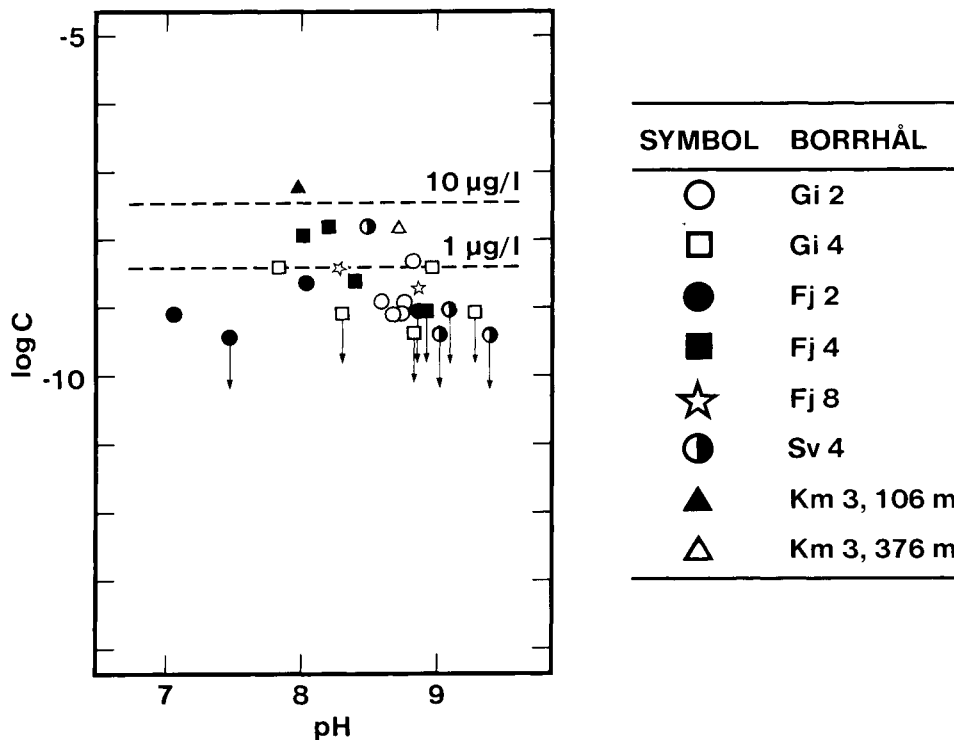
^a Så hög, att lösligheten ej begränsas i förhållande till uranoxidens upplösningstakt.

^b Löslighetsbegränsande fast fas i naturen kan vara en fosfat- eller silikatförening, eller möjligen en oxidfas. Tillförlitliga termodynamiska data för dessa föreningar saknas dock. Maximal halt, begränsad av tillgången på karbonat i vattnet, är 360 mg/l beräknad för $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ och 275 mg/l totalkarbonat.

^c Löslighetsbegränsande fast fas är sannolikt en förening av typen $\text{Na}_{2x-1}\text{NpO}_2(\text{CO}_3)_x$, där $x = 0,8-1$ /12-20/. Vid höga natriumhalter begränsas lösligheten till 10-tals mg/l. Maximal halt beränsad av tillgången på karbonat i vattnet är 360 mg/l, beräknad för $\text{NpO}_2(\text{CO}_3)_3^{5-}$ och 275 mg/l totalkarbonat.

^d Löslighetsminimum erhålles vid milt oxiderande betingelser.

Av speciellt intresse är uransystemet, eftersom upplösningen av UO_2 -oxiden i det utbrända bränslet också styr utlösningen av övriga aktinider och klyvningsprodukter ur bränslet. Mätningar av totalhalter och uranisotopsammansättningar i naturliga vatten



Figur 12-2. Uppmätta uranhalter i djupa svenska grundvatten. Halter motsvarande mätnoggrannheten eller lägre markeras med pil. ▲ representerar data från Kamlunga, 106 meters djup (3 mätningar): redoxpotentialen är här positiv.

visar, att uranets löslighet under reducerande betingelser som regel är lägre än $1 \mu\text{g/l}$ /12-21/. Haltnivåer av denna storleksordning har också uppmätts i djupa svenska grundvatten, figur 12-2, där sannolikt mättnad föreligger med avseende på $\text{UO}_2(\text{s})$. Betingelserna är här starkt reducerande (se kapitel 7).

Uran är vanligt förekommande i granitisk berggrund. Halter av storleksordningen 5-10 mg/kg kan förväntas. Beräknade lösligheter för uran ur termodynamiska data under de aktuella betingelserna ger acceptabel överensstämmelse med de uppmätta halterna enligt figur 12-2. (Jfr figur 12-1).

12.6 SORPTIONSPROCESSER

Interaktion mellan upplösta ämnen i t ex en vattenfas och fasta faser i kontakt med vattnet är ett generellt fenomen, som i allmänhet medför ett partiellt upptag av det lösta ämnet på den fasta fasen.

Ett flertal olika mekanismer kan särskiljas för dessa sorptionsprocesser, vars nettoresultat är att mängden upplöst ämne reduceras i ett statistiskt system, eller att transporthastigheten för

upplösta komponenter reduceras i ett dynamiskt system /12-22, 12-23/.

12.6.1 Fysikalisk adsorption

Fysikalisk adsorption av spårelement på fasta ytor orsakas av icke-specifika attraktionskrafter mellan det lösta ämnet och den fasta fasen. Liknande krafter verkar mellan molekyler i alla lösningssystem. Denna adsorptionsprocess är i allmänhet snabb, reversibel och relativt oberoende av temperaturen, men även oberoende av spårelementets koncentration (vid låga totalhalter) och i många fall också den fasta sorbentens mineralogiska sammansättning. Flera konsekutiva molekyllager kan utbildas på sorbenten, och en gradvis övergång från adsorption till utfällning kan ske, om halten av spårämne ökar.

12.6.2 Elektrostatisk interaktion

Attraktion mellan elektriskt laddade ytor och joner i lösning med motsatt laddningstecken leder till sorptionsfenomen. Vanligt förekommande är substitutionsförlopp, då en jon från vattenfasen ersätter en jon med samma laddning, vilken sorberats på den fasta fasens yta (jonbyte). Jonbytesjämvikter är som regel starkt beroende av spårelementets halt liksom av totala salthalten i vattnet, men också beroende av den fasta sorbentfasens kemiska sammansättning. Elektrostatiska interaktioner är oftast reversibla.

12.6.3 Kemisorption

I vissa system erhålles specifika kemiska krafter mellan den upplösta komponenten och den fasta ytan, vilka leder till en sorptionsreaktion som närmast kan liknas vid kemisk bindning. Dessa sorptionsförlopp är koncentrationsberoende, icke sällan starkt temperaturberoende och kan vara långsamma och delvis irreversibla.

12.6.4 Substitution

I vissa system kan en substitution mellan specier i lösning och motsvarande element i den fasta fasen äga rum. Detta är en långsam, haltberoende och ofta delvis irreversibel process, som kan leda till en permanent fixering och mineralisering av det substituerade ämnet.

12:14

12.6.5 Utfällning - mineralisering

Utfällningsreaktioner kan inte betraktas som sorptionsprocesser, men resultatet är detsamma, dvs en upplöst komponent fixeras på en fast yta. Utfällda svårösliga hydroxider (t ex $\text{Pu}(\text{OH})_4$, $\text{U}(\text{OH})_4$, $\text{Np}(\text{OH})_4$ m fl) kan dehydratiseras och övergå till oxidfaser, vilket kan innebära en närmast irreversibel mineralisering.

12.6.6 Fördelningskoefficientbegreppet

Fördelningskoefficienten för ett ämne, definierad som (totalhalt i fast fas)/(totalhalt i vattenfas), är en parameter som ofta används för att kvantitativt ange sorptionen av ett spårelement i ett system under givna betingelser /12-23/. Fördelningskoefficienten kan enkelt beräknas ur modellförsök och också modifieras eller omräknas så att den kan användas för beräkning av retardationen i transportförlopp (se kapitel 14). Dock måste betonas att uppmätta sorptionskaraktäristika för ett spårelement är en funktion av ett stort antal kemiska och fysikaliska parametrar, såsom

- vattenfasens sammansättning (radionuklidhalt, halt av övriga an- och katjoner, pH, redoxpotential)
- fasta fasens sammansättning (mineralogi-kemi, ytegenskaper, kristallinitet, yt/volymskvot m m)
- övriga parametrar (temperatur, kontakttid).

Generellt ökar fördelningskoefficienten med kontakttiden, delvis beroende på att nya ytor blir tillgängliga för sorption i den fasta fasen allteftersom de lösta komponenterna tränger in i porer och mikrosprickor.

Två olika reaktionsförlopp kan alltså särskiljas. Efter en snabb ytreaktion följer ett långsammare diffusionskontrollerat volymsberoende reaktionsförlopp.

Fördelningskoefficienter bestämda i modellförsök utgör totalsumman av alla bidrag från olika sorptionsprocesser och är alltså inte några elementspecifika storheter. Laboratorieförsök under simulerade naturliga betingelser har dock givit en godtagbar överensstämmelse i de fall där fältobservationer rörande spårelementtransport finns tillgängliga /12-24, 12-25/.

12.7 RADIONUKLIDSORPTION PÅ GEOLOGISKA SYSTEM

De fördelningskoefficienter som anges nedan för individuella radionuklider gäller under följande betingelser:

- Vattenfas: Grundvatten, med sammansättning enligt förväntat intervall i tabell 7-4; i de fall redoxpotentialen, höga salthalter eller närvaron av specifika komponenter direkt påverkar sorptionsförloppet, diskuteras detta separat.
- Radionuklidhalt: Låg (10^{-6} - 10^{-7} M) eller under maximala halter som bestäms av lösligheten hos svårösliga faser (t ex PuO_2 , UO_2 etc). I de fall radionuklidhalten signifikant påverkar sorptionsreaktionen diskuteras detta separat.
- Temperatur: 20-25°C; en temperaturhöjning med några 10-tals grader medför inga drastiska förändringar i sorptionsförloppen. Som regel ökar fördelningskoefficienten med upp till en faktor två vid en temperaturhöjning från 25 till 50-75°C /12-26, 12-27/.
- Fast fas: Mineral och sprickfyllnadsprodukter representativa för granit-granodiorit (se kapitel 7).

12.7.1 Tre- och fyrvärda aktinider - lantanider

Generellt sorberas hydrolyserade metalljoner på t ex oxid- eller silikatytor genom fysikalisk adsorption. För aktiniderna i de lägre oxidationstillstånden (III och IV) liksom för lantaniderna (III) och zirkonium (IV) hydrolyseras metalljonen vid låga pH, dvs bildar hydroxidkomplex genom reaktioner med vattnet. För de trevärda aktiniderna börjar hydrolysisreaktionerna bli påtagliga vid pH över 4-5 och för de fyrvärda (uran, neptunium, plutonium) redan vid pH över 0-1.

Sorptionsförloppet speglar kvalitativt hydrolysförloppet genom att sorption och hydrolysggrad tilltar parallellt med pH. För de tre- och fyrvärda aktiniderna erhålles ett sorptionsmaximum i pH-intervallet 6-10, vilket också motsvarar bildningen av hydroxidkomplex som har låg laddning eller är oladdade.

Den viktigaste sorptionsbestämmande parametern är alltså pH, jämte redoxpotentialen i reduktions-oxidationskänsliga system, medan vattnets totala salthalt, aktinidernas totala halt (under löslighetsprodukten) samt även till stor del mineralfasens jonbytesegenskaper är mindre betydelsefulla.

Sorptionen av tre- och fyrvärda aktinider (americium, respektive plutonium, som huvudsakligen är fyrvärd under de aktuella experimentella betingelserna) på totalt 30-35 mineral illustreras i figur 12-3 /12-28, 12-29, 12-30/.

12:16

12.7.2 Fem- och sexvärda aktinider

Precis som för de tre- och fyrvärda elementen kan en koppling mellan sorptionsegenskaper och hydrolysisgrad observeras för aktiniderna i fem- och sexvärt tillstånd, med en begynnande sorption vid pH över 8-9 respektive över 3-4. Dock bildar framför allt de sexvärda aktiniderna mycket starka negativt laddade karbonatkomplex (t ex $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ i uransystemet, figur 12-1) med en kraftigt reducerad sorptionsbenägenhet som följd. Sorptionen av femvärt neptunium på geologiska material illustreras i figur 12-3.

12.7.3 Cesium, strontium

Upptaget av cesium och strontium på fasta geologiska material sker framför allt genom jonbytesreaktioner. Betydelsefulla parametrar för sorptionsprocessen är jonbyteskapaciteten för den fasta mineralfasen, figur 12-4, men också radionuklidhalten (speciellt för cesium) och totala salthalten i vattnet (konkurrerande positiva joner) /12-30, 12-31/.

12.7.4 Teknetium

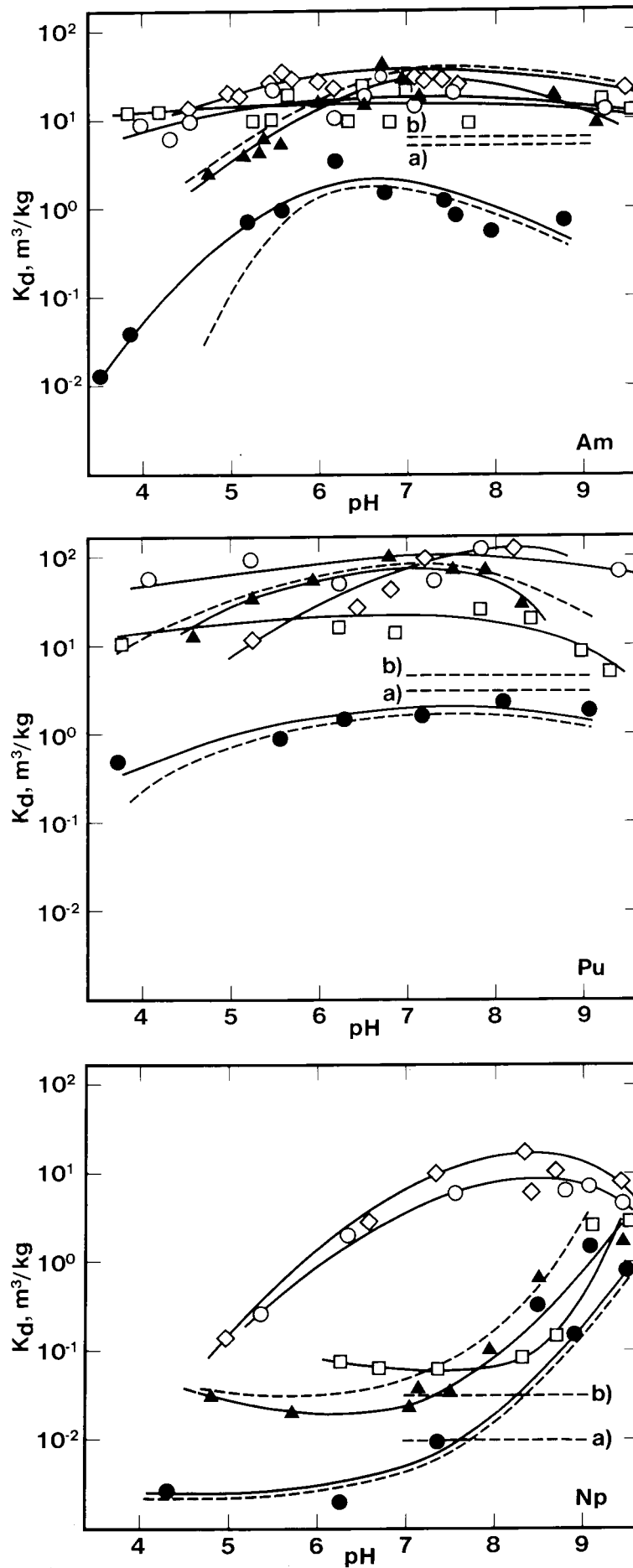
Teknetium, i form av perteknetat, TcO_4^- , (oxiderande miljö) sorberas mycket dåligt på de flesta vanliga geologiska material. Förekomsten av järn(II)-haltiga mineral och av järn(II) i vattnet gör emellertid, att teknetium kommer att föreligga i fyrvärt tillstånd. Tc(IV) bildar i likhet med de fyrvärda aktiniderna starka hydroxidkomplex, som då löslighetsprodukten överskrids kan omvandlas till oxiden $\text{TcO}_2(\text{s})$ /12-30, 12-32/.

12.7.5 Jod

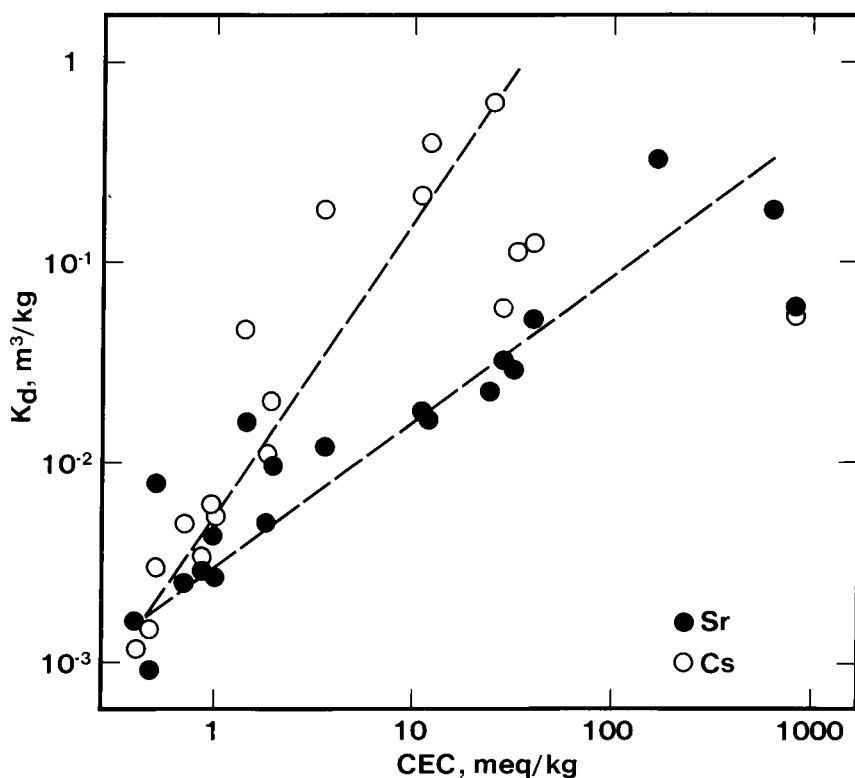
Jodid (I^-) sorberas påtagligt av mineral som innehåller metalljoner vilka själva bildar starka metall-jodidkomplex, t ex bly(II), koppar(I) m fl. Mineral med hög anjonbyteskapacitet kan också påtagligt sorbera jodid, men sådana mineral är ovanliga. I de flesta grundvattenmiljöer är jodupptaget på fasta geologiska material obetydligt /12-13, 12-30/.

12.7.6 Fördelningskoefficienter

I tabell 12-7 har experimentellt bestämda men konservativt valda fördelningskoefficienter sammanställts. Dessa värden är mätta under betingelser representativa för djupa grundvatten (reducerande betingelser och ett vatten med låg eller intermediär saltinnehåll, dvs upp till 1 000 mg/l totalt saltinnehåll). För aktinid-systemen anges dessutom troliga bästa värden. Motsvarande uppskattning har ej gjorts för t ex cesium och strontium, för vilka



Figur 12-3. Fördelningskoefficienter för americium (III), plutonium (huvudsakligen (IV)) och neptunium (V) som funktion av pH i mineral-grundvattensystem. De streckade linjerna markerar det område, inom vilket majoriteten av uppmätta värden för de 30–35 studerade mineralsystemen faller. Införda är nivåer för granitiskt berg motsvarande a. Använda värden, b. Bästa ansats enligt tabell 12-7.



Figur 12-4. Fördelningskoefficienter för cesium och strontium på vanliga granitiska huvudmineral och sprickfyllnadsprodukter som funktion av jonbyteskapaciteten (CEC).

vattnets totala saltinnehåll, liksom de vattenförande sprickornas mineralinnehåll m m starkt kan påverka värdena. Inom parentes ges värden för de redoxkänsliga grundämnena under oxiderande betingelser (jämvikt med luft). Bästa ansatsvärden för aktinid-systemen avser en kvartsrik granit med låg halt av biotit och hornblände, pH 8-8,5 och ett karbonatrikt grundvatten. De flesta av de aktuella bergarterna har en högre andel glimmer och amfiboler, vilket medför högre fördelningskoefficienter än de ansatta värdena. De värden som använts i säkerhetsanalysen är lägre än "Bästa ansats" för att inkludera även extremt kvarts- och fältspatrika berg. Genomgående har högre experimentella värden erhållits för de ca 5 olika graniter som studerats.

Givetvis är inte fördelningskoefficienten en elementspecifik konstant, som tabell 12-7 kan antyda. För aktiniderna liksom för cesium och strontium har empiriska samband framtagits som definierar fördelningskoefficienten som funktion av betydelsefulla parametrar, t ex pH (för aktiniderna), nuklidhalt och jonstyrka (för cesium och strontium), mineralsammansättning, jonbyteskapacitet (för cesium och strontium och i viss utsträckning för aktiniderna) etc. Speciellt för cesium och strontium, som sorberas på fasta material genom jonbytesprocesser, är totala salthalten en betydelsefull parameter. Variation av dessa parametrar ger dock som regel värden som är högre än vad som anges under "Använda värden" i tabellen /12-28, 12-31/.

Tabell 12-7. Fördelningskoefficienter för radionuklider i granitiska berggrund-grundvattensystem. (Låg salthalt, reducerande betingelser.) Inom parentes ges för de redoxkänsliga elementen värden för oxiderande betingelser.

Element	Fördelningskoefficienten, m^3/kg	
	Använda värden	Bästa ansats
Co	0,2	
Ni	0,2	
Sr	0,004 ^a	
Zr	4	
Nb	4	
Tc	0,05 (0,0002)	
I	0	
Cs	0,05 ^a	
Lantanider	5	
Ra	0,1 ^a	
Th	5	13 ^b
Pa	5	23
U	5 (0,01)	> 13 ^b (0,06) ^c
Np	5 (0,01)	> 13 ^b (0,03)
Pu	5 (3)	6 (4,3)
Am	5	6

^a Betydligt högre värden kan erhållas för högkapacitetsmineral, liksom även lägre för rena lågkapacitetsmineral, t ex kvarts. Fördelningskoefficienten kan antas avta proportionellt mot halten konkurrerande positiva joner i vattnet vilket kan ge lägre värden i vatten med hög salthalt (högre än 1 000 mg/l).

^b Avser fyrvärdt uran respektive neptunium; värdet för torium har ansatts som minimivärden.

^c Avser sexvärdt uran: Vid mycket låg uranhalt (under 10^{-10} M) kan upp till en tiopotens högre värden erhållas.

12.8 SORPTION AV KOLLOIDALA SPECIER OCH MAKROMOLEKYLER

12.8.1 Sanna kolloider

Bildning av kolloidala specier kan förekomma företrädesvis för de tre- och fyrvärda elementen (t ex Am(III), Pu(III), Pu(IV), Th(IV) etc) och möjligen för sexvärda aktinider (t ex U(VI)) i karbonatfri miljö.

Tendensen till kolloidbildning är som regel försumbar för övriga element av primärt intresse i avfallssammanhang (t ex Np(V), Cs(I), Sr(II), Ra(II), Tc(VII) etc).

Sanna kolloider uppbyggda av metallhydroxidaggregat uppvisar samma generella sorptionsmönster som molekyllära hydroxidspecier, dvs fysikalisk adsorption på de flesta silikatmineral för icke-anjoniska specier /12-14, 12-15 och 12-17/. Vid höga pH, då anjoniska specier kan förväntas, medför den negativa laddningen en reducerad sorption på många geologiska material, både för molekyllära och kolloidala specier.

Eftersom hydroxidkolloiderna ej är termodynamiskt stabila ändras de kolloidala partiklarnas egenskaper med tiden (aggregatstorlek, kristallinitet, ytladning etc). Generellt tycks dessa åldringsfenomen, som tilltar med höjd temperatur och/eller ökad jonstyrka, öka upptaget på tillgängliga fasta ytor. Någon irreversibel bildning av icke-sorberbara och därmed mobila kolloidala fraktioner har ej observerats för de tre-och fyrvärda aktiniderna /12-17/.

12.8.2 Pseudokolloider

Kolloidala partiklar i naturvatten kan uppkomma genom kondensation i övermättad lösning, t ex av metallkationer + silikat, fosfat, karbonat, hydroxid etc. Kolloider kan också bildas genom dispersion, t ex vid vittring av berg och därmed sammanhängande suspension av små partiklar och/eller nybildning av mineral.

Naturliga kolloider i grundvatten består vanligen av lermineral, hydratiserade oxider och hydroxider av Si, Fe, Mn och Al m fl, förutom organiska makromolekyler.

Kolloidala aggregat kan tjäna som radionuklidsorbenter och benämnas då pseudokolloider. Sorptionen av lösta radionuklider på kolloidala partiklar skiljer sig som regel ej fenomenologiskt från sorption på makroytor. Kring en kolloidal partikel med en negativ nettoladdning på ytan orienterar sig vattenmolekyler med sina positiva delar riktade mot partikelytan. Hydratiserade metalljoner orienteras på liknande sätt och kan sorberas genom uppkomst av vätebindningar till lokaliserade laddningscentra, eller adsorberas direkt på partikelytan, dock utan hydrattvattnet.

Vid kontakt mellan en radionuklidbärande pseudokolloid och nya fasta sorbenter förefaller nya sorptionjämvikter inställa sig, där total tillgänglig sorbentyta är den parameter som framför allt bestämmer fördelningen av radionukliden mellan vattenfas, fast sorbentfas och pseudokolloidfas. I vattensystem med hög strömningshastighet och hög halt naturliga kolloidala partiklar torde spårelementtransport via pseudokolloider spela en avgörande roll, speciellt i de fall då partikelfractionen utgörs av lermineral med hög jonbyteskapacitet /12-33/. I t ex djupa granitiska grundvattensystem, där flödes hastigheterna är låga och halten partiklar är låg är pseudokolloidtransporten sannolikt utan praktisk betydelse av följande skäl:

- Tillgänglig sorbentyta i bergets vattenförande sprickytor och mikrosprickor är flera storleksordningar större än ytan hos rörliga partiklar i vattnet.
- Låga flödes hastigheter medger långa kontakttider, vilket gör att jämvikt kan inställa sig mellan specier i lösning och tillgängliga ytor.
- Transport genom trånga materialfyllda vattenvägar reducerar partikelflöden genom filtreringseffekter.

Transporten av kolloidala aktinidspecier (Am(III) och Pu(IV)) genom krossat berg och lera har studerats i modellförsök, både för sanna hydroxidkolloider och för pseudokolloider med järnhydroxid, kiselsyra eller lermineral som bärare. Under förutsättning att flödet är långsamt, dvs kontakttiden lång, erhålles inga snabbt migrerande kolloidala fraktioner.

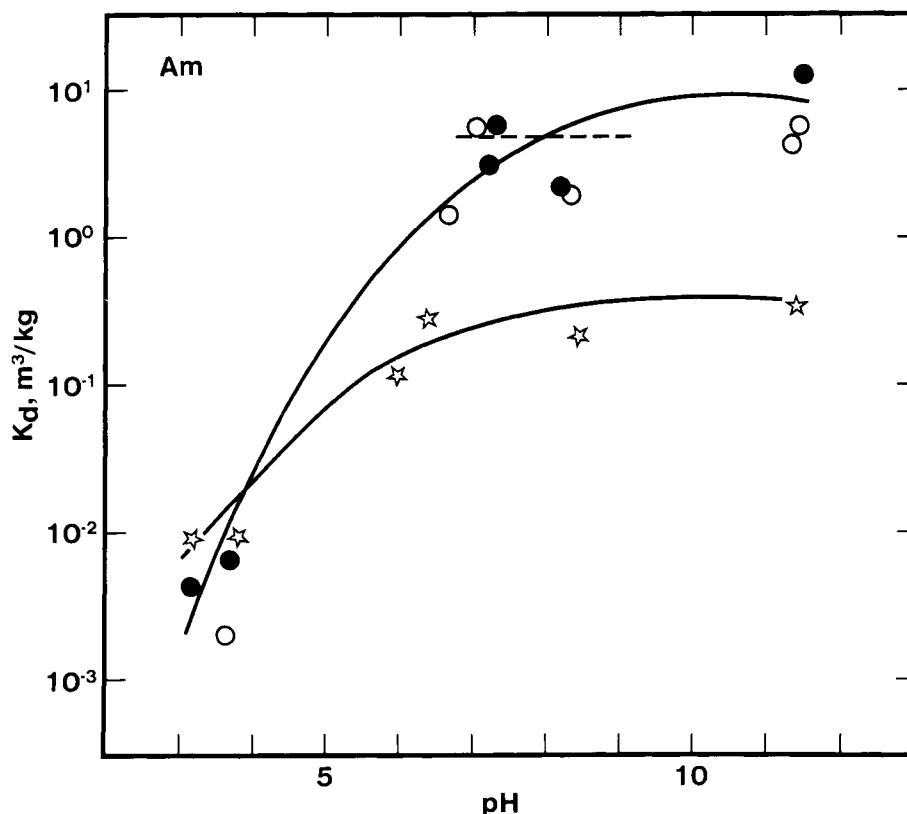
Däremot har en snabbt migrerande fraktion observerats vid t ex transportstudier i kolonner eller sprickor, då flödet har varit snabbt, och kontakttiden därmed kort.

Ej heller har indikationer erhållits, att en irreversibel bildning av kolloidala radionuklid-specier skulle ske under de aktuella betingelserna.

Då vattenfasen med kvarvarande icke-sorberad fraktion av t ex Am(III) i ett granit-grundvattensystem kontaktas med en ny fast fas har sålunda denna fraktion sorberats i en ny fördelningsjämvikt efter någon tid (dagar).

12.8.3 Humus- och fulvosyrakomplex

Aktiniderna bildar starka komplex i alla oxidationstillstånd med vissa av de högmolekylära humus- och fulvosyror, som kan påträffas framför allt i ytliga vatten (se avsnitt 7.2.4). Speciellt för de trevärda aktiniderna kan komplex förväntas, som kan utgöra en dominerande fraktion av samtliga lösliga molekyllag vid relativt



Figur 12-5. Fördelningskoefficienten för americium som funktion av pH i granit-grundvattensystem i närvaro av en starkt komplexbildande humussyra, ○ utan humus, ● 0,1 mg/l humus, ☆ 10 mg/l humus.

Nivån motsvarande använt värde enligt tabell 12-7 är införd i figuren.

låga pH, då karbonatkomplexbildningen ej dominerar. (Se jämviktskonstanter i tabell 12-2.) Närvaron av höga halter av komplexbildande humussyror kan försämra upptaget av en trevärd aktinid på en kristallin mineralfas, vilket illustreras i figur 12-5 /12-18/.

Komplexbildning med thorium vid höga humushalter tycks dock ha en obetydlig påverkan på migrationsegenskaperna i naturen /12-34/.

Nedfallsplutonium från kärnvapenprov har visat mycket liten migrationsbenägenhet i ytliga jordar med påtagliga halter av humus- och fulvosyror, där alltså en betydande plutoniumfraktion kan förväntas föreligga som humus- eller fulvosyrakomplex /12-35/. Liknande slutsatser har dragits från studier av plutoniums rörlighet i humusrikt vatten i anslutning till ytliga avfallsförvar m m. Trots att en stor del av plutoniet (Pu(IV) och Pu(III)) är associerat till organiskt material är migrationsbenägenheten låg /12-36/.

Laboratorieförsök har också visat, att neptunium (Np(V)), såväl som americium och curium sorberas kraftigt på jordpartiklar med varierande halt organiskt material (upp till 3-4%) /12-33/.

Sammanfattningsvis kan alltså konstateras:

- Vid låga totalhalter av humus- och fulvosyror kan en signifikant fraktion av trevärda aktinider föreligga som organiska komplex; för övriga oxidationstillstånd dominerar hydrolys och karbonatkomplexbildning. Detta motsvarar betingelserna i ett djupt bergförvar. I t ex ytliga jordar och i vatten med hög halt organiska syror kan dock humus- och fulvosyrakomplexen helt dominera.
- Närvaron av humus i höga halter sänker de trevärda aktinidernas fördelningskoefficienter i granit-grundvattensystemet.
- Aktinider i form av humus- eller fulvosyrakomplex har liten benägenhet att migrera i naturen. Detta kan bero på att de organiska komplexen i sin tur sorberas på geologiska material (om än med lägre fördelningskoefficienter än motsvarande hydrolysisprodukter).
- I system med höga vattenflöden och höga partikelhalter är aktinidtransport i partikelform av större betydelse än transport av lösliga komplex; dessa partiklar kan vara jord med högt innehåll av organiska komplexbildare. Denna transportmekanism är ej av betydelse i djupa grundvatten med låga vattenflöden, låg partikelhalt och stora bergytor tillgängliga för sorption (se kapitel 14).

12.9 REFERENSDATA

Vid beräkning av löslighet, har dataunderlag använts enligt tabell 12-8.

Tabell 12-8. Radionuklidlöslighet i grundvatten.

Element	Maximal halt, $\mu\text{g}/\text{l}$			
	Reducerande betingelser, Fe(II)		Oxiderande betingelser, O_2	
	a	b	a	b
Tc	0,2	(0,2)	Hög	(Hög)
Th	0,4	(0,4)	0,4	(0,4)
U	10	(10)	$3,6 \times 10^5$	$(3,6 \times 10^5)$
Np	8	(1)	Hög	$(3,6 \times 10^5)$
Pu	3×10^3	(10)	8	(1)
Am	6×10^3	(10^2)	6×10^3	(10^2)

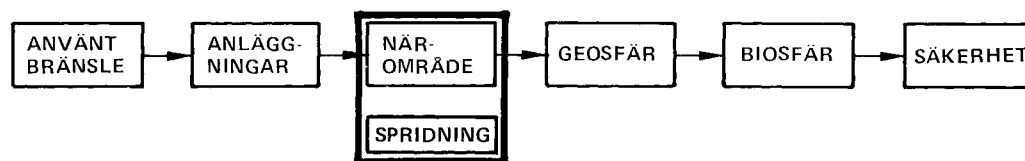
12:24

Värden enligt kolumn a, motsvarande bildning av en metastabil löslighetsbegränsande hydroxidfas, har använts. I kolumn b ges motsvarande data under antagandet av bildning av en oxidfas (jfr tabell 12-6).

