



Avstämningsmöte mellan SSM och SKB angående kapselrelaterade frågor

Syftet med detta möte är för att SSM ska få möjlighet att ställa klargörande frågor på de kompletteringar som skickats in av SKB samt hur resultaten som har kommit fram påverkar säkerhetanalysen. Av denna anledning skickas ett antal frågor till SKB i förväg för att underlätta förberedelsen för mötet.

Tid och plats:

2014-04-25, SSM, Konferenslokal Kungsholmen

Agenda

9:00 – 12:00

Fortsättningsmöte med SSM:s kapselgrupp

- a. Introduktion
- b. Kapselns mekaniska integritet
- c. Tillverkningsaspekter
- d. Krypprovning och modellering
- e. Kontroll och provning

12:00 – 13:30

Lunch

13:30 – 16:30

Möte med kapselgruppen och andra berörda utredare ang. kapselrelaterade frågor

- a. Degraderings processer av kapsel
- b. Koppars korrosion i syrefritt vatten
- c. Kopparkapsel initialtillstånd
- d. Korrosionsscenario
- e. SSMs presentation angående pågående forskningsprojekt för undersökningar av koppars korrosion



Del 1: Genomgång av utestående frågor avseende kapselns mekaniska integritet, tillverkningsaspekter samt kontroll och provning:

Frågorna som finns i protokollet från förra mötet den 11 mars ska diskuteras vidare.

Kvarstående frågor avseende krypprovning och modellering (redovisade nedan) tillkommer.

Efter vidare läsning av kompletteringarna har två nya frågor avseende koppardetaljer som kommit upp som bör diskuteras på mötet, se nedan.

Krypbrottförlängning koppar (kvarstående frågor från mötet den 11 mars)

1. I SKB:s komplettering [SKBdoc 1420051, Sandström memo 2014-01-21] (sid 16) anges följande "Since particles are infrequent in Cu-OFP, it is assumed in the modelling that the dislocation substructure controls the nucleation". Vilken grund finns för detta uttalande?
2. SSM önskar att SKB redogör vilket experimentellt underlag som finns till stöd för SKB:s fundamentala kryppmodell av OFP koppar.

Koppardetaljer (nya frågor):

Fråga 1 (från mötet den 11 Mars)

SKB anser i komplettering till SSM [SKB doc 1371851] att de materialegenskaper för koppar som ska relateras till syrehalt är både korrosionsmotstånd och krypbrottförlängning, hur ser krypbrottförlängningens relation ut i förhållande till syrehalt?

- Vid mötet den 11/3, på denna fråga anges i SKB:s svar att väte, syre, fosfor och kornstorlek har påverkan på krypduktilliteten och anges i specifikationen för koppar. I TR-10-14 kap 3.2.1 anges att endast fosfor och svavel påverka krypduktilliteten. Baserat på SKB:s svar 11/4 undrar nu SSM hur väte påverkar krypduktilliteten. Dessutom undrar SSM vid svar på hur syre påverkar kryp anges referens till "kärnbildning av kaviteter". Vilken referens är detta? Ytterligare beskrivning önskas dessutom hur representativa de uppmätta volymsfraktionerna av partiklar är i storleksordning 0.0001?

Fråga 4 (från mötet den 11 Mars)

SKB TR-09-32, kap. 5.2 visar att ett kopparmaterial med 30-100 ppm fosfor har cirka 3 ggr högre krypbrottförlängning jämfört med ett kopparmaterial utan fosfor. Finns det ytterligare information som visar att krypbrottförlängningen är tillräcklig med fosforhalter mellan 30-100 ppm?

- SKB:s redovisning vid mötet 11/4 svarade inte på frågan, vilket gällde hur gränsvärdena för fosfor (30-100 ppm) bestämts och vilken bakomliggande mekanistisk grund som finns, speciellt mot koppar med lägre eller högre fosforhalter än (30-100 ppm).



