

YTTRANDE

Stockholm 2013-12-19

INKOM: 2013-12-20
MÅLNR: M 1333-11
AKTBIL: 294

Till:
Strålsäkerhetsmyndigheten
171 16 Stockholm
registrator@ssm.se

Myndighetens dnr:
SSM 2011/1137

Mark- och miljödomstolen vid Nacka tingsrätt
Box 1104
131 26 Nacka Strand
mmd.nacka@dom.se

Mark- och miljödomstolens mål
nr: 1333-11

Yttrande rörande kopparkorrosion

Naturskyddsföreningen och Miljöorganisationernas kärnavfallsgranskning, MKG, nedan kallade föreningarna, vill i detta yttrande komplettera tidigare inlämnade remissvar med krav på kompletteringar av slutförvarsansökan för använt kärnbränsle. I yttrandet framförs synpunkter rörande frågeställningar som rör kopparkorrosion och som uppkommit i samband med:

- att de tre forskarna från KTH lämnade sökandens referensgrupp för kopparkorrosion i en syrgasfri miljö i oktober-november innevarande år,
- att Kärnavfallsrådet den 20-21 november arrangerat ett internationellt symposium om de konstgjorda barriärerna av koppar och lera, och
- att sökanden i yttrandet 2013-11-18 meddelat att sökanden inte avser att ta upp och analysera paket S2 i LOT-försöket i Äspölaboratoriet förrän mot slutet av 2010-talet.

De frågeställningar som föreningarna vill framföra synpunkter om rör:

- de försök på kopparkorrosion i syrgasfritt rent vatten som genomförs vid Ångströmlaboratoriet vid Uppsala universitet och hur dessa bör följas upp,
- att paket LOT S2 måste tas upp innan granskning i sak av slutförvarsansökan kan påbörjas, och
- behovet av kvalitetsgranskning av och insyn i sökandens forskning och utveckling om funktionen av de konstgjorda barriärerna av koppar och lera.

Detta görs nedan i tre avsnitt.

1. Synpunkter på de försök på kopparkorrosion i syrgasfritt rent vatten som genomförs vid Ångströmlaboratoriet vid Uppsala universitet och hur dessa bör följas upp

Under hösten 2013 har två av de tre forskare från KTH som deltar i den referensgrupp för forskning om syrgasfri kopparkorrosion som sökanden bildade 2011 riktat kritik mot den forskning rörande kopparkorrosion i syrgasfritt rent vatten som bedrivs åt sökanden vid Ångströmlaboratoriet vid Uppsala universitet. Kritiken gäller hur försöken utförts och hur den planerade redovisningen lagts

upp. Eftersom kritiken inte hanterades av sökanden eller Uppsalaforskarna på ett sätt som uppfattades som vetenskapligt, lämnade de två KTH-forskarna referensgruppen i slutet av oktober.¹

MKG har följt den kontrovers som uppkom noga. De frågor som kontroversen handlade om behandlades även vid det internationella symposium om de konstgjorda barriärerna av koppar och lera som Kärnavfallsrådet anordnade den 20-21 november. MKG:s kanslichef Johan Swahn förde på symposiet en diskussion med Johannes Johansson som arbetar som kopparkorrosionsexpert för sökanden. Diskussionerna resulterade i att MKG:s kanslichef den 6 december skickade ett öppet brev till Mats Boman som är forskningsledare för försöken rörande kopparkorrosion i rent syrgasfritt vatten vid Ångströmlaboratoriet. I brevet ställs frågor som rör genomförandet av försöken. Dessutom ges synpunkter på hur man experimentellt kan gå vidare för att skapa klarhet om syrgasfri kopparkorrosion. Det öppna brevet har redan skickats till korrosionsexperter vid SSM för kännedom men bifogas detta yttrande som bilaga 1 för att även formellt läggas till handlingarna i målet.

Efter det att det öppna brevet skickades till Uppsalaforskarna har MKG uppmärksamats på ytterligare en frågeställning som kan vara viktig för att förstå resultaten från försöken som bedrivs vid Ångströmlaboratoriet och vid andra likande försök och som härmed vidarebefordras till SSM. I rapporten SKB TR-13-11 "Thermodynamic evaluation of Cu-H-O-S-P system: Phase stabilities and solubilities for OFP-copper"² skriver rapportförfattarna i slutsatserna på sidan 37 att:

"Phosphorus has a high affinity to oxygen, and will form phosphates. Calculations at atmospheric pressure with low hydrogen content yields $\text{Cu}_2\text{P}_2\text{O}_7$, and high hydrogen content $\text{Cu}_3(\text{P}_2\text{O}_6\text{OH})_2$."

och att

"Both $\text{Cu}_3(\text{P}_2\text{O}_6\text{OH})_2$ and $\text{Cu}_2\text{P}_2\text{O}_7$ are calculated more stable than water vapour below 300°C at all pressures, and more stable than water below 150 atm pressure calculated for OFP-copper with excess hydrogen."

Den elektrolytpolerade kopparyta som exponerats för syrgasfritt vatten vid försöken i Uppsala innehåller fosfor, troligtvis i forma av kopparfosfat, från poleringsprocessen. Detta syns tydligt i tabellen på sidan 9, tabell 1, i den delrapport från projektet som SKB:s referensgrupp för forskning om kopparkorrosion i en syrgasfri miljö fick ta del av på gruppens tolfte möte den 7 maj 2012.³ Föreningarna menar att det är möjligt att närvaron av fosfater delvis kan förklara varför ytorna har blivit passiverade. Föreningarna anser att det måste undersökas hur mycket fosfat det behövs för att bromsa korrosion i destillerat vatten.

