



DokumentID
1540089

Sida
1(20)
Datum
2016-04-13

Ärende

Handläggare
Christina Lilja
Jan Sarnet
Er referens
SSM2011-2426

Ert datum

Strålsäkerhetsmyndigheten
Att: Ansi Gerhardsson
171 16 Stockholm

Kvalitetssäkrad av
Johan Andersson
(Tillstyrkan)
Saida Engström
(Tillstyrkan)
Jan Eckerlid (Tillstyrkan)
Godkänd av
Helene Åhsberg
(Godkänd)
Kommentar

Kvalitetssäkrad datum
2016-04-14
2016-04-14
2016-04-14
Godkänd datum
2016-04-14

Lägesrapport om SKB:s pågående och planerade arbeten kring utveckling av kapseln

Strålsäkerhetsmyndigheten, SSM, har i protokoll från avstämningsmöte mellan SSM och SKB (SSM2011-1137-101) nämnt att ytterligare förtydliganden kring SKB:s antaganden rörande kapselns hållbarhet och dess relevans för barriärsystemets funktion skulle kunna underlätta myndighetens slutliga ställningstagande i vissa kritiska frågor. Ingen förfrågan om förtydligande har inkommit till SKB.

SKB:s arbete med fortsatt utveckling av kapseln har gått vidare sedan de senaste kompletteringarna rörande kapseln gjordes till SSM under våren 2015. SKB vill därför här lämna en lägesrapport över det arbete som gjorts och vad som planeras framöver. Mycket av materialet är hämtat från det pågående arbetet med den kommande Fud-rapport 2016.

I det följande görs en genomgång av status och planerade utvecklingsprogram för kapseln vad gäller:

- korrosionsfrågor, avsnitt 1
- kopparkrypning, avsnitt 2
- kapselns konstruktion, avsnitt 3
- kapseltillverkning, avsnitt 4
- kontroll och provning, avsnitt 5.

1 Korrosionsfrågor

1.1 Sulfidkorrosion

Sulfid är den långsiktigt viktigaste korrodanten för koppar i slutförvarsmiljön. I säkerhetsanalysen SR-Site gav kapselbrott till följd av sulfidkorrosion efter att bufferten eroderats bort det dominerande riskbidraget. För att stärka den vetenskapliga grunden för hanteringen av sulfidkorrosion i kommande säkerhetsanalyser behövs en bättre förståelse för de detaljerade mekanismerna i korrosionsprocessen, liksom en bättre grund för de tänkbara sulfidhalter i grundvatten och bentonit som används i säkerhetsanalysen.

Nuläge

Bildningen av kopparsulfidfilm på koppar i sulfidlösning, och mekanismerna för detta, har fortsatt studerats med elektrokemiska metoder (EIS, electrochemical impedance spectroscopy) och olika typer av mikroskopi (SEM, FIB-SEM). Framförallt har frågan om vad som begränsar filmtillväxten varit i fokus. Arbetet utförs vid University of

Western Ontario i Kanada. Faktorer som inverkar på filmtillväxten är såväl lösningens koncentration av sulfid och klorid som förhållandet mellan dem, och sulfidflödet vid gränsskiktet mellan film och lösning (Chen et al. 2014a). För att studera filmtillväxten vid olika tillflöde av sulfid har stationära och roterande elektroder använts. Vid lågt flöde (med stationära elektroder) begränsas filmtillväxten av diffusionen av sulfid i lösningen. Detsamma gäller initialt vid högre flöde (med roterande elektroder som ger konvektion), men med det bildade sulfidskiktet blir sedan transporten av Cu^+ i kopparsulfidfilmen begränsande (Chen et al. 2014b).

Från de experimentella data har ett kritiskt flöde av sulfid uppskattats, under vilket korrosionen kan anses begränsad av masstransporten av sulfid. Dessa kritiska flöden har sedan jämförts med de beräknade flödena i slutförvaret, med data från SR-Site (SKBdoc 1422182). De beräknade sulfidflödena i förvaret är generellt sett flera storleksordningar lägre än det kritiska flödet (både för fallen med intakt respektive eroderad buffert), och korrosionshastigheten hos kapseln kommer att vara begränsad av masstransport av sulfid under i stort sett alla förhållanden. SKB drar därför slutsatsen att sulfidkorrosionen av koppar i slutförvaret är begränsad av masstransport av sulfid, och att detta kan härledas från experimentella resultat. Detta har redovisats som svar på en begäran om komplettering till SSM för ansökan om Kärnbränsleförvaret (SKBdoc 1398013).

Att filmen växer till i gränsskiktet mellan film och lösning (och alltså inte mellan kopparmetallen och filmen) har visats i försök med guldbeläggning på filmen (Chen et al. 2012). Under de förhållanden där tillväxten begränsas av reaktionen i gränsskiktet mellan lösning och kopparsulfidfilm (dvs av transporten av Cu^+ genom filmen) blir kopparsulfidfilmen kompakt och delvis passiverande, vilket skulle kunna ge upphov till lokal korrosion (eng. pitting). För att detta ska uppstå krävs, förutom högt sulfidflöde, också höga sulfidhalter, $[\text{SH}^-] \geq 5.0 \times 10^{-4} \text{ M}$ (Martino et al. 2014). Sådana halter är högre än de högsta sulfidhalterna analyserade i SR-Site.

När kapseln deponeras i slutförvaret kommer ytan att ha en film av kopparoxid, vilken sedan förväntas omvandlas till en kopparsulfidfilm när sulfid från grundvattnet diffunderat genom bufferten och nått fram till kapselytan. Att sulfideringsmekanismen snarare är av kemisk än av elektrokemisk karaktär när oxidfilmen huvudsakligen består av kuprit (Cu_2O) har visats tidigare (Smith et al. 2007). Även kopparoxidskikt bestående av Cu(II) -oxider sulfideras, och studier med röntgenspektroskopi har visat att reaktionen sker genom en komproportionering av Cu(II) och metallisk Cu(0) till Cu(I) som därefter reagerar med sulfid och bildar Cu_2S (Kristiansen et al. 2015). Resultaten stärker den tidigare slutsatsen att sulfideringen är kemisk, och det är därför pessimistiskt att i säkerhetsanalysen addera dessa korrosionsbidrag (vilket gjordes i SR-Site).

De första resultaten från de fortsatta experimenten för att undersöka om sulfatreducerande bakterier kan vara aktiva och ge sulfid i bentonit med olika kompakteringsgrad visade en avgörande skillnad i sulfidproduktion med låg produktion i bentonit med densitet 2000 kg/m^3 och hög produktion vid 1750 kg/m^3 (Bengtsson et al 2015).

Litteratursammanställningen över lösligheten hos pyrit (FeS_2) har färdigställts (King 2013). Slutsatsen angående pyrit som källa till sulfid i bentonit var att upplösning av pyrit kan konsumera en andel av det syre som finns initialt genom oxidativ upplösning, men att det är osannolikt att pyrit löses upp under den långa anoxiska tidsperioden. Beräkningarna i SR-Site med upplösning av pyrit under hela förvarstiden är därför pessimistiska. Dock var bidraget till den totala korrosionen av sulfid litet.

När det gäller sulfidhalter i grundvatten har SKB:s studier fortsatt efter platsundersökningarna. Svårigheterna med att provta och analysera sulfid i representativa grundvatten från sprickor på stora djup har undersökts (Rosdahl et al. 2011, Drake et al 2014, Drake et al 2015). Studierna visar att mikrobiella processer i avmanschetterade borrhålssektioner kraftigt kan påverka de lokala sulfidhalterna när vattnet i sektionen är stagnant.

Program

Sulfid är den viktigaste korrodanten för koppar i slutförvarsmiljön, eftersom den termodynamiska drivkraften för bildning av korrosionsprodukten kopparsulfid (Cu_2S) är så stark, och all sulfid som når kapseln förväntas reagera med kopparn. För att stärka den vetenskapliga grunden för hanteringen av sulfidkorrosion i kommande säkerhetsanalyser behövs en bättre förståelse för de detaljerade mekanismerna i korrosionsprocessen. SKB kommer därför att fortsätta studierna av koppar i sulfidlösning, framförallt med elektrokemiska metoder. Arbetet har väsentligen två inriktningar, dels studier som mer i detalj undersöker förutsättningarna för uppkomst av lokal korrosion (genom studier av stabiliteten hos sulfidfilmen, bildning av ett passivskikt, galvanisk koppling och platsen för katodreaktionen), dels hur andra joner (klorid, sulfat, karbonat etc) eller bentonit påverkar korrosionsmekanismen.

Även arbetet med studier av sulfidering av kopparoxidfilmen kommer att fortsätta. Som del av ett pågående doktorandarbete vid KTH kommer DFT-beräkningar (DFT, Density Functional Theory) av reaktionsmekanismen för sulfidering av oxidfilmen att genomföras, med det huvudsakliga syftet att ytterligare förbättra SKB:s förståelse för sulfideringsprocessen.

