



DokumentID
1564239

Ärende
SSM2015-725-42

Handläggare
Eva Andersson

Er referens
Jinsong Liu

Kvalitetssäkring

2017-05-08 Klas Källström (TS)

2017-05-09 Peter Larsson (Godkänd)

Kommentar

Datum
2016-10-21

Ert datum
2016-10-21

Sida
1(4)

Strålsäkerhetsmyndigheten
Att: Georg Lindgren
171 16 Stockholm

Svar till SSM på begäran om komplettering av ansökan om utökad verksamhet vid SFR – bildning av kolloider

Strålsäkerhetsmyndigheten, SSM, har i sin skrivelse till Svensk Kärnbränslehantering AB, SSM2015-725-42 daterad 2016-10-07 begärt förtydligande information om kolloider.

SKB översänder härmed begärda komplettering. Leveransen består av detta brev och tillhörande bilaga.

1. En uppskattning av högsta möjliga koncentrationer (i mol per liter vatten) av Pu och Am i olika delar av förvaret, baserat på inventarierna av Pu och Am och mängder av porvatten och fritt vatten i respektive förvarsdel.

SKB:s svar:

Högsta möjliga lösta koncentrationer av Pu och Am i olika förvarsdelar har beräknats (se bilaga). Beräkningarna är baserade på inventariet i respektive förvarsdel (SKB 2014, Tabell 3-16) där aktiviteten (Bq) för samtliga isotoper omräknas till substansmängd (mol) som sedan antas upplösas i vattenvolymen i de olika förvarsdelarna. Vattenvolymen beräknas från porvatten och fritt vatten i förvarsdelarnas avfall, kringgjutningsbetong (grout) och konstruktionsbetong (för förvarsdelarna 1BTF och 2BTF har även makadamåterfyllnad och fri volym som omsluter avfallssektionerna inkluderats). Dessa volymer redovisas i SKB (2014, bilaga A).

I beräkningen av maximala totalhalter av respektive element (Pu och Am) har substansmängder av samtliga isotoper som kvantifierats i inventariet summerats för var och en av de olika förvarsdelarna. De beräknade maximala totalhalterna i förvarsdelarna Silo, 1BMA, 2BMA och BTF (medelhalt baserat på 1BTF och 2BTF) redovisas i tabellen nedan. Övriga förvarsdelar har liknande eller lägre beräknade maximalhalter.

	Silo	1BMA	2BMA	BTF (medel)
C_{tot} (Am)	$1,0 \cdot 10^{-7}$ M	$2,4 \cdot 10^{-10}$ M	$2,0 \cdot 10^{-10}$ M	$2,2 \cdot 10^{-11}$ M
C_{tot} (Pu)	$6,5 \cdot 10^{-9}$ M	$1,7 \cdot 10^{-9}$ M	$2,2 \cdot 10^{-9}$ M	$1,3 \cdot 10^{-10}$ M

2. En jämförelse av de möjliga koncentrationerna av Pu och Am (erhållna från punkt 1) med deras respektive lösligheter i slutförvarsmiljön dvs. med hänsyn till förväntade redox- och pH förhållandena samt koncentrationer av komplexbildare.

SKB:s svar:

Vattensammansättningar representativa för olika degraderingstillstånd för cement har beräknats för att uppskatta förväntade variationer i kalciumkoncentrationer och pH i förvarsmiljön. Dessa beräkningar redovisas i bilaga. Vattens pH förväntas sjunka i takt med cementdegraderingen från 13,1 (färsk cement) till 9,7 (kraftigt degraderad cement). Beräkningarna av vattensammansättningarna har dessutom gjorts för två redoxförhållanden (Eh = 0 och beräknat Eh för anaerob reduktion av järn vid jämvikt med magnetit). Eh varierades för att undersöka effekten av osäkerheter i vattnets reduktionsförhållanden på nuklidernas lösligheter, även om vattnet i förvaret i huvudsak förväntas vara starkt reducerande över tid (Duro et al. 2012). Löslighet av Pu och Am i de olika vattensammansättningarna har beräknats både med och utan komplexbildare (ISA och EDTA) vars koncentrationer i de olika förvarsdelarna uppskattats och redovisats i Keith-Roach et al. (2014). Resultaten visar att de maximala koncentrationerna av Pu och Am i närvaro av organiska komplexbildare, understiger löslighetsbegränsningen i samtliga förvarsdelar utom i siloförvaret för de beräknade fallen. I de förvarsdelar där löslighetsbegränsningen underskrids förväntas kolloidbildning inte vara termodynamiskt gynnsam. Resultaten visar samtidigt att de maximala koncentrationerna i siloförvaret antingen överstiger löslighetsbegränsningarna (koncentration i jämvikt med kolloidala, amorfa eller kristallina faser) eller är nära jämvikt med kolloidfaser för de flesta beräknade vattensammansättningarna. Detta förutsätter dock en osannolik situation där momentan upplösning av inventariet inträffar samt att ytkomplexering av lösta nuklider på cementbaserade material uteblir.

Med hänsyn taget till adsorption av Pu(IV) och Am(III) på cementbaserade material i förvaret förväntas de maximala koncentrationerna i vattenfasen sjunka kraftigt (mer än fyra storleksordningar enligt beräkningar i kapitel 3.3 i bilagan) till nivåer avsevärt under löslighetsbegränsningarna. Detta medför att den termodynamiska förutsättningen för bildning av Pu(IV) och Am(III) kolloider också är osannolik i siloförvaret även med antagandet om omedelbar upplösning av nuklider i inventariet.

En mer detaljerad beskrivning av löslighetsberäkningarna ges i bilagan.