En indikation på att detta kan vara en viktig faktor som bör undersökas ytterligare i Uppsalaförsöken är det som skrivs i sammanfattningen till den vetenskapliga artikeln "Copper corrosion in drinking water systems – effect of pH and phosphate-dosage" av Dartman m.fl. i numret från april 2010 i tidskriften Materials and Corrosion.⁴

¹ Forskarna Peter Szakálos och Gunnar Hultquist lämnade referensgruppen den 17 oktober genom att skriva till gruppen. Efter Kärnavfallsrådets internationella symposium om de konstgjorda barriärerna av koppar och lera den 20-21 november lämnade även den tredje KTH-forskaren, professorn i korrosionslära Christoffer Leygraf gruppen. Se: <http://www.mkg.se/forskare-lamnar-skbs-referensgrupp-om-syrgasfri-kopparkorrosion>.

Miljöorganisationernas kärnavfallsgranskning, MKG, lämnade referensgruppen redan hösten 2012 eftersom föreningen tillsammans med Naturskyddsföreningen i prövningsprocessen för slutförvarsansökan för använt kärnbränsle krävt en större öppenhet rörande sökandens kopparkorrosionsforskning än referensgruppen kunde erbjuda. Se: <http://www.mkg.se/mkg-lamnar-skbs-referensgrupp>.

² SKB TR-13-11 "Thermodynamic evaluation of Cu-H-O-S-P system: Phase stabilities and solubilities for OFP-copper, Hans Magnusson & Karin Frisk, Swerea KIMAB AB, April 2013 (<http://www.skbn.se/upload/publications/pdf/TR-13-11.pdf>).

³ Delrapporten finns här: <http://www.mkg.se/tolfte-motet-for-referensgruppen-for-skbs-kopparkorrosionsforskning>, Koppars korrosion i ultrarent vatten, Mats Boman, Yvonne Andersson, Mikael Ottosson, Rolf Berger, SKB Delrapport 2012-04-10.

⁴ "Copper corrosion in drinking water systems – effect of pH and phosphate-dosage", J. Dartmann, B. Sadlowsky, T. Dorsch & K. Johannsen, Materials and Corrosion, Volume 61, Issue 3, pages 189–198, March 2010 (<http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/maco.200905241/abstract>).

“Copper corrosion in residential plumbing installations can lead to an increase in copper concentration in drinking water as well as to leakages. Central water treatment steps such as pH-adjustment or dosages of phosphate-based inhibitors are measures in reducing copper corrosion. **Especially phosphate in drinking water is believed to work as a corrosion inhibitor**, but it is currently uncertain as to how this inhibitor works. In some cases the phosphate dosage aggravated the copper corrosion. The mechanisms are not yet clear and the influence of phosphate and pH remain a question to be answered. The results of a German Gas and Water Works Association (DVGW) research project on copper corrosion are presented as follows. The influence and the mechanisms of decarbonisation, deacidification and phosphate dosing on copper release in residential plumbing installations were studied in pipe rig experiments according to the German standard DIN 50931-1. It shows that an increased pH-value can lead to a decrease in copper content and that a phosphate dosage can lead to both higher and lower copper concentrations.”

Även om det i de försök som redovisas i artikeln är fråga om syresatt vatten är det tydligt att fosfater på ytan av koppar påverkar benägenheten att bilda ”kopparkorrosionsprodukter”.

2. Synpunkter på att paket LOT S2 måste tas upp innan granskning i sak av slutförvarsansökan kan påbörjas

I de remissyttranden som föreningarna skickat in till Strålsäkerhetsmyndigheten och mark-och miljödomstolen 2012-06-01 (avsnitt 2.5.2.9) och 2013-10-15 (avsnitt 1.7 och 3.4.1.9) har kravet ställts att försökspaket S2 i det s.k. LOT-projektet som sökanden genomför i berglaboratoriet i Äspö vid Oskarshamns kärnkraftverk ska tas upp och analyseras som en komplettering till slutförvarsansökan innan ansökan kan prövas i sak. LOT-projektet har som mål att undersöka hur koppar och lera beter sig i en slutförvarsmiljö. Sökanden har i sina yttranden till mark- och miljödomstolen 2013-04-02, bilaga K:3, avsnitt 16.6, och 2013-11-18, bilaga K:9, punkt 274:31 och 274:13, avvisat detta krav.

Föreningarna har noterat att det i sökandens yttrande över kompletteringskraven 2013-11-18 anges att ett upptag av LOT S2-paketet nu planeras att ”enligt plan” ske mot slutet av 2010-talet. Det är första gången föreningarna hört talas om att planen nu är att ta upp försökspaket efter ungefär 20 år. Försökspaketet installerades år 2000 med den ursprungliga planen att ta upp paketet efter drygt 5 år.

