



Svensk Kärnbränslehantering AB  
Box 250  
101 24 Stockholm

**Handläggare:** Bo Strömberg  
**Telefon:** 08 799 4163

**Vår referens:** SSM2011-2426-  
**Intern referens:** 4.7.2.i  
**Er referens:** KTL - Kärnbränsleförvaret

## Begäran om komplettering av ansökan om slutförvaring av använt kärnbränsle och kärnavfall – Löslighetsberäkningar

Strålsäkerhetsmyndigheten (SSM) har vid granskningen av Svensk Kärnbränslehantering AB:s (SKB) ansökan om tillstånd enligt lagen (1984:3) om kärnteknisk verksamhet för ett slutförvar för använt kärnbränsle och, funnit behov av nedanstående kompletteringar.

SSM önskar att kompletteringarna eller en tidplan för dess framtagande är myndigheten tillhanda senast den 2 april 2013.

Om SKB önskar ytterligare förklaringar eller förtydliganden av de frågor som omfattas av denna begäran, och som inte avser enklare klargöranden av praktisk eller administrativ karaktär, ska detta ske vid protokollförda möten mellan berörda personer på SSM och SKB.

### Kompletteringar

SSM efterlyser komplettering i detta fall för bedömning av 9§ i SSMFS 2008:21 samt för bedömning av bilagan (femte punkten) som rör slutförvarets omgivningspåverkan för valda scenarier. Kompletteringen motiveras även av 5§ SSMFS 2008:37 som rör beräkning av den årliga risken för skadeverkningar för en representativ individ i den grupp som utsätts för den största risken.

Följande kompletteringar efterfrågas:

1. SSM efterlyser en tydligare motivering kring hur inverkan av grundvattenkemisk variabilitet, osäkerhet och långsiktig utveckling har beaktats vid beräkning av löslighetsgränser för radionuklider.



2. SSM efterlyser en redovisning kring osäkerhetsintervall för termodynamiska data.
3. SSM anser att det behövs en utökad redovisning som motiverar isotoputspädning av Ag-108m.
4. SSM anser att det behövs ytterligare redovisning kring SKB:s hantering av fosfatkoncentration i samband med löslighetsberäkningar.
5. SSM anser att vissa kompletteringar behövs kring SKB:s hantering av temperaturkorrektioner i samband med löslighetsberäkningar.
6. SSM anser att SKB bör ytterligare motivera användningen av medfällning med radium och barium i sina löslighetsberäkningar.

### Skälen för begäran om komplettering

1. SSM anser att SKB behöver förtydliga hur variabilitet i grundvattenkemi beaktas och motiveras i sina löslighetsberäkningar (se bl.a. SSM: s konsultgranskningar av Trivedi 2012 respektive Baldwin och Hicks 2012). Duro m.fl. (2006) redovisade deterministiska löslighetsberäkningar som explicit visar inverkan av grundvattnets redox-tillstånd. SKB:s nuvarande analys baseras på probabilistiska beräkningar med hjälp av beräkningsverktyget simple functions (Grivé m.fl. 2010). SKB har tidigare redovisat ett dokument som ger viss information kring hanteringen av variation av pH och dominerade komponenter i grundvatten (SKB dokument 1343625) men dock ingen ytterligare information kring hanteringen av grundvattnets redox-tillstånd. SKB hanterar grundvattnets redox i sin nya analys genom en antagen kemisk jämvikt med korrosionsprodukterna magnetit och goehtit som låser redox så att variation för samtliga fall enbart avspeglar samvariation med pH (Simple functions version B). SSM efterlyser i förhållande till den befintliga motiveringen (SKB, 2010a, sid 97; Duro m.fl., 2006, sid 16) ett tydligare underlag som visar att denna konceptuella modell är tillämplig för samtliga fall i vilka löslighetsgränser beaktas. Stadierna i kapselns utveckling efter olika typer av hypotetiska kapselskador och exponeringstider upp till en miljon år för en korroderande insats är av intresse. En eventuell inverkan kopplat till variation av omgivande grundvattens redox (Salas m.fl. 2010, Sidborn m.fl. 2010) respektive bufferten bör också belysas. Så som



SKB själva påpekar har redox en stor påverkan på lösligheten av redox-känsliga nuklider (SKB, 2010a, sid 66).

Beträffande variation av andra grundvattenkemiska variabler som är helt oberoende av redox och påverkar löslighetsberäkningarna, konstaterar SSM att SKB valt att enbart beakta osäkerheter kopplade till termodynamiska data och därmed uteslutit en påverkan från grundvattenkemins tidsberoende eller rumsliga variation. SKB utgår istället från en genomsnittlig sammansättning baserade på fyra olika grundvattentyper (SKB, 2010b, sid 283). SSM konstaterar att även om osäkerheter i termodynamiska data kan vara mera betydande finns fortfarande en stor variabilitet av löslighetsgränser för vissa radionuklider beroende på varierande grundvattensammansättning både inom och mellan olika grundvattentyper (SKB, 2010b, sid 276-280). SSM efterlyser en motivering samt analys av denna förenklings betydelse.