För beräkning av retardation till följd av radionuklidsorption har fördelningskoefficienter under rubriken "Använda värden" i tabell 12-7 använts.

För Am och Pu, under reducerande betingelser och vid närvaro av humusämnen används fördelningskoefficienten $0,5 \text{ m}^3/\text{kg}$.

13 NUKLIDSPRIDNING I NÄROMRÅDET



Detta kapitel behandlar de processer som styr upplösningen och uttransporten av radionuklider ur närområdet i händelse av kapselgenombrott. De transportprocesser som förekommer i närområdet har även betydelse för kapselkorrosionen och den aspekten behandlas också här. Den vidare spridningen av radionuklider i biosfären beskrivs i kapitel 14.

13.1 ALLMÄNT

Med närområde avses här det område omkring kapseln, där förvaret och dess komponenter direkt påverkar nuklidspridningen, då kapseln genombrutits. Påverkan kan vara av kemisk, hydrologisk eller mekanisk art. Närområdets utsträckning varierar i tiden och kan inte exakt anges men kan praktiskt anses sträcka sig upp till något tiotal meter från kapseln.

Händelseförloppet i närområdet kan hänföras till två principiellt olika skeden. I det första skedet, är kapslarna fortfarande täta och någon nuklidspridning till omgivningen äger inte rum. Förloppen i detta första skede behandlas i kapitel 10. I detta kapitel beskrivs förhållandena under det andra senare skedet, då kapseln förutsätts vara genomkorroderad. Detta antas inträffa efter tidigast 100 000 år. Därvid kommer grundvattnet i kontakt med bränslet och en upplösnings- och spridningsprocess kan ta sin början.

Bränslet består till ca 95% av sintrade urandioxidkristaller i form av centimeterstora kutsar. I kristallerna finns övriga radionuklider inväxta, där de alstrats. Undantag utgör ädelgaser, väte, jod och cesium, som under reaktorns drift vid hög temperatur till en del diffunderat ut till kutsarnas yta. Övriga ämnen frigörs till vattnet i takt med att urandioxiden löses upp. Upplösningshastigheten för urandioxiden kommer därför väsentligen att bestämma frigörelsehastigheten även för övriga nuklider.

Urandioxiden löser sig till uranets jämviktshalt i vattnet närmast kutsarnas yta. Skulle ingen borttransport av uranet ske, skulle upplösningen avstanna. Borttransport av löst uran sker emellertid genom att det diffunderar ut genom kapselns porösa korrosionsprodukter, vidare genom lerbufferten och ut till grundvattnet i bergets sprickor. De andra lösgjorda nukliderna transporteras ut på samma sätt. En del av nukliderna, bl a plutonium, har dock en så låg löslighet att de ej går i lösning i samma takt som uranet. De transporteras därför bort långsammare än uranet.

Diffusionen genom lerans mycket smala vattenfyllda porer är en långsam process. De flesta nuklider (alla katjoner) har dessutom en hög affinitet till lerpartiklarnas yta. De sorberas (adsorberas eller jonbyts) på den mycket stora inre ytan (ca 1 000 m²/g) i leran. Radionuklidernas genomträngning kommer därför att fördröjas, eftersom sorptionsplatserna i leran måste fyllas upp innan nukliderna kan vandra vidare. En del nuklider med förhållandevis korta halveringstider hinner avklinga märkbart under den långsamma transporten genom lerbarriären. De långlivade aktiniderna påverkas ej märkbart. Vissa nuklider når sålunda med tiden det strömmande vattnet och transporteras vidare i spricksystemet i berget.

Den joniserande strålning, som återstår, då kapseln genombrutits, sönderdelar vattnet i å ena sidan vätgas och å andra sidan oxiderande ämnen i sådan omfattning, att det kan ha betydelse för den kemiska miljön i närheten av kapseln. Vattnet i närområdet blir då oxiderande, varvid en del långlivade nuklider, bl a U, Np och Tc, får en väsentligt förhöjd löslighet i vattnet. Dessa vandrar ut genom leran och sprider sig nedströms men även i viss mån tvärs strömningsriktningen. När de når gränsen till opåverkad kemisk miljö, där vattnet är reducerande, faller de ut, eftersom deras löslighet i reducerande miljö är mångfalt lägre än i oxiderande miljö. Lösligheten kan sjunka tusenfalt eller mer. I en reducerande miljö kommer dessa nuklider därför att transporteras vidare i mycket låga halter. Fronten mellan oxiderande och reducerande förhållanden rör sig nedströms, men når i miljonårsperspektivet endast ett fåtal meter.

Det finns en del tänkbara transportprocesser, som i viss mån kan förändra ovanstående bild. Nukliderna kan själva bilda kolloider eller sorberas på partiklar (pseudokolloider), vilka transporteras med vattnets hastighet. En del organiska ämnen, som naturligt finns i vattnet, kan även binda radionuklider starkt i s k organiska komplex, som gör att nukliderna fördröjs mindre.

I det följande kommer de ovan nämnda transportmekanismerna att beskrivas mer ingående och beräkningar redovisas över den hastighet, med vilken radionukliderna kan spridas från förvaret.

13.2 TRANSPORT GENOM KORRISIONSPRODUKTER OCH LERBARRIÄR

Huvuddelen av kapseln består av koppar. I den svetsade versionen av kopparkapseln har bly gjutits runt bränslestavarna, vilka består av zircaloyrör, i vilka bränslekutsarna finns. I den hetisostatpressade (HIP) kapseln finns inget bly. Hela kapseln utgörs där av koppar.

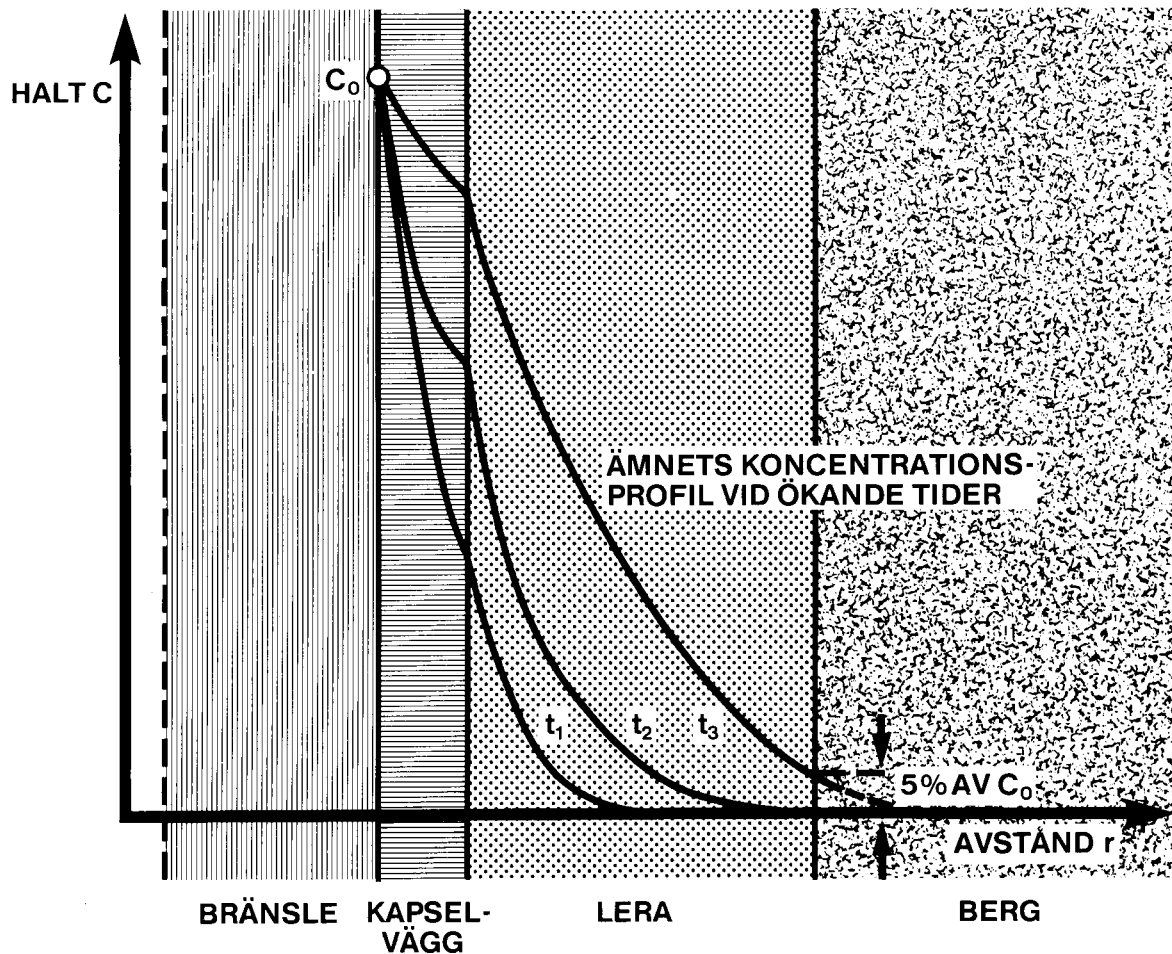
Kopparkapseln korroderar genom reaktion med i vattnet löst syrgas och sulfid. Dessa ämnen tillförs från det långsamt förbi-strömmande vattnet medelst diffusion genom vattnet närmast hålet och genom leran. Denna transport beskrivs närmare under avsnitt 13.2.2.

Vid korrosion av de olika materialen bildas metallsalter eller oxider, som alla bildar mycket svårlösliga föreningar med i vattnet förekommande joner /13-1/. Korrosionsprodukterna koppar(I)-sulfid och oxid har densiteten 5,6 resp 6,0 g/cm³, medan metallisk koppar har densiteten 8,92 g/cm³. Koppar(II)oxid har densiteten 6,40 - 6,45 g/cm³. Även aktuella blyföreningar har lägre densitet än metalliskt bly. Oxidens, sulfidens, sulfatens och karbonatens densiteter är ca hälften av blyets /13-2/.

Vid korrosionen måste därför korrosionsprodukterna expandera 50 - 100%. Detta sker mot bentonitens svälltryck av mer än 5 MPa (jämför avsnitt 9.2). Det mekaniska mottryck, som bentoniten utövar på den korroderande kapseln, kommer att begränsa korrosionsprodukternas porositet. Några nämnvärda kaviteter kan ej uppstå, eftersom korrosionsprodukterna på grund av sin svårlöslighet ligger kvar och expanderar. Det finns emellertid för närvarande inget säkert underlag för att ange hur täta korrosionsprodukterna kommer att bli. I beräkningarna tas därför ingen hänsyn till att dessa skulle utgöra något hinder för nuklidtransporten.

Den högkompakterade bentonitleran som omger kapseln har en mycket låg vattengenomsläpplighet. Den hydrauliska konduktiviteten, K_p , är mindre än 10^{-13} m/s, jfr avsnitt 9.2.5, dvs i samma storleksordning som osprucket berg. Vattenströmningen blir därför ytterligt långsam och diffusion kommer att utgöra den helt dominerande mekanismen för transport av lösta ämnen genom leran. Diffusionsmätningar i kompakterad bentonit har genomförts i flera av varandra oberoende försök för ett 15-tal ämnen. Dessa inkluderar lösta gaser, H₂, CH₄ /13-3/, högmolekylära föreningar /13-4, 13-5/, klyvningsprodukterna Cs⁺, Sr²⁺, anjonerna HS⁻, Cl⁻, Br⁻ /13-6, 13-7/ och ett antal aktinider samt teknetium /13-8, 13-9/.

En analys och bedömning av diffusivitetens betydelse finns genomförd och redovisas i /13-10/.



Figur 13-1. Visar hur ett ämne som har halten C_0 vid bränsleytan diffunderar ut genom den genomkorroderade kapselväggen och leran. Koncentrationsprofilen har vid tiden t_3 vid berget nått 5% av halten vid bränsleytan.

13.2.1 Instationära skedet

Flertalet nuklider är metaller och existerar oftast som katjoner i vattenlösningar. Katjoner har stark benägenhet att sorberas på lerpartiklarnas yta. Cesium och strontium upptas till ca 2 000 gånger högre halt i leran än i det vatten leran står i kontakt med. Många av aktiniderna U, Pu, Np, Am m fl sorberas till tiotusentals gånger högre halt i leran än i vattnet (se avsnitt 12.5). En nuklid, som börjar diffundera in i leran, kommer därför att vandra mycket långsamt, då merparten av de molekyler, som kommer in i porvattnet sorberas på lerpartiklarnas yta. Först när jämvikt uppnåtts, vandrar nukliden vidare i porvattnet. Tiden innan de första spåren av en nuklid kommer fram till utsidan av lerbarriären kan för en sorberande nuklid vara tiotusentals gånger längre än för en icke sorberande nuklid.

Tabell 13-1. Diffusionsdata samt genombrottstider och maximala relativa utflöden till fjärrområdet för några viktiga nuklider.

Kolumn 1	2	3	4	5	6	Kapselgenombrott vid		
						10 ⁵ år		
Nuklid	D _a x10 ¹² m ² /s	t _{1/2} år	t _{0,05} år	t _{0,05} /t _{1/2}	max N _i ^{ut} /N _i ^t	$\frac{10^5}{t_{1/2}}$	N _i ⁵ /N _i ⁰	max N _i ^{ut} /N _i ⁰ för D _a max
129I	9	1,6x10 ⁷	53	0	1	0	1	1
99Tc	53	2,1x10 ⁵	9	0	1	0,5	~1	1
137Cs	1-8	30	60-480	2-16	9x10 ⁻⁶ -1x10 ⁻²	>100	0	0
135Cs	1-8	3x10 ⁶	60-480	0	1	0	1	1
90Sr	2-25	29	19-240	0,7-8,5	2x10 ⁻⁴ -5x10 ⁻²	>100	0	0
226Ra*	2-25	1,6x10 ³	19-240	0	1	63	0	0
229Th*	5-9x10 ⁻³	7,3x10 ³	56-100x10 ³	7,7-14	2x10 ⁻⁵ -3x10 ⁻⁴	13,6	8x10 ⁻⁵	2x10 ⁻⁸
231Pa	~1	3,3x10 ⁴	478	0	1	2,8	0,14	0,14
234U								
235U	~1		478	0	1	0	~1	1
236U								
238U								
237Np	0,2-0,4	2,1x10 ⁶	1,2-2,4x10 ³	0	1	0	~1	1
239Pu	7-30x10 ⁻³	2,4x10 ⁴	16-69x10 ³	0,7-2,9	5x10 ⁻³ -5x10 ⁻²	4,2	0,055	3x10 ⁻³
240Pu	7-30x10 ⁻³	6,6x10 ³	16-69x10 ³	2,4-10,5	7x10 ⁻⁵ -7x10 ⁻³	15,1	3x10 ⁻⁵	2x10 ⁻⁷
241Am	4-14x10 ⁻³	433	32-120x10 ³	69-260	0	>100	0	0
243Am	4-14x10 ⁻³	7,9x10 ³	32-120x10 ³	4,3-16,2	8x10 ⁻⁶ -1x10 ⁻³	13,5	9x10 ⁻⁵	9x10 ⁻⁸

N_i⁰ = nuklidflödet från bränslet om det började lakas vid tiden 0.

N_i⁵ = "--" "--" 10⁵ år.

N_i^t = "--" "--" t år.

N_i^{ut} = nuklidflödet från buffertens utsida till förbiströmmande vatten.

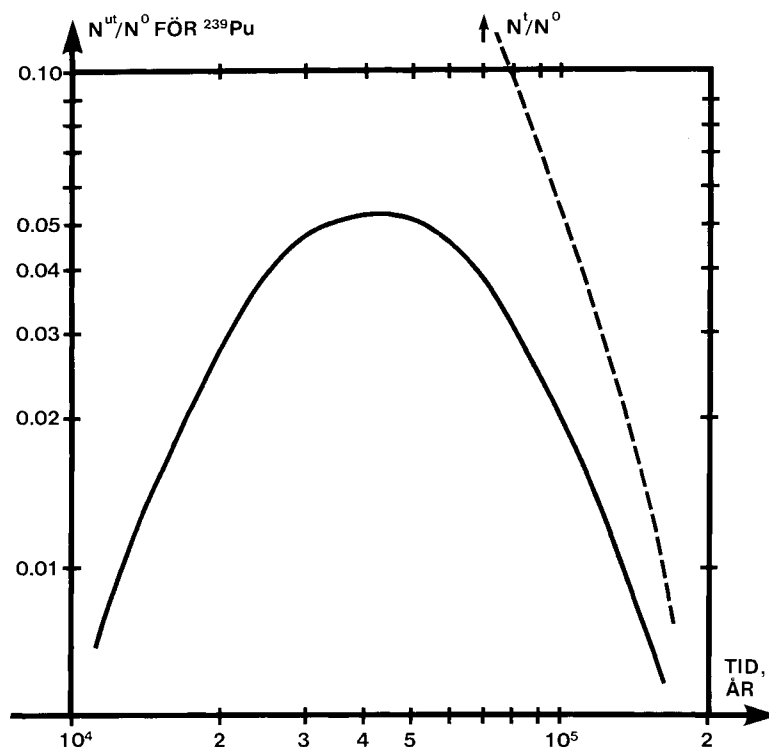
* = endast den del av nukliderna som finns ursprungligen i bränslet.

t_{0,05} = tiden för koncentrationen på utsidan att stiga till 5% av koncentrationen på insidan.

D_a = diffusiviteten.

Tiden fram till kapselgenombrott och tiden för transporten genom leran avgör i vilken grad radionukliderna avklingar, innan de når grundvattnet i bergets sprickor.

Resultaten kan åskådliggöras på följande sätt. Genombrottstiden för en nuklid genom leran definieras här, som den tid det tar för nukliden att på utsidan av leran uppnå 5% av den halt, som nukliden har på insidan av lerbarriären. Figur 13-1 visar detta förlopp. Genombrottstiden bestämmer det antal halveringstider som nukliden genomgått under passagen genom lerbarriären. Vid 30 halveringstider har nukliden avklingat till 10⁻⁹ av ursprungs-



Figur 13-2. Den heldragna kurvan visar hur mycket ^{239}Pu som släpps ut från utsidan av bufferten N^{ut} i förhållande till hur mycket som lakades N^0 vid tiden 0. Kurvan visar den kombinerade effekten av avklingning i bränslet och i bufferten. Den streckade kurvan visar hur mycket som lakas N^t vid tiden t i förhållande till lakraten N^0 vid tiden 0. Den visar effekten av avklingningen i bränslet och sålunda hur utsläppet skulle bli om leran ej hade en fördröjande verkan.

mängden. De nuklider, som får en genombrottstid som är längre än 30 gånger halveringstiden för nukliden, kommer igenom i så låg halt, att de ej längre påverkar omgivningen i nämnvärd grad. En del nuklider kommer att tränga igenom lerbufferten men i reducerad mängd. För den första nukliden i en kedja kan flödet N_i^{ut} från buffertens utsida enkelt relateras till inflödet till bufferten om lakraten är konstant. Kvoten mellan ut- och inflöde i bufferten för nuklid "i" N_i^{ut}/N_i^t har beräknats för ett antal nuklider /13-10/.

Tabell 13-1 visar data för nukliderna och deras genombrottstider i år liksom i antal halveringstider. Beräkningarna har genomförts för en lerbarriär av kompakterad bentonit, vilken upptar utrymmet mellan kapseln med diametern 0,75 m och förvaringshålet med diametern 1,5 m. Barriärens tjocklek är sålunda ca 0,38 m.

Tabell 13-1, kolumn 6 visar högsta utsläppet någonsin - N_i^{ut} - från från utsidan av bufferten om lakningen startar vid tiden t med inflöde N_i^t till bufferten. N_i^{ut}/N_i^t visar hur mycket som högst blir kvar efter nuklidens vandring och avklingning i bufferten. Kol 8 visar hur mycket inflödestermen minskar om lakningen börjar efter 10^5 år istället för "omedelbart". Kol 9 visar den kombinerade effekten på utsläppet av avklingning i bufferten och lång (100 000 år) kapsellivslängd.

Figur 13-2 visar N_i^t/N_i^0 för ^{239}Pu beräknat för högsta uppmätta värdet på diffusiviteten $D_a = 3 \times 10^{-14} \text{ m}^2/\text{s}$. Det maximala utsläppet vid initial kapselskada är 5,4% av vad som skulle erhållits utan uppehållet i bufferten. För övriga nuklider reducerar bufferten utsläppet till maximalt 1% för ^{137}Cs , 5,4% för ^{90}Sr , 0,66% för ^{240}Pu och 0,13% för ^{243}Am . För den andel ^{229}Th som ursprungligen finns i bränslet reduceras utsläppet till högst 0,029%, men då ^{229}Th är dotter i en sönderfallskedja har detta ingen praktisk betydelse. För övriga viktiga nuklider saknar fördröjningen i bufferten betydelse. Beräkningarna för 100 000 år gammalt bränsle visar att transporten genom bufferten ger ungefär samma avklingning för en del nuklider (^{229}Th , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{243}Am) som 100 000 år avklingningstid (kol 8). Den redovisade avklingningen i bufferten medtas inte i den fortsatta behandlingen.

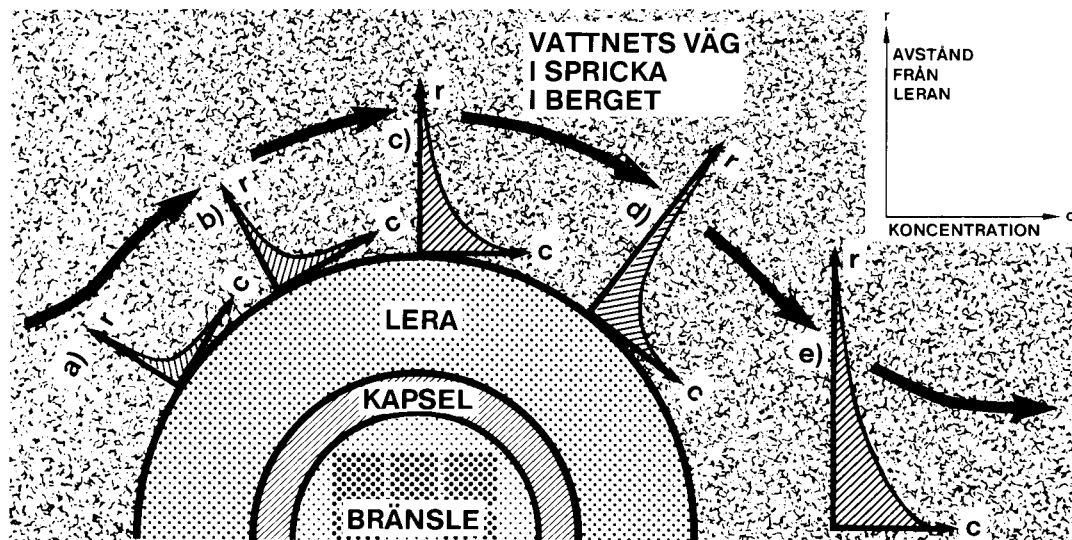
En ökning av buffertens tjocklek till det dubbla skulle öka $t_{0.05}$ med en faktor fyra. Det skulle få en betydande inverkan på ^{137}Cs , ^{90}Sr och de båda plutoniumisotoperna samt ^{243}Am . Då alla dessa utom ^{239}Pu emellertid avklingar väsentligt under kapselns livslängd (100 000 år) påverkas egentligen endast ^{239}Pu . Det leder till ett ca 10 gånger lägre utsläpp av denna nuklid.

13.2.2 Stationära skedet

De nuklider som icke i nämnvärd grad avklingar under det instationära skedet vandrar vidare från leran och ut i det vatten, som långsamt rör sig i bergets sprickor. Nukliden diffunderar ut i vattnet och bygger upp en koncentrationsprofil i vattnet på likartat sätt som vid den instationära genomdiffusionen av leran. När en given vattenvolym strömmat förbi kapseln har den under en viss tid varit i kontakt med bufferten, som avger nuklider. Den koncentrationsprofil, som under denna tid har utbildats i vattnet, bestämmer den mängd nuklid som vattnet förmår att transportera vidare medströms, när vattnet lämnar bufferten. Figur 13-3 visar hur koncentrationsprofilen utbildar sig under vattnets passage av kapseln.

Transport till kapseln av i vattnet lösta korrosiva ämnen såsom syre och sulfid sker på i princip samma sätt. Vattnet som strömmar runt leran utarmas successivt vid dess passage förbi hålet genom att ämnena diffunderar in till kapselväggen och reagerar där.

Materietransporten vid stationära förhållanden har modellerats och beräknats /13-11, 13-12/. I dessa beräkningar har hänsyn tagits till diffusionen i lerbarriären såväl som i vattnet i vattenförande sprickor. Diffusionen in i bergmatrisen runt hålet är försumbar utom under ett allra första skede. I modellen tas hänsyn till att berget i närheten av kapseln kan vara stört på grund av bergarbeten och därmed ha högre hydraulisk konduktiv-



Figur 13-3. Vid vattnets första kontakt med leran a) från vilken nukliden diffunderar, när nukliden en kort sträcka ut i vattnet. Under den allt längre kontakttiden b), c), d) när nukliden allt längre ut i vattnet. När vattnet passerat kapseln e) tillförs det ej mer nuklid.

tet. Transporten i leran beskrivs som 3-dimensionell diffusions-transport från bränsleytan till spricköppningarna i berget. Transporten in i det strömmande vattnet beskrivs som diffusion i strömmande vatten mellan två planparallella sprickväggar. Vattenflödet i berget bestäms i stor utsträckning av regionens flödesförhållanden och har beräknats vara 0,01 - 0,1 l/(m²·år) (se kapitel 6). Flödet i omedelbar närhet av kapseln kan öka till högst det dubbla, om berget i kapselns närhet fått en väsentligt högre hydraulisk konduktivitet på grund av bergarbetena /13-11/. Transporten påverkas även av antal sprickor som träffar deponeringshålet liksom dessa sprickors vidd. Frekvensen av vattenförande sprickor har studerats (se kapitel 6) i djupa borrhål i undersökningsområdena. En vattenförande spricka på var 5:e à 10:e meter är vanligt i de undersökta områdena.

Sprickor, vilka ligger parallellt med tunneln, kan vidgas vid tunneldrivningen. I beräkningarna antas 1 spricka per meter finnas i närområdet. Sprickornas vidd kan bestämmas med antagandet att strömningsmotståndet härrör från friktionen mellan 2 planparallella plattor /13-13, 13-14/. För 1 m sprickavstånd och hydraulisk konduktivitet 10^{-10} m/s fås sprickvidden 0,005 mm. Då sprickorna ibland har sprickmineralisering och sprickfyllnads-material väljs 0,1 mm sprickvidd som ett värde för beräkningarna.

Då sprickvidd, sprickfrekvens och vattenflöde är kända, kan nuklidernas utlösningshastighet bestämmas med den tidigare beskrivna modellen. Beräkningarna visar /13-11, 13-12, 13-15/ att merparten av transportmotståndet uppstår vid nuklidernas diffusion i de tunna sprickornas vatten. Lerans diffusionsmotstånd utgör endast ca 5-30% av totala motståndet på grund av att tvärsnittsytan för nuklidernas diffusion är mycket större - ca 1 m lerhöjd per varje 0,1 mm sprickvidd.

Då nuklidernas diffusivitet i vatten icke skiljer sig nämnvärt från varandra och är i samma storleksordning som för andra små lösta joner, kommer de att transporteras lika fort vid samma drivande kraft (koncentrationsskillnad). Denna är skillnaden mellan halten vid bränsleytan C_0 och i vattnet långt bort där den är 0. Nuklidtransporten kan därför skrivas

$$N_i = \frac{1}{R} \cdot (C_{oi} - 0) \quad (13.1)$$

där N_i är mängd nuklid "i" som transporteras vid haltskillnaden $C_{oi} - 0$. Parametern R är lika med summan av transportmotståndet i lera och sprickor. R bestäms med hjälp av den tidigare beskrivna modellen och är föga beroende av nuklidtyp.

Uttrycket (13.1) kan även tolkas på följande sätt: $1/R$ är det ekvivalenta vattenflöde, Q_{eq} , som kommer till kapseln med halten 0 och lämnar den med halten C_{oi} .

$$N_i = Q_{eq} \cdot C_{oi} \quad (13.2)$$

Q_{eq} har beräknats för den 5 m långa kapseln. Tabell 13-2 nedan ger värden på Q_{eq} vid olika vattenflöden U_0 i berget.

Transporten in till kapseln av korrosiva ämnen beskrivs med samma samband som de, som används för nuklidtransporten ut från bränslet. Diffusiviteterna för syre och sulfid i vattnet är av samma storleksordning vid stationära förhållanden som diffusiviteten för nukliderna. Sulfidens diffusivitet i lera är lägre och kan komma att sänka Q_{eq} för detta ämne något i praktiken. För beräkningarna har värdena i tabell 13-2 använts även för syre och sulfid.

Uttransporten av uran kommer att bestämma upplösningshastigheten för urandioxidmatrisen. Halten uran vid kutsarnas yta bestäms dels av dess löslighet i aktuella vatten och dels av om upplösningshastigheten är stor nog att tillföra vattnet vid kutsens yta nytt uran i den takt som det diffunderar bort. Då inga säkra data finns rörande upplösningshastighet för utbränt bränsle antas att denna är snabb, dvs att den ej är begränsande. Halten vid ytan blir då lika med uranets löslighet. Denna bestäms i huvudsak dels av vattnets karbonathalt och pH, dels av vattnets redoxpotential Eh. Redoxpotentialen i omgivande vatten i berget är

Tabell 13-2. Q_{eq} vid olika vattenflöden U_0 i berget för en 5 m lång kapsel.

U_0 1/(m ² · år)	Q_{eq} 1/år
0,01	0,19
0,03	0,32
0,1	0,57
0,3	0,94
1	1,57
3	2,41

negativ men kan pga radiolys vid kutsens yta vara positiv. Vid positiva Eh bestäms uranets löslighet av halten karbonatjoner. Vid de högsta karbonathalterna $[HCO_3^-] = 275$ mg/l i svenska grundvatten i kristallint berg är uranets löslighet = 360 mg/l. Med $Q_{eq} = 0,57$ l/kapsel och år, och med $C_{OU} = 360$ mg/l ger ekv (13.2)

$$N_U^{ut} = 0,57 \times 360 = 205 \text{ mg U/år och kapsel.}$$

Varje kapsel innehåller 1,4 ton uran varför det tar ca 7 miljoner år att lösa ut kapselns uraninnehåll. Detta förutsätter också att produktionen av oxiderande specier via radiolys är tillräcklig för att oxidera uranet i samma takt som det bortförs.

De nuklider vilka är inneslutna i urandioxidkristallerna lösgörs efterhand, som kristallerna löser sig. De får en halt på ytan av kutsarna som är proportionell mot halten i kutsarna. Nuklid "i" får sålunda halten

$$C_{oi} = C_{uran, lösl} \cdot X_i \quad (13.3)$$

där X_i = andelen nuklid "i" i kutsen. Denna nuklid transporteras ut till vattnet på samma sätt som uranet. Flödet blir som förut $N_i = Q_{eq} C_{oi}$. Om nukliden "i" kan lösa sig i vattnet i halten C_{oi} transporteras den ut i samma relativa takt som uranet.

En del nuklider bl a Th och Pu har lösligheter, vilka är lägre än C_{oi} . De faller därför ut på kutsarnas yta och transporteras bort endast till en mindre del. Denna bestäms av den enskilda nuklidens löslighet. Om sålunda lösligheten $C_{i, lösl}$ är mindre än C_{oi} enligt (13.3) blir uttransporten av nuklid "i" bestämd av

$$N_i = C_{i, lösl} \cdot Q_{eq} \quad (13.4)$$

Uttransporten av plutonium och thorium begränsas kraftigt på grund av deras låga löslighet.

En del av cesium och jod har under reaktorns drift anrikats vid kutsarnas yta. Denna del av cesiet och joden antas vara omedelbart tillgängligt för utlakning (se avsnitt 11.3). ^{137}Cs kommer att avklinga under kapselns livslängd. ^{135}Cs och ^{129}I når vattnet utanför praktiskt taget opåverkade av bufferten. Då emellertid kapslarna genombryts vid varierande tidpunkter och under mycket lång tidsutdräkt kommer i genomsnitt för förvaret som helhet den åtkomliga delen av dessa nuklider att lösgöras i en takt som bestäms av kapselgenombrotten. Merparten av även dessa nuklider kommer att lösgöras när urandioxiden löser sig. Enär utspridningen i tiden av kapslarnas sönderfall är jämförbar med laktiden för uranet skiljer sig dessa nuklidens utsläpp inte nämnvärt från de övrigas.

13.3 KONSEKVENSER AV RADIOLYS OCH VÄTGASBILDNING

Den joniserande strålningen kan sönderdela vattnet i vätgas och oxiderande föreningar såsom syrgas och väteperoxid. γ -strålningen kan genomtränga kapselväggen och annat fast material och verka på flera tiotal centimeters avstånd från kapseln. Den dämpas emellertid starkt vid passage genom de fasta materialen och dess intensitet på utsidan av kapseln är mycket svag /13-16/. β - och α -strålningen har mycket kort räckvidd i fasta material och kan ej bli verksamt förrän vattnet kommit i direkt kontakt med urandioxidmatrisen. I vatten är α -strålningens effektiva räckvidd ca 0,03 mm. När kapseln genombrutits och vatten kommit in till kutsarnas yta kan α -radiolys ske. Beräkningar har genomförts av Christensen och Bjergbakke /13-17/. De har antagit att urandioxidkutsarnas hela yta täcks av ett skikt, 0,03 mm tjockt, i vilket energin från α -strålningen avsätter sig. I varje kapsel skulle då ca 4,2 l fritt vatten kunna bli utsatt för α -radiolys. Detta är kraftigt överdrivet eftersom korrosionsprodukterna från kapslingsmaterialet och urandioxiden intar större volym än ursprungsmaterialet, så att även om denna volym finns i spalten mellan urandioxidkutsarna och zircaloyröret vid intakt kapsel, torde den kraftigt minska efter ett korrosionsangrepp. Tabell 13-3 visar α -radiolysen vid olika tidpunkter uttryckt som ekvivalent alstrad mängd väteperoxid och vätgas. Dessa mängder radiolysprodukter torde vara kraftigt överdrivna. Radiolys i denna omfattning har inte kunnat observeras vid OKLO /13-18/, där en naturlig reaktor varit verksam under ca 300 000 år. Där har radiolysen varit 100 - 500 gånger lägre, räknat på jämförbar bränslemängd och utbränning, än de teoretiskt maximala siffrorna. Redan låga halter järn löst i vatten katalyserar återreaktionen mellan väteperoxid och väte. Detta kan leda till att nettoproduktionen av väte och väteperoxid minskar 100-tals gånger /13-17/. Nedan belyses konsekvenserna av maximal radiolys. Radiolysen förväntas

Tabell 13-3. Teoretiskt maximal vätgas- och väteperoxidproduktion från α -radiolys i 1,4 ton uran enligt /13-17/. Strålningen avsättes i 4,2 l vatten uppdelat i ett 0,03 mm skikt på urandioxidytan.