Del 2a: Genomgång av utestående frågor avseende degraderingsprocesser av kapsel

SSM har några klargörande frågor på de kompletteringar som skickats in av SKB. Dokument *SSM2011-2426-57 (#57)* som är begäran för komplettering från SSM avseende degraderingsprocesser av kapsel listar ut följande punkter:

1. Redovisning av kopparkorrosion innan återmättnad av buffert då kapseln är i kontakt med en gasfas.
2. Utökad analys och redovisning av risk för lokal kopparkorrosion i såväl syrgasinnehållande som syrgasfritt grundvatten. Redovisningen bör även belysa eventuell risk för saltanrikning i närheten av kapselytan innan bufferten är återmättad och hur sådana avlagringar kan påverka groppfrätningspotentialen.
3. Utökad redovisning med argument för att kloridassisterad kopparkorrosion kan uteslutas för kloridkoncentrationer $< 2M$ (säkerhetsfunktionsindikator R1f).
4. Utökad underlag som stöd för antagandet att korrosion orsakad av HS^- är masstransportbegränsad i slutförvarsmiljö.
5. Inverkan av läckströmmar från högspänningskablar på kopparkorrosion.
6. Kopparkorrosion på kopparkapselns insida orsakad av kvarvarande vatten i bränsleelementen och lättflyktiga fissionsämnen.
7. Redovisning av hur kalldeformationsgraden påverkar kopparkorrosion.
8. Spänningskorrosion av koppar orsakad av radiolysprodukter eller sulfidinnehållande syrgasfria vattenmiljöer.
9. Redovisande underlag som visar att försprödning av koppar orsakad av reduktion av kopparoxid inte sker vid exempelvis upptag av atomärt väte i koppar från korrosionsreaktioner.
10. Inverkan av bestrålning på den gjutna segjärnsinsatsen materialegenskaper.

SKB har skickat svar i olika omgångar från juni 2013 till februari 2014. SSM listar nedan klargörande frågor på de kompletteringar som skickats in av SKB och önskas diskuteras vid mötet den 25 april.

1. Punkt 1 ovan

SSM önskar ett klarläggande från omättad fas, hur påverkas korrosion av kapslar vid produktion av sulfid från sulfat i återfyllnadsmaterialet då kapseln och återfyllnadsmaterialet är förbundna via en gasfas?

SKB anger i komplettering att krav på gastäthet kommer att ställas på plugg till deponeringstunnlarna. SSM önskar att SKB klarlägger vilket krav på gastäthet som ska gälla samt att SKB redovisar hur detta krav ska säkerställas.

Vad gäller inverkan av radiolys har SKB endast angett svar på hur kväveoxider i luft påverkar korrosion. SSM önskar att SKB klargör hur resultat presenterade av [Björkbacka m fl, Radiation Physics and chemistry 92 (2013), pp 80-86] påverkar SKB:s analys i fuktig luft och risk för lokal korrosion.

2. Punkt 2 ovan

Vad som framgår av SKB:s framgår att SKB som utlovat i Juni 2013 skulle utföra en probabilistiska analys inte kommer att göras.

3. Punkt 3 ovan

-



4. Punkt 4 ovan

-

5. Punkt 5 ovan

Svar kommer 31 juli 2014?

6. Punkt 6 ovan

SSM önskar att SKB klargör antagandet att korrosion sker 0-130 mm från kopparhöljets botten och beskriva om detta ska anses konservativt. Hur påverkas korrosion från inre defekter i kopparhöljet? SSM önskar även att SKB beskriver hur lokal korrosion orsakad av radiolys [Björkbacka] och Cl₂, I₂ tas om hand i bedömning.

7. Fråga 7

SKBs svar beräknas till våren 2014?

8. Fråga 8

SKB anger i R-13-35 att ”None of the images show any significant crack growth beyond the initial nominal 1.5 mm long pre-crack” Vad menas med detta, hur har mätning av spricka gjorts innan provstart?

I R-13-35 anges även ”It is probable that this surface roughening developed when the specimens were manufactured and is due to the mechanical deformation introduced into the surface when the copper sheet was bent into the U-shape, rather than being due to any localised corrosion.”

SSM önskar att SKB presenterar underlag som visar att denna typ av ytojämnheter kan bildas när koppar bockas.

9. Fråga 9

SSM önskar att SKB förtydligar vad som menas med att vätesjuka tas upp i TR-09-22.

10. Fråga 10

Finns någon tidplan för denna komplettering? När kommer ut rapport R-13-50?