I samarbete med Posiva utförs en rad studier med fokus på sulfidfrågor. Försöken för att avgöra om sulfatreducerande bakterier kan vara aktiva och ge sulfid i bentonit med olika kompakteringsgrad kommer att fortgå. Försöksuppsättningen har särskilt utformats för att undvika sulfidproduktion i den cirkulerande vätskefasen, vilket försvårat tolkningen av tidigare experiment. Undersökningar kommer också att göras för kemiska reaktioner mellan sulfid och bentonit. Interaktionerna mellan mikrober och olika material för att klargöra processerna i avmanschetterade sektioner i borrhål kommer att studeras. Metoder för provtagning och analys av lösta gaser i sprickor och i bergmatrisen kommer att utvecklas. Reduktion av Fe(III) samt frigörelse av Fe(II) från bergmatrisen är viktiga processer som kommer att studeras, eftersom sulfidlösligheten kan begränsas av Fe(II) mineral.

För användning i kommande säkerhetsanalyser vidareutvecklas modeller för beräkningar av kopparkorrosion från sulfid inom samarbetet med Posiva. Ytterligare modeller av förvarets närområde som inkluderar sulfidtransport, och produktion och sänkor för sulfid kommer att utvecklas parallellt.

1.2 Lokal korrosion

Lokal korrosion (även kallat gropfrätning) under oxiderande förhållanden är behandlat i SR-Site som ojämn allmänkorrosion (eng. surface roughening) med ett maximalt extra korrosionsdjup, istället för de tidigare använda gropfrätningfaktorererna. Bakgrunden till detta är iakttagelser från både storskaliga experiment och laboratoriestudier. Studier av förutsättningar för lokal korrosion i sulfidhaltiga vatten (reducerande förhållanden) tas upp i avsnitt 1.1 om sulfidkorrosion.

Nuläge

SSM efterfrågade som en komplettering till ansökan om Kärnbränsleförvaret en fördjupad analys av lokal korrosion, vilket SKB besvarat i en rapport (King och Lilja 2013). Rapporten innehåller en litteraturgenomgång av data, och en diskussion om grundvattensammansättningar och förutsättningarna för att lokal korrosion ska uppstå. Slutsatsen var att de porvattensammansättningar som är aktuella i förvaret gynnar allmänkorrosion, och inte ger upphov till någon passivfilm. En sådan film är en förutsättning för att lokal korrosion ska uppstå. Arbetet har också publicerats i King och Lilja, 2014.

Den litteraturbaserade studien av passivitet under förvarsförhållanden visar att lokal korrosion inte bör ske i Kärnbränsleförvaret (King och Lilja, 2013, 2014), men det finns andra resultat som inte lika tydligt utesluter att förhållanden som kan ge lokal korrosion möjligen kan uppstå under den omättade oxiderande perioden (Kosec et al. 2015). De fullskaliga kopparkapslar som återtagits från Prototypförvaret i Äspölaboratoriet uppvisar en ytmorfologi som skulle kunna tolkas som yttlig lokal

korrosion (Taxén et al. 2012). Det bör i detta sammanhang noteras att mätningar av korrosionspotentialen i Prototypförvaret precis före återtaget, samt spektroskopisk analys av korrosionsprodukter, visar att den kemiska närmiljön varit mer eller mindre oxiderande under hela exponeringstiden (Rosborg 2013a, b). För att ytterligare utvärdera kapselytorna från Prototypförvaret med avseende på lokal korrosion gjordes 240 observationer med SEM (svepelektronmikroskopi) på olika delar av de återtagna kapslarna (Taxén 2013). Dessa analyser visar groddjup på i medeltal 2-3 µm och största uppmätta groddjup var 7 µm, detta efter ca 8 års exponering i Äspölaboratoriet. Hur ytans morfologi påverkats av exponeringen i försöket är inte möjligt att avgöra då kapselytornas initialtillstånd inte karaktäriserats. Denna analys kommer dock att vara till nytta vid framtida analyser av kapslar från Prototypförvarets inre sektion.

En viss ytskrovlighet återfanns på U-böjda prover från det återtagna MiniCan-försöket (Aggarwal et al. 2015) i Äspölaboratoriet. En grövre topologi observerades i provernas böjda regioner än i de opåverkade, vilket är förväntat. Denna ytmorfologi kan dock anses rymmas inom begreppet ojämn allmänkorrosion (surface roughness) som diskuteras i King och Lilja (2013, 2014).

Program

För utvärdering av lokal korrosion är det viktigt med beskrivningen av det vatten som kapseln kommer i kontakt med. För att få en bättre bild av vilken vattenkemi koppar i bentonit exponeras för, har ett mindre experiment startats vid University of Western Ontario i Kanada, med syfte att mäta potentialer på koppar i bentonit.

För att bättre kunna karaktärisera den observerade ytmorfologin hos de återtagna kapslarna från Prototypförvaret (Taxén 2013), avser SKB att låta undersöka ytan hos kapselkoppar som endast utsatts för den atmosfäriska korrosion som sker vid normal luftfuktighet men som inte exponerats i något korrosionsförsök. En sådan analys bör ge en rimlig bild av ytans topologiska initialtillstånd hos kapslarna i Prototypförvaret.

1.3 Kopparkorrosion i rent vatten

SKB lämnade i mars 2015 en samlad redovisning om kopparkorrosion i rent, syrgasfritt vatten till SSM (SKBdoc 1473304). SKB lämnar i separat brev (SKBdoc 1540185) information till SSM om utvecklingen av frågan efter den redovisningen.

I brevet ges information om resultat från SKB-stödda projekt, främst de vid Uppsala universitet och hos Microbial Analytics AB, och om diskussionen i den vetenskapliga litteraturen. SKB avslutar med följande:

”SKB:s tidigare slutsats, att det inte finns något vetenskapligt stöd för en korrosionsprocess för koppar i syrgasfritt vatten, som fortgår i en omfattning som överskrider den som förutsågs av termodynamiska data, står fast. Den utförligare motiveringen finns i SKB:s samlade redovisning i frågan från mars 2015 (SKBdoc 1473304).

De fåtal nytillkomna resultaten i de SKB-finansierade studierna stöder de tidigare slutsatserna.

De invändningar SKB har mot slutsatser i andra studier, som genomförts under mindre kontrollerade förhållanden, kvarstår också efter ovan redovisade diskussioner i den vetenskapliga litteraturen.”

1.4 Strålningsinducerad korrosion

Strålningsinducerad korrosion av kopparkapseln sker till följd av de radiolysprodukter som bildas när vatten på kapselns utsida absorberar gammastrålning inifrån bränslet i kapseln. Det är framför allt under de första 300 åren i Kärnbränsleförvaret som dosraten vid kapselytan kommer att generera radiolys av vatten. I säkerhetsanalysen SR-Site uppskattades ett totalt korrosionsdjup på ca 14 µm till följd av denna korrosionsprocess.

Nuläge

Inverkan av gammastrålning på korrosion av koppar har studerats vidare i ett doktorandarbete på KTH (Björkbacka et al. 2013, Björkbacka 2015). Experiment har utförts med kopparkuber i rent vatten under kvävgasatmosfär, vid stråldoser mellan ca 0,1 och 1 kGy/h. Det bör påpekas att dessa stråldoser är ca 1000 gånger högre än maximal stråldos utanpå kapseln i förvaret, men att exponeringstiderna i experimenten anpassats så att den totala dosen ändå är i samma storleksordning som i Kärnbränsleförvaret (Björkbacka 2015).

Ytorna och vattenlösningen har undersökts med olika spektroskopiska metoder. De inledande studierna visar på högre korrosion för bestrålade prov än för obestrålade, vilket är förväntat. Korrosionen visar sig både i form av bildning av Cu_2O och som lokala kaviteter med ett djup på någon μm . Senare studier har visat att mängden oxiderad koppar till följd av radiolys ökar om det finns en oxidfilm på ytan initialt (Björkbacka et al. 2015). De uppmätta korrosionseffekterna (vid en dos som motsvarar den i Kärnbränsleförvaret) är dock små (μm -skala) och mindre än det som uppskattades i SR-Site.

Program

För att bättre kunna ta ställning till hur oxidfilmer påverkar strålningsinducerad korrosionen i grundvattenmiljön i Kärnbränsleförvaret kommer arbetet på KTH att fortsätta med en utredning av reaktionsmekanismen för denna korrosionsprocess.

1.5 Spänningskorrosion

SKB lämnade en nulägesbeskrivning om spänningskorrosion i en komplettering till SSM i februari 2014 (SKBdoc 1398013), och denna beskrivning och referenserna där, upprepas inte här.

För att spänningskorrosion ska uppstå krävs samtidigt ett känsligt material, dragspänningar och aggressiva joner (i fallet koppar jonerna nitrit, ammonium eller acetat). Spänningskorrosion har hanterats i tidigare säkerhetsanalyser (inkl SR-Site) och har då i första hand avsett korrosion under oxiderande förhållanden i närvaro av nitrit, ammonium eller acetat. Eftersom de nödvändiga jonerna saknas i tillräckliga halter under den inledande oxiderande perioden i förvaret, har spänningskorrosion inte bedömts inverka på kapselns integritet.

Frågan om spänningskorrosion också kan ske i närvaro av sulfid har diskuterats framförallt sedan 2008 då en japansk forskargrupp (Taniguchi och Kawasaki 2008) presenterade resultat som tydde på en sådan process, men senare studier har inte gett resultat i samma riktning.