Tidpunkt efter uttag ur reaktorn (år)	H ₂ O ₂ och H ₂ produktion (mol/år)	H ₂ O ₂ och H ₂ producerad i tidsintervallet (mol)
100	4,6	780
300	3,2	750
600	1,8	620
1 000	1,31	7 400
10 ⁴	0,34	16 200
10 ⁵	0,025	15 800
10 ⁶	0,009	
Totalt producerat under 10 ⁶ år		41 550

dock vara högst 1/100-del av de redovisade maximala värdena på grund av begränsningar i vattentillgång orsakade av korrosionsprodukternas expansion, vätgasutströmning och katalyserad återreaktion.

13.3.1 Inverkan på kapsel och bränsle

Den bildade väteperoxiden är ett kraftigt oxidationsmedel vilket kan angripa såväl kapselmaterialet koppar som det bly och zirkonium, som innesluter urandioxidkutsarna. Väteperoxid kan i närvaro av vissa ämnen spontant sönderfalla i syrgas och vatten. Syrgasen kommer därvid att verka som oxidationsmedel på samma sätt som väteperoxiden. Även bränslets metalloxider kan oxideras till högre valenstillstånd. Uranet, vilket i bränslet är 4-värd, kan oxideras till 6-värd. Även andra nuklider oxideras, varav de viktigaste är plutonium, neptunium och teknetium. Uran, neptunium samt teknetium blir mångfalt mer lösliga i grundvattnet vid det högre oxidationstillståndet. Vid oxidering av urandioxiden i vilken de övriga nukliderna är inneslutna, kan dessa lösgöras. De kan därefter transporteras ut från förvaret.

Beräkningar har genomförts över radiolysens förlopp /13-19/ där även den samtidiga uttransporten av radionuklider till det rörliga vattnet utanför kapseln beaktats. Beräkningarna bygger på antagandet att kemisk jämvikt alltid är förhållanden i en given volym vatten, vilken bestäms av lerans vatteninnehåll. Till denna volym förs väteperoxiden enligt tabell 13-3 och vatten med sitt innehåll av karbonat och andra lösta specier. Samma vattenflöde bortför reaktionsprodukterna. Vattenflödet Q_{eq} bestäms som tidigare av närområdets utformning (se avsnitt 13.2.2).

Uttransporten bestäms dels av hur mycket radionuklider som hunnit oxideras till de mer lösliga formerna, dels av tillgången på karbonater i grundvattnet. De senare utgör komplexbildare för uran och neptunium. Av beräkningarna framgår att kopparn i kapseln - om den är åtkomlig - kommer att oxideras i första hand och praktiskt taget helt förhindra påverkan på bränslet. Då det på grund av korrosionsprodukternas tillväxt är osannolikt att kopparn alltid är tillgänglig för oxidation, genomfördes beräkningarna även under antagandet att kopparn inte alls reagerar. I detta fall oxideras först urandioxiden.

Tabell 13-4 visar detta förlopp samt hur mycket uran, plutonium, neptunium och thorium, som transporterats ut vid olika tidpunkter. Den totala karbonathalten har vid beräkningarna satts till 122 mg/l (2 mmol/l). Den stora förändringen i mängden utlöst Np och Pu i intervallet 960 - 9 960 år beror på att den starkaste reduktanten $UO_2(s)$ förbrukats efter ungefär 2 500 år. Dessa beräkningar visar förhållandena för initial kapselskada. En kapsel som genombryts efter 100 000 år och där inget koppar, bly eller zirkonium reagerar med väteperoxiden, och där ej heller någon väteperoxid lämnar systemet kommer att efter ytterligare ca 250 000 år ha all urandioxid oxiderad till 6-värd, om maximalt

Tabell 13-4. Utlösning av nuklider från en kapsel vid radiolys enligt tabell 13-3, $Q_{eq} = 1$ l/år och kapselmaterialet är inerta. Totala karbonathalten är 2 mM. Enligt ref /13-19/.

År efter deponering	Utlöst mängd g i tidsintervallet		
	U	Np	Pu
0-1	0,12	$2,4 \times 10^{-11}$	10^{-12}
1-260	24	$7,5 \times 10^{-9}$	$2,4 \times 10^{-10}$
260-960	95	$2,1 \times 10^{-8}$	$7,2 \times 10^{-10}$
960-9 960	286	2 000	10^{-3}
9 960-10 ⁵	10 ⁴	2 500	0,012
10 ⁵ -10 ⁶	$1,1 \times 10^5$	-	0,024

tänkbar radiolys antas råda. Begränsas radiolysen till 1/100 därav blir endast ca 50 kg uran oxiderat under 1 miljon år. De ovan framräknade oxidationstiderna är överdrivet korta på grund av att dels inget bly, zirkonium eller koppar antas reagera samt att kutsarnas yta antas vara täckt med ett jämnt lager vatten. Kapselmaterialen kommer att till icke oväsentlig del oxideras. Oxidationen av urandioxid reduceras då i motsvarande grad. Korrosionsprodukterna från såväl bränsle som kapselmaterialen har större volym än de ursprungliga materialen. De kommer därför att fylla den ursprungliga volymen som varit tillgänglig för vatten. Korrosionsprodukternas porositet måste bli ringa eftersom kapseln och omgivande lera och berg utövar ett starkt motstånd mot expansion. Dessa effekter torde begränsa radiolysens inverkan kraftigt vilket antyds av förhållandena i OKLO-reaktorn. Där har efter 1,8 miljarder år en mycket liten andel av urandioxiden /13-18/ lösts upp.

Det oxiderade 6-värda uranet lämnar endast till en mycket ringa del kapseln, se tabell 13-4. Den övervägande delen blir kvar i form av kristaller av högre uranoxider/hydroxider /13-19/.

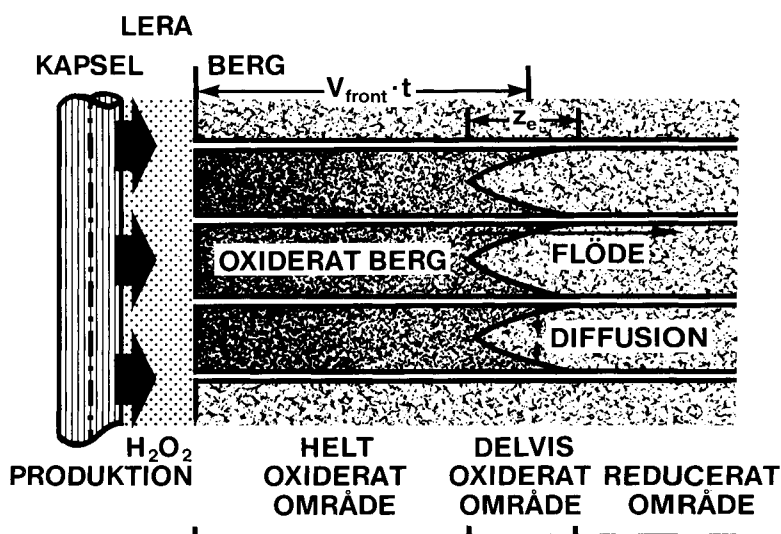
Under omkristalliseringen frigörs de nuklider vilka icke passar in i uranoxidens kristallstruktur. De viktigaste av de frigjorda nukliderna är cesium, strontium, jod och teknetium. Dessa har hög löslighet och kan transporteras iväg i den takt de lösgörs från bränslet.

Radiolysprodukterna kan oxidera uranet i ungefär samma takt, som vattenflödet i berget förmår transportera bort det från kapseln. Borttransporten (avsnitt 13.2.2) är ca 200 kg/10⁶ år förutsatt att så mycket uran finns i sexvärd form, medan alstringen av sexvärt uran är ca 50 kg under den första miljonen år. Utsläppet av de ovan nämnda nukliderna antas i de fortsatta beräkningarna ske med den takt som uranet kan transporteras ut.

Av aktiniderna har thorium och plutonium så låg löslighet under de förhållanden som råder i närheten av bränslet, att de faller ut som fasta faser och endast i mycket ringa del transporteras ut från kapseln. Detta förlopp har beskrivits tidigare i avsnitt 13.2.2.

13.3.2 Radiolysens inverkan på nuklidvandring i lera och berg

En del av den bildade väteperoxiden och andra oxidationsprodukter såsom 6-värd uran kan komma att lämna kapseln och nå lera och berget utanför lera. Såväl lera som berg innehåller tvåvärd järnföreningar, vilka lätt oxideras till trevärd järn /13-20/. När allt tillgängligt tvåvärd järn i ett område oxiderats, blir förhållandena i vattnet oxiderande och många aktinider blir mer lösliga än vid de reducerande förhållanden som normalt råder i berget, där det fortfarande finns tvåvärd järn. Närmast

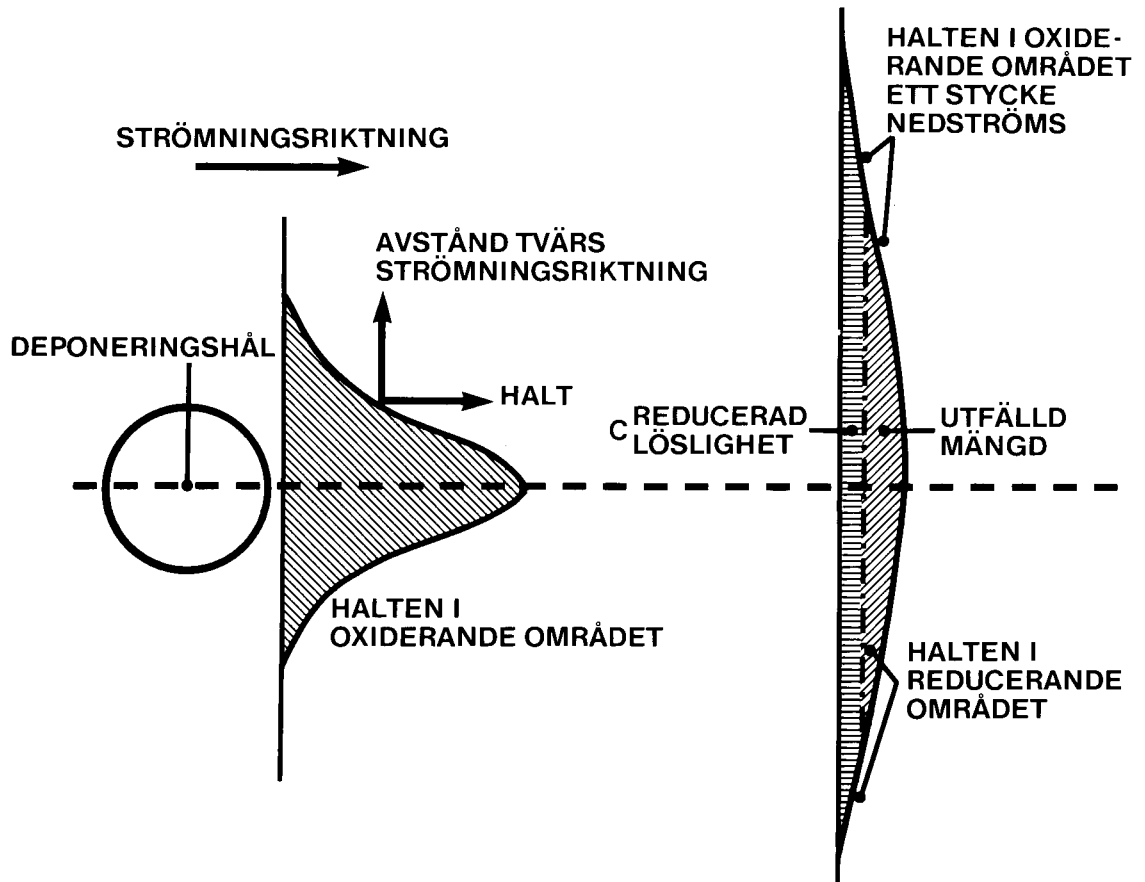


Figur 13-4. Radiolysfrontens utbredning nedströms en kapsel. Väteperoxiden och andra oxiderande ämnen rör sig med vattnet i sprickorna men diffunderar även från dessa in i berget, där det tvåvärd järnet oxideras till trevärt järn.

kapseln kan sålunda ett oxiderande område bildas, vilket långsamt expanderar allteftersom mer oxiderande ämnen tränger ut.

Beräkningar över utbredningen av denna s k redoxfront har genomförts /13-12, 13-21/. I dessa beräkningar antas att all bildad väteperoxid eller en ekvivalent mängd andra oxiderande specier tränger ut till lera och berg. När allt järn i leran förbrukats diffunderar väteperoxiden in i berget och reagerar med järnet där. I sprickigt berg förs väteperoxiden dessutom med det strömmande vattnet i sprickorna men diffunderar därifrån ut i bergets mikrosprickor och oxiderar en utsträckt bergvolym nedströms kapseln. Figur 13-4 visar utbredningsförloppet.

Utbredningen av fronten nedströms en kapsel kan maximalt under en miljon år bli ett 50-tal meter i relativt järnfattigt berg (0,2% Fe(II)) /13-21/ om högsta tänkbara radiolys antas ske och all väteperoxid går ut i berget. Svenska kristallina berg innehåller 1-10% tvåvärt järn /13-20/. I beräkningarna har det antagits, att radiolysfronten ej breder ut sig tvärs strömningsriktningen, varför avståndet nedströms är överdrivet stort även av denna anledning. Fronten rör sig i praktiken endast några meter /13-18/. Utbredningen av fronten även i sidled har emellertid en negativ konsekvens. Radionuklider, vilka är lösliga vid oxiderande förhållanden, breder ut sig i den oxiderade regio-



Figur 13-5. Koncentrationen av en nuklid i vattnet i ett sprickplan. En radionuklid med hög löslighet under oxiderande förhållanden faller vid redoxfronten. Vattnet nedströms redoxfronten har låg halt $C_{lös}^{red}$ men fronten har breddats och ett större vattenflöde transporterar nukliden.

nen. När dessa radionuklider kommer till redoxfronten och faller ut, kommer vattnet i en mycket större tvärsnittsarea av berget att vara mättat med radionukliden än den mycket begränsade tvärsnittsytan i kapselns närhet. Om redoxfronterna från många kapslar når varandra, kan merparten av det vatten som passerar förvarets totala tvärsnittsytan bli mättat med nukliderna till den halt dessa kan lösa sig under reducerande förhållanden /13-22/. Figur 13-5 illustrerar radiolysfrontens utbredning i sidled i en spricka och hur en vid oxiderande förhållanden mycket löslig radionuklid faller ut till den lägre lösligheten vid redoxfronten och transporteras vidare i högst halten $C_{lös}^{red}$. Allt vatten nedströms förvaret kan under ogynnsamma omständigheter bli mättat till denna halt. Då varje kapsel upptar i genomsnitt 150 m^2 av förvarets tvärsnittsytan kan vattenflödet per kapsel bli

$$Q_{eq}^{red} = 150 \cdot U_o [\text{m}^2] \cdot [1/(\text{m}^2 \cdot \text{år})].$$

Då radiolysen i praktiken blir väsentligt mindre än den maximalt tänkbara är radiolysfrontens utbredning i sidled långt mindre. Beräkningar visar /13-23/ att endast en ringa del av vattnet nedströms förvaret kommer att bli uppmättat på det tidigare beskrivna sättet. I de fortsatta beräkningarna antas dock allt vatten bli mättat.

13.3.3 Vätgasutveckling vid radiolysen

Vätgas som utvecklas under radiolysen löser sig i vattnet till en del och diffunderar ut genom korrosionsprodukterna och leran. Vid hög vätgasalstring kan lokalt gasformig vätgas tänkas bildas då lösligheten överskrids. Gasen undantränger då vattnet och vätgasutvecklingen minskar. Gasen kan emellertid undantränga vattnet i de större porerna i korrosionsprodukterna och leran och strömma ut genom dessa samtidigt som vatten på grund av kapilläreffekter sugas in genom de mindre porerna. Dessa förhållanden har analyserats /13-12/ och gaspermeabiliteten har mätts i våt bentonit /13-24/.

Den vid radiolysen utvecklade vätgasen löser sig i vattnet och diffunderar ut genom bufferten till det förbiströmmande vattnet. Transportkapaciteten medelst diffusion har beräknats på samma sätt som för det stationära skedet för radionuklid diffusionen och är ca 0,01 mol H₂/år och kapsel vid lösligheten vid 50 bar vätgastryck. Vätgasen kan även transporteras med diffusion i bergets vattenfyllda mikrosprickor /13-25/. Denna transportkapacitet är något större, ca 0,08 mol H₂/år och kapsel. Alstras mer vätgas förmår den inte lösa sig i vattnet utan bildar gasbubblor. Dessa kan förtränga vattnet i de större porerna i leran och i berget och strömma ut. Vatten torde dock samtidigt kunna sugas in medelst kapillärkrafterna i de finaste porerna. Det kan därför ej uteslutas att vätgas strömmar ut samtidigt som vatten strömmar in i tillräcklig mängd för att underhålla åtminstone en måttlig radiolys /13-12/. Uttransporten av vätgas i gasform förmår föra ut gasen utan att gastrycket i kapseln någonsin överskrider bergspänningarna på aktuellt djup. I berget kan vätgasen transporteras även som gasbubblor. Ett vätgasflöde av 0,1 mol/år motsvarar en gasvolym av ca 0,04 l/år vid det rådande hydrostatiska trycket 50 bar. Detta flöde skall undantränga motsvarande vattenvolym. Då flödet är mindre än det naturliga vattenflödet förbi kapseln, sker transporten utan nämnvärd tryckökning.

13.3.4 Vätgasbildande korrosion - kopparkapseln

Korrosion av kapseln och de metaller som ingår i kapseln kan potentiellt producera vätgas. Bränsleelementen är uppbyggda av zircaloy, inconel och rostfritt stål. I ett av kapselalternativen ingår bly som fyllning mellan bränslestavarna. Vätgasproduktionen från kopparkorrosionen kan uppskattas till knappt en mmol/år /13-

26/. Om kapseln genombryts blir materialet i bränsleelementen och i förekommande fall bly tillgängligt för korrosion. Zircaloy, inconel och rostfritt stål är mycket motståndskraftiga mot korrosion. Även bly korroderar ytterst långsamt i syrefritt grundvatten /13-27/. Enligt en rimlig uppskattning av korrosionshastigheter och exponerad yta bör vätgasproduktionen från metallen inuti kapseln inte överstiga 0,1 mol/år /13-28/. Bly kommer under rådande förhållanden inte att ha någon vätgasutvecklande korrosion /13-27, 13-28/.

13.4 UTSLÄPP AV NUKLIDER FRÅN NÄROMRÅDET

En radionuklid med hög löslighet under oxiderande förhållanden faller vid redoxfronten. Vattnet nedströms redoxfronten har låg halt $C_{\text{lösl}}^{\text{red}}$, men fronten har breddats och ett större vattenflöde transporterar nukliden.

För de nuklider, vilka ej påverkas av redoxfronten, sker utlakningen som tidigare (avsnitt 13.2.2) med ett flöde

$$N_i = Q_{\text{eq}} \cdot C_{\text{oi}} \quad (13.2)$$

och

$$N_i = Q_{\text{eq}} \cdot C_{\text{i,lösl}} \quad (13.4)$$

och de två uttrycken särskiljer fallen, då uttransporten ej begränsas (13.2) resp begränsas av nuklidens löslighet (13.4).

För de nuklider, vilka faller vid redoxfronten, är flödet bortom redoxfronten

$$N_i = Q_{\text{eq}}^{\text{red}} \cdot C_{\text{i,lösl}}^{\text{red}} \quad (13.5)$$

Utsläppet till fjärrområdet kan sålunda bestämmas av

- 1) Uranoxidens borttransporthastighet ekv (13.2) (eller möjligen oxidationshastighet),
- 2) bli mindre än 1) på grund av att nukliden har låg löslighet och ej löser sig, när bränslet (UO_2) transporteras bort eller omvandlas; ekv (13.4),
- 3) bli mindre än 1) eller 2) om nukliden faller vid redoxfronten; ekv (13.5).

Tabell 13-5 sammanställer inflödet till fjärrområdet för en del viktiga nuklider för ett bränsle som är 100 000 år gammalt. Lösligheter enl avsnitt 12.9 har använts.

Tre- och fyrvärda aktinider i låga halter torde fällas tillsammans med uran när detta faller ut vid redoxfronten. Detta har experimentellt visats för plutonium /13-19/. Lika stor andel av aktiniden faller ut som huvudkomponenten uran. Följande aktinider kan förväntas fällas ut: Pu, Np, Th, Am. De kommer att transporteras till fjärrområdet i mängder som redovisas i högra kolumnen (7) i tabell 13-5.

Tabell 13-5. Utsläpp av vissa radionuklider till fjärrområdet. Baserat på 1,4 ton Uran, $Q_{eq} = 0,57$ l/år, $Q_{eq}^{red} = 15$ l/år.
Understrukna värden är begränsande.

Kolumn 1	2	3	4	5	6	7	
Nuklid	Mängd per kapsel 10^5 år gammalt bränsle g Bq	Kongruent upp- lösning ($6,8 \times 10^6$ år upplösn tid) g/år	Löslighets- begränsning vid oxide- rande förh g/år	Löslighets- begränsning vid redox- fronten g/år	Till fjärrom- rådet. Min av kol 3, 4, 5 som aktivitet Bq/år	Till fjärr- området vid samfällning med uran Bq/år	
238 _U	$1,4 \times 10^6$	$1,66 \times 10^{10}$	0,21	0,21	$1,5 \times 10^{-4}$	1,8	=
234 _U	a)	$9,84 \times 10^{10}$				10,5	=
235 _U	a)	$1,24 \times 10^9$				0,13	=
236 _U	a)	$1,92 \times 10^{10}$				2,1	=
239 _{Pu}	386	$8,81 \times 10^{11}$	$5,7 \times 10^{-5}$	$1,41 \times 10^{-6}$ b)		3 200	94
242 _{Pu}	862	$1,24 \times 10^{11}$	$1,3 \times 10^{-4}$	$3,15 \times 10^{-6}$ b)		460	4,9
237 _{Np}	2 960	$7,77 \times 10^{10}$	$4,3 \times 10^{-4}$		$1,2 \times 10^{-4}$	3 100	3,3
230 _{Th}	86	$6,22 \times 10^{10}$	$1,3 \times 10^{-5}$	$2,3 \times 10^{-7}$		170	1,8
241 _{Am}	$4,19 \times 10^{-5}$	$5,18 \times 10^6$	$6,2 \times 10^{-12}$			0,76	$5,6 \times 10^{-4}$
243 _{Am}	$1,91 \times 10^{-2}$	$1,45 \times 10^8$	$2,9 \times 10^{-9}$			21	0,016
99 _{Tc}	895	$5,70 \times 10^{11}$	$1,3 \times 10^{-4}$		3×10^{-6}	1 900	=
129 _I	c)	$1,86 \times 10^9$				270	=
135 _{Cs}	c)	$1,97 \times 10^{10}$				2 900	=

a) Följer uran-238

b) Summan av Pu-239 och Pu-242 är $4,56 \cdot 10^{-6}$ g/år

c) Ingen löslighetsbegränsning

= Lika som i kolumn 6

Plutoniumisotoperna, neptunium och thorium skulle med denna fällningsmekanism lämna ett nuklidflöde till fjärrområdet som är 30 - 1 000 gånger lägre än vad deras egen löslighet tillåter.

Då denna mekanism ännu bara visats experimentellt gälla för plutonium används den inte i den fortsatta behandlingen.

13:20

13.5 UTSLÄPP FRÅN FÖRVAR FÖR METALLDELAR

13.5.1 Allmänt

Boxar och borglasstavar från reaktorerna gjuts in med cement i betongkokiller, vilka läggs i ett bergförvar på stort djup. Berg- rummet fylls med betong. Totalt skall ca 900 ton zircaloy och 160 ton rostfritt stål deponeras. Det är främst radionukliderna nickel-59 och niob-94 som måste hindras att nå biosfären. Halve- ringstiden för nickel-59 och niob-94 är 80 000 respektive 20 000 år. Totala mängden nickel- och niobmetall i förvaret är ca 17 ton respektive ca 60 kg. Endast en mindre del härav är aktivt.

Då förvaret tillslutits, kommer grundvatten så småningom att nå avfallet. Metallerna kan då korrodera, gå i lösning och därefter transporteras ut till omgivande grundvatten.

13.5.2 Kemisk miljö i förvaret

Mängden betong i det förseglade förvaret blir ca 100 ton per meter tunnel. Betongen kommer att bestämma grundvattnets pH i och närmast runt förvaret, se avsnitt 7.4.1. Förläggs förvaret i berg med vattenflöden upp till 1 l/(m²·år) tar det minst 40 000 år att laka ut all kalciumhydroxid och minst 4 miljoner år att laka ut alla aluminater och silikater. Det förutsätts då att be- tongen spruckit eller vittrat så att vattnet fritt kan strömma genom den, och att upplösning sker till full mättnad i det genom- strömmande vattnet.

Tunneln antas härvid genomströmmas av två gånger så högt flöde per kvadratmeter som i det ostörda berget. Totalt genomströmmas tunnlar av 2 900 l/år.

13.5.3 Korrosion

Det rostfria stålet har god motståndskraft mot korrosion vid höga pH och kommer att korrodera mycket långsamt i den syrefattiga mil- jön i förvaret. Nickel som här ingår som legeringsmetall är rela- tivt ädel och kan komma att vara stabil i den aktuella förvars- miljön.

Även zircaloylegeringar är motståndskraftiga mot korrosion och tämligen okänsliga för pH. De försök som gjorts med zircaloy in- jutet i cement visar inga tecken på korrosion av metaller /13- 29/.

Niob finns i små mängder (ca 1%) i legeringar. Niob-metall är ke- miskt mycket motståndskraftig men angrips av starkt alkaliska lösningar med pH över 13 och niob korroderar därför i betongmil-

jö åtminstone vid de höga pH som råder i det första skedet, då alkalihydroxiderna löses ut /13-30/.

Med en rimlig uppskattning av korrosionshastigheten för metalldelarna i förvaret och den yta som är exponerad för korrosion skall vätgasproduktionen ligga under 70 m^3 NTP per år /13-28/. Även radiolysen bidrar till gasbildningen, men mängderna är obetydliga och kan här försummas /13-28/. Den angivna mängden vätgas är för stor för att transporteras ut genom diffusion och vattenströmning. Gasbubblor kan komma att bildas och pressas ut genom de vattenförande sprickorna i berget, varvid vattnet delvis förträngs. Volymen vatten som på detta sätt måste bereda plats för gas blir mindre än 2 m^3 /år, eftersom vätgasen förtätas av det hydrostatiska trycket på stora djup. Detta flöde är lika stort som det naturliga flödet och det blir därför ingen nämnvärd tryckökning i förvaret för att förträngningen skall ske.

13.5.4 Löslighet för nickel och niob

Oxiderad nickel kommer att vara tvåvärd i aktuell miljö. Tvåvärt nickel bildar svårlösliga föreningar med hydroxid, fosfat, sulfid och karbonat. Möjligen kan fulvosyrorna i grundvattnet bilda starka komplex med nickel och höja dess halt i vattnet. Fosfat och sulfid finns i så små mängder att de ej räcker till att fälla ut eventuellt oxiderad nickel. Lösligheten kommer då att bestämmas av hydroxiden. Inom det pH-område, 10-13, som råder i vattnet i och närmast betongkokillerna, begränsar hydroxidens löslighet nickelhalten till högst $0,1 \text{ mg/l}$ /13-31/. Om de organiska ämnena i grundvattnet - humus- och fulvosyror - enbart bildar komplex med nickel kan lösligheten uppgå till ca $0,003 \text{ mekv/l}$ (se avsnitt 7.6) dvs ca $0,1 \text{ mg/l}$. Detta är emellertid osannolikt då det finns större halter andra metalljoner bl a Fe(II) i vattnet.

Eftersom betongen tillför kalciumjoner till vattnet i förvaret kommer halten av löst niob i förvaret att begränsas av lösligheten för kalciumniobat, som är mycket låg. Koncentrationen av löst niob blir lägre än $10 \text{ } \mu\text{g/l}$ /13-30/. Komplexbildning med humus- och fulvosyra bör inte ha någon betydelse jämfört med övriga i förvaret förekommande metaller t ex järn, krom, nickel, kobolt etc. Dels blir halten av lösta niobjoner ytterst liten och dels förekommer huvuddelen av dessa joner som negativt laddade niobatjoner med ringa tendens att komplexbindas.

13.5.5 Uttransport av nickel och niob

Förläggs förvaret i ett lika gott berg som det i vilket bränslet förvaras tar det ca 30 miljoner år att transportera ut allt nickel. Detta gäller för vattenflöden i berget på $1 \text{ l}/(\text{m}^2 \cdot \text{år})$ och om lösligheten för nickel är $0,2 \text{ mg/l}$. Vidare har man då antagit, att

betongen spruckit eller vittrat sönder, så att diffusionsmotståndet i betongen och överföringsmotståndet från förvaret till vattnet i berget försummas och att allt vatten som når tunneln förutsätts bli mättat med nickel /13-31/.

Den låga lösligheten för niob medför, att det tar åtminstone 2 miljoner år att transportera ut all niob ur förvaret. Förutsättningarna är då samma som för nickel med undantag av lösligheten som satts till 10 µg/l för niob /13-30/.

Utsläppet av nickel-59 från förvaret blir maximalt 10^6 Bq/år och nickel-63 utsläppet blir maximalt 10^8 Bq/år. Niob-94 utsläppet blir som mest 10^6 Bq/år. Då mängden av såväl nickel-isotoperna som niob-94 är liten i förhållande till de inaktiva isotoperna, kommer de senare att bestämma upplösningstakten. De aktiva isotopernas utsläpp minskar därför i takt med att de avklingar.

13.6 MODELLER OCH DATA

Beräkningarna av det instationära skedet då nukliderna tränger in i och igenom leran bygger på Fick's lag för instationär diffusion och tar hänsyn till att nukliderna anrikas i leran på grund av sorption. Modellen har beskrivits i /13-10, 13-13/. Ett stort antal mätningar över olika speciers diffusion i kompakterad bentonit har genomförts och de har sammanställts och analyserats i /13-10/. Sorptionsdata finns redovisade i /13-8, 13-9/.

Modellen som beskriver transporten av lösta specier under det stationära skedet har beskrivits i /13-11, 13-15/ i en överskådlig förenklad form. Modellen finns strikt beskriven i /13-12/ där lösningen som kräver numeriska metoder har jämförts med den förenklade modellen. Dessa modeller används för att beräkna det vattenflöde Q_{eq} som transporterar lösta ämnen.

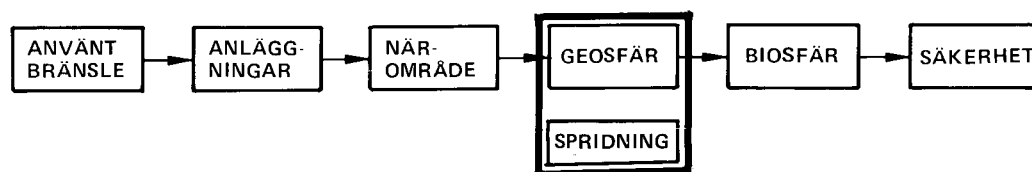
13.7 REFERENS DATA

Följande data har använts för beräkningarna:

Tjockleken av bentonitbarriären	0,38 m
Diffusivitet i vatten (alla joner)	$D_v = 2 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$
Diffusivitet i kompakterad bentonit (alla joner stationär diffusion)	$D_e = 4 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$
Diffusivitet vid instationära förhållanden	D_a tabell 13-1

Vattenflöde i berget	$U_0 = 0,1 \text{ l}/(\text{m}^2 \cdot \text{år})$
Genomsnittlig yta per kapsel	150 m^2
Sprickvidd	$0,1 \text{ mm}$
Sprickavstånd	1 m
Antal sprickor på ett hål	6
Löslighetsdata för nukliderna	tabell avsnitt 12.9
Lerans utträngning i sprickorna	0 m

14 NUKLIDSPRIDNING I BERGET



I detta kapitel behandlas transporten av frigjorda radionuklider i geosfären. Den använda modellen och dataunderlaget diskuteras. En vidare spridning av radionuklider i biosfären behandlas i kapitel 15.

14.1 ALLMÄNT OM FÖRDRÖJNINGSMEKANISMER

Radionukliderna transporteras lösta i det vatten som sakta rör sig i bergets sprickor. Vattenhastigheten i sprickorna kan variera från mycket låga värden och upp mot några meter å tiotal meter per år. Alla viktiga nuklider, utom jod, reagerar kemiskt eller fysikaliskt med de mineral som finns på sprickytor. Dessa reaktioner innefattar jonbyte, adsorption, utfällning och olika kemiska reaktioner, bl a mineralisering. Sammantaget kallas dessa reaktioner ofta sorption. I fortsättningen avser begreppet sorption strikt endast adsorption och jonbyte.

