



## Svar på begäran om synpunkter på inlagor rörande kopparkorrosion

Strålsäkerhetsmyndigheten (SSM) har av Miljö- och energidepartementet anmodats att lämna synpunkter på två skrivelser som inkommit till departementet. Skrivelserna kommenterar SSM:s granskning och roll i tillståndsprövningen av Svensk Kärnbränslehantering AB:s (SKB) ansökningar om uppförande, innehav och drift av ett KBS-3-förvar i Forsmark för slutförvaring av använt kärnbränsle. Den ena skrivelserna (datum saknas) är författad av Peter Szakálos, Christofer Leygraf, Anders Rosengren, Seshadri Seetharaman, Olle Grinder och Jan Linder (benämns nedan Szakálos m.fl.) och den andra (daterad 25 april 2018) av Torbjörn Åkermark.

### Utgångspunkt och övergripande angreppssätt

SSM noterar att såväl Szakálos m.fl. som Åkermark gör sina bedömningar kring KBS-3 metoden för slutförvaring av använt kärnbränsle med utgångspunkt från kapselkorrosionsfrågor utan beaktande av att slutförvarskonceptet i SKB:s ansökan utgör ett multibarriärssystem som förutom kapseln inkluderar bufferten och det omgivande berget. SSM har i sin granskning utgått från hela slutförvarskonceptet med samtliga tre barriärer (kapsel, buffert, berg), och har under en följd av år utvärderat förutsättningarna för detta slutförvarskoncept vid den utvalda Forsmarksplatsen. I den säkerhetsfilosofi som har utvecklats internationellt under mer än fyrtio år har krav på att använda flera barriärer varit ett viktigt inslag eftersom det redan tidigt funnits en insikt kring svårigheterna i att få en fullständig visshet kring en enskild barriärs skyddsförmåga för de mycket långa tidsskalorna. Detta gäller såväl för den kopparkapsel som SKB föreslår, som för en kapsel tillverkad av ett annat material. Det kommer sannolikt aldrig att finnas någon tidpunkt då det finns definitiva svar på samtliga frågor kopplade till förvarets långsiktiga skyddsförmåga, vare sig det gäller kapselns korrosion och inneslutningsförmåga, för att ta de exempel som lyfts i de två skrivelserna, eller andra frågor. Därför behöver slutförvarets långsiktiga skyddsförmåga bedömas utifrån samtliga barriärers funktioner och samverkan.

En omständighet som inte förefaller ha beaktats i de två skrivelserna (Szakálos m.fl. och Åkermark) är att buffertens och bergets egenskaper långsiktigt främjar långsamma transportprocesser i kapselytornas närhet och därmed bidrar till att begränsa de omnämnda korrosionsprocessernas omfattning. SSM bedömer att dessa egenskaper kan beläggas med god tilltro och att platsundersökningarna har visat på förekomst av låg sprickfrekvens i berggrunden vid Forsmark vilket är en gynnsam egenskap i detta sammanhang. Med detta i beaktande anser SSM att kopparkapselns betydande tjocklek på 50 mm bidrar till robusthet i perspektivet korrosion och detta är ett av skälen varför myndigheten bedömer att en kopparkapsel enligt SKB:s föreslagna utformning är bästa möjliga teknik (1,2). Med denna utformning bidrar kapseln i hög utsträckning till förvarets skyddsförmåga även om väsentligt högre korrosionshastigheter hypotetiskt skulle förekomma i jämförelse med de



som SKB redovisar i huvudscenariot i SR-Site (3). De andra barriärerna, buffert och sprickfattigt berg i Forsmarkslinsen, bidrar också till att begränsa spridning av radionuklider som en följd av ett eventuellt läckage, vilket inom ramen för säkerhetsanalysberäkningar visats begränsa dos/risk till nivåer motsvarande bakgrundsstrålningen eller lägre för pessimistiska fall med avseende på kapselns täthet, dvs. under antagandet att tidiga kapselbrott sker (3,4).

