



Svensk Kärnbränslehantering AB
Bleholmstorget 30
Box 250
101 24 Stockholm

Handläggare: Jinsong Liu

Vår referens: SSM2015-725-42

Er referens:

Begäran om komplettering av ansökan om utökad verksamhet vid SFR – bildning av kolloider

Strålsäkerhetsmyndigheten (SSM) har funnit behov av nedanstående kompletteringar vid granskningen av Svensk Kärnbränslehantering AB:s (SKB) ansökan om tillstånd enligt lagen (1984:3) om kärnteknisk verksamhet till utökad verksamhet vid anläggning för slutförvaring av låg- och medelaktivt radioaktivt avfall (SFR).

SSM önskar att kompletteringarna eller en tidplan för dess framtagande är myndigheten tillhanda senast den 31 oktober 2016.

Om SKB önskar ytterligare förklaringar eller förtydliganden av de frågor som omfattas av denna begäran, och som inte avser enklare klargöranden av praktisk eller administrativ karaktär, ska detta ske vid protokollförda möten mellan berörda personer på SSM och SKB.

Kompletteringar

Bildning och stabilitet av egenkolloider av plutonium och americium:

1. En uppskattning av högsta möjliga koncentrationer (i mol per liter vatten) av Pu och Am i olika delar av förvaret, baserat på inventarierna av Pu och Am och mängder av porvatten och fritt vatten i respektive förvarsdel.
2. En jämförelse av de möjliga koncentrationerna av Pu och Am (erhållna från punkt 1) med deras respektive lösligheter i slutförvaringsmiljön dvs. med hänsyn till förväntade redox- och pH-förhållandena samt koncentrationer av komplexbildare.
3. Redovisning av risk för av bildning av egenkolloider (eng. *intrinsic colloids*) av Pu och Am samt bedömning av kolloidal stabilitet i de förvarsdelar där löslighetsbegränsningar överskrids. I redovisningen bör ingå teoretiska analyser eller experimentella resultat som visar inverkan av två motstridiga faktorer, vilka är förhållandevis högt pH och hög koncentration av divalenta katjoner från gruppen alkaliska



jordartsmetaller (främst Ca^{2+}). Dessa faktorer gynnar respektive missgynnar kolloidbildning och kolloidal stabilitet.

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

Inverkan av andra typer av kolloider för radionuklidtransport:

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

Skälen för begäran om komplettering

Am-241 och flera isotoper av plutonium (Pu-238, Pu-239 och Pu-240) utgör trots sin ringa mängd en relativt hög andel radiotoxicitet i slutförvaret (SKB TR-14-09, figur3-1). I form av lösta species med positiv eller neutral laddning, sorberar dessa radionuklider starkt på ytorna av cement, bentonit samt kristallint berg, och därför fördröjs de tillräckligt för att inte medföra ett väsentligt bidrag i dos och riskberäkningarna. Det är dock välkänt att dessa aktinider under vissa förhållanden har en relativt stark tendens att bilda egenkolloider när löslighetsgränsen för exempelvis den stabila oxidfasen överskrids (t.ex. Walther m.fl. 2009).

SKB redogör för bildning av egenkolloider i avsnitt 3.5.4 i avfallsprocessrapporten (SKB TR-14-03). SKB drar slutsatsen att egenkolloider oftast bildas vid nära neutrala pH-värden och destabiliseras under alkaliska förhållanden. Kolloider av Pu och Am förväntas därför inte bildas tack vare den höga alkaliniteten som råder i cementmiljön i förvarsdelarna. Höga koncentrationer av kalcium kan också destabilisera kolloider.

SSM konstaterar dock att slutsatsen att egenkolloider bildas vid nära neutrala pH-värden och destabiliseras under alkaliska förhållanden inte framgår tydligt av de referenser som SKB åberopar (Neck m.fl. 2002; Walther m.fl. 2009). SKB:s slutsats är inte heller konsekvent med resultatet att höga alkaliska pH-värdet i cementens porvatten är gynnsamt för kolloidbildning och kolloidstabilitet. Vidare kan SSM konstatera att den grundläggande teoretiska principen är att ju längre pH-värdet är ifrån kolloidsystemets *point-zero-charge-pH*, pH_{pzc} , desto högre ytladdning och desto mer stabilt blir kolloidsystemet (t.ex. Zhao och Steward, 1997, kapitel 2). SSM anser att SKB bör förtydliga motiven till sina slutsatser angående egenkolloider samt ge en systematisk belysning, med hjälp av teoretiska analyser eller experimentella resultat, av inverkan av de två motstridiga faktorerna på kolloidbildning och stabilitet, dvs. högt pH (som gynnar bildning och



stabilitet av kolloid) och hög koncentration av Ca^{2+} (som destabiliserar kolloidsystemet).