Då radionukliderna sorberar på sprickytan minskar halten i vattnet i motsvarande grad. Först när ytan antagit jämvikt med vattnet kan nukliden transporteras vidare längs sprickan. De flesta viktiga nuklider sorberar mycket kraftigt. Sprickytan kan vid jämvikt hålla 100-tals till 10 000-tals gånger så stor nuklidmängd som vattnet i sprickan. Vattnet avger en stor del av sitt nuklidinnehåll till de sprickytor det passerar. Det tar därför mycket längre tid för en nuklid att förflytta sig en viss sträcka än det tar för vattnet. Kvoten mellan vattnets och nuklidens hastighet på grund av ytsorption kallas "fördröjningsfaktor på grund av ytsorption" (R_a). För en nuklid med fördröjningsfaktorn $R_a = 100$ tar det 100 år att förflytta sig samma sträcka som vattnet går på 1 år.

I en del sprickor finns sprickfyllnadsmaterial och porösa sekundära sprickmineral, vilka sorberar radionukliderna och bidrar till att ytterligare fördröja deras vandring.

Kristallina bergarter, såsom graniter och gneisser, har mikroskopiskt små sprickor mellan kristallerna. Dessa utgör ett sammanhängande por-system innehållande vatten. Radionukliderna är mycket mindre än mikrosprickorna och kan diffundera in i detta por-system. De inre ytorna i bergmatrisen är mångfalt (tusentals och mer) större än ytorna i de sprickor, i vilka vattnet strömmar. Inträngningen och sorptionen på de inre kristallytorna fördröjer radionukliderna kraftigt utöver fördröjningen på grund av sorptionen på sprickytorna. Även icke sorberande nuklider kommer därför att transporteras långsammare än det strömmande vattnet.

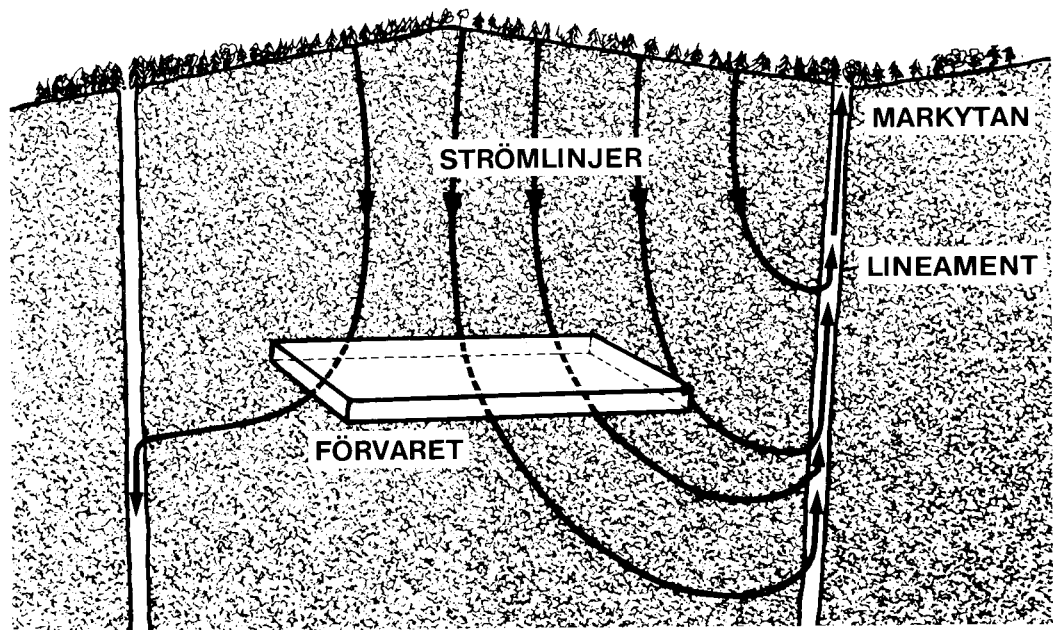
Då radionukliderna avklingar med tiden kommer vissa nuklider med stor fördröjning och korta halveringstider att avklinga till försumbara halter, innan vattnet når biosfären (t ex ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{241}Am). Andra nuklider med låg fördröjning och lång halveringstid (t ex ^{129}I) kommer att ha förlorat endast en liten del av sin aktivitet.

Vissa nuklider, däribland aktiniderna, kan bilda radiokolloider eller sorbera på kolloidala partiklar i vattnet (pseudokolloider). Kolloiderna har på grund av sin storlek inte samma möjlighet att tränga in i mikroporerna och påverkas därför i mindre grad av denna fördröjningsmekanism. Såväl de äkta kolloiderna som pseudokolloiderna är inte helt stabila utan löser sakta upp sig. Vid långa transporttider kommer kolloiderna att lösa upp sig och därefter fördröjas med de tidigare beskrivna mekanismerna. Samma förhållanden gäller för nuklider, som komplexbundits till fulvo- eller humussyror i vattnet, då även dessa komplex spjälkas med tiden.

Vissa transportvägar är snabbare än andra, dels på grund av att sprickvidderna är olika stora, dels på grund av större eller mindre vindlingar. Därför kommer en del av nuklidmängden att röra sig snabbare och en del långsammare än genomsnittet. Fenomenet kallas dispersion. Dispersionen leder till att utsläppet sprids ut över en längre tid.

För stabila ämnen leder detta även till att den maximala halt, som når biosfären, blir lägre. För radionuklider måste emellertid även effekten av avklingningen beaktas. Vissa nuklider, som skulle avklingat väsentligt om de befunnit sig i geosfären under medeltransporttiden, når till följd av dispersionen biosfären tidigare och då i högre halter. För de förhållanden, som är aktuella här, leder i allmänhet en stor dispersion till högre utsläppshalter än en låg.

Fig 14-1



Figur 14-1. Visar principer för förvarets förläggning samt en del strömlinjer, vilka går till ett närliggande lineament och upp genom detta till marken.

14.2 FYSIKALISK MODELL

14.2.1 Inledning

Förvaret förläggs i berg som har förhållandevis låg hydraulisk konduktivitet. Vatten strömmar i bergets sprickor från platser med högre potential till platser med lägre potential. Figur 14-1 illustrerar förvarets förläggning samt hur strömlinjer genomkorsar det på deras väg till utströmningsområdena. I figuren illustreras utströmningen genom ett lineament med högre hydraulisk konduktivitet. Här kan strömningen gå nästan vertikalt uppåt om lineamentet går genom en lågpunkt på marken.

När vattnet passerar förvaret kan radionuklider tillföras detta från de kapslar som korroderat. Den vid varje tidpunkt utläckande mängden av nuklid "i", $N_{tot,i}$, är produkten av antalet läckande kapslar n , det ekvivalenta vattenflöde Q_{eq} varje kapsel förmått avge nuklid till, samt den halt som detta vattenflöde har C_{oi}

$$N_{tot,i} = nQ_{eq} C_{oi} \quad (14.1)$$

Tillförsel av nuklider till vattnet beskrivs i kapitel 13.

Denna nuklidmängd transporteras vidare med vattnet i berget. Mängden nuklider som sorberar på berget är proportionell mot halten i vattnet vid de rådande låga halterna för de flesta viktiga nukliderna, varför fördröjningen på grund av sorption ej påverkas av eventuell utspädning genom transversell dispersion. Ett undantag utgör cesium, som får en relativt sett högre sorption vid sjunkande halt /14-1/. Detta ämne fördröjs därför mer ju lägre halten är.

14.2.2 Vattenflöden och hastigheter

Vattenflödena i berget beräknas ur bergets hydrauliska konduktivitet och den hydrauliska gradienten (se kapitel 6).

$$U_o = K_p i \quad (14.2)$$

Den hydrauliska konduktiviteten har mätts för ett flertal områden och i många djupa borrhål. Medelvärden på K_p varierar på förvarsdjup (ca 500) mellan ca 4×10^{-11} och 2×10^{-9} m/s mellan de olika områdena. Den hydrauliska gradienten - i - bestäms dels av variationer i vattenytans läge i marknivån, dels av hur friktionskrafterna vid vattnets strömning i berget utjämnar och minskar variationerna på ytan.

Lokala variationer av vattenytan på marken utjämnas starkt vid ökande djup. En 10% lokal gradient vid ytan kan typiskt minska till 0,1% på 500 m djup /14-2/. Endast i undantagsfall torde gradienten på 500 m djup överstiga 1%. Detta kan inträffa om två närliggande nära parallella lineament har olika potential och därmed driver vattnet genom mellanliggande bergparti. Gradienten $i = 1\%$ ger på 500 m djup vattenflödet

$$U_o = 0,1 \text{ l/(m}^2 \cdot \text{år)} \text{ för berg med } K_p = 3 \times 10^{-10} \text{ m/s}$$

I lineamenten är den hydrauliska konduktiviteten större på samma djup och flödena kan bli motsvarande högre. Den hydrauliska konduktiviteten ökar närmare markytan och kan vara 100-tal till 1 000-tal gånger större. Gradienten ökar också närmare ytan varför vattenflödet nära markytan kan vara 1 000-tals till 10 000-tals gånger högre. Detta medför bl a att en vattenvolym, som passerar förvaret kommer att spädas 1 000 - 10 000-tals gånger när den närmar sig markytan.

Det är möjligt att i detalj beräkna vattenströmningen i berget vilket omger ett förvar. Detta har genomförts för ett antal områden (se kapitel 18). På förvarsdjup är variationerna förhållandevis små. Ändringar i topografin kan dock ändra riktning och flöde i en punkt i förvaret. Det har därför bedömts vara bättre att generellt använda något konservativa flöden och flödesvägar än att för något speciellt fall följa de enskilda strömlinjerna genom förvaret.

Vattenflödet U_0 antas vara lika överallt på förvarsnivå. Vattnets uppehållstid från en kapsel till lineamentet kan uppskattas ur

$$t = \frac{Z_0}{U_0} \varepsilon_f \quad (14.3)$$

där Z_0 = avståndet mellan lineament och kapsel

ε_f = flödesporositeten

För $U_0 = 0,1 \text{ l}/(\text{m}^2 \cdot \text{år})$

och med $\varepsilon_f = 10^{-4}$ erhålles för $Z_0 = 100 \text{ m}$

uppehållstiden $t = 100$ år för vattnet

Vattnets uppehållstid har för ett givet flöde U_0 ingen direkt inverkan på de sorberande nuklidernas uppehållstid, eftersom deras fördröjningsfaktorer är omvänt proportionella mot ε_f . För icke sorberande ämnen är transporttiden dock lika med vattentransporttiden.

14.2.3 Nuklidernas transport i sprickorna

Nukliderna uppträder antingen som laddade joner, laddade eller oladdade komplex eller som kolloider. En och samma nuklid kan samtidigt uppträda i alla formerna och övergå mellan dem. De lösta positivt laddade specierna, t ex cesium och strontium, reagerar medelst jonbyte och adsorption med de mineral som finns längs strömningsvägen och kan även tränga in i bergets mikroporsystem och fastna på de inre ytorna i berget. Oladdade och laddade komplex kan adsorberas på ytorna i berget och på sprickväggarna. (Många av aktiniderna, t ex uran, plutonium, neptunium, uppträder komplexbundna (se avsnitt 12.1)).

Komplexen med fulvo- och humussyror kan minska nuklidernas sorption, se avsnitt 12.8.3.

Äkta- och pseudokolloider kan transporteras med vattnets hastighet, men - givna tid (år à 10-tals år) - löser de upp sig när vattnet passerar mineralytor på vilka ännu föga av ifrågavarande nuklid sorberat. Vid långa transporttider uppträder därför alla nukliderna som om de vore lösta i grundvattnet ifråga. Uppmätta sorptionsdata kan därför användas även om kolloider skulle ha bildats genom fällning vid redoxfronten eller genom adsorption på naturliga mineralpartiklar i grundvattnet. I beräkningarna redovisas dock konsekvenserna av att pseudokolloiderna sorberar irreversibelt. Se kapitel 20.

Flertalet av nukliderna vilka transporteras med det rörliga vattnet i sprickorna reagerar med mineralen på sprickytorna. Reaktionen sker såväl med de mineral, som bygger upp själva berget,

såsom kvarts och fältspat, som med sekundära mineral, vilka fällts ut på sprickytan såsom kalcit, klorit m m. I en del sprickor finns även små mängder leror, t ex smektit, med vilka nukliderna reagerar.

Jonbyte och fysikalisk adsorption är snabba reversibla reaktioner och har med få undantag konstant fördelningsfaktor vid låga halter. Detta medför att halten C_s på sprickytan är proportionell mot halten C_f i vattnet i sprickan.

$$C_s = K_a C_f \quad (14.4)$$

$$K_a = \text{ytsorptionskoefficienten } m^3/m^2$$

Nukliderna kan även fastna genom reversibel utfällning och med irreversibla reaktioner. Utfällning på grund av att lösligheten överskrides är en viktig mekanism för att begränsa utsläppet från närområdet, men har ingen betydelse i fjärrområdet om ej vattensammansättningen ändras kraftigt. Irreversibla reaktioner såsom mineralisering, förekommer och kan i praktiken vara betydande och sänka utsläppet. Då dessa reaktioners kinetik ej är helt kända, försummas dessa effekter.

Den reversibla ytreaktionen fördröjer nuklidernas vandring med vattnet med en faktor R_a , vilken beror av ytsorptionskoefficienten och förhållandet mellan sprickyta och vattenvolym i sprickan.

$$R_a = 1 + K_a a \quad (14.5)$$

där a = tillgänglig sprickyta för sorption per volym vatten i sprickan m^2/m^3

För en plan spricka är

$$a = \frac{2}{\delta} \quad (14.6)$$

där δ = sprickvidden m

För ett berg där sprickavståndet är S m fås sprickornas porositet

$$\epsilon_f = \delta/S \quad (14.7)$$

Vid känt vattenflöde U_o i berget kan vattnets hastighet U_f beräknas ur

$$U_f = U_o/\epsilon_f \quad (14.8)$$

Vandringshastigheten för nuklid "i" blir

$$U_i = \frac{U_f}{R_a} = \frac{U_o}{\epsilon_f R_a} = \frac{U_o}{\epsilon_f + K_a a \epsilon_f} \quad (14.9)$$

Genom insättning av ekv (14.6) och (14.7) i (14.9) erhålles

$$U_i = \frac{U_o}{\epsilon_f + 2 K_a / S} \quad (14.10)$$

För sorberande nuklider är $\epsilon_f \ll K_a \frac{2}{S}$

och ϵ_f kan försummas i ekvation (14.10). Nuklidens vandringshastighet blir då oberoende av vattnets hastighet i sprickan och av spricksystemets porositet.

$$U_i = \frac{U_o S}{2 K_a} \quad (14.11)$$

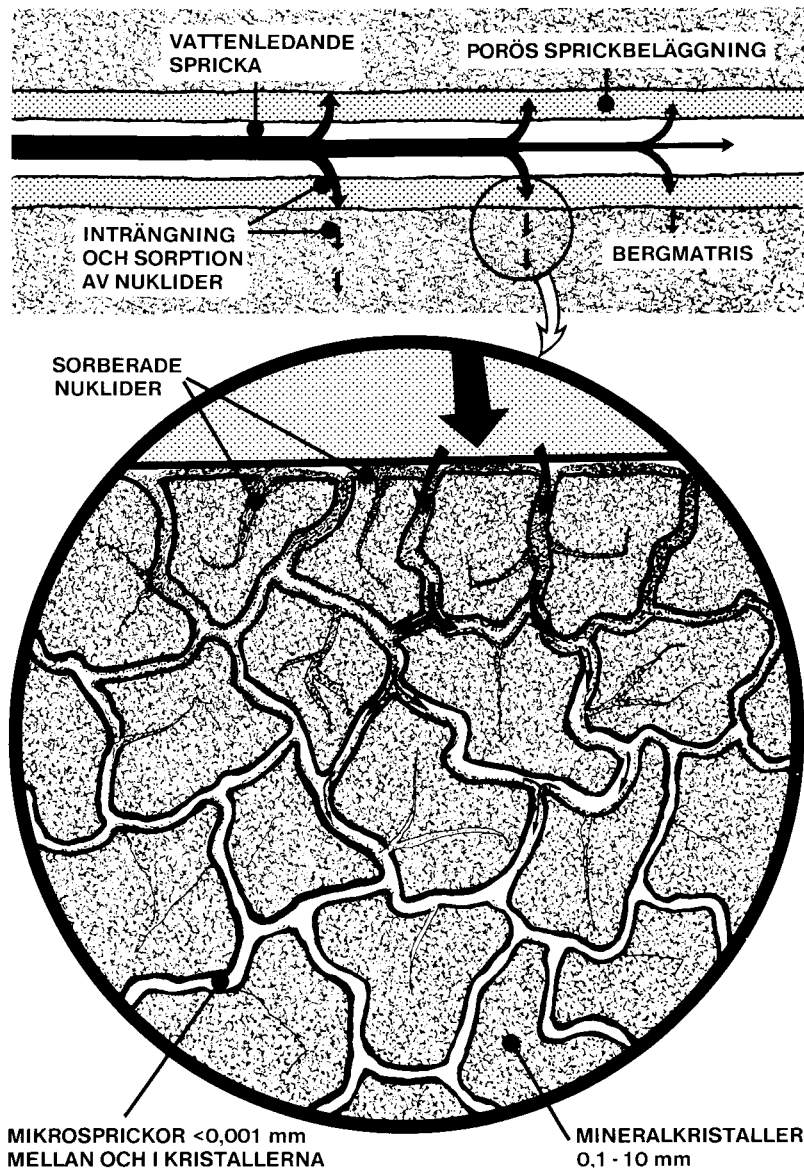
Vandringshastigheten är proportionell mot vattenflödet och sprickavståndet, vilket bestämmer tillgänglig sorptionsyta per volym berg. Ett mer sprucket berg ger vid samma vattenflöde en lägre nuklidvandringshastighet. Exempelvis fås för $S = 5$ m, $U_o = 0,1$ $1/(m^2 \cdot \text{år})$ och $K_a = 0,2$ m (typiskt aktinidvärde) $U_i = 1,3$ mm/år

Ytsorption är emellertid inte den enda viktiga fördröjningsmekanismen.

14.2.4 Inträngning i bergmatrisen

Gneisser och graniter i svenskt urberg har ett sammanhängande porsystem bestående av de mikrosprickor som finns mellan kristallerna i bergmatrisen. Porositeten i detta porsystem varierar mellan 0,1 - 0,5% /14-1, 14-3, 14-4/ för bergmatrisen. Sprickmineral och berg i krosszoner har högre porositeter. Värden mellan 1 och 9% har uppmätts. I vattnet lösta ämnen kan diffundera in i detta porsystem och sorbera på de inre ytorna. Figur 14-2 visar inträngning och sorption i bergmatrisen.

Inträngningsdjupet ökar med tiden. Icke sorberande nuklider tränger långt in i matrisen, medan sorberande nuklider fördröjs genom att de även måste fylla på sorptionsplatserna innan de vandrar vidare. Sorptionskapaciteten på de inre ytorna uttrycks vanligen som en massbaserad sorptionskoefficient, K_d , eller som en volymbaserad sorptionskoefficient, $K_d \rho_p$, där ρ_p är bergets densitet. Halten nuklid per volym berg vid jämvikt med vätskehalten C_p i porerna är



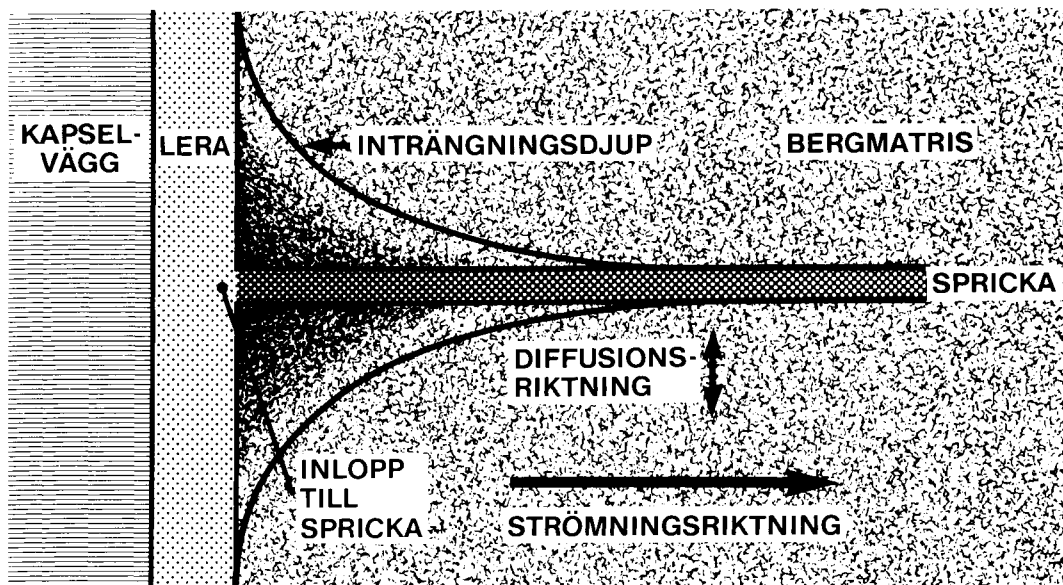
Figur 14-2. Visar nuklidernas inträngning och sorption i mikrospäckorna i bergmatrisen.

$$q = K_d \rho_p C_p \quad (14.12)$$

Inträngningsdjupet kan beräknas med hjälp av Fick's lagar för diffusion, om diffusiviteten är känd och genom att ta hänsyn till fördröjningen på grund av sorption /14-5/. I tabell 14-1 ges exempel på inträngningsdjup för några olika nuklider vid olika tider.

Med inträngningsdjup avses det avstånd från ytan vid vilket nukliden har 1% av halten vid ytan.

Det framgår av tabell 14-1 att icke sorberande ämnen kan penetrera berget långa sträckor och helt mätta upp bergpartierna mellan spräckorna. Aktiniderna som sorberar mycket starkt, får under längre tidsperioder (miljoner år) inträngningsdjup av flera 10-



Figur 14-3. Nuklider, vilka förs med vattnet i en spricka diffunderar in i bergmatrisen.

tal mm. Berget närmast sprickorna utgör en kraftig sänka för nukliderna då dessa genom indiffusion i matrisen undandras från det rörliga vattnet. Inträngningsdjup av ca 0,1 mm motsvarar en fördröjning lika stor som den på grund av ytsorption. Detta medför att fördröjningen av radionukliderna på grund av inträngning i matrisen får stor betydelse för långa kontakttider.

I figur 14-3 åskådliggörs hur en nuklid suggs upp i bergmatrisen längs en spricka nedströms förvaret. Inträngningsdjupet kommer

Tabell 14-1. Inträngningsdjup $Z_{0,01}$ m av några olika nuklider vid olika kontaktider. $Z_{0,01} = 4 \sqrt{D_a t}$.

Ämne	$K_d \rho_p$ (m^3/m^3)	$D_a^{2)}$ (m^2/s)	$Z_{0,01}$ (m)		
			10^2 år	10^4 år	10^6 år
I	0,002 ¹⁾	$2,5 \times 10^{-11}$	1,12	11,2	112
Cs	16 ³⁾	1×10^{-13}	0,071	0,71	7,1
Am ⁵⁾	$1,35 \times 10^4$	$3,7 \times 10^{-18}$ 4)	$0,43 \times 10^{-3}$	$4,3 \times 10^{-3}$	43×10^{-3}

- 1) Lika med porositeten för icke sorberande ämnen.
- 2) Finnsjö-granit /14-1/.
- 3) Finnsjö-granit /14-1/ och vid nuklidhalter 3 mg/l.
- 4) Beräknat ur diffusiteten för icke sorberande ämne och sorptionskoefficienten (ekv (14.13)).
- 5) Samma värden gäller för Pa, Np, Th, Pu samt U under reducerande förhållanden.

att variera längs strömningsvägen. Man kan inte som för ytsorptionsfallet ange en konstant fördröjningsfaktor eftersom nuklidhastigheten ändras med kontakttiden.

På samma sätt som för ytsorption är de sorberande nuklidernas vandringshastighet ej beroende av vattenhastigheten U_f utan av flödet U_0 och sprickfrekvensen (eller sprickavståndet /14-5, 14-6/). Ett kraftigt uppsprucket berg, t ex en krosszon, kan vara fördelaktigt ur fördröjningshänseende om vattenflödet ej påverkas. Det ger större ytor för ytsorption och för inträngning i mikroporerna.

Diffusiviteten för olika ämnen i berg har mätts /14-1, 14-3, 14-4/ Diffusionen försiggår i vattnet i mikroporerna - pordiffusion - men kan även försiggå på ytan på mineralen - ytdiffusion för en del sorberande ämnen /14-7/. Ytdiffusionen har för strontium och cesium uppmätts till mer än 10 gånger så snabb som kan förklaras med bara pordiffusion /14-8/. För aktiniderna finns ännu bara ett fåtal resultat /14-9/. Dessa visar så små inträngningsdjup att det ej med säkerhet kan konstateras att någon transport medelst ytdiffusion skett. Därför antas i fortsättningen att aktinidernas rörelse beror av pordiffusion enbart. Detta underskattar tillgängliga ytan för sorption.

Ett sorberande ämnes matrisdiffusivitet D_a under det instationära skedet kan då uppskattas ur diffusiviteten för icke sorberande ämnen av samma rörlighet i vatten och ur fördröjning på grund av sorption

$$D_a = \frac{D_v \epsilon_p \delta_D}{K_d \rho_p \tau^2} \quad (14.13)$$

D_v = den sorberande nuklidens diffusivitet i rent vatten.

δ_D/τ^2 innefattar effekter av förträngning (δ_D) i porerna och vindlingseffekter (τ^2)

ϵ_p = porositeten varmed man tar hänsyn till att endast en andel lika med ϵ_p av bergvolymen är tillgänglig för diffusionstransport.

Produkten

$$\epsilon_p \frac{\delta_D}{\tau^2}$$

har bestämts för ett antal kristallina svenska bergmaterial /14-4/ genom diffusionsmätningar med jodidjoner och tritierat vatten samt medelst elektrisk ledningsförmågemätning.

14.2.5 Dispersionsmekanismer

Dispersion är ett samlingsbegrepp för de olika mekanismer, som föranleder ett löst ämne att sprida sig till allt större vätskevolym, när vätskan strömmar fram i ett medium. Dispersion orsakas av spridning medelst diffusion, slumpmässiga eller deterministiska variationer i hastighet i en kanal såsom vid turbulent respektive laminär strömning i ett rör, samt slumpmässiga hastighetsvariationer mellan olika kanaler i ett nätverk av kanaler. Denna dispersion kallas ofta hydrodynamisk dispersion. Till dispersionsfenomen förs ibland även spridning, på grund av att ämnet reagerar med det fasta materialet, genom att det diffunderar in och ut i stagnanta vätskevolym (t ex mikroporer) samt spridning på grund av kanalbildning. De senare tre mekanismerna förs till dispersionen i sådana fall då man ej har möjlighet att beskriva deras inverkan separat. Detta är oftast fallet vid mätningar av spårämnestransport i fält. Där känner man nästan aldrig transportvägen tillräckligt detaljerat för att kunna behandla dessa mekanismer var för sig.

Förutom dispersion i strömningsriktningen - axiell dispersion - sker även dispersion tvärs strömningsriktningen. Denna transversella dispersion får en koncentrerad nuklidplym att spädas ut genom utblandning med vatten vid sidan om de strömlinjer, vilka gått genom förvaret. Nuklidhalten kan sänkas väsentligt i en del fall på grund av denna utspädning /14-10/. Det finns dock flera inga fältförsök där den transversella dispersionen mätts vid strömning i kristallint sprickigt berg. Den torde kunna vara mycket låg vid strömning i några få väl avgränsade kanaler, men skulle även kunna vara mycket stor i berg där huvudsprickriktningar ligger i stora vinklar till medelhuvudströmningsriktningen. På grund av brist på data antas därför att ingen transversell dispersion uppstår. Denna försumning medför att nuklidhalten vid utsläppet till ytvattnet ej underskattas.

Fältförsök visar i allmänhet att dispersionskoefficienten D_L ökar med observationsavståndet /14-11, 14-12/. Orsakerna till detta är flera. Nätverket av sprickor kan vara sådant att omblandningen av vatten mellan olika sprickor ej sker tillräckligt slumpmässigt. Därvid uppstår vad som kallas kanalbildning, vilket innebär att vattnet i en del strömningsvägar rör sig oberoende av strömningen i andra kanaler. Kanalbildning leder till att en puls sprids mer än vad den skulle göra med de slumpmässiga hastighetsvariationerna enbart. Dispersionstalet ökar proportionellt mot strömningssträckan /14-13/.

Tillgängliga data över dispersion i kristallint berg är mycket begränsade. I Studsvik finns försök utförda över 22 och 51 m /14-12/ och över 12 m /14-14, 14-15/. I Finnsjön finns försök över 30 m /14-16/. I Stripa finns strömningsavstånden 3,5 och 5 m /14-17/ och på laboratoriet finns försök i naturliga sprickor upp till 0,3 m långa /14-26/. Dessa försök, i vilka vattnet i huvudsak strömmat i en spricka eller ett sammanhållet spricksystem,

visar att dispersionstalet ökar med längden. Då dispersionstalet är proportionellt mot hastigheten /14-18/ är det lämpligt att sammanfatta dessa förhållanden i ett uttryck

$$U_f \cdot Z/D_L = \text{konst} = \text{Pec}$$

där U_f = hastigheten
 Z = strömningslängden
 D_L = dispersionskoefficienten

Pec är en förkortning för Peclets tal.

För de nämnda undersökningarna i kristallint berg erhålls Pec mellan 5 och 20 i huvudsak. Den första delen av genombrottskurvorna används för bestämningen. (Denna del är viktig för de nuklider vilka hinner avklinga märkbart mindre om de får kortare transporttid.) Kontakttiden för dessa försök är så kort att de icke sorberande ämnen som använts i försöken föga har påverkats av matrisdiffusion.

14.2.6 Avklingning

Radionukliderna avklingar under sin vandring genom spricksystemet. Kortlivade nuklider hinner avklinga till försumbara halter innan de når biosfären. Många nuklider sönderfaller i andra radionuklider. Sönderfallskedjorna kan innehålla 3 å 4 nuklider med så betydande halveringstider att hela kedjans vandrings- och sönderfallsförlopp måste beaktas samtidigt. När modernukliden som trängt in i bergmatrisen avklingar, lämnar den en dotternuklid efter sig. Denna tränger dels vidare in i matrisen, dels diffunderar den ut till sprickan med det rörliga vattnet. Dottern kan i sin tur efterlämna en dotter. De olika nukliderna i en kedja kan ha olika diffusiviteter och sorptionskoefficienter. Det gör att beskrivningen av deras vandring ej låter sig sammanfattas i ett enkelt uttryck. I flera kedjor förekommer det någon nuklid som har väsentligt längre halveringstid än de övriga. Denna dominerar ofta hela förloppet.

14.3 VERIFIKATION AV FYSIKALISK MODELL

14.3.1 Inledning

Den fördröjningsmekanism som har den största betydelsen är mikropordiffusionen och sorptionen på mikroporyterna. Det är dock en så långsam process att det ej varit möjligt att med enbart laboratorieexperiment påvisa att de starkt sorberande nukliderna (aktiniderna) tränger in 10-tal mm. (Detta skulle ta 100 000-tal år.) Det har därför varit nödvändigt att gå fram på olika vägar. Laboratorieexperiment har använts för att påvisa att porerna är sammanbundna över längre sträckor. Fältförsök har använts för

att säkerställa att porerna som man finner i laboratoriet även finns i icke avlastat berg på stora djup. Evidens för olika ämnens vandring i bergmatriser under naturliga förhållanden har sökts och använts för att säkerställa att matrisdiffusion förekommer i naturen och sker över längre sträckor.

Strömningsvägar och mönster i kristallint berg har undersökts i naturliga sprickor och spricksystem i fält över avstånd upp till 50 m och i laboratoriet i upp till 30 cm långa sprickor. I de försök där sorberande spårämnen använts, har resultaten även kunnat användas för att belysa fördröjningsmekanismerna.

14.3.2 Laboratorieförsök

Få undersökningar av porsystem i kristallint berg har gjorts tidigare. Brace gjorde åren 1965 - 1977 en serie undersökningar av elektrisk ledningsförmåga hos porvattnet i graniter under tryck för att därigenom söka bestämma den hydrauliska konduktiviteten /14-19, 14-20, 14-21/. Då elektrisk ledningsförmåga och diffusion av joner är analoga processer kan man ur dessa undersökningar få en uppfattning om diffusion i porsystemet och även dess beroende av bergtrycket. Heard /14-22/ och Trimmer et al /14-23/ har mätt elektrisk och hydraulisk konduktivitet hos bl a granit under mycket höga spänningar.

Skagius et al /14-1, 14-3, 14-4, 14-8/ har mätt diffusion av jodid och tritierat vatten genom 10 mm tjocka bitar av graniter och gneisser. De har även mätt elektrisk ledningsförmåga för saltvattenmättade bergbitar såväl med som utan pålagda tryck. Öquist och Jämtlid /14-24/ har mätt porositet och elektrisk ledningsförmåga för olika graniter. Bradbury et al /14-25/ har mätt jodiddiffusion i graniter.

De nämnda undersökningarna visar att det finns sammanhängande porsystem på minst upp till 10-tal cm. Porositeten varierar mellan 0,1 - 1% för berget och diffusiviteten i porsystemen är från tusendelar till tiondelar av värdena i fritt vatten. Ökande bergtryck minskar såväl porositet som diffusivitet i porerna. Vid 250 bars bergspänning har Brace /14-19/ uppmätt sänkning av elektriska ledningsförmågan med ca en faktor 2 jämfört med värdena vid 50 bar. Skagius o Neretnieks /14-4/ finner att vid 220 bar bergspänning har ledningsförmågan minskat med ca 30% jämfört med obelastat berg.

Torstenfelt et al /14-9/ visar att cesium penetrerat en 0,2 mm tjock naturlig sprickbeläggning och trängt 2,5 mm vidare in i graniten. Två andra graniter visar liknande och längre inträngningsdjup för 3 månaders kontakttid. Diffusiviteter utvärderade ur dessa försök ger $D_a = 0,53 - 17 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ för tre olika graniter. Dessa värden överensstämmer väl med de som Skagius och Neretnieks /14-8/ erhöill med en annan mätteknik för två olika

graniter. I den senare undersökningen erhöles även diffusiviteten för strontium till $D_a = 2,5 - 5 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$.