Del 2b: Genomgång av utestående frågor avseende korrosion av koppar i syrefritt vatten

Dokument *SSM2011-2426 (#16)* ”Begäran om komplettering av ansökan om slutförvaring av använt kärnbränsle och kärnavfall” från 2012-02-14 innehåller frågor som SKB inte har besvarat i helhet.

Hantering av kopparkorrosion i syrgasfritt vatten inom SR-Site har utförts i form av en ”what if” beräkning och ytterligare i inskickade kompletteringar till SSM [SKBdoc 1323955, SKBdoc 1339678, SKBdoc 1339716, SKBdoc 1418966]. SKB:s ståndpunkt i SR-Site [SKB TR-10-66] är att det vetenskapliga stödet för korrosionsmekanismen i syrgasfritt vatten är svagt och att genomförda försök av Hultquist m.fl. behöver upprepas av andra forskare. SSMs oberoende studie som har utförts vid Studsvik Nuclear [Becker, 2011] bekräftar att vätgasutveckling sker då koppar exponeras i rent vatten utan löst syrgas. Dessa experiment genomfördes under betingelser som i stort sätt motsvarar Hultquist ursprungliga försök. Vätgasutveckling har bekräftats av andra forskningsgrupper också till ex. av Microbial Analytics Sweden AB (TR-13-13). Ett viktigt resultat från TR-13-13 visar att ”Copper surface treatment procedures appeared to be very important. The



copper rod H₂ emission process was quickly inactivated if the surfaces were contaminated or not perfectly cleaned.”

Senaste resultaten publicerad av SKB som kommer från Uppsala Universitet, Institutionen för kemi – Ångström finns i rapporten TR-13-31. Materialet som används av Uppsala forskningsgruppen är 99,9999 % koppar som exponerades i vatten av ppt-renhet. En del frågor har kommit upp som gäller ytbehandlingen av kopparn. ”Innan experimenten startade renades kopparen i tre steg: Elektropolering för att skapa en slät yta utan repor, vätgasreduktion för att avlägsna ett kvarvarande tunt oxidskikt, och slutligen värmebehandling för att driva av överskott av vätgas och reducera mekaniska spänningar.” Elektropoleringen och vätgasreduktionen samt värmebehandlingen har som effekt en temporär passivering av ytan som ska fördröja reaktionerna på ytan och fördröja vätgasutvecklingen. Exponeringen av koppar som har varit behandlad på så sätt skulle behöva längre tidsperioder för att starta upp korrosionsprocessen och undertiden, evolutionen av syrehalten pga läckage måste kontrolleras noggrant för att detta har stor betydelse för vätgasutveckling (se TR-13-13). Resultatet av alla dessa undersökningar är viktiga grundläggande forskningsresultat som kan ha betydelse för kopparkapselns stabilitet och strukturell integritet i förvaret.

SSM gör därmed bedömningen att det finns vetenskapligt stöd för vätgasutvecklings processen dels baserat på de egna experimenten, dels på de tidigare experimentella och teoretiska studier som har publicerats [Hultquist, 1986/Hultquist, 1989/ Hultquist, 2008/ Hultquist, 2009/ Hultquist, 2011/ Becker, 2011/ Szakálos, 2007/ Macdonald, 2011] samt baserat på senaste SKBs resultat som kom fram (TR-13-13).

SSM önskar en utförligare redovisning av vilken betydelse korrosionsmekanismen kan ha för slutförvars långsiktiga säkerhet.

Del 2c: Kopparkapsel initialtillstånd

Initial koppartjocklek

”Initial koppartjocklek

SSM önskar att SKB förtydligar vad det gäller för initialtillstånd för kapsel, vilka dimensioner gäller och hur många kapslar med avvikelse räknas med i korrosion scenariot.

I rapport TR-10-14 (Produktionsrapporten), sida 34 står så här:

“The canister has a nominal copper thickness of 5 cm to withstand the corrosion loads.”

TR-10-14, Tabell 2-1 visar samma tjocklek av 5cm för kapsel. Tabell 3-6 visar alla dimensionerna av kopparkapseln.