Nuläge

SKB summerade i kompletteringen att en enstaka studie (Taniguchi och Kawasaki 2008) påvisat vad som tolkats som spänningskorrosion i sulfidhaltig, syrgasfri miljö, och då vid en sulfidhalt av 10^{-2} M, men att resultaten inte kunnat verifieras i två uppföljande studier. Vidare noterades att den högsta uppmätta sulfidhalten i Forsmark är $1,2 \times 10^{-4}$ M, dvs nästan två storleksordningar lägre än i det experiment där den ursprungliga observationen gjordes. Slutsatsen i kompletteringen var därför att SKB fortsatt gör bedömningen att spänningskorrosion inte hotar kapslarnas integritet i ett KBS-3 förvar i Forsmark.

I det återtagna MiniCan-försöket från 2011 fanns ett antal prover för att utvärdera just spänningskorrosion, vilket även det beskrevs i kompletteringen (SKBdoc 1398013). Dels fanns böjda kopparprover för att undersöka sprickinitiering, dels fanns förspräckta prover för att undersöka spricktillväxt. Proverna har studerats ytterligare metallografiskt med optisk mikroskopi och SEM (Aggarwal et al. 2015). Ingen sprickinitiering har kunnat observeras i något av de två böjda proverna (Aggarwal et al. 2015, Smart et al. 2014). Inte heller har något spricktillväxt skett i de två förspräckta proverna, vilka dock varit felaktigt installerade; ingen extern last fanns pålagd utan endast restspänningar i materialet efter kallbearbetning kan ha förekommit.

Program

Forskningsprogrammet för spänningskorrosion på koppar fortsätter, med några ytterligare insatser, inriktade på sulfidinnehållande vatten, trots att det saknas såväl en välgrundad mekanism som tydliga experimentella resultat för spänningskorrosion under reducerande förhållanden. Kunskapen om spänningskorrosion under oxiderande förhållanden bedöms tillräcklig.

SKB fortsätter arbetet vid Swerea Kimab för att om möjligt förklara skillnaderna i resultat från de olika experimentella studierna, och undersöker om skillnader i provstavsutformning kan vara en orsak. Det finns även identifierade skillnader i ytbehandling och tid i sulfidmiljön mellan de olika experimenten. Rapportering av resultat beräknas komma under 2016.

Hösten 2015 återtog ytterligare två försökspaket från MiniCan-försöket i Äspölaboratoriet. Analysarbetet pågår under 2016 och omfattar bland annat undersökning av spänningskorrosion i kapselmaterial, samt böjda och förspräckta prover av koppar, på liknande sätt som för den tidigare upptagna kapsel 3.

1.6 Verifiering av olika kopparmaterial för korrosionskänslighet

Det behöver säkerställas inför PSAR att kopparmaterialet i alla delar av den färdiga, förslutna kapseln är tillräckligt korrosionsbeständiga.

Nuläge

Utvecklingen av elektrokemiska metoder för att undersöka skillnaden i korrosionsbenägenhet hos olika kopparmaterial (svetsat, kallbearbetat etc) som aviserades i FUD2013 har fortsatt. En beskrivning av metoden och de första resultaten med en jämförelse av kopparmaterial med olika fosforhalt har publicerats (Taxén och Sparr 2014). Resultaten visar att de provade kopparkvaliteterna alla har lägre potential (är mer ädla) än en högren koppar. Detta har dock ingen betydelse för en kapsel som har samma sammansättning på kopparn överallt, och för vilken korrosionen begränsas av tillgång på korrodanter (syre och sulfid).

Program

Metoden kommer att användas, och eventuellt vidareutvecklas, för att studera även kallbearbetat material (pågående arbete som närmar sig avslut) och svetsat material.

2 Kopparkrypning

Krypning i koppar kan delas upp i flera delfrågor och delaktiviteter:

- Mekanistisk förståelse för fosfors inverkan för att kunna visa att koppars duktilitet vidmakthålls även i ett långtidsperspektiv, det vill säga även vid mycket låga töjningshastigheter.
- Krypprovning i laboriemiljö, med utvärdering av resultaten med avseende på erhållen duktilitet i provstavar samt spänningstillståndets inverkan på duktiliteten.
- Kvantifiering av maximal permanent deformation av kopparhöljet som kan erhållas i slutförvaret och vid vilket spänningstillstånd (grad av treaxlighet). Detta utgör underlag för formulering av krav på koppars duktilitet.
- Bedömning av kravuppfyllnad: Baserat på mekanisk provning och förståelse för fosfors långtidsegenskaper, bedöms om kopparn uppfyller de krav på duktilitet som behövs för att vidmakthålla kapselns täthet under 100 000 år.

SKB har summerat arbetet och kunskapsläget för kryp i koppar vid flera tillfällen, senast som en komplettering till SSM till ansökan om Kärnbränsleförvaret i februari 2014 (SKBdoc 1417069). Kunskapsläget för inverkan av fosfor på krypegenskaperna ingick i denna redovisning, medan SKB:s fortsatta planer beskrevs separat i november

2014 (SKBdoc 1457514). Beskrivningar och referenser i dessa redovisningar upprepas inte här.

Vad gäller kopparkrypningens betydelse för förvarets säkerhet efter förslutning är det också av stor vikt att utreda i vilken utsträckning lastfall som inte är deformationsstyrda verkligen kan förväntas förekomma i slutförvaret. Deformationsstyrda fall kan hanteras med elasto-plastiska modeller medan icke deformationsstyrda fall kräver en krypmodell i hanteringen, se vidare redovisningen i sista stycket i programdelen av avsnitt 2.2.

2.1 Fosfors inverkan

Nuläge

Arbetet med att utreda fosfors inverkan på krypegenskaperna har fortsatt i huvudsak enligt den beskrivna planen i SKBdoc 1457514.

Med DFT-beräkningar (DFT, Density Functional Theory) har studier gjorts för att undersöka hur punktdefekter (vakanser och främmande ämnen) interagerar med större defekter (defekter i atomplanen, sk staplingsfel och korngränser). I Li och Korzhavyi (2015) visas att det är energimässigt mer gynnsamt för fosfor att sitta i en substitutionell position (en kopparatom har bytts mot en fosforatom) än interstitiellt (fosforatomen sitter mellan kopparatomerna). Energin för staplingsfel i koppar minskar när punktdefekter är närvarande, och effekten av fosfor är större än för vakanser, H, O och OH. Minskande staplingsfelsenergi medför en tendens till segring. Fortsatta studier (Li 2015) av föroreningar av 3sp element (Mg, Al, Si, P och S) och deras inverkan på hur en korngräns hålls ihop, visar att föroreningarna generellt förbättrar korngränsernas hållfasthet med minskande elektronegativitet (dvs från S till Mg). För fosfor spelar dock staplingsfelsenergin och fosfors tendens att sprida sig jämnt i korngränsen stor roll, och totalt sett visar beräkningarna att fosfor kommer att motverka bildning av kaviteter i korngränserna.

De termodynamiska beräkningarna av stabiliteten hos kopparoxider har verifierats genom experiment med oxidering av koppar med vattenånga. I samma arbete har förekomsten av fosforrika kopparoxider påvisats. Den preliminära slutsatsen i studien var att kopparfosfater är stabilare än oxider vid låga syrgastryck. I Cu-OFP kommer därför syre att företrädesvis finnas i fosfater och inte i form av oxider.

I en studie vid Chalmers (Thuvander 2015) på uppdrag av SSM undersöktes fördelningen av fosfor i koppar inuti kornen med atomprobtomografi (APT) och i korngränserna med TEM-EDS (Transmission Electron Microscopy – Energy Dispersive Spectroscopy). Resultaten kunde inte påvisa någon omfattande segring av fosfor till korngränserna, eftersom APT-mätningarna visade på i stort sett samma halt fosfor inuti kornen som den totala koncentration, och ingen fosfor kunde detekteras i korngränserna med TEM-EDS.

Studier med TOF-SIMS (time-of-flight – secondary ion mass spectroscopy) har utförts, och de preliminära resultaten visar även här att ingen tydlig segring till korngränserna skett, eftersom ingen skillnad i fosforhalter kan uppmätas. Det kan dock inte uteslutas att små mängder fosfor (t ex i monolagernivåer) ansamlas i eller nära korngränserna, vilket är svårt att detektera.

Modelleringsarbetet kring fosfors effekt på krypegenskaperna har fortsatt. Hypoteserna om skillnader i storlek på korngränsglidning med och utan fosfor har inte kunnat bekräftas, se nästa avsnitt. Däremot är den föreslagna mekanismen att fosfor påverkar bildningen av kaviteter fortfarande aktuell. Denna mekanism kan anses sannolik såtillvida att en högre spänning behövs för att kaviteter ska bildas om fosfor är närvarande, vilket i sin tur beror på en högre diffusion av fosfor i korngränserna i Cu-OFP än i Cu-OF.

Program

För att underbygga modellering av kryp, och särskilt den långa extrapolering som är nödvändig, är det centralt att förstå fosfors inverkan på krypegenskaperna i detalj.

SKB kommer att fortsätta på samma sätt som tidigare uppgett, med en kombination av studier med olika inriktning och olika skala, från atomskala till provstavsskala.