Dessa resultat visar att såväl cesium som strontium har en mycket högre diffusivitet i bergmatrisen än vad som kan förklaras av diffusionen i porvätskan enbart.

Spårämnesförsök med såväl icke sorberande (tritierat vatten och högmolekylär lignosulfonatjon) som med sorberande ämnen (strontium och cesium) i en 30 cm lång naturlig spricka från Stripa gruva har genomförts /14-26/. De icke sorberande ämnena används för att karakterisera strömningen (dispersion, sprickvidd). Med kännedom härav kan fördröjningen på grund av sorption utskiljas.

Fördröjningen av de sorberande ämnena kan endast förklaras om såväl ytsorption som inträngning i matrisen beaktas. Sorptions- och diffusionsdata erhållna från oberoende mätningar överensstämmer med dem som erhålls från sprickförsöken. Raber et al /14-27/ har gjort liknande försök på mycket mindre bergsstycken och med färsk sprickor.

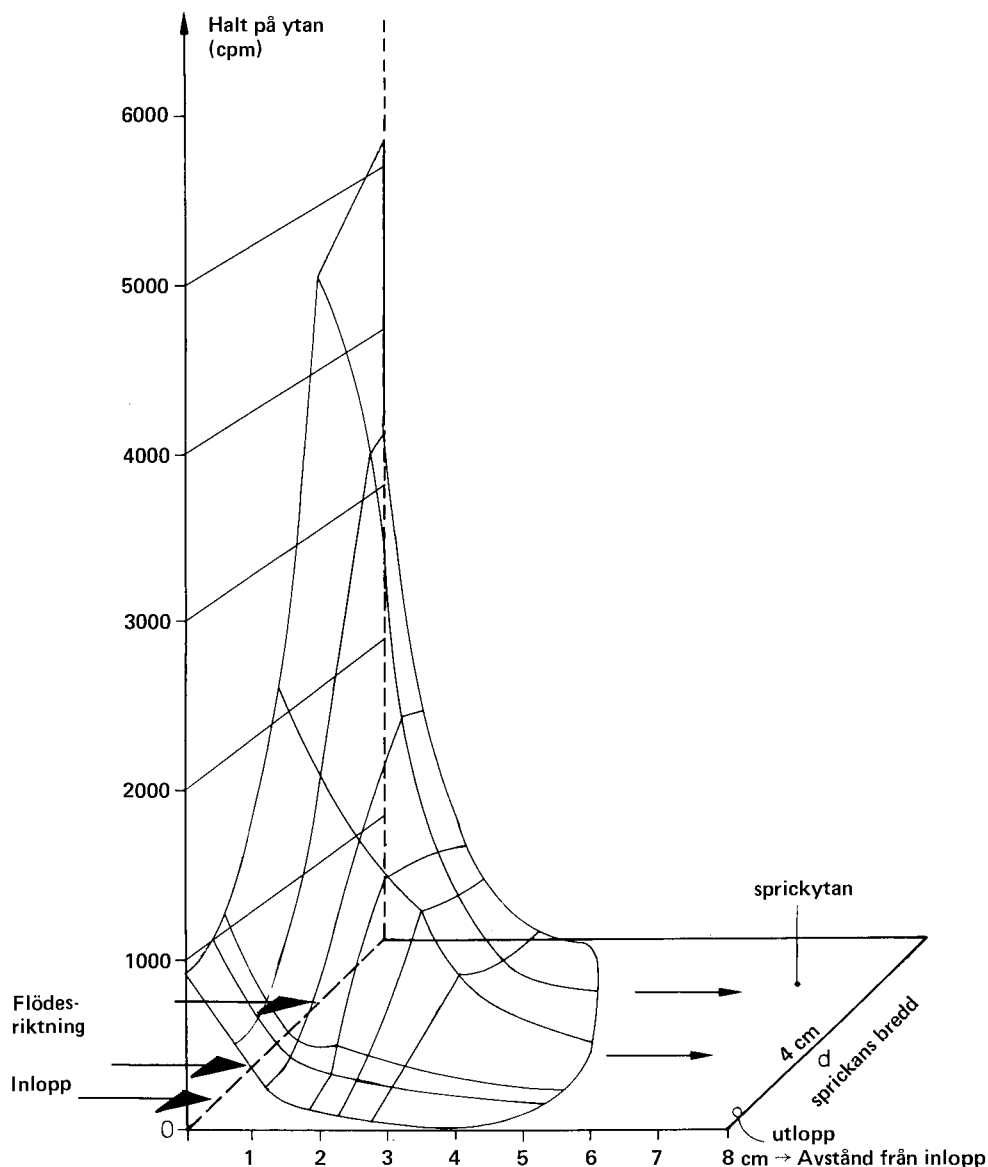
Inträngningsförsök har även genomförts med Tc och Am av Torstenfelt et al /14-9/. Dessa försök uppvisar mycket korta inträngningsdjup för Am i överensstämmelse med vad som förväntas på grund av den höga sorptionen.

Spårämnesförsök med aktiva Eu, Np, Pu har genomförts i laboratoriet i naturliga sprickor /14-28/. För Europium-försöket finner man att en liten fraktion - promille à procent - av aktiviteten kommer ut med vattnets hastighet. Detta är en partikelbunden fraktion vilken inte hinner lösa upp sig eller sorbera under den korta uppehållstiden i sprickan (<10-tal minuter). All den övriga aktiviteten återfinns på ytan av de första centimetrarna efter inloppet även efter månaders vattenströmning. Figur 14-4 visar var Eu fastnat i ett strömningsförsök längs en naturlig spricka.

I försöket med plutonium kunde detta ej detekteras i utloppet. Allt plutonium återfanns inom några mm från inloppet.

14.3.3 Fältförsök

Fältförsök i kristallint berg med spårämnena har genomförts i Frankrike /14-29/ och på flera ställen i Sverige. Resultaten av det franska försöket synes ännu ej ha utvärderats färdigt. I de spårämnesförsök som genomfördes i Sverige med I^- , Br^- samt Sr^{2+} mellan två strömningsvägar 22 och 51 m långa, på ca 60 m djup /14-12/ fördröjdes strontium fördröjdes med ca en faktor 6, vilket är mer än dubbelt så mycket som kan förutspås med enbart ytsorption.



Figur 14-4. Europiumlösning som strömmat genom en naturlig spricka har efterlämnat sorberad Eu på ytan. Sprickan har öppnats och halten Eu på ena sidan har mätts och avsatts uppåt i figuren.

Senare försök i Sverige över 11,8 m på ca 100 m djup /14-14, 14-15/ med I^- , tritierat vatten och Sr^{2+} visar en fördröjningsfaktor minst 15 för Sr^{2+} . Laboratieförsök med krossat material visar fördröjningsfaktorn 30 - 35. Dessa fördröjningsfaktorer är dock ej direkt jämförbara då de två försöken haft olika förhållanden mellan vattenvolym och bergyta.

Gustavsson och Klockars /14-16/ har genomfört spårämnesförsök med bl a I^- , Blå Dextran och Sr^{2+} i granitiskt berg vid Finnsjön. Avståndet mellan injiceringshål och mätthål var 30 m och djupet ca 90 m. Sr^{2+} fördröjdes föga i detta försök, men ca 40% av injicerad mängd kom ej fram till uppsamlingshålet. Dessa försök har tolkats av Hodgkinson och Lever /14-30/ och Moreno et al /14-31/. I båda tolkningsförsöken finner man att fördröjningen är mindre än vad som förväntas utgående från oberoende labora-

toriemätningar av diffusiviteten och sorptionskoefficienter på Finnsjö-granit. Halten Sr^{2+} har i detta försök varit 100 - 1 000 gånger högre än den halt som använts i laboriemätningar, varför sorptionskoefficienten sannolikt är lägre i fältförsöket än vad som används vid tolkningen. Den sämre fördröjningen i denna strömningsväg kan också bero på att det finns lågsorberande sprickbeläggningar på sprickans yta medan laboriemätningarna gjorts på ren granit. Calcit är ett material med låg jonbytes- och sorptionsförmåga för Sr^{2+} /14-32/. Detta är ett vanligt sprickfyllnadsmineral i Finnsjön /14-33/.

Fältförsök på stort djup (360 m) i Stripa gruva har visat att ett sammanhängande mikroporsystem finns även i ostört berg med naturliga bergspänningar /14-34, 14-35/. Såväl de ovan nämnda laborieförsöken som fältförsöken visar att även många mm tjocka sprickbeläggningar släpper igenom lösta specier till själva bergmatrisen. Beläggningarna har oftast väsentligt högre porositet än berget.

Försök har gjorts att separera dispersionen på grund av kanalbildning från övriga orsaker i /14-16/. Man fann, att om man tolkade fältförsöken över 30 m i granit i Finnsjön som strömning i tre kanaler istället för en kanal, reducerades dispersionstalet till mycket låga värden. Hodgkinsson och Lever /14-30/, Moreno et al /14-31/ utvärderade samma försök med andra antaganden och fann att den hydrodynamiska dispersionen kan vara mycket liten om matrisdiffusion, kanalbildning eller diffusion i stagnanta vattenvolymer förekommer. Försök i en naturlig spricka i laboriet /14-26/ liksom två försök i fält i Stripa gruva /14-17/ visar att kanalbildning förekommer och kan vara en viktig dispersionsorsak. Kanalbildningen påverkar särskilt den tidiga ankomsten av nukliderna.

Lallemand-Barrès och Peaudecerfs /14-11/ sammanställning, redovisar resultat i ett tiotal geologiska media, men endast ett fåtal försök i sprickigt kristallint berg. Spridningen i resultaten är mycket stor. Erhållna Peclet-tal faller i huvudsak i området 2 - 50 med endast ett fåtal resultat utanför detta område. Medeltalet ligger vid $\text{Pec}=10$. Vid bestämning av dessa data har ingen hänsyn tagits till spridning på grund av indiffusion i matrisen. Dessa data överdriver därför betydelsen av den hydrodynamiska dispersionen.

De fältdata som finns i sprickigt kristallint berg är erhållna över längst 51 m observationsvstånd. För att extrapolera dessa data över längre avstånd antas $\text{Pec} = \text{konst}$ istället för antagandet att dispersionskoefficienten $D_L = \text{konstant}$. Detta säkerställer att eventuell inverkan av kanalbildning inte underskattas. Vidare används värdet $\text{Pec} = 2$ som centralvärde i beräkningarna för säkerhetsanalysen. Detta är sannolikt ett överdrivet lågt värde eftersom matrisdiffusionen beräknas särskilt, men säkerställer att tidig ankomst av någon viktig nuklid ej underskat-

tas. Inverkan av tidig ankomst och matrisdiffusion har diskuterats såväl kvantitativt som kvalitativt /14-36, 14-37/.

14.3.4 Naturliga evidens för lösta ämnens vandring i kristallint berg

Det finns en del naturliga fenomen som belyser en del av de tidigare diskuterade migrationsfenomenen. De naturliga fenomenen har i en del fall försiggått under mycket lång tid och över längre sträckor än vad som kan åstadkommas i konstruerade försök.

I Oklo i Gabon var flera naturliga uranreaktorer verksamma för ca 1,8 miljarder år sedan. Detta har utförligt beskrivits i ett flertal publikationer /14-38, 14-39/.

Analyser av den kvarvarande uranmalmkroppen, vilken omges av lera och sandsten, visar att aktiniderna till allra största delen finns kvar i uraninitkristallerna och att flera viktiga fissionsprodukter Ru, Tc och Nd eller dessas döttrar till större delen kan återfinnas inom något 10-tal meter från reaktorn. Cs och I har försvunnit i stor utsträckning. Vatten har under reaktorns drift, vilken varade ca 300 000 år genomflutit reaktorn och den har varit våt även senare. Det är ej i detalj möjligt att rekonstruera de kemiska förhållandena, men på grund av närvaro av olika mineral (Fe(II), Fe(III) mineral) kan man sluta sig till att några av de viktigaste parametrarna, pH och redoxpotentialen - varit snarlika dem som förväntas i ett svenskt förvar.

I kristallina bergarter såsom granit och gneiss finns små mängder uran- och thoriummineral. Smellie /14-40/ har kunnat påvisa att uran (^{234}U) under ca 1/2 miljon år rört sig upp till 60 cm in i bergmatrisen från en uranmineralisering i en spricka i "Björklund"-fyndigheten genom att studera den relativa förekomsten av ^{238}U , ^{234}U och ^{230}Th .

14.4 MATEMATISK MODELL

14.4.1 Inledning

För att kunna kvantifiera de tidigare beskrivna transport- och sorptionsmekanismerna har de givits en matematisk beskrivning. Den har följande struktur:

I ett litet volymselement av det rörliga vattnet bokförs hur mycket av en nuklid som tillförs och bortförs medelst de olika mekanismerna. Nukliden till- och bortförs medelst:

- strömning
- diffusion (dispersion) i den rörliga vätskan

Termerna står för

- 1 ackumulation i vätskan
- 2 skillnad mellan in- och bortströmmat
- 3 skillnad mellan bort- och infört med dispersion
- 4 bort- eller tillfört från bergmatrisen
- 5 avklingat
- 6 tillfört från avklingande moder

För bergmatrisen fås

$$\frac{\partial c_p^i}{\partial t} = D_a \frac{\partial^2 c_p^i}{\partial x^2} - \lambda^i c_p^i + \frac{K_d^{i-1}}{K_d^i} \lambda^{i-1} c_p^{i-1} \quad (14.15)$$

(7) (8) (5) (6)

D_a = matrisdiffusiviteten

K_d = sorptionskoefficienten för bergmatrisen

Termerna står för

- 7 ackumulation i porvätskan
- 8 skillnad mellan bort- och tilldiffunderat

Term 8 har här skrivits för plan geometri.

Ekvationerna (14.14) och (14.15) är kopplade till varandra via term 4 ($c_p = c_f$ vid $x = 0$) och ekvationerna måste därför lösas samtidigt. I flernuklidkedjor måste en uppsättning ekvationer användas för varje nuklid och alla ekvationerna måste lösas samtidigt. I ekvationerna förutsätts ej att U_f , a , K_a , K_d eller $D_p \epsilon_p$ skall vara konstant längs strömningsvägen.

Förutom ekvationerna krävs även s k initial- och randvillkor. Dessa utsäger hur förhållandena är vid begynnelsen av den tidrymd vi vill studera, samt hur radionukliderna transporteras in och ut ur den rymd som betraktas, alternativt vilken halt nukliderna har vid den betraktade rymdens begränsningar. Det vanligaste initialvillkoret är att vatten och bergmatris ej innehåller några nuklider i begynnelsen ($t=0$).

14.4.3 Lösning av ekvationerna och verifikation av lösningsmetodik

Ekvationerna (14.14) och (14.15) och deras egenskaper har studerats.

Förenklade fall har kunnat lösas analytiskt. De analytiska lösningarna används för att kontrollera de mer allmänna numeriska

lösningarna. De lämpar sig även väl för att studera olika storheters inverkan på nuklidtransporten.

För strömning i en enskild spricka utan dispersion men med diffusion in i bergmatrisen finns en mycket enkel lösning för en enskild radionuklid /14-5/. Här påvisas matrisdiffusionens stora betydelse för fördröjning av radionuklider. Grisak och Pickens /14-41, 14-42/ har behandlat detta fall på snarligt sätt. Glueckauf /14-43/ har också behandlat detta fall. Denna lösning ingår även i lösningen för ett fall med ren kanalbildning /14-44/. Tang et al /14-45/ har framställt en analytisk lösning för strömning i en enskild spricka, där även dispersion förekommer. Rasmuson och Neretnieks /14-46/ redovisar en lösning för strömning i ett poröst medium där bergblocken approximeras med sfärer. Lösningen inkluderar axiell dispersion.

Samma författare har använt denna lösning för att studera inverkan av olika parametrar på radionuklidmigration /14-6/. Fallet med matrisdiffusion i sfäriska block samt radiell såväl som axiell dispersion har behandlats av Rasmuson /14-10/.

Parameterstudier har genomförts för ett stort antal radionuklider såväl för fallet med matrisdiffusion och axiell dispersion, /14-47/ som för fallet med kanalbildning och matrisdiffusion /14-44/. Chambré et al /14-48/ har framställt analytiska lösningar för fallet strömning i spricka och mikropordiffusion med diffusion såväl i som tvärs strömningsriktningen. Samma författare anger även en approximativanalytisk lösning för en flernuklidkedja i en enskild spricka med mikropordiffusion, men utan dispersion.

För mer generella fall, där förhållandena längs strömningsvägen varierar, används numeriska lösningar. De tre mest flexibla numeriska metoderna är:

finita differensmetoder	FD
finita elementmetoder	FE
integrerade finita differensmetoder	IFD

De används för att lösa ekvationerna (14.14) och (14.15) i 1, 2 eller 3 dimensioner med mikropordiffusion, dispersion i olika riktningar och kedjesönderfall. Metoderna är mycket flexibla och kan ta hänsyn till olika rand- och initialvillkor.

Metoderna har jämförts i INTRACOIN-studien /14-49/. De gav där mycket snarlika resultat för problem som innehöll 3 nuklidkedjor, mikropordiffusion samt dispersion i en och två riktningar.

I KBS-programmet har den integrerade finita differensmetoden IFD /14-50/ använts. Metoden beskrivs även väl av Narasimhan och Witherspoon /14-51/ med tillämpning på vattenflöden i porösa medi-

er. Metoden är mycket enkel i princip och är mycket flexibel då elementens storlek och form kan varieras inom vida gränser.

Metoden har testats med hjälp av de tidigare beskrivna analytiska lösningarna. /14-46, 14-52/ samt inom INTRACOIN-projektet /14-49/.

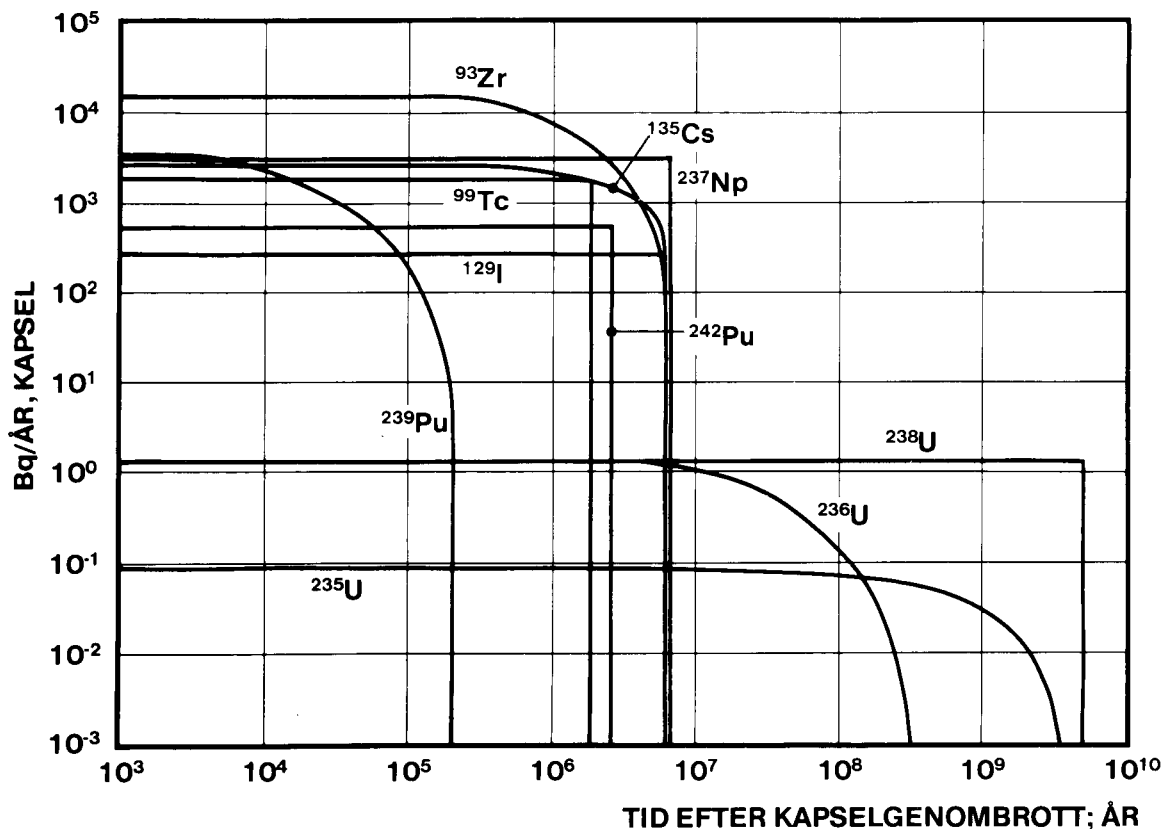
Metodens tillämpning på förhållanden med mycket kraftigt varierande vattenhastighet och områden där det finns mycket varierande storlekar av bergblock (t ex krosszoner) har beskrivits av Neretnieks och Rasmuson /14-53/.

14.4.4 Ett centralt beräkningsfall

Förvaret placeras på ca 500 m djup under markytan. Kapslarna förläggs så att ingen kapsel ligger närmare än 100 m från ett lineament. Ett beräkningsfall har fastlagts med utgångspunkt från förväntade geologiska, hydrologiska och kemiska förhållanden på de olika undersökningsområdena. Tabell 14-2 sammanställer de data som används i beräkningarna. Strömningen antas ske kortaste vägen från kapslarna närmast lineamentet och ut till detta. Därefter går strömningen rakt upp genom lineamentet till markytan. Det antas att strömningen från alla kapslarna i förvaret går denna väg.

Tabell 14-2. Data för centrala beräkningsfallet.

Vattenflöde på 500 m djup	U_o	$10^{-4} \text{ m}^3/(\text{m}^2 \cdot \text{år})$
Flödesporositet	ϵ_f	10^{-4}
Sprickfrekvens vattenförande sprickor	$1/S$	$0,2 \text{ m}^{-1}$
Matrisens porositet	ϵ_p	0,002
Effektiva diffusiviteten för lösta ämnen (alla nuklider)	$D_p \epsilon_p$	$5 \times 10^{-14} \text{ m}^2/\text{s}$
Peclets tal (ger dispersionskoefficienten)	Pec	2
Avstånd för nuklidvandring i berget	Z_o	100 m

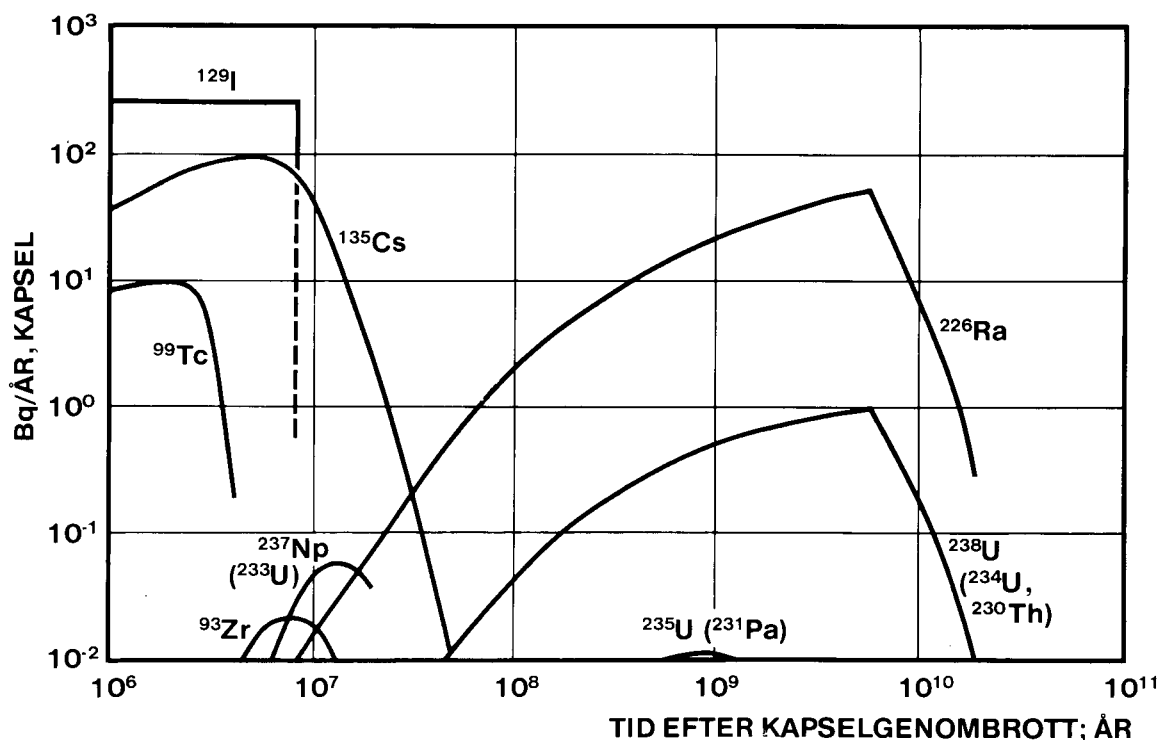


Figur 14-5. Utsläpp av radionuklider från närområdet till det strömmande vattnet i fjärrområdet.

Sorptionsdata för de olika nukliderna finns sammanställda i tabell 12-7. I beräkningarna används ej ytsorptionen då den dels har liten inverkan på resultatet och då det dels är svårt att ur experiment särskilja vad som sorberat på sprickytan och vad som sorberat på grund av kort inträngning i matrisen. Det finns bara mätningar för Cs och Sr att tillgå där yta och volymsorption kunna särskiljas /14-1/. Dessa visar att ytsorptionen motsvarar sorptionen vid ett inträngningsdjup av någon tiondels millimeter när mätningarna utförts på bergkross.

Tillförseln av radionuklider till det strömmande vattnet från läckande kapslar beräknas med hjälp av närområdesmodellen. Se kapitel 13, tabell 13-5.

Figur 14-5 visar utsläppet från närområdet till fjärrområdet av de viktigaste nukliderna. Figur 14-6 visar det därav resulterande utsläppet från fjärrområdet av samma nuklider /14-54/.



Figur 14-6. Utsläpp från fjärrområdet av de vanligaste nukliderna.

14.5 TILLFÖRLITLIGHETEN AV DATAUNDERLAGET

14.5.1 Modell och data

Tillämpligheten av de uppställda ekvationerna på den verklighet som skall beskrivas bedöms genom att jämföra beräknade resultat med experiment. Det kan av praktiska skäl ej göras för så långa tidrymder och över så stora avstånd som förutsägelseerna skall behandla. Varje transportmekanism kan dock verifieras för sig med olika metoder och betydelsen av osäkerheten i kunskapen av denna mekanism bedömas.

Vattenhastigheten U_f är dåligt känd på grund av att bergets porositet kan variera och för att praktiskt taget inga porositetsmätningar gjorts på stora djup. Den har emellertid en helt underordnad betydelse för bedömning av de sorberande nuklidernas transporthastighet. För de icksorberande nukliderna spelar den ingen roll för bedömning av det maximala utsläppet då avklingning ändå ej hinner ske för de intressanta nukliderna inom ramen för möjliga vattentransporttider. Dessa frågor har behandlats av Neretnieks /14-5/ och Rasmuson och Neretnieks /14-6/. Dispersionen D_L är en dåligt känd storhet och kan till del orsakas av kanalbildning. Därför används sådana värden på dispersionstal att de på

grund av sin storlek innefattar såväl väl tilltagen dispersion som effekten av kanalbildning. Betydelsen av kanalbildning har behandlats av Neretnieks /14-36/ och höga dispersionstal av Rasmuson et al /14-37/. Användningen av ett dispersionstal motsvarande $Pec=2$ innebär att hög dispersion antas råda samt att dispersionstalet ökar med strömningssträckan. Det senare motsvarar effekten av kanalbildning. För en del fall har även en låg dispersion ($Pec=50$) använts för att säkerställa att utspridning i tiden på grund av hög dispersion ej är förmånlig /14-54/.

Tillgänglig sorptionsyta per rörlig vattenvolym inverkar på samma sätt som gäller för vattenhastigheten ej direkt på transporten av sorberande nuklider vid givet flöde U_0 . Den storhet som bestämmer nuklidtransporten är sorptionsytan per bergvolym a_v . Detta har visats av Neretnieks /14-5/ och Rasmuson och Neretnieks /14-6/. Storheten a_v är i sin tur direkt beroende av sprickfrekvensen $1/S$ där S = medelsprickavståndet. Ur sorptionshänseende är endast de sprickor, vilka i nämnvärd grad leder vattnet intressanta. Sprickfrekvensen bestäms därför av vattenförlustmätningen i borrhål med dubbelmanschettmetoden (se avsnitt 6.1.3). Vid nuklidmigrationsberäkningar medtas endast de sprickor, vilka i väsentlig omfattning är vattenförande (sprickor som transporterar lika mycket som eller mer än medelsprickan). I ett flertal områden, innebär detta att endast ca var 5:e vattenförande spricka medtas som utgörande bidrag till sorptionsytan. Skälet är, förutom att vara allmänt försiktig, att ta hänsyn till att en spricka ej leder vatten likformigt över hela sin bredd utan ibland leder vattnet i en "kanal" i sprickplanet.

Observationer i "Stripa" gruva pekar på att mindre än hälften av en synlig spricka leder merparten av vattnet /14-55/. Denna typ av kanalbildning är ej fullt utredd. Därför kompenseras bristen på fullständig kunskap dels genom att ha högt dispersionstal, dels genom att kreditera endast ca 1/5 av sprickytan som varande aktiv för sorption enligt ovan.

Den effektiva diffusiviteten i mikroporerna $D_p \epsilon_p$ och matrisdiffusionen D_a har mätts i många olika kristallina bergarter av flera oberoende grupper. Det använda värdet $D_p \epsilon_p = 5 \times 10^{-14} \text{ m}^2/\text{s}$ utgör ett försiktigt valt men realistiskt värde. Det har därvid kompensats för att berget är belastat på de större djupen. För alla nuklider utom cesium och strontium, där entydiga mätdata visar att det finns ett starkt bidrag från ytdiffusion, försummas detta eventuella bidrag.

Sorptionskoefficienterna diskuteras i kapitel 12. De är valda så att de utgör lägsta värden i grundvatten med stora men rimliga variationer i pH, Eh och halt av huvudsakliga komplexbildare - främst karbonat.

14.5.2 Potentiella snabba spridningsmekanismer

De flesta betydande radionuklider sorberar på och i bergsmatrisen och fördröjer därmed nukliderna så länge att de i väsentlig utsträckning avklingar innan de når biosfären. Vatten på stora djup innehåller en del (ppm-halter) organiska ämnen i form av fulvo- och humussyror /14-56/. Dessa kan bilda starka komplex med många aktinider och skulle kunna utgöra potentiella bärare för aktivitet. De 3-värda nuklidernas (Pu, Am) sorptionskoefficienter kan minskas med upp till en faktor 10, se kapitel 12. Den lägre sorptionskoefficienten medför fortfarande en kraftig fördröjning av dessa nuklider.

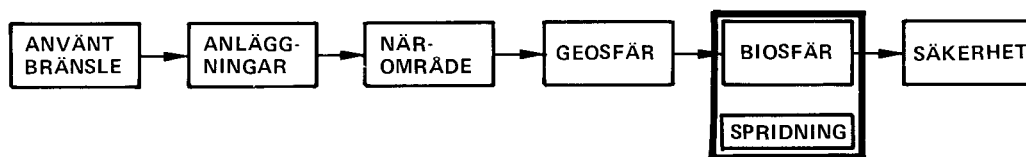
Aktiniderna kan vid utfällningsförlopp bilda radiokolloider. Dessa har på grund av sin större massa mindre diffusivitet än enkla joner och kan därför ej lika lätt röra sig in i mikroporererna. Radionukliderna har visat sig vara mycket benägna att sorbera på de flesta tillgängliga ytor. Detta innefattar glasytor, olika mineraltyper och naturliga bergtyper /14-57/. Dessutom är kolloiderna ej stabila utan existerar i jämvikt med den lösta nukliden. När denna sorberar och undandras vattnet, löser kolloiden upp sig i motsvarande grad.

I vattnet löst nuklid sorberar på partiklar i vattnet. Naturliga vatten håller låga halter partiklar - det rör sig om mindre än ett milligram per liter /14-58/. Transportkapaciteten via partikelbunden aktivitet erhålles genom att partikelhalten multipliceras med K_d för partiklarna. För en partikelhalt i vattnet av $0,5 \cdot 10^{-3}$ g/l och ett $K_d = 5$ l/g blir halten nuklid bunden till partiklarna 0,0025 av halten nuklid löst i vattnet.

De starkt sorberande nukliderna som är bundna till partiklarna utgör sålunda endast 0,25% av den mängd som finns totalt i vattnet. Då nukliderna är reversibelt bundna desorberar de från partiklarna i samma takt som vattnet utarmas. I en särskild beräkning (se kapitel 20) behandlas konsekvensen av om sorptionen vore irreversibel och partiklarna vandrade med vattnets hastighet till biosfären och bar med sig nukliderna i en mängd som bestäms av ovan beskrivna transportmekanism.

En annan källa till partiklar är leran i buffertmaterialet runt kapslarna. Bentonitleran består av mycket små partiklar, vilka kan bilda kolloider i vatten med låga halter lösta joner. Vid halter av mer än ca 20 mg/l av 2-värda katjoner ex vis Ca^{2+} , bildar leran en stabil gel /14-59, 14-60/. Sorptionsreaktioner på bentonitpartiklarna är också reversibla och nuklider som eventuellt transporteras med partiklarna till ett område med nuklidfritt vatten desorberar och sorberar på mikrosprickornas i berget betydligt större ytor.

15 SPRIDNING OCH EXPOSITION I BIOSFÄREN



Detta kapitel redovisar förutsättningar för och resultat av de utspädnings- och anrikningsprocesser som förekommer i biosfären. Den matematiska modell som ligger till grund för beräkningarna presenteras.

De ur dessa beräkningar erhållna omräkningsfaktorerna mellan utsläpp och dos redovisas. En detaljerad diskussion om stråldosbegreppet återfinns i kapitel 16.