Huvudskälet till att föreningarna vill se ett upptag av paket LOT S2 är att det finns både ett centralt kopparrör och särskilda kopparkuopper i försöket som kan undersökas för att förstå hur koppar beter sig i en syrgasfri slutförvarsmiljö. Försökspaketet A2 – som till skillnad från paket S2 utsatts för en högre temperatur än det är tänkt i slutförvaret – togs upp i januari 2006 efter att ha varit utsatt för en slutförvarliknande miljö i ungefär fem år. Den ursprungliga planen var att paketet S2 skulle tas upp och analyseras efter det att analysen av paket A2 var klart. Rapporten med resultaten från upptaget av paket A2 var i stort sett klart hösten 2006 men publicerades inte förrän i november 2009. Föreningarna menar att huvudskälet till att det tog så lång tid var att det hade förekommit oväntade förändringar i leran och oväntat stor kopparkorrosion. Detta betydde att det tog tid att försöka finna förklaringar till detta. Vad gäller kopparkorrosionen blev förklaringen att det stängts in syre i försökspaketet som sedan tagit sig fram till kopparytan på centralröret. Denna förklaring menar föreningarna helt saknar vetenskapligt stöd. Den kunskap som nu finns om hur snabbt syre förbrukas i ett försökspaket av den typ som LOT innehåller är att det endast tar månader innan försökspaketet är syrgasfritt. Därmed är nästan all den korrosion som skett i LOT-paketen syrgasfri.

I yttrandet 2013-04-02 skriver sökanden följande:

”Avsikten med LOT var inte att studera kopparkorrosion och försöket är inte optimalt för de undersökningar som eftersöks. Anledningarna till att upptaget av LOT S2 har senarelagts är:

1. Huvudsyftet med LOT är att studera förändringar i bentoniten. Det var svårt att dra slutsatser i den frågan från A2, eftersom lite hade hänt. Det ansågs därför att det vore bättre med en längre drifttid för S2.

2. Analys- och rapporteringsinsatsen för ett enskilt LOT-paket var avsevärt större än vad som antogs när den ursprungliga tidplanen för LOT-projektet togs fram. Detta är ett tungt skäl till den mycket långsamma rapporteringen från LOT A2. Upptaget av ett nytt paket kräver bättre planering och mer resurser.

3. LOT har kompletterats med projekt ABM (alternativa buffertmaterial). Detta projekt har fördelar när det gäller undersökning av buffertens egenskaper. Den om är förhöjda temperaturen i ABM jämfört med LOT S-försöken gör att eventuella reaktioner kommer att ske snabbare. ABM innehåller också en mängd olika material, vilket gör det möjligt att se om olika bentoniter har olika egenskaper. (Enligt punkt 1 så behöver dessutom LOT S2 mer tid för att nå sin fulla potential)."

Huvudargumentet från sökanden för att inte ta upp paketet S2 är således att LOT-projektet inte är tänkt för studier av kopparkorrosion. Detta är fel. I varje LOT-paket finns det kopparkuponger som är speciellt ditplacerade för att studera kopparkorrosion. Men dessutom är centralröret ett utmärkt försöksobjekt för att studera kopparkorrosion om sökanden bara vill. Längs röret finns det en temperaturgradient som gör att korrosionen kan kopplas till temperatur på kopparytan. Dessutom går det att studera transporten av koppar in i leran.

Dessutom menar föreningarna att det inte är riktigt att sökanden hade svårt att dra slutsatser vad gäller leran från upptaget av LOT A2 för att "lite hade hänt". Problemet var snarare att oväntade saker hade hänt. Det gör det angeläget att ta upp LOT S2 även för att studera vad som hänt med leran.

Det har aldrig publicerats några metallurgiska tvärsnittsundersökningar av kopparytor från något upptaget försökspaket i LOT-projektet. För kupongerna finns bara den svepande formuleringen: "Any obvious signs of pitting cannot be claimed" som resultatrapportering utan att redovisa metallurgiska tvärsnittsundersökningar. Föreningarna har dessutom förstått att centralröret från försökspaket LOT A2 har blästrats så att inga ytterligare studier av röret är möjligt. Eftersom det i metallurgiska tvärsnittsundersökningar finns tydliga tecken på gropfrätning på koppar vid upptaget av kapsel 5 och 6 i prototypförsöket⁵ så vore det av vikt att även kupongerna från det redan upptagna A2-paketet undersöktes vetenskapligt med avseende på gropfrätning. Dessutom måste metallurgiska tvärsnitt från själva kapselytorna för kapsel 5 och 6 i prototypförsöket redovisas.⁶

Föreningarna har i yttrandet 2013-10-15, avsnitt 2.2.3 ställt som krav på komplettering av ansökan att det utförs vetenskapliga metallurgiska undersökningar av koppar i LOT- och MiniCan-försöken i Äspölaboratoriet. Att ta upp paketet LOT S2 och något paket ytterligare i MiniCan-försöket, samt att göra vetenskapligt metallurgiska undersökningar av ytorna på de upptagna kapslarna 5 och 6 i prototypförsöket är en självklarhet för att förstå hur koppar påverkas av en syrgasfri slutförvarsmiljö. Föreningarna menar att sådana resultat måste finnas innan ansökan kan prövas i sak.

⁵ Se SKB-rapport P-12-22 "Analyser av koppar från prototypkapsel 5 och 6", Claes Taxén m.fl., Swerea Kimab, December 2012 (<http://www.skb.se/upload/publications/pdf/P-12-22.pdf>).