Beräkningarna på interaktioner mellan atomer och dislokationer och defekter (med DFT) inriktas i första hand mot att inkludera mer utsträckta defekter som korngränser, samt studier av diffusion. Olika beräkningstekniker kommer att användas för att undersöka stabiliteten i resultaten. De termodynamiska studierna tar sikte på att undersöka inverkan av andra spårämnen som finns i kopparn och i en första fas kartläggs stabiliteten hos faser bestående av fosfor och dessa ämnen.

Ytterligare experiment kommer att göras för att försöka hitta fosfor i koppars och studera hur den är fördelad, men det har varit svårt att hitta tekniker som är användbara och tillräckligt känsliga. I första hand kommer arbetet att inriktas på att studera korngränser.

Det blir istället mer indirekta metoder som kommer att användas för att förstå fosfors effekt på kopparmaterialet och då särskilt dess krypegenskaper, se nästa avsnitt. Vidare planeras även krypprovning i en viss omfattning, bland annat för att bättre uppskatta inverkan av olika föroreningsselement och fosforhalter.

2.2 Deformation och brott

Nuläge

SKB har i Raiko et al. (2010) ställt upp preliminära krav på koppars duktilitet, vilket innebär att duktiliteten måste vara minst 160 % töjning, vilket erhålls i en rund dragprovstav om brottytan är högst 20 % av den ursprungliga tvärsnittsarean. Detta krav gäller såväl vid elasto-plastisk dragprovning som vid krypprovning. Vidare anges att maximalt tillåten töjning är 80 % i kopparhöljet. Hänsyn till fleraxligheten i spänningstillståndet tas alltså inte med explicit, men ingår implicit, eftersom kravuppfyllnaden härleddes ifrån runda dragprovstavar med eller utan kryp. Raiko et al. (2010) anger också att den maximala sanna plastiska töjningen uppgår till 20–30 % som mest i kopparhöljet. Vidare anges att det initiala glapp som finns mellan kapselns delar (insats och kopparhölje) kommer att försvinna på grund av yttre övertyck. I Andersson-Östling och Sandström (2009) anges det i appendix vilken areareduktion ett stort antal provstavar erhållit, och typiskt är areareduktionen ca 80–90 %, vilket motsvarar ca 160–230 % töjning för OFP-koppar som är normalt "as manufactured" eller svetsad med FSW.

Därvid drogs slutsatsen att kopparhöljet kommer att förbli tätt med avseende på krypning under 100 000 år. Som delar i kompletteringar till ansökan om Kärnbränsleförvaret gjordes vidare utredningar med avseende på isostatlastfallet under 100 000 år (SKBdoc 1399768) respektive ojämna lastfall (SKBdoc 1419643). Den största sanna plastiska töjningen i kopparhöljet beräknades då till 40–60 %. Spänningstillstånd och huvudspänningsriktningar angavs också. I (SKBdoc 1393179) angavs koppars brotttöjning som funktion av graden av treaxlighet vid elasto-plastisk provning.

Efter kompletteringen till SSM till ansökan om Kärnbränsleförvaret i februari 2014 (SKBdoc 1417069) har några arbeten och resultat tillkommit, vilket beskrivs i texten nedan. SKB:s beskrivningar av krypduktiliteten i koppar med och utan fosfor har utvärderats på uppdrag av SSM (Pettersson 2012, 2016) och därvid kritiserats, framförallt att bristande förståelse för fosfors effekt försvårar möjligheten att extrapolera krypegenskaperna över långa tider. Såväl frågan om korngränsglidning som förekomsten av krypsprickor har SKB nu kunnat besvara tydligare.

Fosfor har tidigare antagits minska korngränsglidningen och reducera kaviteitsbildningen i koppar, vilket därmed skulle utgöra förklaringen till den högre krypduktiliteten än i fosforfritt material. Någon skillnad i korngränsglidning har dock inte kunnat påvisas, varken i den tidigare studien av Pettersson (2010) eller de nyligen publicerade SKB-studierna (Wu et al. 2015, Sandström et al. 2016). Det fortsatta modellarbetet bygger dock fortfarande på att det är en skillnad i bildningen av kaviteter i koppar med och utan fosfor. En ny modell utgår från att kaviteterna

uppkommer på grund av att kedjor av dislokationer (uppstaplingar) bildas i korngränserna. På grund av den snabba diffusionen av fosfor i korngränserna krävs det en väsentligt högre spänning för att bilda kaviteter i koppar med fosfor än utan. Detta gör det möjligt att bättre förklara de uppmätta skillnaderna i krypduktilitet mellan materialtyperna (Sandström et al. 2016, Sandström 2016).

I en sammanställning av hur kallbearbetning och anvisningar påverkar krypbeteendet (Wu och Sandström 2015) noterades spricktillväxt vid 125 °C för CT-provstavar med reducerat centralt tvärsnitt, sk side grooves. För provstavar utan side grooves noterades ingen signifikant sprickinitiering. Slutsatsen i denna studie var att hög grad av fleraxlighet och temperaturer på minst 125 °C krävs för att ge sprickinitiering. Tidigare provade CT-provstavar har därefter undersökts med svepelektronmikroskop (SEM) för att se om någon spricktillväxt kunde påvisas. Preliminära resultat visar att spricktillväxt kunde konstateras i prover som utförts vid 175 °C, men med utseende typiskt för duktilt beteende. Inga tecken på intergranulära krypsprickor hittades.

I ett doktorandarbete vid Materialteknik på KTH används dislokationsdynamik för att studera hur dislokationstätheten ändras vid pålastning. I Hosseinzadeh Delandar (2015) simuleras koppar i form av en enkristall, och resultaten visar att en inhomogen struktur uppstår vid plastisk deformation. Effekten ökar med töjningshastigheten.

Program

Som ett led både i att förstå fosfors roll på mikroskopisk nivå och till att bättre dokumentera skillnaderna i krypegenskaper kommer krypprovning av koppar utan fosfor (Cu-OF) att utföras. Detta innebär att mer jämförbara data erhålls än de äldre och rätt fåtaliga prover som finns idag. Det betyder provning vid i första hand rumstemperatur och upp till 125 °C, men även högre temperatur kommer att övervägas. Nya kryppriggar med stegmotor kommer att användas, vilket gör att man slipper momenten med omlastning av lastarmen. Pålastningstöjning och kryptöjning tas båda med vid utvärderingen, och ev. glödning eller kallbearbetning av materialet dokumenteras.

En mindre insats kommer att göras för att utvidga krypmodellerna att inkludera även tertiärkryp, i tillägg till primär- och sekundärkryp som redan är omhändertaget. Eventuellt kommer någon krypprovning också att behövas för detta.

Doktorandarbetet med dislokationsdynamik vid KTH fortsätter med studier av krypdeformation, hur dislokationer kan samverka med andra defekter såsom lösta föroreningar, utfällningar, hålrum etc, samt hur deformationshärdning i makroskala kan kopplas till utvecklingen av mikrostruktur.

Vidare planeras fördjupad utvärdering av redan utförd provning med avseende på plastisk töjning samt spänningstillstånd i olika krypprovstavar med godtycklig geometri.

Parallellt med arbetet att utveckla krypmodellen görs även ansträngningar för att ringa in de lastfall som kräver en krypmodell. Lastfall som är deformationsstyrda kan lösas elasto-plastiskt och kräver ingen krypmodell. Det är därför mycket viktigt att korrekt beskriva de lastfall som är aktuella i slutförvaret. Skjuvlastfallet är förskjutningsstyrt, och därmed är det möjligt att använda konventionella elasto-plastiska konstitutiva modeller för att beskriva koppars deformation för det fallet. Samma sak gäller för fallen som orsakas av ojämn svällning; lasten uppkommer på grund av svällningen, är förskjutningsstyrd och en övre gräns för kapseldeformation kan uppskattas. Isostatlastfallet är kraftstyrt på grund av det yttre övertrycket på kapselytan. Lastens riktning är dock sådan att kopparhöljet avlastas mot insatsen och ett steady-state-förhållande uppstår på grund av det geometriska tvång som KBS-3-kapselns konstruktion medför. Utredningar har visat att detta läge består i princip oförändrat vid mycket stora yttre laster. Koppars deformeras så att ett likformigt spänningstillstånd uppstår, och därefter avstannar deformationen. Därmed har det för dessa fall ingenjörsmässigt bestämts hur mycket deformation och töjning som alls kan uppstå i kopparhöljet efter deponering. Ytterligare arbete kommer att genomföras för att identifiera om något lastfall måste ses som kraftstyrt med avseende på kopparhöljet. I så fall måste det fallet lösas med en konstitutiv beräkningsmodell som

inkluderar kryp. Därefter kan kraven på kopparmaterialets duktilitet revideras och en förnyad bedömning av kravuppfyllnad göras.

3 Konstruktion

Nuläge

Kapselns konstruktion har verifierats motstå mekaniska laster i designanalysrapporten (Raiko et al. 2010) och krav har fastställts på kapselns mekaniska egenskaper och tillåten defektstorlek, därtill har bedömning av kravuppfyllnad gjorts i produktionsrapporten (SKB 2010). Inom ramen för kompletteringarna för kapselns mekaniska integritet har SKB utökat ansökan med experimentellt underlag, tekniska motiveringar och konsekvensanalyser. (SKBdoc 1371849).