15.1 ALLMÄNT OM BETYDELSEN AV SPRIDNING I BIOSFÄREN

Spridning av radioaktiva ämnen från förvaret kan så småningom leda till att dessa kommer i kontakt med människan. Eftersom spridningen från förvaret sker med grundvattnet, nås en första kontakt med biosfären i en vattenrecipient.

Två olika typer av recipienter har studerats som startpunkter för den vidare spridningen i biosfären.

- Brunn
- Insjö

Från recipienten sprids sedan ämnena vidare ut via färsk- och brackvatten-reservoarerna ut i ett globalt kretslopp.

Med biosfären avses samtliga levande organismer, och i vidsträckt mening även deras omgivande miljö. Till biosfären hör sålunda media i omgivningen, vilka underhåller de levande organismerna, dvs hela hydrosfären samt delar av atmosfären och det övre markskiktet.

Bedömningen av säkerheten för ett slutförvar grundas på en analys av i vilken utsträckning befolkningen kan komma att exponeras för radioaktivt material från förvaret. Analysen beaktar den långsiktiga omsättningen av olika radioaktiva ämnen i biosfären och uppskattar stråldoser till människan. Eftersom prognoserna måste utsträckas över mycket långa tidrymder introduceras osäkerheter av olika slag. Ambitionen har varit att beakta dessa genom analys av variationerna kring en bästa uppskattning av en given faktor, t ex upptaget i växtligheten eller i fisk. När detta inte varit tillämpligt, har beskrivningen baserats på antaganden och val av värden, som sannolikt inte underskattar stråldoserna till människan.

15.2 BESKRIVNING AV RECIPIENTER OCH EKOLOGISKA MEKANISMER

Valet av primär recipient, insjö eller grundvattenbrunn, påverkar de exponeringsvägar som måste beaktas. Den initiala utspädningen i recipienten är av stor betydelse för individdoserna.

För att kunna beräkna aktivitetsspridningen, erfordras att ekosystemen studeras med avseende på lokala, regionala, intermediära och globala förlopp. De lokala och regionala förloppen påverkas därvid av data som är karakteristiska för de valda områdena.

Under de tidrymder som här diskuteras, kommer dock brunnar att borraras och överges liksom sjöar att bildas och växa igen inom tidsramar som är väsentligt kortare än den beräknade varaktigheten av utsläppen. Därför beräknas här omgivningskonsekvenserna vid en förläggingsplats utgående från standardiserade recipienter.

Vattenbalansberäkningar samt hydrologisk information rörande vattenomsättningen i regional och global skala utnyttjas i de fall transporten sker via grund- och ytvatten. Med detta som utgångspunkt och med hjälp av fördelningskoefficienter, som bestäms av förhållandet mellan nuklidens och vattnets rörlighet, erhålles nuklidspecifika överföringar för omsättningen jord-vatten.

För omsättningsprocesser som sker under relativt korta tidrymder, är transporten via ett fåtal dominerande transportvägar avgörande. Under längre tidsförlopp börjar återföringsmekanismer, som t ex från sediment till vatten, göra sig gällande.

15.2.1 Brunn

Slutförvaret placeras i berg med låg vattenföring. Typiskt utväljes en eller flera bergplintar i ett inströmningsområde. Plintarna är omgivna av geometriskt väldefinierade sprickzoner. Ber-

gets och sprickzonernas låga permeabilitet i de undersökta typområdena innebär att de inte kommer att vara lämpliga för brunnar med större vattenuttag. På sin höjd kan brunnar för enstaka familjehushåll eller sommarstugor tänkas i området, främst då i de till förvaret närbelägna utströmningsområdena. Typiska vattenuttag för sådana brunnar är 1,5 - 6 m³/dygn med djup normalt ner till ca 60 m.

För att illustrera effekten av en brunn rakt ovanför förvaret eller i en närbelägen sprickzon har beräkningar gjorts med data typiska för förvarsutformningen och de undersökta typområdena /15-1, 15-2/. Av resultaten framgår att det naturliga grundvattenflödet genom förvaret inte påverkas av förekomsten av brunnar av ovan nämnda storlek under normal användning av dessa.

Borras en brunn i ett utströmningsområde från förvaret, kommer en del av vattnet från förvaret att tillföras brunnen. Beräkningar visar, att varje volym vatten i brunnen som passerat förvaret, kommer att spädas ut med mellan 30 000 och flera miljoner volymer av vatten som inte passerat förvaret /15- 1, 15-2/.

På förvarsdjup har ett grundvattenflöde av 0,1 l/(m²·år) antagits. Med en minsta förvarsyta av 0,5 km² kommer det årliga nuklidflödet från förvaret att spädas ut i minst 50 m³ vatten. I brunnen erhålls då en koncentration motsvarande den som fås om det årliga läckaget späds ut i minst någon miljon m³ vatten. För de fortsatta beräkningarna väljes försiktigtvis en utspädning motsvarande årsutsläppet fördelat i 500 000 m³ vatten.

15.2.2 Insjö

Undersökningar i typområdenas recipientområden har visat att Morpa-sjön vid Fjällveden utgör en sjötyp som har mycket låg tillrinning och vattenomsättning. Då sådana förhållanden utgör ogynnsamma faktorer vid individdosberäkningarna, har denna sjö valts som insjörecipient vid typområdena. De nu existerande sjöarnas egenskaper vid typområdena redovisas i kapitel 18.

Vattenvolymen i insjörecipienten har valts i överensstämmelse med Morpa-sjön till $3,2 \cdot 10^6$ m³ och omsättningstiden till en gång per 1 280 dygn.

15.3 SPRIDNINGSPROCESSER OCH EXPONERINGSVÄGAR

Omsättningen av radioaktiva ämnen styrs av rörelserna hos olika bärare i respektive medium. Genom bevattning samt torr- och våtdeposition tillförs marken successivt radioaktiva ämnen, medan

resuspension och utlakning ger en motriktad transport till atmosfär, grundvatten och ytvatten.

Vid omsättning av de radioaktiva nukliderna mellan naturens reservoarer kan aktivitet nå människan via olika exponeringsvägar; intern exponering genom inandning, intag av livsmedel och dricksvatten samt extern exponering från markdeponerat material. Bad, vistelse på sjö- eller havsstrand där radioaktiva material ansamlats samt hantering av fiskredskap som kommit i kontakt med bottensedimentet, utgör också tänkbara vägar för extern exponering.

De radioaktiva ämnen, som kan finnas i livsmedel av olika slag, har sitt ursprung i upptag över ett varierande antal transportled:

- Grödor tar upp radionuklider från jorden via rotsystemet samt genom direkt deposition på bladytor.
- Förekomst av radionuklider i kött och mjölk har sitt ursprung från intag av kontaminerat foder eller dricksvatten.
- Fisk ackumulerar radionuklider via utbyte med omgivande vatten samt via födoämnen.

Bevattnings av grönsaker, bete och grödor i de lokala och regionala områdena utgör en separat transportväg.

15.4 MODELLPRINCIPER

15.4.1 Matematisk modell

Matematiska modeller har utvecklats för simulering av det dynamiska utbytet av radionuklider i biosfären.

Modellerna, som bygger på kompartmentteori, baseras på ett system av första ordningens linjära differentialekvationer med tidsberoende överföringskoefficienter samt ett antal fysiskt väl definierade områden eller volymer. Förutsättningarna innebär att reservoarerna är momentant välblandade. Härvid blir utflödet av nuklider proportionellt mot koncentrationen i reservoaren.

Sambandet mellan aktivitetsmängderna i reservoarsystemet uttrycks i ekvationer, där det även är möjligt att beakta sönderfallskedjor.

15.4.2 Modellens reservoarer

För omsättning av radioaktiva ämnen i luft och vatten kan reservoarer avgränsas som tillfredsställande uppfyller villkoret avseende momentan omblandning. I exempelvis en insjö deltar även bottensedimenten aktivt i utbytet av radionuklider - och sjön som helhet kan alltså ej betraktas som en homogen reservoar. För att ta hänsyn till detta och få en bättre anpassning till verkliga förhållanden uppdelas sjön i separata vatten- och sedimentreservoarer mellan vilka ett utbyte sker.

Förutsättningen att utflödet från en reservoar endast är beroende av aktivitetsmängden i denna, kan anses vara tillämpligt i denna studie. Mängden av radioaktiva ämnen är genomgående mycket låg jämfört med respektive ämnes stabila isotoper eller kemiskt analoga bärare.

Konstanta överföringskoefficienter approximerar i allmänhet systemets tillstånd endast under kortare tidrymder. Betraktat över flera årscykler utjämnas variationerna och konstanta koefficienter kan därigenom ge ett representativt medelvärde.

15.5 VAL AV BERÄKNINGSMODELL - BIOPATH

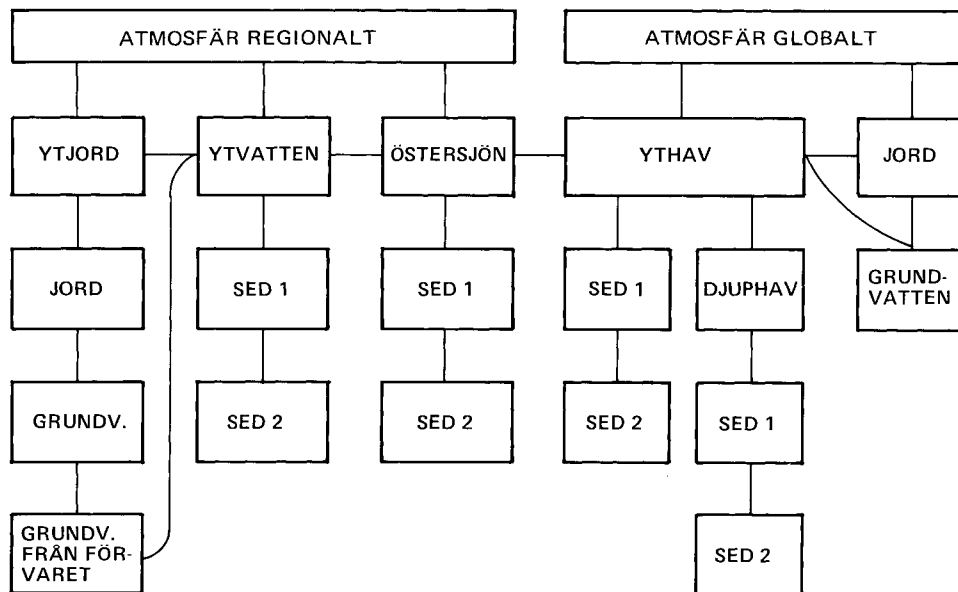
Modellen BIOPATH bygger på den kompartmentprincip som behandlas i avsnitt 15.4.1 och beskriver spridningen av radioaktivt utflöde i biosfären och resulterande doser.

15.5.1 Modellstruktur

Uppbyggnaden av BIOPATH /15-3/ har gjorts med en indelning i zoner på olika nivåer:

- Den lokala modellen beräknar stråldoser till individer i kritisk grupp (närboende) omkring källan.
- Den regionala modellen beaktar spridningen i ett utvidgat område runt utsläppspunkten. Lokalområdet innefattas således av regionalområdet.
- Den intermediära modellen utgör ytterligare ett steg mot spridning i större skala.
- Den globala modellen som omfattar spridning över hela jorden.

Ett principsschema av BIOPATH-modellens olika reservoarer framgår av figur 15-1.



Figur 15-1. Principschema över BIOPATH-modellens reservoarer.

Dessa kopplade modeller på olika nivåer skapar förutsättningar för studium av exponeringssituationer i begränsade ekosystem samtidigt som det blir möjligt att följa spridningsförloppet genom en stegvis spridning i allt större skala.

Inom de olika delsystemen har reservoarer utformats /15-4, 15-5/, så att en representativ bild av radioaktiva flöden i ekosystemen erhålles.

Modellutformningen är anpassad både med avseende på viktiga omsättnings- och expositionsförlopp och på beskrivning av de doser till individ och befolkning, för vilka internationella organ och svenska strålskyddsmyndigheter angivit begränsningar.

Vid beräkning av nuklidtransporten från ett slutförvar till biosfär har olika datorprogram använts. Resultaten i form av utsläppt aktivitet mängd från geosfären vid olika tider (kapitel 14) utgör källtermer till BIOPATH.

15.5.2 Internexponering

BIOPATH beräknar dosbidragen via olika exponeringsvägar till individer samt till befolkningar på lokal och regional, intermediär och global nivå.

Dietvanor och konsumtion

Dietvanorna för kritisk grupp och befolkning på regional och global nivå avseende årligt intag av dricksvatten, livsmedel och andningsluft har standardiserats /15-6/.

För de djur som ingår i transportleden för radioaktiva ämnen och som lämnar bidrag till människans livsmedel i form av kött-, mjölk- och äggprodukter, har genomsnittskonsumtionen av vatten och foder beräknats /15-7/.

Vid upptag i näringskedjorna kan följande led ingå:

Upptag i grönsaker

Bidrag från rotupptag
 -"- direktdeposition
 -"- bevattning

Summan av dessa bidrag multipliceras med:

- årlig konsumtion av grönsaker samt
- dosfaktorn för nukliden

Överföring till kött och mjölk

Bidrag från bete via rotupptag och intag av jord
 -"- direktdeposition på bete
 -"- dricksvatten

Summan av dessa bidrag multipliceras med

- en fördelningsfaktor som anger fördelningen av intagna radionuklider i mjölk och kött
- årlig konsumtion av kött/mjölk samt dosfaktorn för nukliden.

Upptag i fisk

Aktivitetskoncentrationen i vatten multipliceras med anrikningsfaktorn för fisk, samt med

- årlig konsumtion av fisk och
- dosfaktorn för nukliden

Överföringskoefficienter beskriver utbytet mellan modellens reservoarer.

I de fall grund- eller ytvatten tjänar som transportsystem, utnyttjas information rörande vattenomsättningen i regional och global skala. Jod och teknetium är exempel på sådana nuklider, som rätt väl följer vattnets rörelser. För övriga nuklider används i allmänhet en fördelningskoefficient, som beskriver nuklidens grad av rörlighet i förhållande till vattnets. På så sätt erhålls nuklidspecifika överföringskoefficienter för omsättning i jord och grundvatten.

Transporten av radionuklider atmosfär - mark baseras på experimentella undersökningar av olika ämnens genomsnittliga uppehållstid i atmosfären. Resuspensionen av partikelburen aktivitet tillbaka till atmosfären grundar sig bl a på uppskattningar av återföringen av radioaktiva ämnen från markens ytskikt.

Atmosfären över havet tillförs årligen salt i aerosolform, när vattnets vågstänk avdunstar. En del av denna spray deponeras på land, vilket ger en transport hav - land.

En sammanställning och analys av parametervärden, som använts vid BIOPATH-beräkningarna finns i /15-7/.

15.5.3 Externexponering

Exponeringstiderna avseende de externa exponeringsvägarna (vistelse på strand, bad, hantering av fiskeredskap och strålning från mark) beräknas för olika befolkningsgrupper och områdesalternativ. Exponeringstiden multipliceras med en för varje exponeringsväg specifik dosfaktor beräknad enligt förutsättningarna nedan.

Extern exponering från mark och strand

För beräkning av externdosen från radionuklider, som deponerats i mark och på stränder, antas all aktivitet vara samlad till det översta ytskiktet.

Extern exponering från bad

Den badande antas erhålla homogen strålning från alla riktningar.

Extern exponering vid hantering av fiskeredskap

Den externdos, som erhålles vid hantering av fiskeredskap, antas härröra från aktivitet i form av en punktkälla som finns i 10 kg redskap på 1 m avstånd.

15.5.4 Befolkning och befolkningstillväxt

För beräkning av kollektivdosen nu och i framtiden tas i programmet hänsyn till befolkningsfördelningen samt befolkningstillväxten. Tillväxten har avbrutits efter det att världsbefolkningen uppnått 10 miljarder individer.

15.6 DATABAS OCH OSAKERHETER

Tillförlitligheten i de beräknade doserna påverkas av osäkerheter i databasen, modellens uppbyggande, val av exponeringsvägar, numeriska approximationer i beräkningarna samt val av överföringskoefficienter.

15.6.1 Databas

Med stöd av ett stort antal referenser har en reviderad databas, avseende erforderliga indata till BIOPATH, framtagits under 1982 /15-7/.

För att underlätta genomförande av känslighetsanalyser har en strävan varit att så långt möjligt ange variationsintervall för de olika parametrarna.

Den sålunda uppdaterade databasen omfattar:

- Nuklidoberoende överföringskoefficienter

Deposition
Resuspension
Transport från världshavens ytskikt till kontinenterna
Vattenomsättningen i mark
Vattenomsättningen i global skala

- Nuklidberoende överföringskoefficienter

Sedimentation - sötvattenssystem
Sedimentation - brackvatten
Sedimentation - ythav
Sedimentation - djuphavet
Omsättning av nuklider i sediment
Migration i mark
Omsättning av nuklider i grundvatten

- Koncentrations- och fördelningsfaktorer avseende biologiskt material i land- och vattenområden.

- Diet- och konsumtionsförhållanden samt avkastningsvärden.

Databasen för de nuklider som vid analyser visat sig dominera doserna, ges i följande tabeller:

- 15-1 Nuklidberoende överföringskoefficienter
- 15-2 Nuklidberoende överföringskoefficienter
- 15-3 Koncentrations- och fördelningsfaktorer för överföring från reservoar till födoämnen
- 15-4 Diet och konsumtionsförhållanden

Tabell 15-1 Nuklidberoende överföringskoefficienter av betydelse för beräkning av individdosen för de ur dossynpunkt dominanta nukliderna.

Process	Överföringskoefficient				
	I	Cs	Ra	Pa	Np
Omsättning i yttjord	$1,0 \times 10^{-2}$	$2,1 \times 10^{-3}$	$8,8 \times 10^{-4}$	$5,3 \times 10^{-5}$	$1,6 \times 10^{-3}$
Omsättning i djupjord	$2,4 \times 10^{-4}$	$1,6 \times 10^{-4}$	$6,7 \times 10^{-5}$	$4,0 \times 10^{-6}$	$1,2 \times 10^{-4}$
Omsättning i grundvatten	$2,0 \times 10^{-1}$	$4,0 \times 10^{-4}$	$1,7 \times 10^{-4}$	$9,1 \times 10^{-6}$	$2,9 \times 10^{-4}$
Överföring till sediment	$3,0 \times 10^{-2}$	$4,0 \times 10^{-1}$	1,8	$1,4 \times 10^1$	$2,2 \times 10^{-1}$
Läckage från sediment	$1,3 \times 10^{-2}$	$1,1 \times 10^{-3}$	$1,6 \times 10^{-2}$	$1,3 \times 10^{-2}$	$1,5 \times 10^{-2}$

15.6.2 Val av exponeringsvägar

De exponeringsvägar som medtagits i beräkningarna, täcker erfarenhetsmässigt de mest relevanta processerna för doser till människan. Exponeringsvägarna betraktar såväl interna som externa doser, vilka härrör från aktivitet i luft, mark och vatten.

Uppläggningsmodellen möjliggör även studier av framtida ändringar av födoämnessammansättningen. Exempel på tänkbara förändringar som kan innebära att andra exponeringsvägar blir av betydelse är dietsammansättning och näringskedjor.

Tabell 15-2. Nuklidoberoende överföringskoefficienter som är av betydelse för beräkning av individdosen.

Process	Överföringskoefficient
Omsättning av grundvatten	2
Bevattning från grundvatten	$2,4 \times 10^{-4}$
Omsättning av ytvatten	$3,0 \times 10^{-1}$
Bevattning från ytvatten	$4,4 \times 10^{-3}$
Transport till djupare sediment	$1,0 \times 10^{-3}$

Tabell 15-3. Koncentrations- och fördelningsfaktorer för överföring av aktivitet från olika reservoarer till födoämnen.

Ämne	Koncentrationsfaktorer								Fördelningsfaktorer			
	Bete-jord	Brödsäjd-jord	Bladgr.-jord	Rotgr.-jord	Fisk-sötv.	Fisk-brackv	Fisk-havsv	Vattenv-* brackv	Vattenv-* havsv	Mjölk d/kg	Kött d/kg	Ägg d/st
Zr	$1,1 \times 10^{-3}$	$1,7 \times 10^{-4}$	$1,7 \times 10^{-4}$	$1,7 \times 10^{-4}$	$3,0 \times 10^2$	$3,0 \times 10^2$	$1,0 \times 10^2$	$5,0 \times 10^{-2}$	$5,0 \times 10^2$	$5,0 \times 10^{-6}$	$3,4 \times 10^{-2}$	$6,0 \times 10^{-5}$
Tc	1,0	$9,0 \times 10^{-1}$	$1,0 \times 10^{-1}$	$2,0 \times 10^{-1}$	$3,0 \times 10^1$	$3,0 \times 10^1$	$1,0 \times 10^1$	$4,0 \times 10^3$	$4,0 \times 10^3$	$1,0 \times 10^{-3}$	$1,0 \times 10^{-3}$	$9,0 \times 10^{-4}$
I	$8,0 \times 10^{-2}$	$2,0 \times 10^{-3}$	$5,0 \times 10^{-3}$	$1,0 \times 10^{-3}$	$2,0 \times 10^1$	$2,0 \times 10^1$	$2,0 \times 10^1$	$4,0 \times 10^3$	$4,0 \times 10^3$	$7,0 \times 10^{-3}$	$8,0 \times 10^{-3}$	$3,0 \times 10^{-2}$
Cs	$1,0 \times 10^{-1}$	$1,0 \times 10^{-2}$	$2,0 \times 10^{-2}$	$2,0 \times 10^{-2}$	$1,3 \times 10^3$	$2,0 \times 10^2$	$1,0 \times 10^1$	$1,5 \times 10^2$	$2,0 \times 10^1$	$7,0 \times 10^{-3}$	$3,0 \times 10^{-2}$	$2,0 \times 10^{-2}$
Ra	$2,0 \times 10^{-2}$	$1,0 \times 10^{-2}$	$7,0 \times 10^{-3}$	$3,0 \times 10^{-3}$	$2,5 \times 10^1$	$1,0 \times 10^1$	$1,0 \times 10^1$	$1,0 \times 10^2$	$1,0 \times 10^2$	$3,0 \times 10^{-3}$	$7,0 \times 10^{-4}$	$1,0 \times 10^{-6}$
Th	$6,0 \times 10^{-3}$	$6,9 \times 10^{-4}$	$5,0 \times 10^{-4}$	$1,0 \times 10^{-3}$	$3,0 \times 10^1$	$3,0 \times 10^1$	$3,0 \times 10^3$	$3,0 \times 10^3$	$3,0 \times 10^3$	$5,0 \times 10^{-6}$	$7,0 \times 10^{-4}$	$1,0 \times 10^{-4}$
Pa	$3,0 \times 10^{-3}$	$3,0 \times 10^{-3}$	$3,0 \times 10^{-4}$	$6,0 \times 10^{-4}$	$1,0 \times 10^1$	$1,0 \times 10^1$	$1,0 \times 10^2$	$5,0 \times 10^1$	$5,0 \times 10^1$	$5,0 \times 10^{-6}$	$3,0 \times 10^{-3}$	$1,0 \times 10^{-4}$
U	$4,0 \times 10^{-3}$	$1,2 \times 10^{-3}$	$4,0 \times 10^{-4}$	$8,0 \times 10^{-4}$	5,0	5,0	1,0	$5,0 \times 10^1$	$5,0 \times 10^1$	$2,0 \times 10^{-4}$	$1,0 \times 10^{-2}$	$1,0 \times 10^{-4}$
Np	$3,0 \times 10^{-2}$	$4,0 \times 10^{-4}$	$3,0 \times 10^{-3}$	$6,0 \times 10^{-3}$	$1,0 \times 10^1$	$1,0 \times 10^1$	$1,0 \times 10^1$	$2,0 \times 10^3$	$2,0 \times 10^3$	$5,0 \times 10^{-6}$	$3,0 \times 10^{-3}$	$1,0 \times 10^{-4}$
Pu	$6,7 \times 10^{-4}$	$1,0 \times 10^{-6}$	$1,0 \times 10^{-4}$	$1,0 \times 10^{-3}$	3,5	8,0	3,5	$1,8 \times 10^2$	$1,0 \times 10^3$	$1,0 \times 10^{-7}$	$1,0 \times 10^{-6}$	$1,0 \times 10^{-4}$

* Koncentrationsfaktorn vattenväxter gäller både alger och kräftdjur.

15.6.3 Numerisk approximation

Den numeriska metod som används i modellen, ger möjlighet till kontroll av den osäkerhet, som introduceras genom approximationer i de iterativa processerna. Felanalyser har visat, att osäkerheten i beräknade doser, på grund av numerisk approximation, i förhållande till andra felkällor och osäkerheter är obetydliga /15-8/.

Tabell 15-4. Beräknad konsumtion (i kg eller i liter) per person och år.

Livsmedel	Lokalfall	Regionalfall	Globalfall
Dricksvatten	$4,4 \times 10^2$	$4,4 \times 10^2$	$4,4 \times 10^2$
Mjölk	$1,9 \times 10^2$	$1,9 \times 10^2$	$9,0 \times 10^1$
Kött	$5,5 \times 10^1$	$5,5 \times 10^1$	$2,5 \times 10^1$
Grönsaker	$2,5 \times 10^1$	$2,5 \times 10^1$	$9,0 \times 10^1$
Brödsäd	-	$7,5 \times 10^1$	$1,2 \times 10^2$
Rotfrukter + potatis	-	$7,5 \times 10^1$	$8,0 \times 10^1$
Fisk	$3,0 \times 10^1$	$3,0 \times 10^1$	$1,0 \times 10^1$
Ägg*	$2,0 \times 10^2$	$2,0 \times 10^2$	$5,4 \times 10^1$
Alger + kräftdj	-	-	$1,0 \times 10^1$

* Antal per år.

15.6.4 Variationer i utbytet mellan ekosystemets olika reservoarer

I en modell som skall beskriva den komplicerade omsättningen i biosfären, ingår ett relativt stort antal parametrar, i litteraturen angivna som rekommenderade värden eller intervall. I vissa fall kan spännvidderna i intervallen vara stora.

Via beräkning av statistiska fördelningar kan också en större realism erhållas avseende dos eller belastning och den totala osäkerheten bättre kvantifieras /15-9/. I samband med denna utredning har ett program använts, vilket bygger på Monte Carlo-principen och som i möjligaste mån tar hänsyn till ingående parametrars inbördes beroende. Härigenom har olika parametrars bidrag till den totala osäkerheten kunnat approximativt bestämmas. En beräkning för radium-226-doser via mjölk har genomförts för parametrar som erfarenhetsmässigt är av stor betydelse för beräkningsresultatet. Beräkningarna avser ett fall med bevattning av betesmark.

Om vattenkoncentrationen kan anses vara approximativt konstant, kommer den faktor som beskriver hur stor andel av det dagliga bidraget av radionuklider som återfinns i mjölk att dominera osäkerheten

ca 60%

Därefter följande faktorer, som avser bevattningsintensitet, transport bort från rotzonen samt dosfaktorn med vardera

" 10%

Om däremot vattenkoncentrationen förutsättes variera inom ett bredare intervall, kommer fördelningsfaktorn för mjölk samt vattenkoncentrationen att dominera med vardera " 30%

följt av bevattningsintensiteten, dosfaktorn och transporten bort från rotzonen med vardera " 5%

Beträffande det förstnämnda fallet, för vilket vattenkoncentrationen kunde bedömas vara approximativt konstant, har frekvensfördelning för dosen framtagits med de i BIOPATH använda parametervärdena. Beräkningen visar, att sannolikheten för att i utredningen angivet dosvärde skall komma att underskridas ligger i intervallet 60 - 65%.

Inget mått på den verkliga avvikelser mellan modellprognos och verklighet är möjlig utan att modellprognosen testas mot observationer. Jämförelser har kunnat göras mellan den globala fördelningen av tritium och kol-14 enligt mätningar respektive modellprognos. Se avsnitt 15.6.7.

15.6.5 Variationer i dietsammansättning och upptag via näringskedjor

Den kritiska gruppen skall vara representativ för de individer i befolkningen, som genom sin diet och sina levnadsvanor väntas erhålla högre doser än genomsnittet.

För de flesta nuklider utgör konsumtion av vatten, fisk, mjölk, kött eller grönsaker de dominerande exponeringsvägarna.

Vattenkonsumtionen från lokala källor kan knappast ökas avsevärt utöver antagna 440 l/år. Om den förhållandevis höga konsumtionen av insjöfisk (30 kg/år) skulle halveras, minskas dosen från exempelvis cesium-135 i det närmaste proportionellt. Doserna från radium reduceras däremot med mindre än en tredjedel.

Den kritiska grupp, som exponeras genom användningen av vatten från den primära grundvattenrecipienten, erhåller i allmänhet de högsta doserna.

15.6.6 Dotterprodukter i sönderfallskedjor

I sönderfallskedjor med radioaktiva dotterprodukter beror fördelningen av dotterprodukter mellan olika delar av biosfären till viss del på omsättningsförloppen för modernukliden. Med hänsyn till de relativt betydande dosbidragen är sönderfallskedjorna uran-238 - uran-234 - thorium-230 - radium-226, neptunium-237 - uran-233 - thorium-229 samt uran-235 - protaktinium-231 av särskilt intresse.

Överföringshastigheten mellan jord och grundvattenreservoarer för både modernukliden uran-235 och dotterprodukten protaktinium-231, ger utslag i doserna från protaktinium-231 över exponeringsvägar med grund- eller ytvatten som mellanled.

15.6.7 Jämförelser mot tillstånd och förlopp i naturen

Spridningen av ett ämne i biosfären påverkas av förhållanden som delvis är speciella för ämnet. Allmänt påverkas dock spridningsförloppet i stor skala av rörelserna hos vattnet och luften, som båda utgör viktiga bärare för det radioaktiva utflödet till biosfären. Den radioaktiva isotopen av väte, tritium, följer troget kretsloppet för vattnet genom luft, hav och biota efter det att tritium ingått i en vattenmolekyl.

Den naturliga produktionen av tritium i stratosfären ger mätbara aktivitetsnivåer i biosfären. Simulering av den globala omsättningen av tritium från den naturliga källan i stratosfären har gjorts med kompartmentmodell för biosfären. Jämförelser mellan på detta sätt beräknade och uppmätta jämviktsnivåer av tritium i olika delar av biosfären kan användas som kontroll, på hur väl modellen med antagna rörelser för vatten i atmosfär och hav kan beskriva fördelningen av tritium i naturen. En sådan jämförelse för den globala fördelningen har visat att avvikelser mellan resultat som bygger på mätningar respektive beräkningar, ligger inom en faktor 3 /15-10/. På liknande sätt har jämförelser visat god överensstämmelse mellan prognoser och mätningar för den globala fördelningen av naturligt producerad kol-14 /15-11/.

På den intermediära skalan utgör Östersjön en länk där fallout-nuklider i brackvattensystemet och kända salthaltsgradienter legat till grund för analys av utbyteshastigheten såväl mellan Östersjön och Nordsjön som mellan vatten och sediment.

15.7 LÅNGTIDSPERSPEKTIV PÅ SPRIDNINGEN

15.7.1 Långsiktiga variationer avseende mark och vatten

Beskrivningen av olika recipientområden baseras på förhållanden, som gäller nuläget eller förhållandena i sen tid. I många fall kommer det dock att ta miljoner år innan aktiviteten kommer att kunna nå ytvattnet, och det är förhållandena vid denna tidpunkt, som bör vara utgångspunkt för dosberäkningarna. Antaganden beträffande förhållandena i framtiden kommer dock med naturnödvändighet att vara behäftade med osäkerheter.

Vissa förändringar i yttre förhållanden kan förväntas inträffa under långa tidrymder, exempelvis i

- Klimatet /15-12, 15-13/
- Vattenbalansen /15-14/
- Markanvändningen /15-15/

En radikal påverkan skulle vara uppkomst av inlandsis. Efter det att isen smält, återkommer emellertid sanolikt vegetation, djur och människor och landskapets topografiska huvuddrag kommer förmodligen att förbli desamma. (Jfr avsnitt 8.9)

Vissa sjöar kommer i framtiden att utfyllas och växa igen. Denna process har accelererats under de senaste decennierna på grund av ökad tillförsel av närsalter till floder och sjöar. Detta betyder, att gamla sjöområden kan komma att användas som jordbruksmark eller skogsmark. En gradvis torrläggning av Östersjön kan t ex ge upphov till exponering från torrlagda sediment, som utnyttjas för livsmedelsproduktion. Förändringar av exponeringsvägarna genom torrläggning innebär emellertid ingen väsentlig förändring av årsdoserna. Beräkningar visar att odling av jordbruksprodukter på kontaminerade sediment ger ett dosbidrag av samma storleksordning som det som erhålles genom konsumtion av fisk. /15-16/.

En annan form av förändring av markanvändningen är exploateringen av torv för olika ändamål. Emedan torvmossor finns inom utströmningsområden, skulle de kunna bli recipientområden för utläckande aktivitet i framtiden.

Exposition skulle kunna ske genom att

- torvområde konverteras till jordbruksområde
- torv användes som jordförbättringsmedel eller
- torv användes för förbränning.

Exponeringsvägen via förbränning torde ej för någon nuklid komma att medföra så stor effekt, som om torv användes som jordförbättringsmedel, eller om området med tiden utnyttjas för livsmedelsproduktion.

Den största nutida effekten på det svenska landskapet utgörs för-surningen. Ökad förbränning av fossila bränslen har lett till en ökad förorening av atmosfären, hydrosfären och marken med minskande pH-värden i många av landets sjöar. (Jfr kapitel 7). En annan betydande påverkan är den ökande utlakningen av metaller såsom aluminium, kadmium, zink, bly, järn, kocksilver och radium.

De exponeringsvägar som inkluderas i modellen grundar sig på dietsammansättningen i nuläget. På längre sikt kan emellertid vissa livsmedelsresurser komma att ytterligare exploateras,

främst från haven, och bli betydande i global skala. Hänsyn till detta har tagits vid beräkning av populationsdoser genom att konsumtion av alger och kräftdjur medtagits.

15.8 RESULTAT

Resultatet av BIOPATH-beräkningarna redovisas, i tabell 15-5 som omräkningsfaktorer mellan utsläpp och dos från olika isotoper via de båda initiala recipienterna. I tabell 15-6 redovisas beräkningsresultatet för det sk centrala beräkningsfallet. Samma data visas i kurvform för de dominerande nukliderna vid insjörecipienten i figur 15-2 /15-16/.