⁶ Metallurgiska tvärsnittsundersökningar med svepelektronmikroskop, SEM, redovisas i rapporten SKB P-12-22 (se not 5) inte för prover på kapselytorna utan endast från prover på den kopparring som legat ovanför kapsel 5. I sammanfattningen i rapporten står det explicit om kapsel 6 att "[k]apseln har inte specifikt undersökts avseende korrosion. Tvärsnitt av borkärnor genom kopparkapseln har dokumenterats metallografiskt och uppvisar inget anmärkningsvärt". Vad "inget anmärkningsvärt" betyder är oklart eftersom inga SEM-bilder från kapselytan redovisas trots att de med all sannolikhet finns. I rapporten förklaras avsaknaden av korrosionsstudier på kapsel 6 med att kapseln "förvaras i tunnelsystemet vid Äspö under några månader bedömdes det inte meningsfullt att undersöka denna kapsel med avseende på korrosion". En sådan förvaring skulle dock inte hinna ge gropfrätning på kapselytan, så för att undersöka kapselytan med avseende på gropfrätning skulle var högst motiverat. Av intresse för förståelsen av resultat av korrosionsundersökningar av kapselytorna är dock förmodligen att ytorna på kapsel 5 och 6 till skillnad från kopparringen ovanför kapsel 5 har varit påverkade av molybdensulfid som använts som smörjmedel när bentonitblocket tillverkades.

Som inledningsvis konstaterats står det i sökandens yttrande över kompletteringskraven 2013-11-18, punkt 274:31 och 274:13, att ett upptag av LOT S2-paketet nu planeras att "enligt plan" ske mot slutet av 2010-talet. Trots att den ursprungliga planen var att bryta paketet år 2007 och att det finns två ytterligare paket A3 och S3 som enligt den ursprungliga planen skulle ha tagits upp efter tio år. Dessa har redan varit aktiva i ca 12 år. Föreningarna anser att huvudskälet till att sökanden inte vill ta upp försökspaketet LOT S2 är att det finns en stor risk att resultaten visar att sökandens KBS-metod inte fungerar. Föreningarna anser inte att detta agerande kan tillåtas. Försökspaket LOT S2 måste tas upp och analyseras inom kompletteringsfasen av prövningen av slutförvarsansökan och innan ansökan kan prövas i sak.

3. Synpunkter på behovet av kvalitetsgranskning av och insyn i sökandens forskning och utveckling om funktionen av de konstgjorda barriärerna av koppar och lera,

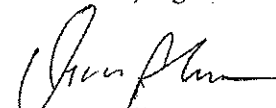
Föreningarna har i yttranden 2012-06-01, 2012-12-13 och 2013-10-15 framfört synpunkter på sökandens vetenskaplighet vad gäller genomförande och publicering av forskning och utveckling. Särskilt har detta gällt frågeställningar som rör funktionen av de konstgjorda barriärerna av koppar och lera.

Föreningarna menar att det behövs en granskning av kvalitetssäkring av de viktigaste delarna av sökandens arbete med dessa frågeställningar. Strålsäkerhetsmyndigheten bör påbörja en sådan granskning. Föreningarna menar att det i samband med en sådan granskning skulle vara önskvärt med en möjlighet för andra aktörer, t.ex. Kärnavfallsrådet, kärnavfallskommunerna och miljöorganisationer, att följa granskningsarbetet. I den mån det dessutom tas beslut om att sökanden ska genomföra fortsatt eller ny forskning inom området för att komplettera ansökan så är en sådan insyn önskvärd.

Föreningarna konstaterar att den referensgrupp som sökanden haft för att följa forskning som genomförs om syrgasfri kopparkorrosion nu helt har tappat sin funktion. Därmed finns för närvarande ingen som helst oberoende insyn i sökandens arbete. Det vore därför utmärkt om Strålsäkerhetsmyndigheten genom lämpligt agerande skulle kunna öka insynen.

Vänligen,

Stockholm, dag som ovan



Oscar Alarik,
Jurist, Naturskyddsföreningen

Kontaktuppgifter

E-post: oscar.alarik@naturskyddsforeningen.se

Adress: Svenska Naturskyddsföreningen

Box 4625

116 91 Stockholm

Mobil: 070-6113229

Tel: 08-7026539



Miljöorganisationernas
kärnavfallsgranskning

Bilaga 1

2013-12-06

Till: Mats Boman
Ångströmlaboratoriet
Uppsala universitet
mats.boman@uu.se

Öppet brev efter Kärnavfallsrådets symposium den 20-21/11 om barriärernas funktion

Bäste Mats!

Jag skriver till dig med anledning av en diskussion jag hade med Johannes Johansson från SKB mot slutet av första dagen på Kärnavfallsrådets symposium i förra veckan om barriärernas funktion. Eftersom Johannes förstod att jag fortfarande inte var klar över några frågor som rörde den forskning du och dina kollegor bedriver vid Ångströmlaboratoriet så sökte vi efter dig för att få klargöranden. Tyvärr hade du redan gått och du var ju inte heller närvarande den andra dagen av symposiet.