## Tillverkningskrav

SSM instämmer med Åkermark att specifikation av kriterier för att säkerställa uppfyllelse av tillverkningskrav är en nödvändig del för att realisera ett slutförvar som uppnår målen för säkerhet under drift och långsiktig strålsäkerhet efter slutlig förslutning. Fördelningen av ansvar är sådan att SSM definierar krav på redovisning samt övergripande utformning och skyddsnivåer, och att SKB med utgångspunkt från dessa tar fram egna detaljerade krav på tillverkning och uppförande som SSM sedan granskar. Beträffande förslaget att definiera krav på en specifik korrosionsbeständighet så är detta svårtillämpbart och kravuppfyllelse kan inte fastställas på samma sätt som uppfyllelse av tillverkningskrav för slutförvarskomponenter. En myndighetsfilosofi baserad på delsystemskriterier, exempelvis tidskriterium för fullständig täthet för en kapsel, fanns med i föreskrifter i USA under tidigt 80-tal men kritiserades bl.a. av den amerikanska vetenskapsakademien och fasades sedermera ut (5). Idag finns det ett brett internationellt stöd för att i slutförvarssammanhang tillämpa generella krav på barriärer/barriärfunktioner i kombination med krav på övergripande skyddsnivåer (6,7).

## Allmän korrosion av koppar i syrgasfritt vatten

Åkermark ställer sig frågande till SSM:s resonemang kring en hypotetisk hastighet för korrosion i rent syrgasfritt vatten med hjälp av termodynamiska överväganden. SSM avser i detta fall inte ytreaktioner utan analyserar förutsättningar för korrosionen om den fortgår utan passivering men begränsas av ett närmande mot lokal kemisk jämvikt vid kapselytan. Slutförvarssystemet i sin helhet är i detta fall inte i kemisk jämvikt men reaktionen kan enbart fortskrida med en hastighet som styrs av borttransport av löst bildad vätgas genom buffert och berg, vilket beskrivits som ett tillstånd av kvasi-jämvikt (8).

I den studie som på senare år initierade en debatt om frågan föreslås att korrosion av koppar i rent syrgasfritt vatten som innefattar bildning av en korrosionsprodukt med den hypotetiska sammansättningen  $H_xCuO_y$  som närmar sig kemisk jämvikt vid partialtryck för vätgas överstigande 1 mbar vid 73°C (9). Det förväntade partialtrycket baserat på beräkningar med kända termodynamiska data är emellertid  $10^{-6}$  mbar (10). I en efterföljande studie föreslås bildning av CuOH i rent syrgasfritt vatten med en vätgasbildning som avtar med minskande temperatur (cirka 1,37 mbar vid 55°C och cirka 0,4 mbar vid 21°C) och att reaktionen reverseras vid högre partialtryck för vätgas (11). Beräkningar har utförts för att utröna betydelsen av den reaktion som postuleras ovan i en slutförvarsmiljö för olika fall såsom mättad buffert, omättad buffert och eroderad buffert (12,13). Dessa beräkningar indikerar mycket låga korrosionshastigheter vilket beror på att endast mycket små vätgasmängder kan ackumuleras i systemet innan reaktionen avstannar. Detta beror i sin tur på transportbegränsningar i systemet och att det kemiska jämviktsläget är starkt förskjutet åt reaktantsidan snarare än produktsidan, vilket ger en liten drivkraft för reaktionen att bilda korrosionsprodukter. Under olika laboratorieexperiment kan möjligen reaktionen fås att fortskrida genom olika arrangemang för att avleda vätgas, såsom genom användning av ett palladiummembran eller avgasning med inert syrefri kvävgas (8,14). Det finns dock även försök som visar på motsatsen liksom påvisar alternativa förklaringar till den vätgasbildning som uppmäts i vissa experiment (10).



SSM:s omnämmande av korrosionshastigheter i ett system med små transportbegränsningar som Åkermark ifrågasätter har baserats på publicerad experimentell data med avseende på omfattning av vätgasbildning vid olika temperaturer med hänsyn till uppskattning av vätgasförluster (11,15). Detta fall skulle kunna ha viss betydelse för ett fall då mikrobiell konsumtion av bildad vätgas äger rum i en omättad buffert (avsnitt 5.11.4.2 i (1)).