I TR-10-14, avsnitt 4.6 (sida 50) står detta:

“The nominal copper shell thicknesses with acceptable tolerances for the reference canister are:

- copper tube: 49 ± 0.3 mm,
- welds: 48.5 ± 0.7 mm,
- lid: 50 ± 0.6 mm,
- base: 50 ± 1.0 mm.”

Sida 55:

“The related canister properties and design parameters determined in the design (see Sections 3.1 and 3.2) are:



- copper shell dimension – thickness including defects”

Sida 77 i TR-10-14:

“The nominal copper thickness of the tube is 49.0 mm. When considering the accepted variation for the reference canister of 0.3 mm and the expected uncertainty in the dimension measurements of 0.3 mm, the minimal copper thickness of the tube is 48.4 mm.”

Sida 84 i TR-10-14:

”The nominal copper thickness of the lid and base is 50.0 mm. When considering the accepted variation of 0.6 mm (lid) or 1.0 mm (base) as given by the reference canister and the expected uncertainty in dimension measurements of 0.3 mm, the minimum copper thickness of the base is 48.7 mm whereas the value for the lid is 48.1 mm under the identity marking of the canister which is 1 mm deep.”

Sida 92 i TR-10-14:

“The nominal copper thickness in the welds is 48.5 mm. When considering the accepted variation given by the reference canister of ~0.7 mm and the expected uncertainty in dimension measurements 0.3 mm, the minimal copper thickness for the weld is ~47.5 mm.”

TR-10-14, tabell 7-3 sida 103:

Table 7-3. Dimensions at initial state.

Component	Design parameter	Reference design	Initial state value	Comment and reference to relevant sections
Insert BWR	Edge distance (mm)	33.3 ± 10	33.3 ± 5	Isostatic loads Sections 5.2.10 and 7.1.2
	C-C distance between compartments (mm)	210 + 1/-4	210 + 1/-4 ²	Prevent criticality Sections 5.2.10, 7.1.6 and 7.2.5
Insert PWR	Edge distance (mm)	37.3 ± 10	37.3 ± 5	Isostatic loads Sections 5.2.10 and 7.1.2
	C-C distance between compartments (mm)	370 ± 3.6	370 ± 3.6 ²	Prevent criticality Sections 5.2.10 and 7.1.6 and 7.2.5
Copper shell	Thickness (mm)			Corrosion
	– Tube	49.0	Minimum > 47.5	Sections 5.3.9, 5.4.9, 5.5.7 and 7.1.5
	– Lid, base	50.0	Fraction of canisters: > 99%	
	– Welds	48.5	45–47.5 ¹ Fraction of canisters: few per thousand ¹ Minimum < 45 ¹ Fraction of canisters: negligible	Initial state values are minimum thicknesses of the copper shell after machining, i.e. a copper shell without defects is at least this thick over its whole surface.
Copper shell	Thickness (mm)	–	< 10	Corrosion
	– Local reduction due to defects	–	Fraction of canisters: > 99.9%	Sections 5.3.9, 5.4.9, 5.5.7 and 7.1.5
			10–20 ¹ Fraction of canisters: one per thousand ¹	The values for local reduction include defects induced during hot-forming and welding and surface damages induced during transportation, handling and deposition.
			20 ¹ Fraction of canisters: negligible	

¹ Values occurring only at disturbed operations considering both the manufacturing processes and inspection.
² The initial state values are based on measures from the reference design.

SSM önskar att SKB förtydligar tabell 7-3 och inkluderar det antal kapslar som SKB anser att defekter kan uppstå i eller lokal reducerad tjocklek och redovisa hur detta har tagits



hänsyn till i korrosionsanalyserna. Vilka konstruktionsförutsättningarna och indata gäller för initialtillstånd av kapseln?

Del 2d: Frågor avseende korrosion scenario (SR site)

SSM önskar att SKB förtydligar korrosionsmekanismerna för kopparkapseln för de första 1000 åren samt evolutionen upp till erosionstid för bufferten och sedan upp till 100000 år samt hur detta har tagits hänsyn till i korrosions scenario. Efter ny information som har framställt av SKB i kompletteringarna som har skickats till SSM, finns det nya beräkningar av hur många kapslar går sönder – till ex. om SKB har tagit hänsyn till samverkan av olika mekanismer för kapsel degradering?