SSM anser att möjligheten att bilda stabila egenkolloider kan försämra förvarets fördröjningsförmåga som baseras på sorption för plutonium och americium. Partiklar av egenkolloider har oftast en storlek på några nanometer (Walther m.fl. 2009). Betongkonstruktionerna i olika delar av förvaret kan möjligen ha sprickor och kan därför inte effektivt filtrera kolloider. Bentoniten i silon har en relativt låg densitet och SSM kan inte bedöma från tidigare studier av bentonit om kolloidpartiklar med storleken på några nanometer effektivt kan filtreras av denna barriär. SSM efterfrågar därför om behov föreligger en redovisning av möjligheten för bentonit i silon att filtrera partiklarna av egenkolloider av Pu och Am. Frågan kan preliminärt bedömas ha en säkerhetsbetydelse eftersom silon innehåller merparten av förvarets aktinidnehåll.

SKB redogör för bildning, stabilitet samt transport av cementkolloider i avsnitt 3.5.4 och 4.4.4 i Processrapporten för avfall (SKB TR-14-03) samt i avsnitt 5.4.5, 6.4.4, 7.4.5, 8.4.4 och 9.4.4 i Processrapporten för barriärer (SKB TR-14-04). Transport av radionuklider sorberande på cementkolloider försummas i samtliga förvarsdelar (i BMA, BTF och BRT samt i silon) tack vare de förväntat relativt låga koncentrationerna av cementkolloider i förvarsdelarna (i silon anges även filtreringsförmåga av bentonit som ett av de skälen). I BLA däremot har ingen barriärfunktion antagits och frågan saknar därför säkerhetsbetydelse. En kvantitativ uppskattning av förhållandet mellan sorptionsförmåga på ytan av cementkolloider och ytan av cementmaterialet i förvaret saknas dock. SSM ser ett behov av att SKB kompletterar sin ansökan med en sådan uppskattning, genom att stegvist beräkna förhållandet av massa, förhållandet av yta, förhållandet av sorptionskoefficienter, samt slutligen förhållandet av sorptionsförmåga mellan cementkolloider och det övriga cementmaterialet.

Betraktande stabilitet av cementkolloider i förvarsmiljön, har SKB citerat resultat från litteraturen (Borkel m.fl., 2011) som ett stöd för slutsatsen att cementkolloider kan anses vara instabila och tenderar att koagulera i slutförvarsmiljön (figur 3-2 i SKB TR-14-03). I figuren visas inverkan av kalciumkoncentration och pH på stabilitet för cementkolloider. Det framgår av figuren att för att cementkolloider ska vara och förbli stabila vid pH högre än 12, måste Ca-koncentrationen vara runt och högre än 10^{-2} M. SSM bedömer att SKB behöver förtydliga sin analys med ett intervall för pH-värden i cementmiljön under olika tider samt motsvarande intervall för kalciumkoncentrationen under olika tider i slutförvarets utveckling för bedömning av risken för bildning av cementkolloider.



Denna begäran om komplettering har beretts av Jinsong Liu och Bo Strömberg.

Ansi Gerhardsson
Chef, slutförvarsheten

Referenser

Borkel C., Grivé M., Bruno J., 2011. Development of a continuous flow reactor – first study of cement paste degradation. 1st International Symposium on Cement-Based Materials for Nuclear Waste, Avignon, France, 11-13 October, 2011.

Neck V., Müller R., Bouby M., Altmaier M., Rothe J., Denecke M. A., Kim J.-I., 2002. Solubility of amorphous Th(IV) hydroxide-application of LIBD to determine the solubility product and EXAFS for aqueous speciation. *Radiochimica Acta*, 90, pp.485-494.

SKB TR-14-03. SKB, 2014. Waste form and packaging process report for the safety assessment SR-PSU. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB TR-14-04. SKB, 2014. Engineered barrier process report for the safety assessment SR-PSU. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB TR-14-09. SKB, 2014. Radionuclide transport and dose calculations for the safety assessment SR-PSU. Svensk Kärnbränslehantering AB.

Wallther C., Rothe J., Brendebach B., Fuss M., Altmaier M., Marquardt C. M., Büchner S., Cho H.-R., Yun J.-I., Seibert A., 2009. New insights in the formation processes of Pu(IV) colloids. *Radiochimica Acta*, 97, pp.199-207.

Zhao P., Steward S. A., 1997. Literature review of intrinsic actinide colloids related to spent fuel waste package release rates. UCRTID-126039. Lawrence Livermore National Laboratory, USA.