Johannes och jag var dock överens om att det vore bra om jag kunde få svar på de frågetecken som jag hade. Dessutom uppmuntrade han mig att komma med förslag, om jag hade några, på vad som ytterligare kunde göras för att ge klarhet i frågan om kopparkorrosion i rent syrgasfritt vatten. Därför skriver jag detta öppna brev till dig. Du får ha förståelse för att jag inte är någon korrosionsexpert eller har någon egen erfarenhet av att arbeta experimentellt med vakuumsystem eller liknande. Därför kan någon av frågeställningarna nedan bygga på att jag inte förstått tillräckligt. Samtidigt är det väldigt komplicerade system och processer vi talar om.

1. Jag vill börja med att för det första få klarhet i hur mycket vätgas som finns i och släpps ut från stålet i den utrustning som från början använts i försöken i Uppsala. Om jag har förstått saken rätt så har det kunnat göras mätningar på en tät och tom försöksutrustning av samma stål som finns i de försök som utförts¹. Därmed borde det finnas utgasningskurvor för vätgas ur stålet jag skulle vilja att du redovisar. Dessa mätningar kan ge en bild av den vätgasmiljö som kopparbitarna utsatts för både i de tre försöken med vätgasmätning och i de fem försöken utan mätning av vätgas.

¹ Allan Hedin från SKB anger på sidan 23 i sin presentation från Kärnavfallsrådets symposium att vätgasbakgrunden i era försöksutrustningar är $\sim 10^{-3}$ mbar/dag i 100 cm³ gasvolym. Presentationerna från symposiet finns här: <http://www.karnavfallsradet.se/utfragningar-seminarier/new-insights-into-the-repository-s-engineered-barriers-2013>.

Miljöorganisationernas kärnavfallsgranskning (MKG)
Norra Allégatan 5, 413 01 Göteborg
Tel: 031-711 00 92 Fax: 031-711 46 20
Org nr: 802420-8384

www.mkg.se
Bankgiro: 738-0793

Dessutom kan kurvorna jämföras med de första vätgaskurvor som presenterades på det trettonde mötet med referensgruppen den 24 augusti 2012².

Jag vill passa på att få klarhet om vilket stål som använts i försöken. Du hade en ordväxling på Kärnavfallsrådets symposium med Peter Szakálos från KTH där han ifrågasatte att rätt stål använts för försöket medan du sa att det inte var något problem. Ni diskuterade om stålet var av UHV-kvalitet, dvs för användning i ultrahögt vakuum. Om jag har förstått rätt ska ett stål som benämns 316L³ användas för att minimera vätgasbakgrunden. På sidan 13 i det utkast till rapport "SKB R-13-31 Koppars korrosion i ultrarent vatten" som skickades för granskning till SKB:s referensgrupp för forskning om kopparkorrosion i en syrgasfri miljö i juni 2013 sägs att materialet i metallbehållarna utgjordes av rostfritt stål 316L, men att materialet i de flesta byggdelen för vakuumkammaren i kontakt med reaktionskammaren utgjordes av rostfritt stål 304⁴. Men på sidan 3 i den delrapport som beskriver experimentuppställningen som SKB:s referensgrupp för forskning om kopparkorrosion i en syrgasfri miljö fick ta del av på gruppens tolfte möte den 7 maj 2012 står det att glasbägaren med ultrarent vatten innesluts i en rostfri behållare gjord i ett stycke av 304 rostfritt stål⁵. Delrapporten är framtagen före det att försöken startades, men försöken måste ha startats strax efter referensgruppsmötet eftersom mätningar som pågått minst 2 200 timmar redovisades på det trettonde referensgruppsmötet den 24 augusti 2012. Vad jag förstår är stål som betecknas 304, utan L, det enklaste rostfria stålet – även kallat 18-8 – utan krav på låga halter interstitiella föroreningar t.ex. kol, kväve och väte). När startades försöken och var det verkligen rostfritt stål 316L i behållarna? Finns det i så fall inköpsverifikat som visar det?

På symposiet frågade jag dig i diskussionen efter Allan Hedins presentation om ni hade fått ordning på vätgasbakgrunden från stålet i de nya försök som startats vid laboratoriet. Du sa att så var fallet och det står så på sidan 41 i din presentation. Jag antar att det då finns motsvarande mätkurvor att redovisa från utgasning av vätgas ur stålet som nu används och jag ber dig göra det.

Det verkar som det kan anses visat – se min tredje punkt nedan – att det i första hand är "Uppsala-behandlingen" av kopparproven, d.v.s. ytbehandling och efterbehandling som i era försök, som begränsar vätgasutvecklingen från kopparytan. Därmed är vätgasbakgrunden i behållarna kanske mindre viktig att förstå. Avsikten med Uppsalaförsöken var dock från början att både använda elektrolytpolerad koppar och koppar som polerats mekaniskt⁶. Försök med mekaniskt polerat koppar som mer liknar slutförvarskoppar samt försök i andra miljöer än rent

² Se sidan 6-7 i bilaga A på <http://www.mkg.se/trettonde-motet-for-referensgruppen-for-skbs-kopparkorrosionsforskning>. Resultaten finns även på sidan 36-38 i din presentation på rådets symposium. Presentationerna från symposiet finns här: <http://www.karnavfallsradet.se/utfragningar-seminarier/new-insights-into-the-repository-s-engineered-barriers-2013>.

³ Bokstaven L efter sifferbeteckningen anger att det är fråga om ett så kallat syrafast rostfritt stål med extra låg halt av interstitiella föroreningar

⁴ Utkastet finns här: <http://www.mkg.se/forskare-lamnar-skbs-referensgrupp-om-syrgasfri-kopparkorrosion>. Skälet för att publicera utkastet redovisas på sidan.