Kraven på kapselns mekaniska egenskaper och tillåten defektstorlek har formulerats deterministiskt baserat på konstruktionsförutsättningar, resultat från tillverkning och provning av kapselkomponenter, och materialstandarder. För att värdera kapselns robusthet har SKB även genomfört probabilistiska analyser av såväl isostatlastfallet som skjuvlastfallet.

De acceptabla defekternas storlek varierar i olika delar av insatsernas tvärsnitt, men för övrigt har kravbilden med avseende på defekter och materialegenskaper varit enhetlig för insatsen. Trots att de mekaniska belastningarna varierar mellan delar av kapseln i slutförvaret har inte kraven på kapseln i någon stor utsträckning anpassats för detta. Dessutom resulterar tillverkningsprocesserna i såväl en systematisk som en stokastisk variation av egenskaper och defekter. För att anpassa kraven till förändringar i konstruktionsförutsättningar, variationen i de mekaniska belastningar, och den systematiska variationen av egenskaperna inom komponenter utvecklar SKB kravbilden för att bättre uppnå kapselns mekaniska integritet.

Preliminära resultat indikerar att kravet på brottförlängning i segjärnet kan mildras. Kravställningen med avseende på idealiserade defekter i segjärnet utreds vidare, och även här indikerar preliminära resultat att kravbilden kan mildras, framförallt för de centrala delarna av insatsen. SKB utreder vidare till vilken konfidens som kraven ska uppfyllas samt hur detta ska verifieras i produktion.

Program

SKB kommer att uppdatera designanalysrapporten (Raiko et al. 2010) till PSAR så att den omfattande information som tagits fram för att besvara kompletteringarna inarbetas och sammanställs överskådligt. Dessutom görs förnyade verifierande analyser och skadetålighetsanalyser av såväl isostatlastfallet som skjuvlastfallet där de nya konstruktionsförutsättningarna rörande isostatlast samt buffertens egenskaper beaktas. Eftersom tillverkningsprocessen för kopparlopp uppdaterats genom glödning uppdateras tillåtna hanteringslaster för kopparkapseln där materialdata för mjukglödgd koppar och maximalt tillåten hanteringstemperatur ansätts.

Arbetet att uppdatera Raiko et al. (2010) har också haft som målsättning att genom mer detaljerade analyser om möjligt relaxera kravbilden med avseende på materialegenskaper och tillåtna defektstorlekar samt även förtydliga framställningen av de angivna kraven. Särskild vikt har lagts på att motivera provningsbegränsningar med oförstörande provning där så är möjligt, det vill säga motivering till varför delar av kapselns ingående delar inte behöver inspekteras.

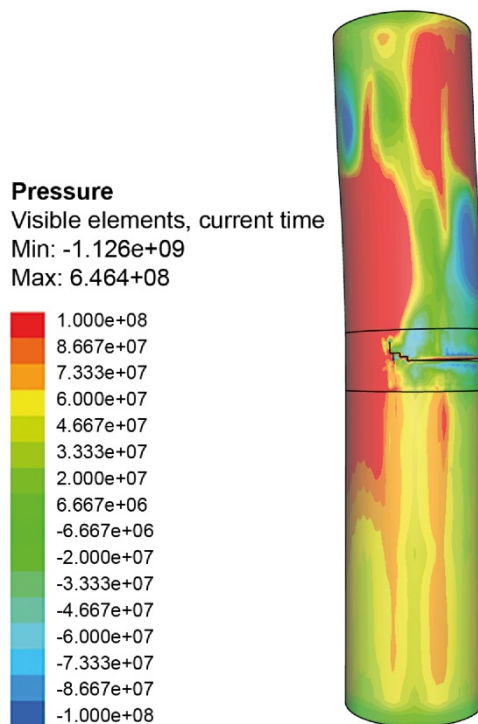
Skjuvlastfallet är i flera avseenden dimensionerande för kraven på kapseln. Därför ägnas skjuvlastfallet särskild uppmärksamhet för att erhålla så välanpassade krav på kapseln som möjligt. Bland annat beaktas lägre bentonitstyvhet och defekternas djup/längdförhållande. Känslighetsanalyser av vad konsekvensen blir för kapselns integritet om mycket stora defekter i insatsen ändå skulle uppträda genomförs också.

Vidare utreds genom noggrannare analyser om det är möjligt att relaxera krav på plastisk töjning och sträckgräns i insatsen. Det övergripande målet är att inte ställa

strängare krav än nödvändigt på insatsen, vilket resulterar i variabla krav med avseende defektstorlekar både i insatsernas tvärsnitt men också i axiell led. Det undersöks och motiveras genom känslighetsanalyser varför vissa delar av insatsen såsom bottenplattan, toppen och mellan kanalrören kan exkluderas från inspektion, det vill säga vissa områden tilldelas provningsbegränsningar. I figur 1 nedan visas konsekvensen för en kapsel vars insats hade mycket stora defekter då den blev utsatt för skjuvlastfallet. Det utreds om krav på plastisk töjning kan mildras i ett begränsat område i centrum på insatserna, på grund av de låga elastiska töjningarna.

För isostatlastfallet beaktas kombinationen av de lägsta tillverkningskraven med avseende på sträckgräns, kantavstånd och tillåtna defekter för BWR och PWR-insatserna, liksom axiella sprickliknande defekter vid kanalrörshörnet och inverkan av restspänningar.

Slaggernas proportioner betraktas som "as manufactured" från demonstrationsserien. Arbetet görs med avseende på att mildra tillåtna defektstorlekar över insatsens tvärsnitt liksom krav på inspektion i allmänhet, särskilt sprickliknande defekter med utbredning i tangentiell och radiell led som utgår ifrån de yttre kanalrörshörnen liksom konsekvensen av skjuvning av en kapsel vars insats antas ha mycket stora sprickor mellan kanalrören initialt. Kravställning på ingående ståldetaljer inklusive stållocket görs, liksom utredning av möjligheten att tillämpa den amerikanska ASME-normen för insatsen. Vidare utreds om krav avseende plastisk töjning i insatsen och övriga materialkrav på insatsen kan mildras. Särskild vikt läggs vid att bättre underbygga den konstitutiva modelleringen av segjärn, även vid mycket stora deformationer och materialbrott. Därtill genomförs ett program för att ytterligare motivera användandet av brottseghet som erhålls vid 2 mm stabil spricktillväxt i en provstav liksom för att undersöka hur brottseghet och duktilitet påverkas av förkomprimering av segjärnet. Tillåten hanteringslast för insatsen utreds också.



Figur 1. Områden med kompressiv spänning (positiva värden röda-gul-gröna områden) respektive områden med dragspänning (negativa värden grön-blå områden) i en insats som från början hade mycket stora defekter innan kapselns utsattes för skjuvlastfallet. Sprickutbredningen avstannar då sprickspetsen når det kompressiva området som uppstår i insatsen tack vare den armerande funktion kanalrören har (SKBdoc 1474363).

För kopparhöljet genomförs nya utredningar rörande den största kvarstående deformation som kopparhöljet kan komma att utsättas för. I dessa utredningar används både elasto-plastiska materialmodeller och materialmodeller som innehåller kryp, se avsnitt 2. De olika lastfallen värderas med avseende på om dessa är

deformationsstyrda eller kraftstyrda för kopparhöljet. Dessutom betraktas inverkan av excentriskt placerad insats. Därefter kan kraven på kopparmaterialets duktilitet revideras och en förnyad bedömning av kravuppfyllnad göras.

Tillåtna hanteringslaster utreds liksom tillåten storlek på hanteringsdefekter i kopparhöljet.

4 Tillverkning

Produktion av kapselkomponenter sker mot definierade tillverkningskrav. Tillverkningskraven är formulerade så att de acceptabla värdena på designparametrarna som anges för kapselns referensutformning uppfylls. Det betyder att tillverkningskraven är minst lika skarpa som i referensutformningen, men i många fall skarpare. Referensutformningen gäller oberoende av vald produktionsmetod. Tillverkningskraven kan däremot variera för att säkerställa låg restrisk för att provad och kontrollerad designparameter inte ska avvika från de angivna acceptabla värdena någonstans i komponenten.

I avsnittet presenteras nuläge och program för tillverkning av de olika kapselkomponenterna, förslutningssvetsen samt deponeringen.

4.1 Kopparkomponenter

Tillverkning av kopparkomponenter kan delas upp i extrusion av rör, dornpressning av rör och smidning av lock och botten. Gemensamt för tillverkningen är att den ska leverera produkter som uppfyller de ställda kraven avseende materialegenskaper, dimensioner och defekter med hög tillförlitlighet.

Nuläge

SKB har i produktionsrapporten (SKB 2010) och tillhörande underlagsrapporter redovisat utfallet av demonstrationserien av extruderade rör samt smidda kopparlock med avseende på uppfyllnad av geometriska dimensioner och materialegenskaper. I komplettering av ansökan har SKB vidare redovisat utfallet av den kemiska sammansättningen i rörgöt samt möjligheten att styra duktiliteten i smidda kopparlock genom att värmebehandla dessa efter smidning. Vidare har möjliga defekter i kopparkomponenterna analyserats och klassificerats. Acceptanskriterier för defekter med hjälp av FE-simuleringar av extrusions- respektive smidningsprocesserna har tagits fram.