Som synes når de mindre fördröjda nukliderna först fram till biosfären (tiden i figur 15-2 är given i år efter kapselgenombrottet vid 100 000 år). Dosen från dessa domineras av jod-129 och cesium-135 ($2 \cdot 10^{-7}$ Sv resp $2 \cdot 10^{-8}$ Sv). Utsläppen av de

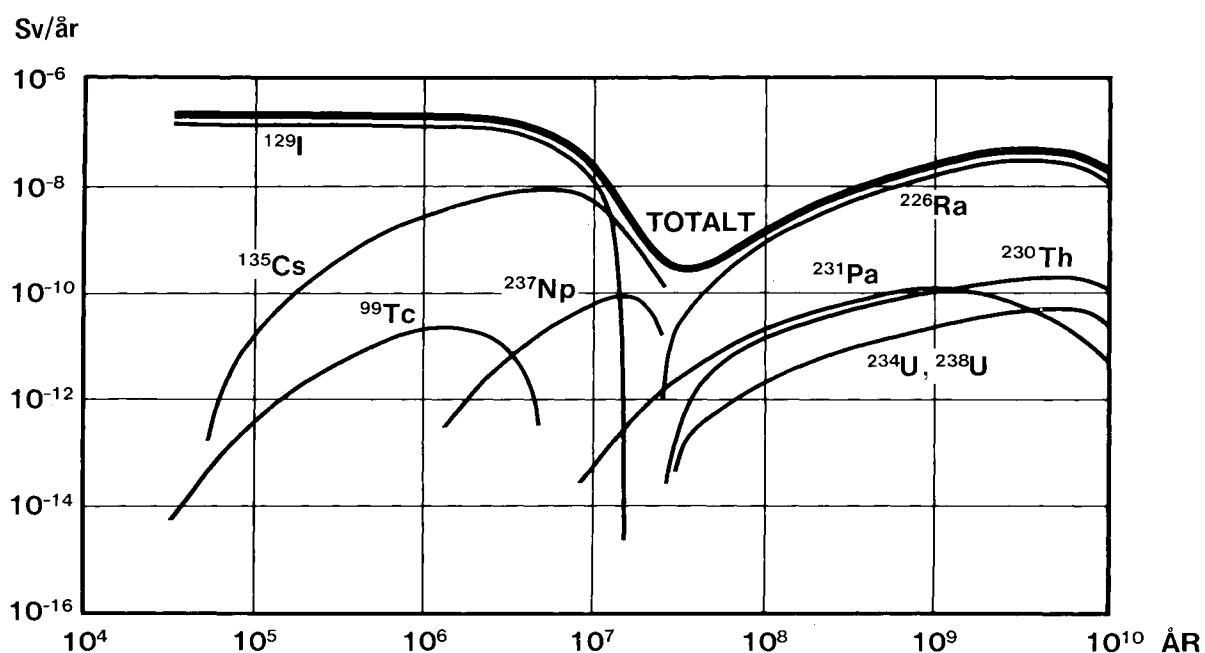
Tabell 15-5. Omräkningsfaktorer mellan utsläpp från geosfären och dos via brunn och insjö, kontinuerligt utsläpp av 1 Bq/år.

Nuklid	Individdos (Sv/år)		Kollektivdos (ManSv/år)
	Brunn	Insjö	
^{93}Zr	$3,4 \times 10^{-15}$	$3,8 \times 10^{-15}$	$1,0 \times 10^{-13}$
^{99}Tc	$7,3 \times 10^{-16}$	$5,5 \times 10^{-16}$	$6,0 \times 10^{-13}$
^{129}I	$1,7 \times 10^{-13}$	$1,6 \times 10^{-13}$	$1,4 \times 10^{-8}$
^{135}Cs	$5,0 \times 10^{-14}$	$5,0 \times 10^{-14}$	$1,9 \times 10^{-12}$
^{226}Ra	$6,1 \times 10^{-13}$	$4,0 \times 10^{-13}$	$3,3 \times 10^{-12}$
^{229}Th	$1,1 \times 10^{-12}$	$7,0 \times 10^{-13}$	$2,9 \times 10^{-11}$
^{230}Th	$1,9 \times 10^{-13}$	$1,9 \times 10^{-13}$	$7,9 \times 10^{-12}$
^{231}Pa	$2,2 \times 10^{-11}$	$1,0 \times 10^{-11}$	$3,3 \times 10^{-11}$
^{233}U	$7,8 \times 10^{-14}$	$4,9 \times 10^{-14}$	$1,9 \times 10^{-11}$
^{234}U	$7,8 \times 10^{-14}$	$4,9 \times 10^{-14}$	$2,0 \times 10^{-11}$
^{235}U	$8,0 \times 10^{-14}$	$3,3 \times 10^{-14}$	$2,6 \times 10^{-10}$
^{236}U	$7,3 \times 10^{-14}$	$4,5 \times 10^{-14}$	$2,3 \times 10^{-10}$
^{238}U	$6,9 \times 10^{-14}$	$4,3 \times 10^{-14}$	$2,4 \times 10^{-10}$
^{237}Np	$1,6 \times 10^{-12}$	$1,1 \times 10^{-12}$	$4,0 \times 10^{-8}$
^{239}Pu	$6,5 \times 10^{-13}$	$2,6 \times 10^{-13}$	$5,0 \times 10^{-13}$
^{242}Pu	$1,2 \times 10^{-13}$	$2,1 \times 10^{-13}$	$4,7 \times 10^{-13}$

Tabell 15-6. Doser från det centrala beräkningsfallets nuklidin-
flöden till biosfären (4 400 kapslar).

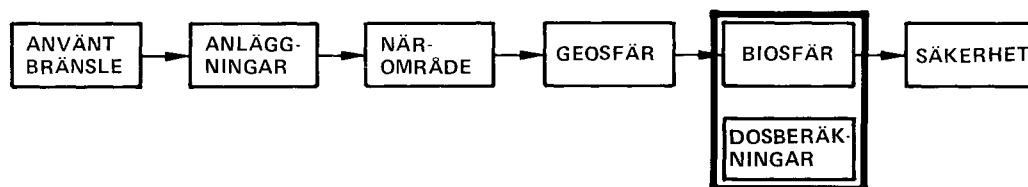
Nuklid	Max ind dos (Sv/år)		Max koll doser (ManSv/år)
	Brunn	Insjö	
^{93}Zr	$3,0 \times 10^{-13}$	$3,0 \times 10^{-13}$	$8,9 \times 10^{-12}$
^{99}Tc	$2,9 \times 10^{-11}$	$2,2 \times 10^{-11}$	$2,5 \times 10^{-8}$
^{129}I	$2,1 \times 10^{-7}$	$1,8 \times 10^{-7}$	$1,0 \times 10^{-2}$
^{135}Cs	$2,2 \times 10^{-8}$	$2,2 \times 10^{-8}$	$1,8 \times 10^{-6}$
^{226}Ra	$1,0 \times 10^{-7}$	$7,4 \times 10^{-8}$	$6,4 \times 10^{-7}$
^{229}Th	$3,0 \times 10^{-10}$	$2,3 \times 10^{-10}$	$8,4 \times 10^{-8}$
^{230}Th	$7,4 \times 10^{-10}$	$8,4 \times 10^{-10}$	$1,4 \times 10^{-7}$
^{231}Pa	$1,2 \times 10^{-9}$	$4,4 \times 10^{-10}$	$1,8 \times 10^{-8}$
^{233}U	$2,2 \times 10^{-11}$	$1,2 \times 10^{-11}$	$1,8 \times 10^{-8}$
^{234}U	$3,0 \times 10^{-10}$	$1,8 \times 10^{-10}$	$1,1 \times 10^{-6}$
^{235}U	$4,1 \times 10^{-12}$	$1,6 \times 10^{-12}$	$1,4 \times 10^{-8}$
^{236}U	$7,4 \times 10^{-13}$	$3,3 \times 10^{-13}$	$2,5 \times 10^{-9}$
^{238}U	$2,7 \times 10^{-10}$	$1,6 \times 10^{-10}$	$1,0 \times 10^{-6}$
^{237}Np	$3,9 \times 10^{-10}$	$3,0 \times 10^{-10}$	$9,2 \times 10^{-6}$

tunga nukliderna domineras av radium-226 vars påverkan fortsätter så länge uranupplösningen pågår. Neptunium-237 dominerar i ett tidigt skede, men dess avklingning medför, att den når sitt maximivärde kring 10 miljoner år efter kapselgenombrottet. Dosen från neptunium-237 är där $3 \cdot 10^{-10}$ Sv.



Figur 15-2. Beräknade doser för centralfallet, 4.400 kapslar och insjörecipient. Tiden är angiven i år efter första kapselgenombrott.

16 STRÅLDOSER OCH HÄLSOEFFEKTER



I detta kapitel redovisas innebörden av olika stråldosbegrepp samt metoder och data för att beräkna dessa. De vid säkerhetsanalyserna utnyttjade sambanden mellan intag och dos redovisas, liksom sambanden mellan dos och effekt på människan.

16.1 ALLMÄNT BETRÄFFANDE DOSBELASTNINGEN

Spridning av radionuklider i biosfären beräknas med matematiska modeller avseende ekosystem på lokal, regional, intermediär och global nivå (se kapitel 15). Människans dietvanor och naturanvändning avgör i vilken mån radionuklidkoncentrationen i olika delar av biosfären ger upphov till doser till människan.

Konsekvenser av spridning av radioaktiva ämnen redovisas i form av

- dos till kritisk grupp (ett begränsat antal individer i närheten av källan) och
- dos till befolkningen - den kollektiva dosen, som avser exponering av delar av eller hela världsbefolkningen.

Den ackumulerade dosen under oändlig tid - dosinteckningen - eller under viss begränsad tid beräknas för ett utsläpp till biosfären.

För en given nuklid kan den maximala dosen till kritisk grupp och den maximala kollektiva årsdosen till befolkningen erhållas vid olika tidpunkter.

16:2

16.2 DOSTYPER

16.2.1 Individdos

Den kritiska gruppen skall enligt den radiologiska definitionen representera ett begränsat antal individer, som kan få högre doser än genomsnittet.

Enligt myndigheternas föreskrifter /16-1/ skall stråldoserna från utsläpp av olika radioaktiva nuklider från en kärnkraftstation beräknas för den grupp av personer, som för varje nuklid bildar en kritisk grupp. Den kritiska gruppen behöver ej nödvändigtvis vara en existerande grupp. Olika nuklider kan ha olika kritiska grupper. För varje nuklid beräknas dosbidraget i den grupp av personer som utgör den kritiska gruppen för just den nukliden. Summan av dessa dosbidrag är sannolikt påtagligt större än dosen till den grupp, som i verkligheten får den högsta stråldosen. Genom att begränsa den totala dosen inför man därför oftast en extra säkerhetsfaktor.

16.2.2 Kollektivdos

Den kollektiva dosen utgör summan av doserna till samtliga individer i en given befolkning.

Beroende bl a på nuklid och tiden efter det att inflödet i biosfären har börjat, dominerar olika befolkningsgrupper den totala kollektiva dosen.

Syftet med att begränsa kollektivdosen är att begränsa den framtida medeldosen - och därmed risken för sena, slumpvisa skadefall.

Modellen för beräkning av omsättningen av radioaktiva ämnen inom och mellan skilda ekosystem ger möjlighet att beräkna kollektivdosen till olika befolkningsgrupper.

16.2.3 Dosinteckning

Begreppet dosinteckning är avsett att användas för uppskattning av den långsiktiga överlagringen av doser från skilda års radioaktiva utsläpp. Integreras de i tiden varierande doserna från ett radioaktivt utsläpp, erhålls dosinteckningen, som avser oändlig tid. Sådana beräkningar har genomförts.

16.3 DATABAS OCH BERÄKNINGSMODELLER

16.3.1 Databas och modellval

Databasen är mycket stor, framför allt de omfattande arbeten som utförs av internationella strålskyddskommissionen (ICRP) och som redovisats i kommissionens publikationer /16-2 till 16-6/.

Transporten av radionuklider i kroppen beskrivs med modeller av kompartmenttyp och med genomsnittliga omsättningshastigheter för friska, vuxna individer.

Sådana modeller har framtagits för beräkning av dos till olika organ:

Dos till lunga

När radioaktiva aerosoler inhaleras, kommer delar av andningsvägarna att bestrålas. Andra organ och vävnader bestrålas samtidigt, såväl från aktivitet i lungorna som från andra vävnader, där inhalerat material inlagrats.

ICRP Task Group on Lung Dynamics /16-7/ har beräknat fördelningen och retentionen av material i andningsvägarna. Denna modell beaktar partikelstorlek och definierar tre retentionsklasser, vilka delvis återspeglar aerosolens kemiska form.

Dos till benvävnad

De celler i skelettet, som anses vara av störst intresse med avseende på bildning av cancer, är lokaliserade till benmärgen eller benytorna (endosteala ytor) samt vissa epitelceller nära benytorna /16 - 8/. För endosteala vävnader och epitelvävnader i anslutning till benytor rekommenderar ICRP, att dosekvivalenten kan beräknas som ett medelvärde över vävnad till ett avstånd av 10 μm från benets yta.

Dos till magtarmkanalen

Modellen är baserad på en biologisk modell, utvecklad av Eve /16-9, 16-10/. För strålskyddsändamål antages magtarmkanalen bestå av fyra sektioner, var och en av dessa sektioner representerad av ett kompartment.

16.3.2 Dosomvandlingsfaktorer enligt ICRP

Efter ett intag av radioaktiva substanser kommer flera organ och vävnader att bestrålas. Organdoser kan räknas om i en ekvivalent helkroppsdos enligt ICRP 26 på så sätt att den totala risken för cancer och ärftliga sjukdomar skall vara mindre än eller lika med risken vid likformig helkroppsbestrålning. Beträffande principen vid viktning av organdoser, se avsnitt 16.3.4.

ICRP har definierat 50 år som längd på den yrkesverksamma tiden. Den totala dosekvivalenten skall alltså integreras över den tiden. Dosekvivalentinteckningen från ett intag av radioaktiva ämnen är den belastning en person får under tiden fram till 50 år efter intaget om inga dosreducerande åtgärder vidtages.

Beräkningarna tar hänsyn såväl till dosbidrag till följd av strålning i det aktuella organet, som till dosbidrag i organ och vävnader på större avstånd inom kroppen.

För individer i radiologiskt arbete är den högsta tillåtliga ekvivalenta helkropps-dosen 50 mSv per år. Detta syftar till begränsning av stokastiska, slumpvis uppträdande effekter.

Dosekvivalentinteckningen inkluderar även dosinteckningen från varje dotternuklid som produceras av modernukliden i kroppen. Det antas vanligen att en dotternuklid metaboliskt uppför sig som modernukliden.

För varje radionuklid och för olika kemiska former har en sekundär standard framtagits i ICRP 30, s k ALI-värden (Annual Limit of Intake), som begränsar intag genom förtäring och genom inandning. Värden har vidare härletts med avseende på gränssättande luftkoncentration, s k DAC-värden. (Derived Air Concentration.)

16.3.3 Åldersberoende

De viktningsfaktorer som används vid beräkning av effektiv dosekvivalent, har härletts för vuxna individer med standardisering av flera åldersberoende faktorer. ICRP har dock antytt att dessa värden - i brist på bättre information - får användas även för barn /16-5/.

Samtliga ALI- och DAC-värden avser emellertid personer i radiologiskt arbete och måste användas med försiktighet för andra ändamål.

Åldersberoende för den absorberade dosen och dosekvivalentinteckningen har studerats /16-11/. Nedanstående är en kort resultat-sammanfattning.

Barn och nyfödda

Joniserande gamma-strålning med en energi större än 10 keV från ett organ kommer att bestråla även andra organ. För barn, vars kroppsstorlek är mindre, kommer strålningen att nå flera organ än vad som är fallet för vuxna, vilket medför ökad absorberad dos i dessa organ.

Å andra sidan är barns intag av livsmedel och vatten mindre än vuxnas och samtidigt är barns metabolism ofta snabbare, vilket medför att aktiviteten elimineras snabbare än för vuxna. Ökningen av absorberad dos hos barn på grund av kroppsstorleken är sålunda till viss del kompenserad genom dessa effekter.

Vid beräkning av den dosekvivalentinteckning som uppstår genom intag tidigt under livscykeln, måste den längre förväntade livstiden för barn beaktas. För nuklider med lång biologisk och fysikalisk retentionstid är det därför vanligen ej tillräckligt att integrera till 50 år, utan en integrationstid av 70 år bör tillämpas.

För teknetium-99 och jod-129 kan man förvänta en signifikant skillnad i dosekvivalentinteckningen beroende på olikheter i kroppsstorlek. Denna differens kan grovt uppskattas till ca en faktor 10 för en nyfödd individ jämfört med en vuxen. För radium och vissa aktinider har kroppsstorleken endast mindre inverkan på dosekvivalentinteckningen. En betydelsefull faktor för vissa aktinider är det större upptaget via magtarmkanalen hos nyfödda barn.

Hela befolkningen

Vid beräkning av konsekvenserna av ett eventuellt utsläpp av radionuklider till biosfären bör således hänsyn tas till åldersberoende, upptag och 70 års integrationstid vid beräkning av doserna.

För att därutöver ta hänsyn till nya data som framkommit, har en genomgång gjorts av dosomvandlingsfaktorerna för de för slutförvaring intressanta nukliderna /16-11/.

Tabell 16-1 summerar de härvid erhållna värdena.

Begränsande vävnad för samtliga isotoper utom teknetium-99 och jod-129 är benvävnaden. Teknetium fördelas jämnt i kroppen varför helkropps dosen själv är begränsande, jod har sköldkörtel som begränsande vävnad.

Skillnaderna i tabellen föranleds främst av följande ändringar:

²³⁹Pu Nya data för upptag via mag-tarmkanalen samt ändringsförslag till ICRP.

Tabell 16-1 Intecknad dosekvivalent till begränsande vävnad och effektiv dosekvivalent per enhetsintag (Sv Bq^{-1}).
Värdena i denna rapport har integrerats under 70 år, ICRP 30-värdena under 50 år.

Nuklid	Värden i denna rapport		ICRP-30	
	Begränsande vävnad	Effektiv dosekv	Begränsande vävnad	Effektiv dosekv
^{239}Pu (löslig)	$1,4 \times 10^{-5}$	$7,0 \times 10^{-7}$	$2,1 \times 10^{-6}$	$1,2 \times 10^{-7}$
^{239}Pu (olöslig)	$2,7 \times 10^{-7}$	$1,4 \times 10^{-8}$	$2,1 \times 10^{-7}$	$1,2 \times 10^{-8}$
^{237}Np	$2,5 \times 10^{-5}$	$1,2 \times 10^{-6}$	$1,9 \times 10^{-4}$	$1,1 \times 10^{-5}$
^{226}Ra	$7,5 \times 10^{-6}$	$3,3 \times 10^{-7}$	$6,8 \times 10^{-6}$	$3,1 \times 10^{-7}$
^{230}Th	$4,1 \times 10^{-6}$	$1,6 \times 10^{-7}$	$3,6 \times 10^{-6}$	$1,5 \times 10^{-7}$
^{231}Pa	$5,5 \times 10^{-4}$	$2,2 \times 10^{-5}$	$7,2 \times 10^{-5}$	$2,9 \times 10^{-6}$
^{99}Tc	-	$3,4 \times 10^{-10}$	-	$3,4 \times 10^{-10}$
^{129}I	$3,3 \times 10^{-6}$	$9,8 \times 10^{-8}$	$2,5 \times 10^{-6}$	$7,4 \times 10^{-8}$

^{237}Np Nya data för upptag via mag-tarmkanalen. En sådan möjlig reduktion har även angivits i ICRP 30 för spårämneskvantiteter av ämnet.

^{231}Pa En sammanvägning av befintligt underlagsmaterial.

För de nuklider där dosomräkningsfaktorerna inte specialgranskats har ICRPs värden använts.

16.3.4 Övriga antaganden

Linjärt dos/effektsamband

Ett av de grundläggande antagandena bakom ICRPs rekommendationer är, att ett linjärt samband existerar - utan tröskelvärde - mellan dos och sannolikheten för en skadlig effekt. Se avsnitt 16.4.1

Detta är skälet till att man kan summera doser, som erhålles i olika vävnader eller organ och av detta få ett mått på den totala risken. Motsvarande gäller användningen av kollektivdos som index på den totala menliga strålningseffekten i befolkningen.

"Effektiv" eller "viktad" helkroppsdos

I tidigare rekommendationer har ICRP använt begreppet "kritiskt organ" och dosgränsen för individen bestämdes av dosgränsen för detta organ. ICRP rekommenderar numera istället en procedur, som tar hänsyn till den totala risken till följd av exposition av alla vävnader. Sålunda har begreppet "viktad" eller "effektiv" helkroppsdos införts. Syftet därmed är att få en möjlighet att summera doser till olika organ och normalisera risken till ett enda representativt tal. Risken kan då beräknas på samma sätt oavsett om hela kroppen eller något specifikt organ bestrålas.

Värdet av den viktningsfaktorn, som för olika organ rekommenderas av ICRP, framgår av nedanstående tabell:

Vävnad	Viktningsfaktor
Gonader	0,25
Bröst	0,15
Röd benmärg	0,12
Lungvävnad	0,12
Sköldkörtel	0,03
Benvävnad	0,03
5 därnäst högst bestrålade organ	0,30/5

16.4 EFFEKTER AV JONISERANDE STRÅLNING

16.4.1 Hälsoeffekter

Den joniserande strålningen absorberas i kroppsvävnader och ger på så vis stråldoser. Strålningen kommer antingen från radioaktiva ämnen som sönderfaller i kroppen - intern bestrålning - eller från ämnen i omgivningen, extern bestrålning.

Akuta skador

Vid mycket höga stråldoser av storleken 1 Sv eller mer uppträder akuta skador genom att många celler i känsliga vävnader påverkas eller dör. De blodbildande vävnaderna är vanligen mest kritiska. Känsligheten varierar, men omkring en av tio som fått 2 Sv till hela kroppen under kort tids bestrålning löper risk att dö inom ett par månader om inte medicinsk vård sätts in. Dödligheten av akut strålskada ökar snabbt med stigande doser över 2 Sv, men risken är obetydlig vid stråldoser under 1,5 Sv.

Foster är betydligt känsligare för joniserande strålning än vuxna människor. Det finns begränsad erfarenhet från bestrålning av foster, dels från kärnvapensprängningarna över Hiroshima och

Nagasaki, dels från medicinskt föranledda bestrålningar. Materialet är ganska litet och man får även förlita sig på studier gjorda med försöksdjur. Den eventuella gränsdosen för fosterskador är svår att säkert fastställa med nuvarande kunskaper. Den radiologiska riskbedömningen har gjort att man i Sverige rekommenderar abort för en gravid kvinna vid medicinsk behandling först om hon bestrålas så att fostret fått mer än 0,1 Sv. Risken är avhängig av fostrets ålder.

De akuta strålskadorna betecknas ibland i strålskyddssammanhang för icke-stokastiska och gränsdosen för beaktande av dessa sätts för de flesta organ till 0,5 Sv per år för radiologiskt verksam personal.

Sena skador

Små stråldoser ger obetydliga risker för akuta strålskador, men kan leda till sena hälsoeffekter hos den bestrålade individen eller hos dess avkomma.

Den kvantitativt viktigaste sena effekten förorsakad av joniserande strålning är troligen cancer. För cancer-riskbedömningar har man samband, som är relativt väl underbyggda från epidemiologiska undersökningar av bestrålade människor, framför allt överlevande i Hiroshima och Nagasaki samt personer som bestrålats för vissa, icke dödliga sjukdomar. Det rör sig dock mest om effekter vid förhållandevis höga doser.

Ur strålskyddssynpunkt är det viktigt hur sambandet mellan stråldos och risk för cancer ser ut vid mycket låga doser. Dock finns det inom detta lågdosintervall endast ett fåtal undersökningar som ger möjlighet till riskbedömningar.

Det internationella strålskyddsorganet ICRP rekommenderar normer för strålskyddet baserade på en riskfilosofi som innebär att risken ökar i direkt proportion till den absorberade dosen, dvs ett linjärt dos-risk-samband utan tröskel. Andra samband har diskuterats och det har framhållits, att den verkliga risken vid låga doser kan vara avsevärt lägre än vad ett linjärt dos-risk-samband utsäger.

I USA har nyligen en kommitté under det nationella forskningsrådet (Committee on the Biological Effects of Ionizing Radiation) framlagt en rapport, som lämnar möjligheten öppen att bedöma riskerna med antaganden om linjärt, kvadratisk eller linjär-kvadratisk beroende av stråldosen.

Vår svenska strålskyddsmyndighet utgår - liksom ICRP - från att sambandet mellan dos och risk är linjärt.

Det har visats, att joniserande strålning ger märkbara genetiska effekter hos virus, bakterier, svampar, insekter och vissa däggdjur, t ex möss. Man har däremot inte kunnat visa på förhöjningar av ärftliga skador hos bestrålade människor, inräknat den stora befolkningen som överlevde med relativt höga stråldoser i Hiroshima och Nagasaki. Det har ganska säkert inducerats ett antal mutationer, men problemet är av statistisk natur. De kan inte urskiljas från de större antalen normalt förekommande genetiska förändringarna i en befolkning.

Det förefaller också klart, att ur skadesynpunkt - även om man integrerar över ett stort antal generationer - är de genetiska riskerna inte större än cancer-riskerna.

16.4.2 Riskfaktorer avseende organ och vävnader

Riskfaktorerna för olika vävnader baseras på beräknade sannolikheter för vissa allvarliga livshotande sjukdomstillstånd - främst cancer - dvs stokastiska (slumpmässiga) förändringar eller påtagliga genetiska defekter som kan uppträda hos avkomman /16-5, 16-12/. Se tabell 16-2.

Tabell 16-2. Riskfaktorer givna av ICRP gällande för exposition i radiologiskt arbete.

Organ eller vävnad	Riskfaktor Sv^{-1}	Effekt
Gonader	0,01	Ärftliga effekter i de två första generationerna
Röd benmärg	0,002	Leukemi, dödlig utgång
Ben	0,0005	Skelettcancer, ---
Lunga	0,002	Lungcancer, ---
Sköldkörtel	0,0005	Sköldk cancer, ---
Bröst	0,0025	Bröstcancer, ---
Varje annan enskild vävnad	<0,001	Cancer, ---
Övriga vävnader, sammanlagt	0,005	Cancer, ---
Homogen helkroppsbestrålning	0,01	" ---
---	0,004	Ärftliga effekter inom de två första generationerna
---	0,008	Ärftliga effekter inom samtliga generationer

Tabell 16-3. Dosomvandlingsfaktorer (Sv/Bq) för inhalation resp intag av föda.

Nuklid	Inhalation	Ingestion
⁹³ Zr	8,6x10 ⁻⁹	4,2x10 ⁻¹⁰
⁹⁹ Tc	2,0x10 ⁻⁹	3,4x10 ⁻¹⁰
¹²⁶ Sn	2,3x10 ⁻⁸	4,7x10 ⁻⁹
¹²⁹ I	4,7x10 ⁻⁸	9,8x10 ⁻⁸
¹³⁵ Cs	1,2x10 ⁻⁹	1,9x10 ⁻⁹
²²⁶ Ra	2,6x10 ⁻⁶	3,3x10 ⁻⁷
²²⁹ Th	5,7x10 ⁻⁴	9,4x10 ⁻⁷
²³⁰ Th	8,6x10 ⁻⁵	1,6x10 ⁻⁷
²³¹ Pa	3,4x10 ⁻⁴	2,2x10 ⁻⁵
²³³ U	3,6x10 ⁻⁵	7,2x10 ⁻⁸
²³⁴ U	3,6x10 ⁻⁵	7,1x10 ⁻⁸
²³⁶ U	3,4x10 ⁻⁵	6,7x10 ⁻⁸
²³⁸ U	3,2x10 ⁻⁵	6,3x10 ⁻⁸
²³⁷ Np	1,3x10 ⁻⁴	1,2x10 ⁻⁶
²³⁹ Pu	1,4x10 ⁻⁴	7,0x10 ⁻⁷
²⁴² Pu	1,3x10 ⁻⁴	1,1x10 ⁻⁷

ICRP har introducerat begreppet "detriment" för att identifiera och kvantifiera skadeeffekten. Generellt är detriment i en befolkning definierat som matematiskt väntevärde för en skada som kan uppstå av bestrålning. Man tar därvid både hänsyn till sannolikheten av varje skadlig effekt och till svårighetsgraden.

Enligt definition av "detriment" är skadan proportionell mot värdet av kollektivdosen. Giltigheten av denna relation mellan detriment och kollektivdos är beroende av giltigheten hos antagandet om linearitet - utan tröskelvärde - mellan risk och dos. ICRP har framhållit, att detta är ett försiktigt antagande.

16.5

REFERENSDATA

Vid beräkningen av den dos som förorsakats av utsläpp av radioaktiva ämnen från ett slutförvar har i tabell 16-3 givna faktorer använts för omvandling av intag till dos.

REFERENSER

KAPITEL 9

- 9-1 PUSCH R
Swelling Pressure of Highly Compacted Bentonite.
University of Luleå.
KBS TR 80-13, 1980-08-20.
- 9-2 PUSCH R
Use of Clays as Buffers in Radioactive Repositories.
University of Luleå
KBS TR 83-46, May 1983.
- 9-3 PUSCH R
Permeability of Highly Compacted Bentonite.
University of Luleå.
KBS TR 80-16, 1980-12-23.
- 9-4 PUSCH R
Stability of Deep-Sited Smectite Minerals in Crystalline Rock -
Chemical Aspects. KBS TR 83-16, March 1983.
- 9-5 ANDERSON D M
Smectite Alteration, Proceedings of a Colloquium at State Univer-
sity of New York at Buffalo, May 26-27 1982.
State University of New York at Buffalo.
KBS TR 83-03, February 15, 1983.
- 9-6 PUSCH R, ERIKSEN T, JACOBSSON A
Ion/Water Migration Phenomena in Dense Bentonites. Proc. Scienti-
fic Basis for Radioactive Management, Berlin 1982, Elsevier Publ
Co. (Werner Lutze Ed).
- 9-7 ERIKSEN T E, JACOBSSON A
Diffusion of Hydrogen, Hydrogen Sulfide and Large Molecular
Weight Anions in Bentonite.
Royal Institute of Technology, Stockholm, University of Luleå.
KBS TR 82-17, 1982-07-02.

R:2

- 9-8 PUSCH R
Stress/Strain/Time Properties of Highly Compacted Bentonite.
University of Luleå.
KBS TR 83-47, May 1983.
- 9-9 PUSCH R
Stability of Bentonite Gels in Crystalline Rock-Physical
Aspects.
University of Luleå.
KBS TR 83-04, February 1983.
- 9-10 PUSCH R, BÖRGESSON L, NILSSON J
Buffer Mass Test - Buffer Materials
University of Luleå, AB Jacobson & Widmark.
STRIPA PROJECT TR 82-06, August 1982.
- 9-11 KNUTSSON S
Värmeledningsförsök på buffertsubstans av kompakterad bentonit.
Högskolan i Luleå.
KBS TR 72, 1977-11-18.
- 9-12 PUSCH R, NILSSON J
Buffer Mass Test - Rock Drilling and Civil Engineering.
University of Luleå, AB Jacobson & Widmark
STRIPA PROJECT TR 82-07, September 1982.
- 9-13 PUSCH R
Borehole Sealing With Highly Compacted Na Bentonite.
University of Luleå.
KBS TR 81-09, 1981-12-07.