SR site sida 604

”... Därför görs i korrosionsanalyserna antagandet att tjockleken är 47 mm, se avsnitt 4.1 i Datarapporten. Det är inte motiverat att utföra mer sofistikerade analyser mot bakgrund av de betydande osäkerheter som är förbundna med många andra faktorer i korrosionsberäkningarna, i jämförelse med det relativt begränsade urval av värden för initial koppertjocklek som diskuteras här.”

SKB redovisar i SR site sida 605:

”Som nämnts i avsnitt 10.2.5, i underavsnittet ”Kapselkorrosion”, förväntas initial korrosion från atmosfäriskt syre före deponering och från initialt inneslutet syre orsaka korrosionsdjup av som mest 500 µm, och kommer således att ha en försumbar inverkan på kapselns minsta koppertjocklek.”

SSM önskar att SKB förtydligar mekanismerna för kopparkorrosion för de första 1000 år samt upp till 100 000 år och tar hänsyn till senaste korrosions data och in-situ exponeringsdata som SKB har för tiden efter deponering.

Referenser:

Björkbacka m fl, 2013, Radiation Physics and chemistry 92, pp 80-86

Becker, R., Hermansson, H-P., 2011, Evolution of hydrogen by copper in ultrapure water without dissolved oxygen, Swedish Radiation Safety Authority, SSM 2011:34.

Hultquist, G., 1986, Hydrogen evolution in corrosion of copper in pure water, Corrosion Science Vol.26, No.2, p.173.

Hultquist, G. m fl, 1989, Comments on Hydrogen evolution from the corrosion of pure copper, Corrosion Science Vol.29, No 11/12. p. 1371.

Hultquist, G. m fl, 2008, Detection of hydrogen in corrosion of copper in pure water, Proceedings, Paper no. 3884, ICC, Las Vegas, USA, NACE International (2008).

Hultquist, G. m fl, 2009, Water Corrodes Copper, Cat. Lett. DOI 10.1007/s10562-009-0113-x.

Hultquist, G. m fl, 2011, Hydrogen gas production during corrosion of copper by water, Corrosion Science Volume 53, Issue 1, Pages 310-319.

Macdonald, D., Sharifi-Asl, S., 2011, Is Copper Immune to Corrosion When in Contact With Water and Aqueous Solutions?, Swedish Radiation Safety Authority, SSM 2011:09.



Bengtsson A. m fl, 2013, Development of a method for the study of H₂ gas emission in sealed compartments containing canister copper immersed in O₂-free water, SKB Technical Report **TR-13-13**.

Szakálos, P m fl, 2007, Corrosion of copper by water, Electrochem. and Solid State Letters, 10 (11) pp. C63-C67.

Wampler, W., R m fl, 1976, Precipitation and trapping of hydrogen in copper, Philosophical Magazine, Vol. 34, No. 1, pp.129-141.

SKBdoc 1323955 (SSM 2011-2426-12)

SSM2011-2426 (#16) ”Begäran om komplettering av ansökan om slutförvaring av använt kärnbränsle och kärnavfall” från 2012-02-14.

SKBdoc 1339678 (SSM 2011-2426-39) – svar till #16

SKBdoc 1339716 (SSM 2011-2426-39) – svar till #16

SKBdoc 1418966 (SSM 2011-2426-144) – svar till #16

SSM2011-2426-57 (#57) ”Begäran om komplettering av ansökan om slutförvaring av använt kärnbränsle och kärnavfall - degraderingsprocesser för kapseln”

SKBdoc 1398013 (SSM 2011-2426-164) – svar till #57

SKB doc 1419961 (SSM2011-2426 - 164) – svar till #57

SKBdoc 1420051 Sandström memo 2014-01-21 (SSM2011-2426-164) – svar till #57

Wersin P., 2013, “LOT A2 test parcel”, SKB Technical Report **TR-13-17**.

Smart N, 2013, ”Metallographic Analysis of SKB MiniCan Experiment 3”, SKB rapport **R-13-35**.

SKB TR -13 -27 (SKBdoc 1422182)

SKB TR-10-14