2. I rapporten Grivé m.fl., 2010 (sid 12) beskrivs hanteringen av osäkerhetsintervall för jämviktskonstanter. I första hand används i publikationer angiven precision för mätningar som utgångspunkt för osäkerhetsintervall och i andra hand en viss proportion av intervallet mellan två eller flera oberoende källor. I sista hand om endast en godtagbar referens har hittats utan precisionsangivelse används ett standardintervall som motsvarar en tredjedels log-enhet. SSM har förståelse för svårigheten att entydigt definiera denna typ av osäkerhetsintervall, men anser ändå att det finns en viss risk för inkonsekvenser eftersom de två första kategorierna hanterar olika aspekter på termodynamisk databasosäkerhet. Det är t.ex. möjligt att mätningar som kan göras med hög precision innehåller systematiska fel som skulle beaktas i kategori 2 men däremot inte kategori 1 fallet. SSM anser att det behövs en fördjupad diskussion kring denna problematik och en detaljerad redovisning av några få exempel för att få en förståelse för hur SKB:s metodik i praktiken har tillämpats. Någon form av motivering av standardintervallet behövs också.
3. Dos/risk från radionukliden Ag-108m har stor betydelse för scenarier som involverar tidiga haverier av tekniska barriärer. SKB tar i sin analys hänsyn till att lösligheten för Ag-108m delas med stabilt silver i proportion till förekomsten i den fasta fasen (SKB TR-10-50, sid 294). SSM efterlyser en utökad redovisning som stöd för detta antagande med beaktande av eventuella koncentrationsgradienter för Ag-108m i den fasta fasen.
4. SKB anger att inverkan av fosfat i grundvatten generellt har uteslutits från löslighetsberäkningarna eftersom det saknas



tillförlitliga data från grundvattenprover. SKB anger vidare att det är tveksamt om fasta fosfater kan kontrollera löslighet beroende på massbalansöverbälganden vilka dock inte explicit finns redovisade (SKB, 2010c, sid 106). Duro m.fl.(2006) rapporterar att om lösligheten kontrollerades av fasta fosfater med Sm, Pu och Am skulle detta medföra jämviktskoncentrationer som är flera 10-potenser lägre än annars. SSM anser dock att vissa kompletteringar behövs för myndighetens bedömning av SKB:s hantering. Det behöver t.ex. beaktas att fosfat kan bidra till komplexbildning i lösning utan att för den skull en fast löslighetskontrollerande fosfatfas bildas. SKB anger att det saknas data för fosfat men såvitt SSM kan förstå finns åtminstone begränsad data för vissa grundvattenprover från Forsmark (Forsmark\_2\_3\_updated\_Dec30\_2007.xls). Om koncentrationerna ligger under detektionsgränsen för representativa prover bör det kunna visas att koncentrationer under detektionsgräns saknar betydelse för SKB:s beräknade löslighetsgränser.

5. SKB utgår i sina probabilistiska löslighetsberäkningar från att temperaturen alltid är 25°C, medan den i realiteten inledningsvis kan förväntas vara upp mot 100°C och i samband med kommande istider kan sjuka ner mot någon enstaka plusgrad. SKB:s hantering kan vara icke-konservativ, dels därför att löslighetsgränserna för de flesta radioaktiva ämnen är högre vid högre temperaturer än 25°C, dels därför att det finns enstaka radioelement som visar det omvända förhållandet och då kan förväntas ha högre löslighet i lågtemperaturfallet. Det högre temperaturintervallet upp mot 100°C är i praktiken enbart relevant för hypotetiska fall som involverar tidig förlust av barriärfunktioner (SKB, 2010b, sid 180). I sin bedömning av frågans betydelse hänvisas till att osäkerheter från temperaturkorrektur hursomhelst är mindre än osäkerheter i löslighetsprodukten. SSM anser att SKB bör förtydliga sitt förenklande antagande kring temperaturkorrekturen genom överslagsberäkningar som gränssätter effektens storlek både för högtemperatur- och lågtemperaturfallet. Det bör utvärderas om det finns något annat löslighetsbegränsat radioelement som har högre löslighet vid låg temperatur förutom nickel (se SKB, 2010c, sid 106).
6. SKB beaktar medfällning av radium med barium genom att anta  $\text{RaSO}_4(\text{s})$  som löslighetsbegränsande fas med ett förhållande mellan radium och barium som förhåller sig 1:1000, varav kvoten härrör från den maximala förhållandet mellan mängden radium och barium i en kopparkapsel (med viss säkerhetsmarginal för fallet låga sulfathalter; Grandia m.fl., 2008, sid 36 samt SKB, 2010c, sid 108).