Program

För kopparkomponenterna planerar SKB att vidare utreda kravet på medelkornstorlek i kopparkomponenterna vilket kan medföra att ett tilläggskrav rörande ljuddämpning kan behöva definieras för att ultraljudprovningens tillförlitlighet ska kunna säkerställas. SKB har för avsikt att utreda och förtydliga acceptanskrav med avseende på materialsammansättning (exempelvis maximal syrehalt i kopparhöljet) och komplettera och motivera kravbilderna för defekter i kopparkomponenterna (SKBdoc 1414374). SKB planerar att validera de FE-beräkningar som ligger till grund för de framräknade tillåtna defekterna med lämpliga praktiska experiment. SKB planerar att utreda och förbättra strategin för hur kvalitetssäkring av fosforhalten och övriga specifikationer av den kemiska sammansättningen i kopparkomponenterna ska ske, liksom erhållande av jämnare kornstorlek. SKB har även för avsikt att utveckla smidesprocessen av lock och botten för att minska spridningen i duktilitet och kornstorlek i färdig produkt samt minimera risken för smidesveck.

Därtill överväger SKB att utreda och om möjligt besluta dornpressning som en referensmetod för tillverkning av kopparrör med integrerad botten. SKB och Posiva har under en längre tid gemensamt genomfört utveckling av dornpressningsprocessen. Det är nu möjligt att erhålla kopparmaterial som uppfyller tillverkningskravet minst 40 % brottförlängning respektive referensutformningskravet på medelkornstorlek max 800 µm men inte alltid tillverkningskravet max 360 µm medelkornstorlek. Medelkornstorleken bedöms enligt ASTM E112 som är en amerikansk standard för

kornstorleksbedömning. Mer arbete återstår för att utveckla processen och verifiera att jämn kornstorlek kan erhållas även i den integrerade botten på röret, men även att kartlägga vilka defekter som kan uppstå vid dornpressning samt acceptanskriterier för dessa defekter. SKB har även för avsikt att utreda hur kvalificering av koppertillverkningen kan genomföras, även med avseende på dornpressning. SKB planerar att fatta beslut om dornpressning som en möjlig referensmetod för tillverkning av kopparrör.

4.2 Insats

För att kapseln ska garantera strålsäkerheten under transport, deponering och slutlig förvaring behöver SKB visa att den mekaniska hållfastheten är tillräcklig i hela insatsen samt att det inte kvarstår några fel eller avvikelser i insatsen.

Nuläge

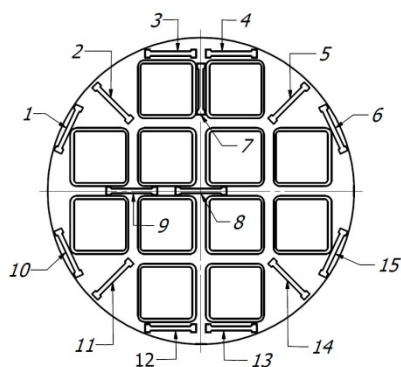
SSM har i granskningen av SKB:s Fud 2013 uttryckt att SKB behöver utvärdera betydelsen av slumpmässigheten i gjutprocesserna och dess inverkan på de mekaniska egenskaperna samt att SKB bör utveckla PWR-insatserna till motsvarande nivå som för BWR-insatserna (sid 92, SSM 2014). SKB har genomfört en designanalys för BWR som presenteras i Raiko et al. (2010) där beräkningsförutsättningarna sammanfattas. De krav på BWR-insatsen som anges i Tabell 8-1 i Raiko et al. (2010) är härledda utifrån denna designanalys. I kapitlet 3.3.2 finns det en utförlig härledning av kravet på brottförlängning. För PWR har motsvarande analyser gjorts i bilaga 6 "Analysis of PWR canister inserts using data acquired from PWR material" (SKBdoc 1288288). I bilaga 7 "Summary of important characteristic parameters for the insert, based on performed strength and damage tolerance analyses" (SKBdoc 1288292) sammanfattas kraven som ställs på segjärnets mekaniska egenskaper med avseende på referensutformningen av kapseln.

Kraven på referensutformningen har således härletts utifrån de genomförda skadetålighetsanalyserna för BWR- och PWR-insatserna. De materialegenskaper som kravställs är följande (SKBdoc 1371851):

- sträckgräns
- brottgräns
- brottförlängning
- brottseghet.

SKB har i SKB (2010) med tillhörande underlag redovisat utfallet av demonstrationsserien av BWR I53-I57 med avseende på materialegenskaper och geometriska dimensioner. Inom ramen för det arbete som bedrivits för att svara på kompletteringarna till ansökan har det även tagits fram en dataanalys (SKBdoc 1414800) för utfallet med avseende på mekanisk provning av de tre senast tillverkade PWR-insatserna IP23-IP25, liksom ett förtydligande av vilka tillverkningskraven är på segjärnets materialegenskaper, samt en värdering av hur kvalitetssäkring av dessa egenskaper ska ske.

SKB lät gjuta en BWR-insats i maj 2015 med målet att utvärdera de processförbättringar som införts för PWR-insatser. För att kartlägga variationer i materialegenskaper inom insatsen samt underlätta den statistiska analysen ökades antal dragprover i höjdlid och i radiell led. I figur 2 syns att flera av proverna kan anses vara duplikat beroende på symmetri vid stelning.



Figur 2. Provvuttag i insatsens tvärsnitt.

Enskilda värden och medelvärden för brottförlängning redovisas i tabell 1 i en tillämplig uppställning som i Blom och Holmquist (1998) och visar på systematiska variationer mellan prover i höjddled vilket redan var känt, men också systematiska variationer mellan provpositionerna i radiell led. Skillnaden mellan prover uttagna i randen och centrum är signifikant. I centrum kan deformationen förväntas vara lägre vid en belastning av kapseln, och därför utreds om även kraven på brottförlängning kan mildras i centrum.

Tabell 1. Brottförlängningsvärden för BWR insats som göts maj 2015.

Höjd	1	6	10	15	2	5	11	14	3	4	12	13	Medel
Botten	23,2	22,4	22,0	22,7	20,5	20,9	19,7	20,7	22,8	21,3	20,9	22,9	21,7
25 %	22,5	22,7	23,7	17,5	19,5	20,8	20,4	20,0	21,8	21,1	21,8	11,4	20,3
Mitten	18,9	18,5	22,8	14,7	19,8	17,3	20,2	18,8	22,4	16,3	14,0	13,8	18,1
75 %	13,0	12,0	13,8	15,3	14,1	16,4	19,4	19,2	11,0	8,2	9,4	10,6	13,5
Toppen	16,6	12,2	16,8	14,0	17,5	14,5	14,3	15,2	10,4	8,8	12,8	9,0	13,5
Medel	18,3				18,5				15,5				17,4

Program

Kravuppfyllnad kommer att uppskattas (Odeh och Owen 1980, tabell 7) genom att jämföra medelvärde, krav och standardavvikelse med tabellerade värden för andel mätningar inom ett ensidigt konfidensintervall. En variansanalys av de mekaniska värdena kommer att utföras.

SKB kommer att vidareutveckla tillverkningstekniken och förtydliga tillverkningskraven på insatsens ståldetaljer. För segjärnet utreds hur mikrostrukturen med avseende på perlithalt, nodulstorlek etc. ska omfattas av tillverkningskrav. SKB avser att arbeta vidare med att utforma tillverkningskraven samt vidare utveckla SKB:s strategi för att verifiera tillverkningskraven för insatsernas initialtillstånd. SKB planerar att uppdatera kravbilden för oförstörande provning av insatsen (SKBdoc 1414760) och koppla defektbilden tydligare till de slutligt valda tillverkningsmetoderna. Därtill planeras vidare arbete med att förfina gjutprocessen och att minska variationerna i materialegenskaper hos segjärnet. Dessutom jämförs egenskaperna med de från Posivas stiggjutna insatser. SKB har även för avsikt att utreda hur kvalificering av insatstillverkningen kan genomföras.

4.3 Svetsning

Friktionsomrörningssvetsning (eng. Friction stir welding, FSW) valdes som referensmetod för förslutning av kapseln 2005 efter en utvärdering emot alternativtekniken elektronstrålesvetsning. Under 2014 valde även Posiva Oy, Finland, FSW som referensmetod för svetsning av kapseln.

FSW sammanfogar materialet i fast tillstånd vilket skiljer processen från klassisk smältsvetsning. Genom att låta en tapp rotera i materialet skapas friktionsvärme. Den ökande temperaturen gör materialet mjukare så att det, om temperaturen är tillräckligt hög, börjar röra sig med tappen. När tappen sedan förs fram längs foglinjen

skapas en homogen fog. FSW skapar en fog med materialegenskaper jämförbara med grundmaterialet (SKB, 2010).

Nuläge

Efter FUD2013 har utvecklingsarbetet fokuserat på dels industrialisering och automatiseringen av svetsprocessen och dels undersökning av oxidstråk i svetsgodset. Arbetet genomförs sedan 2014 tillsammans med Posiva Oy.