SSM är av uppfattningen att även om den ovanstående reaktionen i princip existerar så är det mest troliga fallet att den sker i mycket liten omfattning under bildningen av mineralet kuprit  $\text{Cu}_2\text{O}(s)$  i enlighet med beräkningar baserad på känd information i termodynamiska databaser (16,17). I annat fall återstår att finna en korrosionsprodukt med identifierad sammansättning och kända termodynamiska egenskaper som kan förklara den mer omfattande men ändå starkt begränsade vätgasbildningen som har noterats under vissa typer av experiment (9,11). Detta har inte uppnåtts vare sig i den publikation som Szakálos m.fl. citerar (18) eller i någon annan publikation som SSM är medveten om. SSM anser dock att det inte helt går att utesluta att en sådan typ av korrosionsprodukt verkligen existerar och har därför förordat att Hultquists, Szakálos m.fl. (9,11) forskning åtminstone tills vidare bör beaktas som en grund för en alternativ konceptuell modell inom ramen för säkerhetsredovisningar i SKB:s program. Frågan bör följas upp av SKB fortsättningsvis men som konstaterats ovan bedöms dock betydelsen av denna process för slutförvarets långsiktiga strålsäkerhet, oavsett vilken tolkning som visar sig vara korrekt, vara liten med tanke på systemets materieöverföringsbegränsningar och eftersom SKB:s referensutformning har baserats på en tilltagen korrosionsbarriär.

## Övriga korrosionsmekanismer

Beträffande lokala korrosionsprocesser, som gropfrätning och spänningskorrosion, liksom olika former av mekanisk påverkan på kopparkapseln, såsom väteförsprödning, vilka omnämns i de båda skrivelserna, så hänvisar SSM för utförliga bedömningar till sin granskningsrapport (1). SSM konstaterar att i motsats till frågan om den alternativa konceptuella modellen kring korrosion i rent syrgasfritt vatten som diskuteras ovan så är de bedömningar som görs av Åkermark och Szakálos m.fl. avseende dessa processer av en mer allmän och ospecificerad karaktär.

SSM har därför haft svårt att bedöma giltigheten av slutsatser av typen ”kapselhaverier initieras redan inom 100 år och att en majoritet av kopparkapslarna är förstörda inom 1000 år” för spänningskorrosion och övriga snabba processer i Szakálos m.fl., eller att för fallen spänningskorrosion och väteförsprödning kan kapslarna spricka sönder på bara något år i Åkermark. Det saknas spårbara data och beräkningar som underbygger slutsatserna liksom detaljerade beskrivningar av under vilka förutsättningar som författarna tänker sig att dessa processer förväntas medföra mycket tidiga kapselbrott. Det blir därmed svårt att värdera underlaget för ett i förhållande till SKB alternativt synsätt kring dessa processer och deras betydelse för slutförvarets långsiktiga strålsäkerhet. Detta gäller såväl de båda inkomna skrivelserna som tidigare granskningsrapporter och remissvar som SSM har tagit del av (19, 20).

Vissa formuleringar i Szakálos m.fl. kan tolkas som att SKB i sin ansökan inte alls har adresserat lokala korrosionsmekanismer såsom exempelvis gropfrätning och spänningskorrosion av koppar i oxiderande respektive reducerande kemisk miljö. I den ursprungliga ansökan har SKB emellertid sammanställt den då hittills genomförda relevanta forskningen och har anfört argument varför slutförvarsmiljön inte gynnar dessa processer (21-23). SKB:s ursprungliga redovisning har på anmodan av SSM kompletterats under granskningsprocessen vilket har resulterat i en fördjupad redovisning från SKB kring vissa processer (exempelvis 24,25). SSM har också i sin granskning av deras betydelse för slut-



förvarets långsiktiga strålsäkerhet tagit stöd av egen forskning kring ett urval av processer (exempelvis 26,27), ett arbete som även behöver bedrivas långsiktigt för att ge underlag för fortsatta granskningar och för att upprätthålla myndighetens granskningskompetens.