⁵ Delrapporten finns här: <http://www.mkg.se/tolfte-motet-for-referensgruppen-for-skbs-kopparkorrosionsforskning>.

⁶ Någon gång mellan hösten 2010/våren 2011 och september 2011 bestämde sig Uppsalagruppen att endast utföra försök med elektrolytpolerad koppar. I Uppsalapresentationen på det nionde referensgruppsmötet den 21 september finns för första gången endast elektrolytpolering med i beskrivningen av försöken. Tidigare har angetts att försök ska göras med både elektrolytpolerad och mekaniskt polerad koppar.

vatten är förmodligen aktuella i framtiden. Då måste vätgasbakgrunden i försöksutrustningen var känd och låg.

Jag passar under denna punkt på att fråga om vätgashalten i handskboxen som ju har en kväveatmosfär. Vätgashalten i luft är ca 0,5 ppm. I utkastet till rapport "SKB R-13-31 Koppars korrosion i ultrarent vatten" som skickades för granskning till referensgruppen i juni 2013 står det att kvävgasen har en garanterad renhet av 99.9999 % men är normalt sett i själva verket en tiopotens renare. Dessutom står det att gasen renas i handskboxen med avseende på syrgas och vatten. Men, vad är vätgashalten i handskboxen med tiden? Finns det källor som gör att den kan öka med tiden? Vätkas från de öppna försöken? Vätkas som läcker ut ifrån all försöksutrustning yttre ytor? Kan det komma vätkas från reningsprocessen? Vad är det för partialtryck av väte inne i handskboxen?

Dessutom har jag funderat på om det är ett problem att det inte finns syrgas ovanför palladiummembranet i de "öppna" försöken. Kan det inte vara så att det är syrgas mot den yttre palladiumytan som reagerar med vätkas som ger en drivkraft för att föra ut väte ur behållaren om den står i luft och inte i en kvävgasmiljö? Självklart kan ett vakuum på utsidan av membranet driva vätkas genom det som i de slutna försökssystemen. Men kan det finnas något problem med ett palladiummembran som inte har syre på utsidan. Särskilt om det byggs upp ett partialtryck av vätkas i handskboxen enligt ovan. Hur fungerar egentligen palladiummembranet? Kan vätkastransport stoppas genom bildandet av palladiumhydrider om det inte finns syre på utsidan? Denna fråga borde naturligtvis utredas. Hur stor skillnaden mellan att använda luft eller en kväveatmosfär utanför palladiummembranet?

2. Det andra jag skulle vilja få klarhet i är frågan som uppstått om elektrolytpoleringen skulle kunnat föra in vätkas i kopparytan⁷. Behandlingen av koppar i Uppsala innan försök genomförs skiljer sig från alla andra försök som gjorts för att undersöka hur koppar beter sig i rent syrgasfritt vatten. Behandlingen beskrivs kortfattat för första gången på sidan 8-9 i den delrapport som SKB:s referensgrupp för forskning om kopparkorrosion i en syrgasfri miljö fick ta del av på gruppens tolfte möte den 7 maj 2012⁸. En lite utförligare beskrivning finns på sid 11 och 73-75 i det utkast till rapport "SKB R-13-31 Koppars korrosion i ultrarent vatten" som skickades för granskning till referensgruppen i juni 2013⁹. Själv beskrev du processen på sidan 15 i din presentation på Kärnavfallsrådets symposium.

Efter elektrolytpoleringen har provbitarna med Uppsalakoppar behandlats i en ultravakuumugn. Proverna har upphettats till 300° i vätkas för att ta bort oxider från ytan och sedan har temperaturen höjts till 400° för att försöka driva ut eventuell vätkas i provet. På sidan 75 i utkastet till rapport "SKB R-13-31 Koppars korrosion i ultrarent vatten" visas hur vätkas, kvävgas och vatten försvinner ur ugnen. Det är svårt att läsa av det nedre diagrammet, men det övre diagrammet återkommer på

⁷ Vad jag har förstått är det ett välkänt problem i industrin att elektrolytpolering kan ge väteladdning/väteförsprödning även på anodmetallen. Detta p.g.a. att molekyllärt väte (elektriskt neutralt) bildas i stora mängder och löses i elektrolyten vilket sedan dissocierar och tränger in i både anod och katod. En industriell metod har utvecklats som innebär att man lägger på så mycket spänning att en extra kraftig syrgasbubbling sker på anoden. Då och endast då kan man garantera att väteupptag och väteförsprödning inte sker. Elektrolytpoleringen i Uppsalaförsöket beskrivs på sidan 73 i utkastet till rapport "SKB R-13-31 Koppars korrosion i ultrarent vatten". Poleringen verkar vara utförd på ett enkelt sätt och inte så att väteupptag skulle hindras.

⁸ Delrapporten finns här: <http://www.mkg.se/tolfte-motet-for-referensgruppen-for-skbs-kopparkorrosionsforskning> .

⁹ Utkastet finns här: <http://www.mkg.se/forskare-lamnar-skbs-referensgrupp-om-syrgasfri-kopparkorrosion> . Skälet för att publicera utkastet redovisas på sidan.

sidan 15 i din presentation. Frågan är dock om det som visas bara är att ugnen töms på vätgas. Att vätgas som kan ha förts in i kopparproverna vid elektrolytpoleringen skulle försvinna genom ett par timmars värmebehandling vid 400° är kanske inte troligt.