Arbetet med oxidstråk har under perioden syftat till att kvantitativt förstå uppkomsten av oxidpartiklar i svetsen. Studier och modellering av koppars oxidationskinetik har utförts (SKBdoc 1410172). Dessa modeller har applicerats på svetsprocessen för ökad förståelse samt för uppskattning av erforderliga syrehaltsnivåer i gasskyddet (SKBdoc 1402837). Ett examensarbete (Pekkonen, 2014) utmynnade i förslag till en ny design av gasskyddet från erfarenheterna av de gasskydd som presenterades till SSM 2014 (SKBdoc 1371851).

När det gäller automatiseringen har den så kallade kaskadregulatorn (som ändrar svetsverktygets rotationshastighet) förbättrats så att verktygstemperaturen runt hela foglinjen endast varierar med ± 5 °C. Denna regulator har även utvecklats så att den ska fungera även om verktygstempersignalen försvinner.

Sedan FUD2013 har foglinjeböjningens utsträckning i radiell led utvärderats med hänsyn till de variabler som kan påverka: tappens längd, svetsdjup och tappens relativa höjdläge mot foglinjen. Resultaten visar att med en tapp längd på 51 mm och centrerat höjdläge (tolerans 2 mm) så kan foglinjeböjningen begränsas till under 2 mm.

För att reducera oxidstråken i det svetsade godset har ett nytt gasskydd på kapsellaboratoriets svets byggts enligt Pekkonens (2014) studie. Detta ger ett komplett gasskydd runt hela foglinjen under hela svetssekvensen. Utvärderingen av gasskyddet gjordes genom tre fullvarvsvetsar. Den första svetsen hade skyddsgas, Ar, på utsidan av foglinjen, den andra hade skyddsgas, N₂, även på insidan. Den tredje svetsen hade samma konfiguration som den andra men med 2 at-% H₂ inblandat i skyddsgaserna. Resultatet utvärderades genom att mäta syrehalten i svetsen, utföra värmebehandling i vätgasatmosfär enligt ASTM B577 samt metallografisk undersökning. Utvärderingen visade att den högsta syrehalten var under 3 vikts-ppm i alla svetsar vilket är under specifikationen för basmaterialet på 5 vikts-ppm. Värmebehandlingen i vätgasatmosfär jämfördes enligt skala från ASTM F68. Alla svetsar befanns ha en nivå 1/C vilket är den lägsta nivån. Detta betyder att svetsarna inte mottagliga för väteförspädning samt att de uppfyller ett framtida krav på 5 vikt-ppm syre. En rapport med ovanstående resultat publiceras under 2016. Denna rapport diskuterar och underbygger rengöringsmetoden av fogytorna.

För att ytterligare minska foglinjeböjningen har sedan FUD2013 ytterligare en regulator utvecklats och driftsatts, en så kallad djupregulator som ändrar kraften som svetsverktyget trycker med mot kapseln för att styra svetsdjupet. Djupregulatorn har även som syfte att minimera så kallad skäggbildning som kan störa processen, t ex vid överlappsekvansen.

Preliminära resultat visar att svetsdjupet kan kontrolleras väl med nuvarande inställningar. Ytterligare prov måste dock genomföras för att undersöka hur t ex olika tillverkningsmetoder av lock och rör påverkar svetsdjupet och/eller djupregulatorns inställningar.

Program

SKB och Posiva kommer även att fortsätta att fördjupa kunskapen om svetsprocessens stabilitet generellt genom systematiska studier med avseende på störningar i process och inkommande komponenter såsom t.ex. tillverknings toleranser mellan lock och rör samt när fogytorna inte är helt i kontakt med varandra.

5 Kontroll och provning

Nuläge

SKB har tagit fram en samlad kravbild, inklusive acceptanskriterier för kapseln och dess komponenter. SSM har efterfrågat inverkan på provningsmetodik av egenskaper och variationer hos defekter för att SKB ska kunna säkerställa att kapselns komponenter blir provningsbara (SSM2011-1137-63). Inom ramen för SKB:s komplettering av ansökan i tillståndsprövningen har SKB rapporterat nuvarande status avseende oförstörande provning (OFP) av kapselns komponenter och svetsar. Rapporteringen omfattar en samlad redovisning (SKBdoc 1434744) av en framtagen preliminär kravbild för OFP tillsammans med beskrivning av den OFP-teknik som utvecklats med därtill kopplade analyser i form av såväl simuleringar som tillförlitlighetsstudier. Resultat redovisas även från initiala analyser av provbarhet för kapselkomponenterna med ultraljud. Dessutom omfattar redovisningen ett förslag på med vilken inriktning som kvalificeringsprocessen för OFP av kapseln kan drivas (SKBdoc 1414464). Som följd av att tillförlitligheten för ultraljudprovning av insatsens centrala delar har ifrågasatts i SSM:s preliminära granskningsrapport från 2015 (SSM 13-3523), har en studie med syfte att applicera röntgenteknik för dessa områden initierats. Preliminära resultat av denna studie visar goda möjligheter att erhålla tillräcklig tillförlitlighet för provning av dessa områden, framför allt med tanke på att acceptanskraven för dessa områden troligen kan mildras, se avsnitt 3.

Program

SKB avser att arbeta vidare med att utarbeta detaljerade acceptanskriterier för OFP genom fortsatta analyser av möjliga och troliga defekter samt koppla dessa till de beräkningar som görs med avseende på hantering av kapseln vid tillverkning och deponering samt kapselns långsiktiga säkerhet. Parallellt med detta arbete bedrivs fortsatt utveckling av OFP-teknik för detektering av defekter kopplat till dessa mer detaljerade acceptanskriterier. Utvecklingen fokuseras på framtagning av kompletterande ultraljudteknik för provning av insatsens volym samt utvärdering av alternativa tekniker för ytprovning av insatsen. Som komplement till den utvecklade provningstekniken utvärderas även möjligheten att applicera röntgenteknik för provning av insatsens centrala delar. Utöver detta har arbete initierats med inriktning på utveckling av virvelströmsteknik för ytprovning av kopparkomponenterna.

Som en följd av att röntgen har visat sig vara nödvändig för att säkerställa tillförlitlig provning av FSW-svetsar, utvärderas om alternativa detektorkoncept kan ge en ökad detekteringsförmåga. Utvecklingen av OFP kommer även mer konkret inriktas mot teknik för storleksbestämning kopplat till de defekter som förväntas kunna förekomma i kapselns komponenter och svetsar samt de acceptanskriterier som utarbetas. Utöver den provningsteknik som utvecklas för slutkontroll planeras även en översyn över den provning som i dagsläget görs av utgångsmaterial som exempelvis koppargöt. Baserat på denna översyn kommer eventuell teknikutveckling att initieras.

För att underbygga utvecklad OFP-teknik bedrivs fortsatta studier av möjliga variationer (avseende material, defekter och geometri) i kapselns komponenter och svetsar samt hur dessa kan påverka kapselns provbarhet. Baserat på dessa studier kommer sedan eventuella krav på exempelvis ljuddämpning och ytfinhet att definieras. För att ytterligare underbygga provningstekniken bedrivs fortsatt arbete med ultraljudsimulering av såväl själva provningstekniken som dess respons kopplat till både artificiella och verkliga defekter.

För övriga kontroller av kapseln, exempelvis avseende dimensioner, kommer en översyn av toleranser att genomföras. Baserat på denna översyn kommer eventuell utveckling av teknik för verifiering av dessa krav att initieras.

SKB planerar att utföra utredningar och utveckling avseende kontrollordning för kapseln. Som utgångspunkt för dessa utredningar, som till viss del görs i samarbete med ackrediterade kontroll- och kvalificeringsorgan, avser SKB som bas att använda befintlig föreskrift SSMFS 2008:13 vilken gäller för mekanisk utrustning i kärnkraftverk. Även andra guidelines och normer (IAEA osv) kan användas för att ge principer och strategier inom delområden där inte SSMFS 2008:13 anses fullt ut tillämpbar för kapseln i ett KBS-3 system.

Med vänlig hälsning

Svensk Kärnbränslehantering AB
Avdelning Kärnbränsle

Helene Åhsberg
Projektledare Tillståndsprövning

Referenser

Aggarwal S, Addepalli V, Smart N, 2015. Further metallographic analysis of MiniCan SCC test specimens. SKB R-15-11, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Andersson-Östling H C M, Sandström R, 2009. Survey of creep properties of copper intended for nuclear waste disposal. SKB TR-09-32, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Bengtsson A, Edlund J, Hallbeck B, Heed C, Pedersson K, 2015. Microbial sulphide-producing activity in MX-80 bentonite at 1750 and 2000 kgm⁻³ wet density. SKB R-15-05, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Blom G, Holmquist B, 1998. *Statistikteori med tillämpningar*. 3., [omarb. och utvidgade] uppl. Lund: Studentlitteratur.

Björkbacka Å, 2015. Radiation induced corrosion of copper, Doktorsavhandling, Skolan för Kemivetenskap, KTH, 2015.

Björkbacka Å, Hosseinpour S, Johnson M, Leygraf C, Jonsson M, 2013. Radiation induced corrosion of copper for spent nuclear fuel storage. *Radiation Physics and Chemistry*, 92 (0), 80-86.