SSM anser att det föreligger behov av utvecklingsarbete, liksom av en fördjupad redovisning kring en möjlig betydelse av lokala korrosionsprocesser i slutförvarsmiljön. De kvarstående frågorna har dock inte bedömts ha en sådan betydelse att myndigheten inte kan ta ställning till de slutsatser som SKB drar kring slutförvarets skyddsförmåga och möjliga omgivningspåverkan (1). SSM utesluter inte uppkomst av en initialt förekommande transportväg i gasfas genom bufferten och en långvarigt upprätthållen mikrobiell sulfatreduktion i återfyllnaden. Detta kan möjliggöra en snabbare tillförsel av sulfid än via grundvattenströmning, med en betydande ackumulation av sulfid invid kapselytan som följd. Detta kan i sin tur medföra en risk för bildning av en passiverande sulfidfilm på kapselytan. Passiverande betingelser är en av flera förutsättningar som förknippas med risk för t.ex. gropfrätning och spänningskorrosion (28). För att den senare processen ska kunna initieras fordras dessutom att dragspänningar upprätthålls i kopparhöljet där passivering uppstått. Experimentella studier visar ofta på förekomst av porösa icke-passiverande sulfidfilmer på koppar, men vid högre sulfidhalter och snabbare tillförsel av sulfid till en kopparyta blir sulfidfilmerna mera kompakta och möjligen passiverande (29). Förutsättningar för en betydande ackumulation av sulfid invid kapselytan bedöms dock vid behov kunna undvikas med rimliga åtgärder, såsom exempelvis kravställning av mängder och förekomstformer av organiskt material i buffert och återfyllnad. Som framgår av SSM:s granskning av ansökan förväntar sig myndigheten att SKB i samband med kommande säkerhetsredovisning utför en utförlig kvantitativ analys av bl.a. gropkorrosions- och spänningskorrosionsrisk som kan initieras under tiden med omättade förhållanden i bufferten. Detta för att på ett mer tillförlitligt och spårbart sätt kunna värdera risk för lokala korrosionsprocesser.

## Ytterligare försök och utredningar

Vad gäller förslaget om ett program för ytterligare korrosionstester i Szakálos m.fl. så instämmer SSM med flera av förslagen som framförs, även om SSM inte anser att dessa är nödvändiga som underlag för det nu aktuella beslutssteget. SSM har i sin granskningsrapport påtalat behovet av att demonstrationsexperiment och verifierande tester genomförs i en framtida testtunnel vid Forsmark. Resultat från ett sådant program kommer att behövas som underlag för exempelvis en kommande ansökan om provdrift eller rutinmässig drift, samt för eventuella framtida periodiskt uppdaterade säkerhetsredovisningar. Ett sådant program bör även inbegripa korrosionsfrågor men SSM anser att det är för tidigt att ta ställning till huruvida använt kärnbränsle kan ingå i dessa tester.

SSM ser i dagsläget inga konkreta skäl för användning av alternativa kapselmaterial, som Szakálos m.fl. diskuterar i sin skrivelse, men det kan inte heller uteslutas med tanke på att slutförvaret kan förväntas vara i drift i cirka 50 år. Det behöver beaktas att tillverkning och deponering av kapslar kan förekomma ända in på 2080-talet. En sådan förändring av slutförvarskonceptet skulle i sådana fall åtminstone betraktas som en stor anläggningsändring som skulle behöva föregås av ett långvarigt forskningsprogram och en ny säkerhetsredovisning.



Beträffande kommentaren i Szakálos m.fl. kring behov av ytterligare utredningar av deponering i djupa borrhål eller implikationer av tillkommande generation IV reaktorer hänvisar SSM till sin granskningsrapport om dessa frågor (2).

## STRÅLSÄKERHETSMYNDIGHETEN

Ansi Gerhardsson  
Chef Slutförvarsenheten

### Referenser

1. SSM, 2018. Granskningsrapport Strålsäkerhet efter slutförvarets förslutning. Beredning inför regeringens prövning, Slutförvaring av använt kärnbränsle, Strålsäkerhetsmyndigheten, SSM rapport 2018:07.
2. SSM, 2018. Granskningsrapport Systemövergripande frågor. Beredning inför regeringens prövning, Slutförvaring av använt kärnbränsle, Strålsäkerhetsmyndigheten, SSM rapport 2018:04.
3. SKB TR-11-01. Long-term safety for the final repository for spent nuclear fuel at Forsmark, Main report of the SR-Site project, Vol. I-III. Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co.
4. Pensado O., 2017. Radionuclide release rates associated with bounding cases featuring relatively early canister failures in a spent fuel repository, Strålsäkerhetsmyndigheten, SSM research report 2017:15.
5. National Research Council 1992. Radioactive Waste Repository Licensing: Synopsis of a Symposium. Board on Radioactive Waste Management, Commission on Geosciences, Environment and Resources, National Academies Press.
6. IAEA, 2001. IAEA Safety Standards for protecting people and the environment: Disposal of Radioactive Waste, Specific Safety Requirements, No. SSR-5, International Atomic Energy Agency.
7. OECD, 2007. Regulating the Long-term Safety of Geological Disposal: Towards a Common Understanding of the Main Objectives and Bases of Safety Criteria, NEA No. 6182, Nuclear Energy Agency, Organisation for Economic Co-operation and Development.
8. Digby D. Macdonald, Samin Sharifi-Asl, 2011. Is Copper Immune to Corrosion When in Contact With Water and Aqueous Solutions? Strålsäkerhetsmyndigheten, SSM report 2011:09.
9. Szakálos P., Hultquist G. and Wikmark G., 2007. Corrosion of Copper by Water. Electrochemical and Solid-State Letters, 10 (11) C63-C67.
10. SKBdoc 1473304. Hedin A., Lilja C., Johansson J., Puigdomenech I., 2015. Samlad redovisning om kopparkorrosion i syrgasfritt vatten, Svensk kärnbränslehantering AB.