På symposiet redovisade du dessutom olika vätgasmätningar på kopparproverna vid olika tidpunkter men jag uppfattade att de alla gäller bulkmätningar¹⁰. Det som är intressant är att få en bild av hur vätgasprofilen ser ut innanför kopparytan. Sådan information försvinner ju i en bulkmätning. Jag föreslår därför att det görs ett utgasningsförsök där vätgasmängderna registreras med tiden så att en profil på vätgasinnehållet i kopparprovet erhålls. Vad jag har förstått har Gunnar Hultquist och Hannu Hänninen använt sig av sådan teknik, en stegvis upphettning av Cu i vakuum och registrering av vätedesorption som funktion av temperatur och tid. Denna typ av mätningar är tydligen något som kräver erfarenhet för att tolka resultaten men det är kanske Gunnar Hultquist kan hjälpa till med.

Ett alternativ skulle kunna vara att utföra en SIMS-mätning av vätgas på ett tvärsnitt för att få en vätgasprofil. Detta har Gunnar Hultquist gjort åt SKB på koppar från prototypförvaret så även här skulle han kunna hjälpa till.

Jag har även några funderingar om de bulkmätningar som redovisas på sidan 27, "Result solid phase: Gas fusion analysis of Cu", i din presentation på Kärnavfallsrådets symposium. Det står att mätningarna gjorts med en utrustning som heter Bruker G8 Gallileo. Utrustningen finns beskriven på Brukers hemsida och det står att en nominell mängd på 0,5 g behövs för att mäta vätgas i ppm-området¹¹. Bara om mätningar ska göras av låga ppb-halter behövs prov på 10 g eller mer. Alla mätvärden i din presentation ligger kring 1 ppm. I din presentation står även att de övre värdena inte är riktiga eftersom provet var för litet. Men använde ni verkligen prover på mycket mindre än 0,5 g? Det står sedan att den undre mätningen gjordes med "adequate amounts of Cu". Vad betyder det för mängder i så fall? Resultaten verkar väldigt konstiga. De borde inte kunna fås en sådan minskning av vätgas i koppar om det inte handlade om prover som avsiktligt behandlats för att driva ut väte ur dem.

Innan jag fortsätter undrar jag även om du kan förklara varför det finns så stora förekomster av andra ämnen än koppar i tabell 1, "XPS-analys av kopparsubstraten, värden i atomprocent", på sidan 20 i delrapporten som SKB:s referensgrupp för syrgasfri kopparkorrosion fick ta del av på gruppens tolfte möte den 7 maj 2012¹². Det står i texten att "fosfor kom troligtvis ifrån elektrolytpoleringen", men det finns ju även fosfor i det obehandlade provet. Det verkar märkligt att 99,9999% ren koppar innehåller så stora mängder av andra ämnen än koppar. Ni skriver att "XPS är en ytkänslig metodik som inte ger en bild av bulksammansättningen och att dressa värden avspeglar således inte den totala renheten". Men jag är ändå lite fundersam.

3. Det tredje jag vill diskutera är hur det går att gå vidare med försök på koppar för att förstå varför det inte utvecklas vätgas från koppar som ytbehandlas som i Uppsala. På Kärnavfallsrådets symposium presenterade Allan Hedin från SKB mätningar gjorda på "Uppsalakoppar" av Karsten Pedersen m.fl. på Microbial Analytics Sweden,

¹⁰ Sidorna 26-27 i din presentation på Kärnavfallsrådets symposium. Presentationerna från symposiet finns här: <http://www.karnavfallsradet.se/utfragningar-seminarier/new-insights-into-the-repository-s-engineered-barriers-2013>.

¹¹ <http://www.bruker.com/products/x-ray-diffraction-and-elemental-analysis/csonh-analysis.html>

¹² Delrapporten finns här: <http://www.mkg.se/tolfte-motet-for-referensgruppen-for-skbs-kopparkorrosionsforskning>.

Mican, i Mölnlycke^{13,14}. Det är då tydligt att all koppar som behandlats som kopparproverna som använts i Uppsalaförsöken, d.v.s. elektrolytpolering med efterföljande behandling, inte ger någon vätgasutveckling, åtminstone till att börja med. Det gäller både 99,99% koppar och 99,9999% koppar (se sidan 26). Kopparens renhet är tydligen inte avgörande, trots att det verkar som om Allan Hedin på sidan 27 i sin presentation ser det som en möjlighet att det är föroreningar som ger vätgasproduktionen från mindre ren koppar när den inte är Uppsalabehandlad.

Vad kan då göras ytterligare för att förstå frågan om syrgasfri kopparkorrosion i vatten?

För det första måste ytan på 15-måndersprovet undersökas med avseende på korrosionsprodukter. Vad jag har förstått förekom uppgifter på sjuttonde mötet för referensgruppen för forskning om kopparkorrosion i en syrgasfri miljö den 3 oktober 2013 att det kan ha förekommit mätningar som kan visa på korrosionsprodukter på kopparytan i detta provpaket.