Björkbacka Å, Yang M, Gasparrini C, Leygraf C, Jonsson M, 2015. Kinetics and Mechanisms of Reactions between H₂O₂ and Copper and Copper Oxides. *Dalton Transactions*, 44, 16045-16051.

Chen J, Qin Z, Shoosmith D W, 2012. Copper Corrosion in Aqueous Sulphide Solutions under Nuclear Waste Repository Conditions, *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.*, Vol. 1475, 465-470.

Chen J, Qin Z, Shoosmith D W, 2014a. The Key Parameters Determining the Structure and Properties of the Sulphide Films Formed on Copper Corroding in Anaerobic Sulphide Solutions, *Corros. Eng. Sci. Tech.*, 49, 415-419.

Chen J, Qin Z, Wu L, Noel J J, Shoosmith D W, 2014b. The Influence of Sulphide Transport on the Growth and Properties of Copper Sulphide Films during Copper Corrosion in Anaerobic Sulphide Solutions, *Corrosion Science*, 87, 233-238.

Drake H, Hallbeck L, Pedersen K, Rosdahl A, Tullborg E L, Wallin B, Sandberg B, Blomfeldt T, 2014. Investigation of Sulphide Production in Core-Drilled Boreholes in Äspö Hard Rock Laboratory. Boreholes KA3110A, KA3385A and KA3105A. SKB-TR-13-12, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Drake H, Tullborg E-L, Whitehouse M, Sandberg B, Blomfeldt T, Åström M E, 2015. Extreme Fractionation and Micro-Scale Variation of Sulphur Isotopes

during Bacterial Sulphate Reduction in Deep Groundwater Systems. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 161: 1–18.

Hosseinzadeh Delandar A, 2015. Numerical modeling of plasticity in FCC crystalline materials using discrete dislocation dynamics, Licentiate thesis, KTH.

King F, 2013. A review of the properties of pyrite and the implications for corrosion of the copper canister. SKB TR-13-19, Svensk kärnbränslehantering AB.

King F, Lilja C, 2013. Localised corrosion of copper canisters in bentonite pore water. SKB TR-13-27, Svensk Kärnbränslehantering AB.

King F, Lilja C, 2014. Localised corrosion of copper canisters. *Corrosion Engineering, Science and Technology* 2014 VOL 49 NO 6.

Kristiansen P T, Massel F, Werme L, Lilja C, Duda L-C, 2015. Sulfidation of Single-Phase Oxide on Copper and as Powder Studied Using Soft X-Ray Spectroscopy, *Journal of The Electrochemical Society*, 162 (14) C785-C791.

Kosec T, Kranjc A, Rosborg B, Legat A, 2015. Post examination of copper ER sensors exposed to bentonite, *Journal of Nuclear Materials*, 459 (2015) 306-312.

Li Y, Korzhavyi P A, 2015. Interactions of point defects with stacking faults in oxygen-free phosphorus-containing copper, *Journal of Nuclear Materials*, 462, 160-164.

Li Y, 2015. *Ab initio* based modeling of defects and disorder in industrial materials, Doctoral thesis in Material Science, KTH.

Martino T, Partovi-Nia R, Chen J, Qin Z, Shoesmith D W, 2014. Mechanisms of Film Growth on Copper in Aqueous Solutions Containing Sulphide and Chloride under Voltammetric Conditions, *Electrochimica Acta*, 127, 439-447.

Rosdahl A, Pedersen K, Hallbeck L, Wallin B, 2011. Investigation of Sulphide in Core Drilled Boreholes KLX06, KAS03 and KAS09 at Laxemar and Äspö. Chemical-, Microbiological- and Dissolved Gas Data from Groundwater in Four Borehole Sections. SKB-P-10-18, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Rosborg B, 2013a. Recorded corrosion rates on copper electrodes in the Prototype Repository at the Äspö HRL. SKB R-13-13, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Rosborg B, 2013b. Post-test examination of a copper electrode from deposition hole 5 in the Prototype Repository. SKB R-13-14, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Odeh R E, Owen D B, 1980. *Tables for normal tolerance limits, sampling plans, and screening.* New York: Marcel Dekker.

Pehkonen H, 2014. Design av Gasskydd för Friktionsomrörningssvetsningsmaskin, Master thesis, Department for economical and industrial development, Linköping university, LIU-IEITEK-A–14/01934-SE.

Pettersson K, 2010. A study of grain boundary sliding in copper with and without an addition of phosphorus. *Journal of Nuclear Materials*, 405, 131-137.

Pettersson K, 2012. A review of the creep ductility of copper for nuclear waste canister application, SSM report 2012:13.

Pettersson K, 2016. An updated review of the creep ductility of copper including the effect of phosphorus, SSM report 2016:02.

Raiko H, Sandström R, Rydén H, Johansson M, 2010. Design analysis report for the canister. SKB TR-10-28, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Sandström R, 2016. Influence of phosphorus on the tensile stress strain curves in copper, *J Nucl Mater*, 470, 290-296.

Sandström R, Wu R, Hagström J, 2016. Grain boundary sliding in copper and its relation to cavity formation during creep, *Materials Science and Engineering: A*, 651 (2016) 259-268.

SKB, 2010. Design, production and initial state of the canister. SKB TR-10-14, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Smart N R, Rance A P, Reddy B, Hallbeck L, Pedersen K, Johansson A J, 2014. In situ evaluation of model copper-cast iron canisters for spent nuclear fuel: a case of microbiologically influenced corrosion (MIC), *Corrosion Engineering, Science and Technology VOL 49 NO 6*.

Smith J M, Wren J C, Odziemkowski M, Shoemitha D W, 2007. The Electrochemical Response of Preoxidized Copper in Aqueous Sulfide Solutions, *Journal of The Electrochemical Society*, 154 , 8, C431-C438.

SSM2011-1137-63. Minnesanteckningar från avstämningsmöte mellan SSM och SKB angående kontroll och provning av kapseln.

SSM, 2015. SSM 13-3523. Preliminär rapport: Initialtillstånd och genomförbarhet för slutförvaret (kapitel 3).

Taniguchi N, Kawasaki M, 2008. Influence of sulfide concentration on the corrosion behavior of pure copper in synthetic seawater. *Journal of Nuclear Materials*, 379, 154–161.

Taxén C, Lundholm M, Persson D, Jakobsson D, Sedlakova M, Randelius M, Karlsson O, Rydgren P, 2012. Analyser av koppar från prototypkapsel 5 och 6. P-12-22, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Taxén C, 2013. Ytprofiler på kopparkapslar från deponeringshåll 5 och 6 i försöksserien Prototyp. P-13-50, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Taxén C, Sparr M, 2014. Corrosion properties of copper materials. SKB R-14-15, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Thuvander M, 2015. Investigation of the distribution of phosphorus in copper, SSM Report 2015:11.

Wu R, Sandström R, 2015. Influence of cold work and notches on creep failure of Cu-OFP. SKB R-15-04, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Wu R, Sandström R, Hagström J, 2015. Grain boundary sliding in phosphorus alloyed oxygen-free copper under creep, SKB R-15-14, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Opublicerade dokument

SKBdoc 1288288, ver 2.0. Analysis of PWR canister inserts using data acquired from PWR material. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1288292, ver 1.0. Summary of important characteristic parameters for the BWR- and PWR-insert, based on performed strength and damage tolerance analyses. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1371849, ver 3.0. Svar till SSM på begäran om komplettering rörande kapselns mekaniska integritet. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1371851, ver 4.0. Svar till SSM på begäran om komplettering rörande tillverkningsaspekter för ingående delar i kapseln. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1393179, ver 2.0. A constitutive model for texture dependent deformation hardening and pressure dependent initiation of ductile failure in metallic materials. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1398013, ver 4.0. Svar till SSM på begäran om komplettering avseende degraderingsprocesser för kapseln. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1399768, ver 2.0. Analysis of creep in the KBS-3 copper canister due to internal and external loads. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1402837, ver 1.0. Estimation of oxide growth on joint surfaces during FSW. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1410172, ver 1.0. Oxidation kinetics of copper at reduced oxygen partial pressures. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1414374, ver 1.0. Kravbild för oförstörande provning av kopparkapselns rör, lock och botten. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1414464, ver 1.0. Kvalificering av oförstörande provning. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1414760, ver 1.0. Kravbild för oförstörande provning av segjärnsinsats. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1414800 ver 1.0. Statistical data analysis of cast iron properties for PWR-inserts from tension, compression and fracture toughness testing. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1417069, ver 1.0. The role of phosphorus for mechanical properties in copper. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1419643, ver 1.0. Analysis of canister with unfavourable pressure load. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1422182, ver 2.0. Sulphide mass-transport limited corrosion. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1434744, ver 2.0. Non-destructive testing of canister components and welds. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1457514, ver 1.0. Svar till SSM på begäran om komplettering rörande fosfors inverkan på koppars krypegenskaper. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1473304, ver 1.0. Samlad redovisning om kopparkorrosion i syrgasfritt vatten. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1474363 ver 1.0. Numerical simulation of earthquake-induced rock shear through a deposition hole - crack initiation and propagation in an insert with pre-existing intertubular and edge crack planes. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1540185, ver 1.0. Ytterligare information om kopparkorrosion i syrgasfritt vatten. Svensk Kärnbränslehantering AB.