11. Hultquist G., Graham M.J., Kodra O., Moisa S., Liu R., Bexell U., Smialek J.L., 2015. Corrosion of copper in distilled water without O<sub>2</sub> and the detection of produced hydrogen, *Corrosion Science*, Volume 95, pp. 162-167.
12. SKB TR-10-66. Corrosion calculations report for the safety assessment SR-Site. Updated 2012-01. Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co.
13. Hedin A., Lilja C., Johansson J., 2017. Copper Corrosion in Pure Water – Scientific and Post-Closure Safety Aspects, *International High-Level Radioactive Waste Management (IHLRWM 2017)*, <http://ihlrwm.ans.org/>, At Charlotte, NC, Westin Hotel.
14. Cleveland C., Moghaddam S., Orazem M., 2014. Nanometer-Scale Corrosion of Copper in De-Aerated Deionized Water, *Journal of Electrochemical Society* 161 (3), C107-C114.
15. Hultquist G., Graham M.J., Kodra O., Moisa S., Liu R., Bexell U., Smialek J.L., 2013. Corrosion of copper in distilled water without molecular oxygen and the detection of produced hydrogen, *Strålsäkerhetsmyndigheten, SSM research report 2013:07*.
16. Garrels, R.M. and Christ, C.L. (1965) *Solutions, Minerals and Equilibria*. Harper and Row, New York.
17. Beverskog B., Puigdomenech I., 1997. Pourbaix diagrams for the system copper-chlorine at 5–100 °C, *Statens Kärnkraftinspektion, SKI Rapport 98:19*.
18. He X., Ahn T., Gwo J-P., 2018. Corrosion of Copper as a Nuclear Waste Container Material in Simulated Anoxic Granitic Groundwater, *Corrosion*, Vol. 74(2), pp.158-168.
19. SSM Technical Note 2012:17. Szakálos P., Seetharaman S., 2012. Corrosion of copper canister. Swedish Radiation Safety Authority.
20. Öberg H., Strömberg B., 2018. Tematisk sammanställning av SSM:s beaktande av remissinstansernas synpunkter i kapsel frågor, *Strålsäkerhetsmyndigheten, Promemoria, Dokumentnr: SSM2011-1135-25*.
21. SKB TR-10-46. Fuel and canister process report for the safety assessment SR-Site. Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co.
22. SKB TR-10-67. King F., Lilja, C., Pedersen K., Pitkänen P., Vähänen M., An update of the state-of-the-art report on the corrosion of copper under expected conditions in a deep geologic repository. Updated 2011-10. Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co.
23. SKB TR-10-04. King F., Newman R., Stress corrosion cracking of copper canisters. Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co.
24. SKB TR-13-27. King F., Lilja C., Localised corrosion of copper canisters in bentonite pore water. Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co.
25. SKBdoc1420051. Sandström R. The role of hydrogen in copper. Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co. (SSM2011-2426-164).
26. Macdonald D., Mao F., Dong C., Sharifi-Asl S., 2016. Measurement of Parameter Values for Predicting Corrosion Phenomena on Copper in Swedish HLNW Repositories, *Strålsäkerhetsmyndigheten, SSM research report 2016:30*.
27. Becker R., Öijerholm J., 2017. Slow strain rate testing of copper in sulfide rich chloride containing deoxygenated water at 90 °C, *Strålsäkerhetsmyndigheten, SSM research report 2017:02*.
28. G. S. Frankel, 1998. Pitting Corrosion of Metals: A Review of the Critical Factors. *J. Electrochem. Soc.* 145(6): 2186-2198.
29. Chen J., Qin Z., Wu L., Noël J.J., Shoesmith D.W., 2014. The influence of sulphide transport on the growth and properties of copper sulphide films on copper, *Corrosion Science* 87, 233-238.