För det andra måste naturligtvis försöken som redovisas i Allan Hedins presentation fortsätta vid Mican för att se om vätgas börjar utvecklas med tiden i de båda kvaliteterna av Uppsalabehandlad koppar. Detta för att avgöra om Uppsalabehandlingen bara ger ett tillfälligt skydd mot vätgasutveckling.

För det tredje måste naturligtvis ytan på de prov med mekanisk polerad koppar i Mican-försöken som producerar vätgas studeras nog. Förekommer kopparkorrosionsprodukter på de ytorna? Eftersom Mican saknar utrustning för sådana undersökningar kan de göras i Uppsala eller någon annanstans. Men de måste naturligtvis redovisas.

För det fjärde säger Allan Hedin själv på sidan 27 i sin presentation på Kärnavfallsrådets symposium att det måste uteslutas att det inte finns vätgas i ytan på Uppsalabehandlad koppar som kan ha tillförts under ytbehandlingen. Denna fråga behandlar jag ovan i frågeställning nummer två där jag föreslår hur detta skulle kunna undersökas.

Om frågan om effekter av vätgas i den Uppsalabehandlade kopparytan kan avfärdas återstår att undersöka hur slätheten av koppar påverkar vätgasutvecklingen. Du tar själv upp frågan på din näst sista bild i din presentation vid Kärnavfallsrådets symposium. Den kurva du visar där gäller för vanlig korrosion i luft, men korrosionshastigheten sjunker mot noll när ytan blir helt slät. Nu är naturligtvis aldrig en kopparyta helt slät, men en vattenmolekyls reaktionen mot kopparytan, om den sker, måste vara betydligt mer komplicerad än en "vanlig" kemisk reaktion. Så ytteffekten kan vara större vid syrgasfri korrosion i vatten. Det innebär att för det femte så bör ett försök göras där Uppsalabehandlad koppar av olika renhetsgrad används i Mican-försök efter att först ha genomfört en lätt mekanisk polering av ytorna. För att se hur det påverkar möjligheten att få en vätgasproduktion från Uppsalakoppar.

¹³ Se sidan 25-26 i Allan Hedins presentation på Kärnavfallsrådets symposium. Presentationerna från symposiet finns här: <http://www.karnavfallsradet.se/utfragningar-seminarier/new-insights-into-the-repository-s-engineered-barriers-2013>.

¹⁴ Det försök från Mican som det jämförs med i diagrammen finns redovisade i rapporten "SKB TR-13-13, Development of a method for the study of H2 gas emission in sealed compartments containing canister copper immersed in O2-free water, Bengtsson m.fl., June 2013 (<http://www.skb.se/upload/publications/pdf/TR-13-13.pdf>)

Slutligen angav Allan Hedin på symposiet att det skulle finns tecken på att koppar i Micanförsöken "tröttnade" på att producera vätgas vid upprepade evakueringar. För det sjätte måste detta naturligtvis redovisas och orsaken undersökas. Trots allt visar inte de långtidsförsök som Gunnar Hultquist vid KTH utfört att vätgasavvecklingen från kopparytor i rent syrgasfritt vatten skulle avta.

Frågor som rör hur försök utförs vid Mican är naturligtvis inte sådana som du kan besluta om, men jag antar att det har utvecklats ett samarbete mellan Uppsalagruppen och Mican som skulle kunna vidareutvecklas.

Och allra sist ber jag dig verka för att SKB ser till att de presentationer som Mikael Ottosson och Karten Pedersen gjorde på det sjuttonde referensgruppsmötet den 3 oktober skickas till referensgruppen med kopia till SSM, Kärnavfallsrådet och MKG så fort som möjligt. Det hemlighållande av presentationer fram till att protokollet är klart som SKB började med när MKG lämnade referensgruppen skapar bara oklarheter och omöjliggör att de som var med på mötet kan kontrollera om de minns rätt. Detta helt i onödan.

Jag har förstått att du har varit irriterad på att MKG haft kunskap om vad som händer på referensgruppsmötena även efter vi lämnat gruppen. Jag vill där för meddela dig att för det första så vidarebefordrar Milkas, som observatör i gruppen, all den korrespondens som sker inom gruppen till mig. För det andra har jag som rutin att efter varje möte ringa upp flera deltagare för att få en beskrivning av vad som hänt. Eftersom det aldrig funnits några sekretessregler för gruppen – avsikten med projektet var ju öppenhet – så ser jag inget problem med detta.

Jag har konsulterat Olle Grinder, PM Technology AB, när jag skrivit detta öppna brev. För att undvika att jag uppfattat olika vetenskapliga frågor fel har jag även haft kontakt med Peter Szakálos och Gunnar Hultquist vid KTH. Detta sagt är detta brev helt mitt eget ansvar och eventuella felaktigheter och missförstånd ligger helt på mig.

Med vänlig hälsning,

Johan Swahn

Kanslichef

070-467 37 31

johan.swahn@mkg.se

Kopia:

Johannes Johansson, SKB

Jan Linder, Clara Anghel, Strålsäkerhetsmyndigheten

Willis Forsling, Hannu Hänninen, Kärnavfallsrådet

SKB:s referensgrupp för syrgasfri kopparkorrosion, samt Milkas som observatör

Gunnar Hultquist, Christoffer Leygraf, Peter Szakálos, KTH

Karsten Pedersen, Microbial Analytics Sweden, Mican

Olle Grinder, PM Technology AB