Betydelsen av processen indikeras av det relativt lägre dosbidraget från radium för fall som inkluderar löslighetsgränser (SKB, 2010b). SSM anser att SKB behöver ytterligare underlag för att visa att gynnsamma förhållanden för medfällning upprätthålls i en havererad kopparkapsel under säkerhetsanalysens tidsskala. SSM har identifierat följande frågor som behöver belysas ytterligare:

- a. Det framgår inte klart från SKB:s mest detaljerade referens (Grandia m.fl. 2008) om uttransport av barium från en kapsel har beaktats eller inte. Detta fall kan ha störst betydelse vid en tidig kapselskada då det medför längre tid för barium att försvinna från kapselns innandöme.
- b. Bariums tillgänglighet i bränslematrisen diskuteras inte närmare i Grandia m.fl. (2008) utan frigörelsehastigheten förutsätts utan explicit motivering att vara proportionell med bränsleupplösningshastigheten.
- c. Effekter av tidpunkt för kapselskada, och variation i bränsleupplösningshastighet diskuteras inte i Grandia m.fl. (2008). Känslighetsanalysen begränsas enbart till variation av sulfathalt.
- d. Grandia m.fl. (2008) utgår från ATM-104 bränsle eftersom inventariet för barium inte har specificerats för aktuella bränslekategorier. SKB bör motivera detta antagande eftersom ”Spahiu, pers. comm.” inte är en spårbar referens.
- e. Grandia m.fl.(2008) refererar till en studie av Ceccarello m.fl. (2004) som anger att strontium kan inhibera upptag av radium i baryt. SKB bör undersöka om denna effekt kan vara betydelsefull med tanke på strontiumhalt i Forsmarkgrundvatten.
- f. Så som påpekas av Trivedi (2012) bör SKB kommentera det faktum att naturligt radium i omgivande grundvatten förefaller vara korrelerat med kalcium snarare än barium (se Crawford, 2010, sid 125).

Denna begäran om komplettering har beretts i tillståndsprövningsprojektets projektledningsgrupp och har föredragits av Bo Strömberg.

Ansi Gerhardsson  
Projektledare

Bo Strömberg  
Utredare



## Referenser

- Baldwin T.D., Hicks T.W. (2012) Documentation and Traceability of Data in SKB's Safety Assessment SR-Site: Initial Review Phase, Strålsäkerhetsmyndigheten, SSM Technical note 2012:36.
- Ceccarello S., Black S., Read D., Hodson M.E. (2004) Industrial radioactive barite scale: suppression of radium uptake by introduction of competing ion, *Minerals Engineering*, 17 (2). pp. 323-330.
- Crawford J. (2010) Bedrock Kd data and uncertainty assessment for application in SR-Site geosphere transport calculations, Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB Technical Report R-10-48.
- Duro L., Grivé M., Cera E., Gaona X., Domènech C., Bruno J. (2006) Determination and assessment of the concentration limits to be used in SR-Can, Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB Technical Report TR-06-32.
- Grandia F., Merino J., Bruno J. (2008) Assessment of the radium-barium co-precipitation and its potential influence on the solubility of Ra in the near-field, Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB Technical Report TR-08-07.
- Grivé M., Domènech C., Montoya V., Garcia D., Duro L. (2010) Simple Functions Spreadsheet tool presentation, Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB Technical Report TR-10-61.
- Salas J., Gimeno M.J., Auqué L., Molinero J., Gómez J., Juárez I. (2010) SR-Site - hydrogeochemical evolution of the Forsmark site, Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB Technical Report TR-10-58.
- Sidborn M., Sandström B., Tullborg E.L., Salas J., Maia F., Delos A., Molinero J., Hallbeck L., Pedersen K. (2010) SR-Site: Oxygen ingress in the rock at Forsmark during a glacial cycle, Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB Technical Report TR-10-57.
- SKB (2010a) Fuel and canister process report for the safety assessment SR-Site, Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB Technical Report TR-10-46.
- SKB (2010b) Radionuclide transport report for the safety assessment SR-Site, Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB Technical Report TR-10-50.
- SKB (2010c) Data report for the safety assessment SR-Site, Svensk Kärnbränslehantering AB, SKB Technical Report TR-10-52.



Trivedi D. (2012) Use of Solubility Limits in the SR-Site Safety Assessment, Strålsäkerhetsmyndigheten, SSM Technical note 2012:48.