3. Redovisning av risk för av bildning av egenkolloider (eng. intrinsic colloids) av Pu och Am samt bedömning av kolloidal stabilitet i de förvarsdelar där löslighetsbegränsningar överskrids. I redovisningen bör ingå teoretiska analyser eller experimentella resultat som visar inverkan av två motstridiga faktorer, vilka är förhållandevis högt pH och hög koncentration av divalenta katjoner från gruppen alkaliska jordartsmetaller (främst Ca²⁺). Dessa faktorer gynnar respektive missgynnar kolloidbildning och kolloidal stabilitet

SKB:s svar:

En utförlig beskrivning av relevanta experimentella studier vad gäller stabilitet av Am och Pu kolloider redovisas i bilagan. Av dessa studier framgår att fyrvärdade kolloider (Pu(IV)O₂) tenderar att vara relativt stabila under de alkalina

förhållanden som kan förväntas i förvaret. Det finns inte heller något stöd för att dessa kolloider skulle destabiliseras vid höga jonstyrkor. Detta gör att risken för att Pu(IV) kolloider ska bildas får antas vara stor om löslighetsbegränsningen för dessa överskrids. Experiment visar dock att kolloidpartiklarna åter löser upp sig vid utspädning under löslighetsprodukten.

Trevärda kolloider (Pu(III)(OH)₃ och Am(III)(OH)₃) tenderar att destabiliseras i betydligt större utsträckning än PuO₂ vid de pH och jonstyrkor som förväntas i förvaret. I bilagan redovisas ett antal studier som indikerar att de trevärda kolloiderna tenderar att aggregera, koagulera och lösa upp sig vid de förväntade jonstyrkorna och pH-förhållandena i förvaret. Stabiliteten bedöms därför vara relativt låg för egenkolloider av Pu(III) och Am(III) i jämförelse med fyrvärda kolloider (PuO₂) under förväntade förvarsförhållanden.

4. Om behov föreligger, redovisning av möjlighet för bentonit i silon att filtrera egenkolloider bestående av Pu och Am.

SKB:s svar:

Fysikalisk filterning (där partiklar hindras att passera genom ett porsystem på grund av deras storlek) av kolloidala partiklar, av den storleksordning (nanometer) som egenkolloider kan utgöra, i lågt kompakterad bentonit kan betraktas som osannolik. Det kan därför inte förväntas att egenkolloider bestående av Pu och Am filtreras fysikaliskt i bentoniten i Siloförvaret i någon större utsträckning. Däremot finns flera studier som visar på stark ytcomplexbildning mellan radionuklider inklusive Am och Pu och montmorillonit i bentonit. Dessa starka interaktioner kan förväntas reducera mängden egenkolloider i vattnet och därmed betraktas som kemisk filterning i bentoniten. En genomgång av relevanta experimentella studier inom detta område och modellering av ytcomplexering ges i bilagan.

5. Kvantifiering av förhållandet av sorption av radionuklider på ytan av cementkolloider till sorptionen av radionuklider på ytorna av cementmatrisen i slutförvarsmiljön

SKB:s svar:

SKB lät under år 2014 analysera förekomsten av cementkolloider i olika typer av prover. Huvudsakligen har två olika typer av prover undersökts. Typ 1 har utgjorts av prover inom SKB:s projekt "Concrete and clay" där olika typer av avfallsmaterial placerats i stålbehållare fyllda med grundvatten från Äspö-anläggningen samt krossad cement. Dessa prover finns i detalj beskrivna i Mårtenson (2015). Typ 2 har utgjorts av prover från ett materialutvecklingsprojekt inom Projekt SFR-utbyggnad och tillverkningen av dessa prover beskrivs i detalj i Lagerlund et al. (2014). Proverna analyserades under år 2014 med avseende på bland annat förekomst av kolloider enligt metoder och med resultat i detalj beskrivna i Wold (2015). Sammanfattningsvis kunde inte analyserna påvisa förekomst av kolloider överstigande förväntad bakgrund i något av de prov som endast innehöll ren cement. Det bedöms därför att sorption av radionuklider till cementkolloider sker i mycket begränsad omfattning eftersom förekomsten av cementkolloider är liten. Detta bekräftas dessutom av experiment som redovisas i bilagan där mobilisering av Th(IV) med cementkolloider är liten på grund av den låga halten kolloider.

6. Stabilitet för bildade cementkolloider i slutförvarsmiljön

Med hänvisning till svaret på föregående fråga bedöms cementkolloider vara mycket instabila i en slutförvarsmiljö.

Med vänlig hälsning

Svensk Kärnbränslehantering AB
Projekt SFR Utbyggnad

Peter Larsson
Projektledare

Bilagor

- 1 *Supplementary information on colloid interactions in SFR.* SKBdoc 1569690 ver 1.0, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Referenser

Duro L, Grivé M, Domènech C, Roman-Ross G, Bruno J, 2012. Assessment of the evolution of the redox conditions in SFR 1. SKB TR-12-12, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Keith-Roach M, Lindgren M, Källström K, 2014. Assessment of complexing agent concentrations in SFR. SKB R-14-03, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Lagerlund J, Thorsell P-E, Liljeby E, 2014. Utveckling av kringgjutningsbruk för 1BMA. Rapport U14-02, Vattenfall Research & Development AB. SKBdoc 1425185 ver 1.0, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Mårtenson P, 2015. Äspö Hard Rock Laboratory. Concrete and Clay. Installation report. SKB P-15-01, Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB, 2014. Initial state report for the safety assessment SR-PSU. SKB TR-14-02, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Wold S, 2015. Are colloids released from different materials in SFR to the saturating groundwater? SKBdoc 1466123 ver 1.0, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Revisionsförteckning

Ver	Datum	Revideringen omfattar	Utförd av	Kvalitetssäkrad	Godkännare