KAPITEL 10

- 10-1 LÖNNERBERG B, LARKER H, AGESKOG L
Encapsulation and Handling of Spent Nuclear Fuel for Final Disposal.
1. Welded Copper Canisters
2. Pressed Copper Canisters (HIPOW)
3. BWR Channels in Concrete
ASEA-ATOM, ASEA, VBB
KBS TR 83-20, May 1983
- 10-2 SANDERSSON A, SZLUKA T F, TURNER J
Feasibility Study of EB Welding of Spent Nuclear Fuel Canisters
Welding Institute Cambridge UK
KBS TR 83-25, April 1983
- 10-3 TEKNISKA RÖNTGENTRALEN AB
Feasibility Study of Detection of Defects in Thick Welded Cop-
per.
KBS TR 83-32, April 1983

- 10-4 KJELLBERT N
Nuklidhalter i använt LWR-bränsle och i högaktivt avfall från återcykling av plutonium i PWR.
Studsvik Energiteknik AB
KBS TR-111, July 1978
- 10-5 The Swedish Corrosion Research Institute and its Reference Group
Corrosion Resistance of a Copper Canister for Spent Nuclear Fuel.
KBS TR 83-24, April 1983
- 10-6 WIKBERG P, GRENTHE I, AXELSEN K
Redox Conditions in Groundwaters from Svartboberget, Gideå, Fjällveden and Kamlunge.
Royal Institute of Technology
KBS TR 83-40, April 1983
- 10-7 BENJAMIN L A, HARDIE D, PARKINS R N
Investigation of the Stress Corrosion Cracking of Pure Copper
University of Newcastle upon Tyne, UK
KBS TR 83-06, April 1983

KAPITEL 11

- 11-1 EKLUND U-B, FORSYTH R
Lakning av bestrålat UO_2 -bränsle.
Studsvik Energiteknik AB
KBS TR-70, Feb 1978
- 11-2 FORSYTH R
The KBS UO_2 Leaching Program
Summary Report: 1983-02-01
Studsvik Energiteknik AB
Studsvik/NF(P)-83/11
- 11-3 VANDEGRAAF T T
Leaching of Irradiated UO_2 Fuel
Atomic Energy of Canada Limited (AECL)
TR-100 (1980)
- 11-4 JOHNSON L H, SHOESMITH D W, LUNANSKY G E, BAILEY M G, TREMAINE P R
Mechanisms of Leaching and Dissolution of UO_2 Fuel.
Nucl Techn, 56 (1982) 238
- 11-5 JOHNSON L H
The Dissolution of Irradiated UO_2 Fuel in Groundwater
Atomic Energy of Canada Limited (AECL).
AECL-6837 (1982)

R:4

- 11-6 JOHNSON L H, BURNS K I, JOLING H, MOORE C L
The Dissolution of Irradiated UO₂ Fuel under Hydrothermal Conditions
Atomic Energy of Canada Limited (AECL)
TR-128 (1981)
- 11-7 KATAYAMA Y B
Spent LWR Fuel Leach Tests
Battelle Pacific Northwest Laboratory (PNL).
PNL-2982 (1979)
- 11-8 KATAYAMA Y B, BEADLEY D J, HARVEY C O
Status Report on LWR Spent Fuel IAEA Leach Tests
Batelle Pacific Northwest Laboratory (PNL).
PNL-3173 (1980)
- 11-9 OGARD A E, BENTLEY G, BRYANT E, DUFFY C J, GRISHAM J, NORRIS A E,
ORTH C, THOMAS K
Are Solubility Limits of Importance to Leaching?
in: The Scientific Basis of Nuclear Waste Management 3.
Ed.: John Moore
Plenum 1981.
- 11-10 WANG R
Spent-Fuel Special Studies Progress Report: Probable Mechanisms
for Oxidation and Dissolution of Single-Crystal UO₂ Surfaces
Battelle Pacific Northwest Laboratory (PNL).
PNL-3566 (1981)
- 11-11 JOHNSON L H, JOLING H H
The Dissolution of Irradiated Fuel under Hydrothermal Conditions.
in: The Scientific Basis of Nuclear Waste Management IV.
Ed.: Stephen V Topp
Elsevier 1982
- 11-12 GRENTHE I, PUIGDOMENECH I, BRUNO J B
The Possible Effects of Alfa and Beta Radiolysis on the Matrix
Dissolution of Spent Nuclear Fuel
Royal Institute of Technology
KBS TR 83-02, January 1983
- 11-13 PAQUETTE J, LEMIRE R J
A Description of the Chemistry of Aqueous Solutions of Uranium
and Plutonium to 200°C Using Potential-pH Diagrams.
Nucl Sci Eng 79 (1981)26

KAPITEL 12

- 12-1 AHRLAND S, LILJENZIN J O, RYDBERG J
Solution Chemistry of the Actinides, Comprehensive.
Inorganic Chemistry Vol 5, Pergamon Press, Oxford 1973

- 12-2 GREENTHE I, FERRI D
Actinide Species in Groundwater Systems.
Proc OECD Workshop on NEAR-field Phenomena in Geologic Repositories for Radioactive Waste, Seattle 1981, p 93
- 12-3 ALLARD B
Solubilities of Actinides in Neutral or Basic Solutions.
Actinides in Perspective (Ed N M Edelman), Pergamon Press, New York 1982, p 553
- 12-4 ALLARD B
Actinide Solution Equilibria and Solubilities in Geochemical Systems.
Chalmers University of Technology
KBS TR 83-35, April 1983
- 12-5 LANGMUIR D, HERMAN J S
The Mobility of Thorium in Natural Waters at Low Temperatures.
Geochim Cosmochim Acta 44(1980) 1753
- 12-6 LANGMUIR D
Uranium Solution-Mineral Equilibria at Low Temperatures with Application to Sedimentary Ore Deposits.
Geochim Cosmochim Acta 42(1978) 547
- 12-7 PAQUETTE J, LEMIRE R J
A Description of the Chemistry of Aqueous Solutions of Uranium and Plutonium to 200°C using Potential-pH Diagrams.
Nuclear Sci Eng 79(1981) 26
- 12-8 POURBAIX M
Atlas of Electrochemical Equilibria in Aqueous Solutions.
Pergamon Press, Oxford 1966
- 12-9 BAES C F, MESMER R F
The Hydrolysis of Cations
John Wiley and Sons, New York 1976
- 12-10 ANDERSSON K, TORSTENFELT B, RYDBERG J
Leakage of Niobium-94 from an Underground Rock Repository.
Chalmers University of Technology
KBS TR 79-26, 1979-11-05
- 12-11 ANDERSSON K, NERETNIEKS I
Utläckning av Ni-59 från ett bergförvar.
Kungl Tekniska Högskolan.
KBS TR 101, 1978-04-24
- 12-12 ALLARD B, TORSTENFELT B
On the Solubility of Technetium in Geochemical Systems.
Chalmers University of Technology
KBS TR 83-60, May 1983

- 12-13 ALLARD B, TORSTENFELT B, ANDERSSON K, RYDBERG J
Possible Retention of Iodine in the Ground.
2nd International Symposium on the Scientific Basis for Nuclear
Waste Management, Boston, November 1979, Proceedings Plenum
1980, p 673
- 12-14 STARIK I E
Grundlagen der Radiochemie
Akademie-Verlag, Berlin 1963
- 12-15 KEPAK F
Adsorption and Colloidal Properties of Radioactive Elements in
Trace Concentrations.
Chemical Rev 71 (1971) 357
- 12-16 JOHNSON G L, TOTH L M
Plutonium(IV) and Thorium(IV) Hydrous Polymer Chemistry.
Oak Ridge Nat Lab
ORNL/TM-6365, 1978
- 12-17 OLOFSSON U, ALLARD B, BENGTSSON M, TORSTENFELT B, ANDERSSON K
Formation and Properties of Actinide Colloids.
Chalmers University of Technology
KBS TR 83-08, January 1983
- 12-18 OLOFSSON U, ALLARD B
Complexes of Actinides with Naturally Occurring Organic Substan-
ces - Literature Survey.
Chalmers University of Technology
KBS TR 83-09, February 1983
- 12-19 MARINSKY J
The Complexation of Eu(III) by Fulvic Acid.
State University of New York at Buffalo
KBS TR 83-14, 1983-03-31
- 12-20 MAYA L
Hydrolysis and Carbonate Complexation of Dioxoneptunium(V) in
1,0 M NaClO₄ at 25°C.
Inorg Chim Acta, 1983, under tryckning
- 12-21 OSMOND J K, COWART J B
The Theory and Uses of Natural Uranium Isotopic Variations in Hy-
drology.
Atomic Energy Rev 14(1976) 621
- 12-22 BENES P, MAJER V
Trace Chemistry of Aqueous Solutions.
Elsevier, Oxford 1980

- 12-23 ALLARD B, ANDERSSON K, TORSTENFELT B
The Distribution Coefficient Concept and Aspects on Experimental
Distribution Studies.
Chalmers University of Technology
KBS TR 83-62, May 1983
- 12-24 BIRGERSSON L, NERETNIEKS I
Diffusion in the matrix of Granitic Rock. Field Test in the Stri-
pa Mine.
Royal Institute of Technology
KBS TR 82-08, July 1982
- 12-25 LANDSTRÖM O, KLOCKARS C E, PERSSON O, ANDERSSON K, TORSTENFELT B,
ALLARD B, TULLBORG E-L, LARSON S Å
Migration Experiments in Studsvik.
Studsvik Energiteknik AB, Swedish Geological, Chalmers Universi-
ty of Technology.
KBS TR 83-18, 1983-01-31
- 12-26 ALLARD B, KIPATSI H, RYDBERG J
Sorption of Long-Lived Radionuclides in Clay and Rock. I.
KBS TR 55, 1977
- 12-27 ERDAL B R, AGUILAR R D, BAYHURST B P, DANIELS W R, DUFFY C J,
LAWRENCE F O, MAESTAS S, OLIVER P Q, WOLFSBERG K
Sorption-Desorption Studies on Granite.
Los Alamos Sci Lab
LA-7456-MS, 1979
- 12-28 ALLARD B
Sorption of Actinides in Granitic Rock.
Chalmers University of Technology
KBS TR 82-21, 1982-11-20
- 12-29 ALLARD B, OLOFSSON U, TORSTENFELT B, KIPATSI H
Sorption Behaviour of Actinides in Well-defined Oxidation Sta-
tes.
Chalmers University of Technology
KBS TR 83-61, May 1983
- 12-30 ANDERSSON K, ALLARD B
Sorption of Radionuclides on Geologic Media - A Literature Sur-
vey.
I: Fission Products
Chalmers University of Technology
KBS TR 83-07, January 1983
- 12-31 ANDERSSON K, TORSTENFELT B, ALLARD B
Sorption of Radionuclides in Geologic Systems.
Chalmers University of Technology
KBS TR 83-63, May 1983

R:8

- 12-32 ALLARD B, KIPATSI H, TORSTENFELT B
Sorption of Long-lived Radionuclides in Clay and Rock. II.
Chalmers University of Technology
KBS TR 98, 1978-04-20
- 12-33 SHEPPARD J C, CAMPBELL M J, KITTRICK J A, HARDT T L
Retention of Neptunium, Americium and Curium by Diffusible Soil
Particles.
Environmental Sci & Techn 13 (1979) 680
- 12-34 EISENBUD M, LEI W, BALLAD R, PENNA FRANCA E, MIEKELEY N, CULLEN T,
KRAUSKOPF K
Studies of the Mobilization of Thorium from Morro do Ferro.
5th International Symposium on the Scientific Basis for Nuclear
Waste Management, Berlin, June 1982. Proceedings Elsevier 1982
- 12-35 YAMAMOTO M, TANII T, SAKANOUÉ M
Characteristics of Fall-out Plutonium in Soil
Journ Radiation Res 22 (1981) 134
- 12-36 BONDIETTI E A, REYNOLDS S A, SHANKS M H
Interaction of Plutonium with Complexing Substances in Soils and
Natural Waters.
IAEA-SM-199/51

KAPITEL 13

- 13-1 Korrosionsinstitutet och dess referensgrupp: Koppar som
kapslingsmaterial för icke upparbetat kärnbränsleavfall - bedöm-
ning ur korrosionssynpunkt.
KBS TR 90, 1978-03-31
- 13-2 PERRY R H, CHILTON C H
Chemical Engineers Handbook
5th Ed McGraw Hill 1973 Kapitel 3
- 13-3 NERETNIEKS I, SKAGIUS K
Diffusivitetmätningar av metan och väte i våt lera.
Kungl. Tekniska Högskolan
KBS TR 86, 1978-01-09
- 13-4 NERETNIEKS I, SKAGIUS K
Diffusivitetmätningar i våt lera av Na-lignosulfonat, Sr^{2+} ,
 Cs^{+}
Kungl. Tekniska Högskolan
KBS TR 87, 1978-03-16
- 13-5 ERIKSEN T
Diffusion of Hydrogen, Hydrogen Sulfide and Large Molecular We-
ight Anions in Bentonite
Royal Institute of Technology
KBS TR 82-17, 1982-07-02

- 13-6 ERIKSEN T, JAKOBSSON A
Ion Diffusion Through Highly Compacted Bentonite
Royal Institute of Technology, University of Luleå.
KBS TR 81-06, 1981-04-29
- 13-7 ERIKSEN T, JACOBSSON A
Ion Diffusion in Compacted Sodium and Calcium Bentonites
Royal Institute of Technology, University of Luleå
KBS TR 81-12, February 1982
- 13-8 TORSTENFELT B, ANDERSSON K, KIPATSI H, ALLARD B, OLOFSSON U
Diffusion Measurements in Compacted Bentonite
Scientific Basis for Nuclear Waste Management, Vol 4, Elsevier N
Y 1982
- 13-9 TORSTENFELT B, KIPATSI H, ANDERSSON K, ALLARD B, OLOFSSON U
Transport of Actinides through a Bentonite Backfill
Scientific Basis for Nuclear Waste Management, Vol 5, Elsevier
North-Holland N Y 1982
- 13-10 NERETNIEKS I
Diffusivities of some Dissolved Constituents in Compacted Wet
Bentonite Clay-MX80 and the Impact on Radionuclide Migration in
the Buffer
Royal Institute of Technology
KBS TR 82-27, October 1982
- 13-11 NERETNIEKS I
Transport of Oxidants and Radionuclides through a Clay Barrier
Royal Institute of Technology
KBS TR 79, 1978-02-20
- 13-12 ANDERSSON G, RASMUSON A, NERETNIEKS I
Migration Model for the Near Field
Royal Institute of Technology
KBS TR 82-24, November 1982
- 13-13 NERETNIEKS I
Retardation of Escaping Nuclides from a Final Repository
Royal Institute of Technology
KBS TR 30, 1977-09-14
- 13-14 SNOW D T
Rock Fracture Spacings, Openings and Porosities.
J Soil Mech Found, Div Amer Soc Civ Eng 94, SM1(1968) 73-91
- 13-15 NERETNIEKS I
Leach Rates of High Level Waste and Spent Fuel - Limiting Rates
as Determined by Backfill and Bedrock Conditions
Paper presented at the 5th International Symposium on the Scien-
tific Basis for Nuclear Waste Management
Berlin 1982 June Proceedings North-Holland 1982 p 559- 568

R:10

- 13-16 CHRISTENSEN H, BJERGBAKKE E
Radiolysis of Groundwater from HLW Stored in Copper Canisters
Studsvik Energiteknik AB
KBS TR 82-02, 1982-06-29
- 13-17 CHRISTENSEN H, BJERGBAKKE E
Radiolysis of Ground Water from Spent Fuel
Studsvik Energiteknik AB
KBS TR 82-18, November 1982
- 13-18 CURTIS D, GANCARZ A
Radiolysis in Nature: Evidence from the Oklo Natural Reactors
KBS TR 83-10, February 1983
- 13-19 GRENTHE I, PUIGDOMÈNECH I, BRUNO J
The Possible Effects of Alfa and Beta Radiolysis on the Matrix
Dissolution of Spent Nuclear Fuel
Royal Institute of Technology
KBS TR 83-02, January 1983
- 13-20 TORSTENFELT B, ALLARD B, ITTNER T
Iron Content and Reducing Capacity of Granite and Bentonite
Chalmers University of Technology
KBS TR 83-36, April 1983
- 13-21 NERETNIEKS I
The Movement of a Redox Front Downstream from a Repository for
Nuclear Waste
Royal Institute of Technology
KBS TR 82-16, April 1982
- 13-22 NERETNIEKS I, ÅSLUND B
The Movement of Radionuclides Past a Redox Front
Royal Institute of Technology
KBS TR 83-66, May 1983
- 13-23 NERETNIEKS I, ÅSLUND B
Two Dimensional Movement of a Redox Front Downstream from a Repo-
sitory for Nuclear Waste
Royal Institute of Technology
KBS TR 83-68, May 1983
- 13-24 PUSCH R, FORSBERG T
Gas Migration through Bentonite Clay
University of Luleå
KBS TR 83-71, May 1983
- 13-25 NERETNIEKS I
Some Notes in Connection with the KBS Studies of Final Disposal
of Spent Fuel. Part 2
Royal Institute of Technology
KBS TR 83-67, May 1983

- 13-26 The Swedish Corrosion Research Institute and its Reference Group
Corrosion Resistance of a Copper Canister for Spent Nuclear Fuel
KBS TR 83-24, April 1983
- 13-27 Korrosionsinstitutet och dess referensgrupp
Bedömning av korrosionsbeständigheten hos material avsedda för
kapsling av kärnbränsleavfall
Lägesrapport 1977-09-29 samt kompletterande yttranden
KBS TR 31, 1977-09-29
- 13-28 HÜBNER W
Vätebildning i avfallsförvar
Etapp 1 probleminventering
Studsvik Arbetsrapport
Studsvik 79-10-04
- 13-29 Corrosion du zircaloy après enrobage dans le ciment. Bitumes et
ciments. Etudes et essais
Groupe CEA, Paris 1983-01-05 p 193
- 13-30 ANDERSSON K, TORSTENFELT B, RYDBERG J
Leakage of Niobium-94 from an Underground Rock Repository
Chalmers University of Technology
KBS TR 79-26, 1979-11-05
- 13-31 NERETNIEKS I, ANDERSSON K
Utläckning av Ni-59 från ett bergförvar
Kungl. Tekniska Högskolan
KBS TR 101, 1978-04-24

KAPITEL 14

- 14-1 SKAGIUS K, SVEDBERG G, NERETNIEKS I
A Study of Strontium and Cesium Sorption on Granite
Nuclear Technology 59, 2(1982)302
- 14-2 NERETNIEKS I
Some Notes in Connection with the KBS Studies of Final Disposal
of Spent Fuel. Part 2.
Royal Institute of Technology
KBS TR 83-67, May 1983
- 14-3 SKAGIUS K, NERETNIEKS I
Diffusion in Crystalline Rocks
Paper Presented at the 5th International Symposium on the Scien-
tific Basis for Nuclear Waste Management
Berlin, June 1982
Proceedings North-Holland 1982 p 509-518

R:12

- 14-4 SKAGIUS K, NERETNIEKS I
Diffusion Measurements in Crystalline Rock
Royal Institute of Technology
KBS TR 83-15, March 1983
- 14-5 NERETNIEKS I
Diffusion in the Rock Matrix: An Important Factor in Radionuclide Retardation?
J Geophys Res 85(1980) 4379
- 14-6 RASMUSON A, NERETNIEKS I
Migration of Radionuclides in Fissured Rock - The Influence of Micropore Diffusion and Longitudinal Dispersion
J Geophys Res 86(1981) 3749
- 14-7 RASMUSON A, NERETNIEKS I
Surface Migration in Sorption Processes
Royal Institute of Technology
KBS TR 83-37, March 1983
- 14-8 SKAGIUS K, NERETNIEKS I
Diffusion in Crystalline Rock of some Sorbing and Nonsorbing Species
Royal Institute of Technology
KBS TR 82-12, March 1982
- 14-9 TORSTENFELT B, ITTNER T, ALLARD B, ANDERSSON K, OLOFSSON U
Mobilities of Radionuclides in Fresh and Fractured Crystalline Rock
Chalmers Institute of Tehnology
KBS TR 82-26, 1982-12-20
- 14-10 RASMUSON A
Diffusion and Sorption in Particles and Two-Dimensional Dispersion in a Porous Medium
Water Resources Res 17(1981) 321
- 14-11 LALLEMAND-BARRÈS A, PEAUDECERF P
Recherche des relations entre la valeur de la dispersivité macroscopique d'un milieu àquifère, ses autres caractéristiques et les conditions de mesure
Bulletin du B.R.G.M. Section III, 4(1978) 277
- 14-12 LANDSTRÖM O, KLOCKARS C-E, HOLMBERG K-E, WESTERBERG S
In Situ Experiments on Nuclide Migration in Fractured Crystalline Rocks
Studsvik Energiteknik AB, The Geological Survey of Sweden
KBS TR 110, July 1978
- 14-13 NERETNIEKS I
A Note on Dispersion Mechanisms in the Ground
Water Resources Res 1983 (in print)

- 14-14 LANDSTRÖM O, KLOCKARS C E, PERSSON O, ANDERSSON K, TORSTENFELT B, ALLARD B, LARSON S Å, TULLBORG E L
A Comparison of In-Situ Radionuclide Migration Studies in the Studsvik Area and Laboratory Measurements
Paper Presented at the 5th International Symposium on the Scientific Basis for Nuclear Waste Management
Berlin, June 1982
Proceedings North-Holland 1982 p 697 - 706
- 14-15 LANDSTRÖM O, ANDERSSON K, TULLBORG E-L
Migration Experiments in Studsvik.
Studsvik Energiteknik AB, Swedish Geological
KBS TR 83-18, 1983-01-31
- 14-16 GUSTAFSSON E, KLOCKARS C-E
Studies on Groundwater Transport in Fractured Crystalline Rock under Controlled Conditions using Non Radioactive Tracers
Geological Survey of Sweden
KBS TR 81-07, April 1981
- 14-17 ABELIN H, GIDLUND J, NERETNIEKS I
Migration in a Single Fissure
Paper Presented at the 5th International Symposium on the Scientific Basis for Nuclear Waste Management
Berlin June 1982
Proceedings North-Holland 1982 p 529-538
- 14-18 FRIED J J, COMBARNOUS, M A
Dispersion in Porous Media
Advances Hydroscience 7 (1971) 1970
- 14-19 BRACE W F, ORANGE A S, MADDEN T R
The Effect of Pressure on the Electrical Resistivity of Water Saturated Crystalline Rocks
J Geophys Res 70(1965) 5669
- 14-20 BRACE W F, WALSH J B, FRANGOS W T
Permeability of Granite under High Pressure
J Geophys Res 73(1968) 2225
- 14-21 BRACE W F
Permeability of Granite under High Pressure
J Geophys Res 82(1977) 3343
- 14-22 HEARD H C, TRIMMER D, DUBA A, BONNER B
Permeability of Generic Repository Rocks at Simulated In Situ Conditions
Lawrence Livermore Laboratory
UCRL-82609, April 1979

R:14

- 14-23 TRIMMER D, BONNER B, HEARD H C, DUBA A
Effect of Pressure and Stress on Water Transport in Intact and Fractured Gabbro and Granite
J Geophys Res 85(1980) 7059
- 14-24 ÖQUIST U, JÄMTLID A
Porositets- och resistivitetsbestämningar på borrhärnsprov från Finnsjön och Sternö
Rapport 1981-03-10
Sveriges Geologiska Undersökningar
- 14-25 BRADBURY M H, LEVER D, KINSEY
Aqueous Phase Diffusion in Crystalline Rock
Paper Presented at the 5th International Symposium on the Scientific Basis for Nuclear Waste Management
Berlin June 1982
Proceedings North-Holland 1982 p 569 - 578
- 14-26 NERETNIEKS I, ERIKSEN T, TÄHTINEN P
Tracer Movement in a Single Fissure in Granitic Rock: Some Experimental Results and their Interpretation
Water Resources Res 18, 4(1982) 849
- 14-27 RABER E, TAILOR R, ISHERWOOD D, VANDERGRAAF T
Laboratory Studies of Radionuclide Transport in Fractured Climax Granite
Lawrence Livermore National Laboratory, June 1982
- 14-28 ERIKSEN T
Radionuclide Transport in a Single Fissure. A Laboratory Study
Royal Institute of Technology
KBS TR 83-01, 1983-01-19
- 14-29 PEAUDECERF P, VAUBOURG P
Massif B. Reconnaissance du milieu et mesures in situ des paramètres
Commissariat à l'Énergie Atomique, Bureau de recherches géologiques et minières, Service Géologique National, Department Hydrogéologie, Avril 1980
- 14-30 HODGKINSON D P, LEVER D A
Interpretation of a Field Experiment on the Transport of Sorbed and Nonsorbed Tracers through a Fracture in Crystalline Rock
Theoretical Physics Division, Atomic Energy Research Establishment, Harwell, England
AERE-R-10702, October 1982
- 14-31 MORENO L, NERETNIEKS I, KLOCKARS C-E
Evaluation of Some Tracer Tests in the Granitic Rock at Finnsjön.
Royal Institute Technology, Swedish Geological
KBS TR 83-38, April 1983

- 14-32 ANDERSON K, TORSTENFELT B, ALLARD B
Sorption of Radionuclides in Geologic Systems
Chalmers University of Technology
KBS TR 83-63, May 1983
- 14-33 LARSON S Å, TULLBORG E-L, LINDBLOM S
Sprickmineralogiska undersökningar
Prav-rapport 4.20, April 1980
- 14-34 BIRGERSON L, NERETNIEKS I
Diffusion in the Matrix of Granitic Rock. Field Test in the Stri-
pa Mine. Part 1
Royal Institute of Technology
KBS TR 82-08, July 1982
- 14-35 BIRGERSON L, NERETNIEKS I
Diffusion in the Matrix of Granitic Rock. Field Test in the Stri-
pa Mine. Part 2
Royal Institute of Technology
KBS TR 83-39, March 1983
- 14-36 NERETNIEKS I
Prediction of Radionuclide Migration in the Geosphere. - Is the
Porous Flow Model Adequate?
International Symposium on Migration in the Terrestrial Environ-
ment of Long-Lived Radionuclides from the Nuclear Fuel Cycle
IAEA symposium, Knoxville, Tennessee, USA, July 1981
- 14-37 RASMUSON A, NARASIMHAN T N, NERETNIEKS I
Chemical Transport in a Fissured Rock. Verification of a Numeri-
cal Model
Water Resources Res 18(1982) 1479
- 14-38 Natural Fission Reactors
Vienna International Atomic Energy Agency, IAEA, 1978
- 14-39 CURTIS D B, BENJAMIN T M, GANCARZ A J
The Oklo Reactors: Natural Analogs to Nuclear Waste Repositories
Los Alamos National Lab, Los Alamos
LA-UR-81-3783, 1981
- 14-40 SMELLIE J A T
Radioactive Disequilibria in Mineralised Drill Core Samples from
the Björklund Uranium Occurrence, Northern Sweden
Swedish Geological
KBS TR 82-15, December 1982
- 14-41 GRISAK G E, PICKENS J F
Solute Transport through Fractured Media. The Effect of Matrix
Diffusion
Water Resources Res 16(1980) 719

R:16

- 14-42 GRISAK G E, PICKENS J F
An Analytical Solution for Solute Transport through Fractured Media with Matrix Diffusion
J Hydrology 52(1981) 47
- 14-43 GLUECKAUF E
The Movement of Solutes through Aqueous Fissures in Porous Rock
Atomic Energy Research Establishment, Harwell, England
AERE-R 9823, June 1980
- 14-44 NERETNIEKS I
Migration of Radionuclides in Fissured Rock: some Calculated Results Obtained from a Model Based on the Concept of Stratified Flow and Matrix Diffusion
Royal Institute of Technology
KBS TR 82-03, October 1981
- 14-45 TANG D H, FRIND E O, SUDICKY E A
Contaminant Transport in Fractured Porous Media: An Analytical Solution for a Single Fracture
Work done by University of Waterloo for Atomic Energy of Canada Limited
AECL-TR 132, Nov 1980
- 14-46 RASMUSON A, NERETNIEKS I
Exact Solution of a Model for Diffusion in Particles and Longitudinal Dispersion in Packed Beds.
American Institute of Chemical Engineers, Journal 26(1980) 686
- 14-47 RASMUSON A, NERETNIEKS I
Migration of Radionuclides in Fissured Rock - Results Obtained from a Model Based on the Concepts of Hydrodynamic Dispersion and Matrix Diffusion
Royal Institute of Technology
KBS TR 82-05, May 1982
- 14-48 CHAMBRE P L, PIGFORD T H, FUJITA A, KAUKI T, KOBAYASHI A, LUNG H, TING D, SATO Y, ZAVOSKY, S J
Analytical Performance Models for the Geology Repositories
Earth Science Div, Lawrence Berkeley Lab and Dep Nuclear Engineering, Univ Calif, Berkeley Calif
LBL-UCB-NE-4017 UC-70, Oct 1982
- 14-49 LARSSON A, GRUNDFELT B, ANDERSSON K, HADERMANN J
Mathematical Models for Nuclide Transport in Geologic Media - An International Intercomparison (INTRACOIN)
IAEA/CN-43/434, Seattle 16-20 Maj 1983
- 14-50 EDWARDS A L
"TRUMP": A Computer Program for the Transient and Steady State Temperature Distributions in Multidimensional Systems
National Technical Information Service, National Bureau of Standards, Springfield, 1972

- 14-51 NARASIMHAN T N, WITHERSPOON P A
An Integrated Finite Difference Method for Analysing Fluid Flow
in Porous Media
Water Resources Res 12(1976) 57
- 14-52 RASMUSON A, BENGTTSSON A, GRUNDFELT B, NERETNIEKS I
Radionuclide Chain Migration in Fissured Rock - The Influence of
Matrix Diffusion
Royal Institute of Technology, KEMAKTA Consultant Company
KBS TR 82-04, April 1982
- 14-53 NERETNIEKS I, RASMUSON A
An Approach to Modelling Radionuclide Migration in a Medium with
Strongly Varying Velocity and Block Sizes along the Flow Path
Royal Institute of Technology
KBS TR 83-69, May 1983
- 14-54 BENGTTSSON A, GRUNDFELT B, MAGNUSSON M, NERETNIEKS I, RASMUSON A
Model Calculations of the Migration of Radionuclides from a Repo-
sitory for Spent Nuclear Fuel
KEMAKTA Consultant Company, Royal Institute of Technology
KBS TR 83-48, May 1983
- 14-55 ABELIN H, GIDLUND J, NERETNIEKS I
Migration Experiments in a Single Fissure in the Stripa Granite
Paper presented at the OECD/NEA Symposium on Geological disposal
of radioactive waste. In situ experiments in granite
Stockholm 25-27 October 1982
- 14-56 MEANS J, HEDINGTON G L
The Analysis of Humic and Fulvic Acid in Groundwater Samples
Batelle Columbus Laboratories, Columbia, Ohio
Topical Report 1982-12-06
- 14-57 OLOFSSON U, ALLARD B, TORSTENFELT B, ANDERSSON K
Properties and Mobilities of Actinide Colloids in Geologic Sys-
tems
Paper presented at the 5th International Symposium on the Scien-
tific Basis for Nuclear Waste Management
Berlin June 1982
Proceedings North-Holland 1982 p 755 - 764
- 14-58 ALLARD B, LARSSON S Å, TULLBORG E-L, WIKBERG P
Chemistry of Deep Ground Waters from Granitic Bedrock
Chalmers University of Technology, Swedish Geological, Royal In-
stitute of Technology
KBS TR 83-59, May 1983

- 14-59 LE BELL J
Colloid Chemical Aspects of the "Confined Bentonite Concept"
Intitute for Surface Chemistry
KBS TR 97, 1978-03-07
- 14-60 NERETNIEKS I
Some Aspects on Colloids as a Means for Transporting Radionuclides
Royal Institute of Technology
KBS TR 103, 1978-08-08

KAPITEL 15

- 15-1 CARLSSON L, GRUNDFELT B
Model Calculations of the Groundwater Flow at Finnsjön, Fjällveden, Gideå and Kamlunge.
Swedish Geological, Kemakta Konsult AB
KBS TR 83-45, May 1983
- 15-2 THUNVIK R
Calculation of Fluxes through a Repository Caused by a Local Well
Royal Institute of Technology
KBS TR 83-50, May 1983
- 15-3 BERGSTRÖM U, RÖJDER B
BIOPATH-A Computer Code for Calculation of the Turnover of Nuclides in the Biosphere and the Resulting Doses to Man.
Studsvik Energiteknik AB
- 15-4 SUNDBLAD B, BERGSTRÖM U
Description of Recipient Areas Related to Final Storage of Unreprocessed Spent Nuclear Fuel.
Studsvik Energiteknik AB
KBS TR 83-11, February 1983
- 15-5 EVANS S, LAMPE S, SUNDBLAD B
Natural Levels of Uranium and Radium in Four Potential Areas for the Final Storage of Spent Fuel.
Studsvik Energiteknik AB
KBS TR 82-22, December 1982
- 15-6 APPELGREN A
Consumption Habits. A Statistical Summary and Comparison.
Studsvik Energiteknik AB
NW-82/311, App 2 (1982)
- 15-7 BERGSTRÖM U, WILKENS A-B
An Analysis of Selected Parameters for the BIOPATH-Program.
Studsvik Energiteknik AB
KBS TR 83-28, April 1983

- 15-8 BERGSTRÖM U
Analysis of the Importance for the Doses of Varying Parameters
in the BIOPATH-Program.
Studsvik Energiteknik AB
KBS TR 81-03, mars 1981
- 15-9 HOFFMAN F O, GARDNER R H, ECKERMAN K F
Variability in Dose Estimates Associated with the Food Chain
Transport and Ingestion of Selected Radionuclides.
ORNL/TM-8099 (1982)
- 15-10 BERGMAN R, BERGSTRÖM U, EVANS S
Environmental Transport and Long-term Exposure for Tritium Released
in the Biosphere.
IAEA-SM-232/47 (1979)
- 15-11 BERGMAN R, McEWAN C
Dose and Dose Commitment due to Carbon-14 from the Nuclear Industry.
AB Atomenergi, Studsvik, S-548 (1977)
- 15-12 LILJEQUIST GÖSTA
Klimatologi, 1970
Generalstabens Litografiska Anstalt, Stockholm
- 15-13 BOLIN BERT
Vad gör vi med klimatet? 1979.
Förlaget Ordfront, Stockholm
- 15-14 MELIN RAGNAR
Hydrologi i Norden 1970.
Utbildningsförlaget, Stockholm
- 15-15 Monitor 1981. Förurning av mark och vatten. Statens Naturvårds-
verk Meddelande 3/1981.
- 15-16 BERGSTRÖM U, RÖJDER B, WIDEMO U
Dose and Dose Commitment Calculations from Groundwaterborne Radio-
active Elements Released from a Repository for Spent Nuclear
Fuel.
Studsvik Energiteknik AB
KBS TR 83-49, May 1983

KAPITEL 16

- 16-1 STATENS STRÅLSKYDDSinSTITUT
Begränsning av utsläpp av radioaktiva ämnen från kärnkraftstatio-
ner.
SSI FS 1977:2

R:20

- 16-2 International Commission on Radiological Protection. The Metabolism of Compounds of Plutonium and other Actinides.
ICRP Publication 19 (1972)
- 16-3 International Commission on Radiological Protection. Alkaline Earth Metabolism.
ICRP Publication 20 (1973)
- 16-4 International Commission on Radiological Protection. Report of the Task Group on Reference Man.
ICRP Publication 23 (1975)
- 16-5 International Commission on Radiological Protection. Recommendation of the International Commission on Radiological Protection.
ICRP Publication 26 (1977)
- 16-6 International Commission on Radiological protection. Limits for Intakes of Radionuclides by Workers.
ICRP Publication 30 Part 1 - 3
- 16-7 ICRP Task Group Report on Lung Dynamics Deposition and Retention Models for Internal Dosimetry of the Human Respiratory Tract.
Health Physics 12, 173 - 207 (1966)
- 16-8 ICRP Task Group on Radiosensitivity of Tissues in Bone.
Publication 11 (1968)
- 16-9 EVE I S
A Review of the Physiology of the Gastrointestinal Tract in Relation to Radiation from Radioactive Materials.
Health Physics 12, 131-161 (1966)
- 16-10 DOLPHING G W and EVE I S
Dosimetry of the Gastrointestinal Tract.
Health Physics 12, 163-172 (1966)
- 16-11 JOHANSSON L
Oral Intake of Radionuclides in the Population. A Review of Biological Factors of Relevance for Assessment of Absorbed Dose at Long Term Waste Storage.
National Defence Research Institute
KBS TR 82-14, October 1982
- 16-12 RECOMMENDATIONS OF THE INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION
Nuclear Safety Vol 20, No 3, p 335 (1979)

