



Granskningsrapport

Datum: 2019-09-30

Diarienumr.: SSM2019-3222 / SSM2019-3168

Dokumentnr.: SSM2019-3168-9

Process: 9.2

Handläggare: Bo Strömberg

Arbetsgrupp: Henrik Öberg, Jinsong Liu, Elena Calota, Michael Egan

Samråd: Nina Persson

Godkänt av: Ansi Gerhardsson

SSM:s granskning av SKB:s komplettering till regeringen om kapselintegritet

Sammanfattning

Den 16 mars 2011 lämnade Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB) in ansökningar om tillstånd att få bygga en inkapslingsanläggning och ett slutförvar för använt kärnbränsle. Efter en omfattande granskning och flera kompletteringar av underlaget tillstyrkte Strålsäkerhetsmyndigheten (SSM) den 23 januari 2018 SKB:s ansökan enligt lagen (1984:3) om kärnteknisk verksamhet (kärntekniklagen) och överlämnade ärendet till regeringen. Samma dag lämnade även Mark- och miljödomstolen vid Nacka tingsrätt sitt yttrande till regeringen, med rekommendationen att ytterligare underlag behövs, särskilt avseende beständighet hos den kapsel som avses innesluta det använda kärnbränslet, för att regeringen ska kunna fatta beslut om tillåtlighet enligt miljöbalken.

I juni 2018 efterfrågade regeringen komplettering från SKB i miljöbalksärendet med hänvisning till de frågor som lyftes av mark- och miljödomstolen. Samtidigt gavs SKB tillfälle att yttra sig även i ärendet avseende prövning enligt kärntekniklagen. I mars 2019 lämnade SKB till regeringen kompletterande yttranden i de båda ärendena. Regeringen skickade därefter kompletteringarna på remiss.

Föreliggande granskningsrapport har tagits fram av SSM, i sin egenskap av remissinstans till regeringen, som stöd till myndighetens yttranden. Syftet med granskningen har varit att bedöma huruvida SKB på ett tillfredsställande sätt har utrett och svarat på domstolens specifika frågor om kapselns integritet mot eventuella degraderings- och korrosionsprocesser.

SSM bedömer sammanfattningsvis att SKB:s kompletterande utredningar har tillfört betydande ny information om de processer som omnämndes i mark- och miljödomstolens fem punkter. Den kompletterande redovisningen ger en fördjupad förståelse för processerna och en ännu mer detaljerad bild av deras betydelse i en slutförvarsmiljö i jämförelse med den redovisning som fanns tillgänglig vid beredning av SKB:s tillståndsansökningar. En av processerna som tidigare uteslutits från konsekvensanalysen har nu

tagits med i beräkningarna, vilket dock inte annat än på marginalen förändrar bilden av slutförvarets långsiktiga skyddsförmåga. Mer specifikt, en form av gropkorrosion som SKB benämner mikrogalvanisk korrosion, som med ett pessimistiskt parameterintervall antas äga rum i eroderade deponeringshål, kan ge en brantare ökning av risk i ett visst tidsintervall (efter flera tiotusentals år) men innebär ingen reell ökning av de beräknade maximala radiologiska konsekvenserna.

Beträffande de övriga processerna anser SSM att SKB på ett tillförlitligt sätt har visat att dessa inte har någon avsevärd påverkan på slutförvarets skyddsförmåga. SSM betonar att med *förvarets skyddsförmåga* menas samtliga barriärers kombinerade funktion snarare än enbart kapselns funktion. SSM:s bedömning, att SKB har visat att förläggningsplatsen är lämplig, att metoden är genomförbar och att SKB har förutsättningar att uppfylla samtliga av SSM:s relevanta föreskriftskrav, kvarstår. Med *förutsättningar att uppfylla krav* menas här att SSM förväntar sig att SKB, efter att ha:

- konstruerat tillfartsvägar till förvarsdjup och ytterligare undersökt Forsmarksbergets egenskaper
 - vidareutvecklat tillverknings- och provningsmetoder för tekniska barriärer för tillämpning i industriell skala, samt
 - slutfört utredningar föranledda av SSM:s tidigare granskningskommentarer,
- kommer att kunna ge den information som krävs för att myndigheten i behörig ordning kan godkänna påbörjan av provdrift, dvs. deponering av de första förslutna kopparkapslarna med använt kärnbränsle.

SSM bedömer därför att SKB:s kompletterande material stärker SSM:s tidigare slutsats att SKB genom slutförvarets lokalisering och konstruktion har förutsättningar att uppfylla myndighetens krav med avseende på långsiktig strålsäkerhet efter förvarets slutliga förslutning. Ett flertal frågor som SSM lyfte i sin tidigare granskningsrapport vid beredning av SKB:s ansökan enligt kärntekniklagen har med hjälp av den nya informationen klagjorts och belysts på ett mer fullständigt sätt. SSM anser, liksom i sin tidigare bedömning, att dessa osäkerheter genomgående avser frågan om processer som har befunnits ha ingen eller en liten betydelse för slutförvarets långsiktiga risk. SSM:s specifika bedömningar angående SKB:s senaste kompletterande underlag i de olika områdena sammanfattas nedan under motsvarande rubriker.

Saunaeffektens betydelse

SKB:s beaktande av saunaeffekten i deponeringshål beskrivs i ett enskilt kapitel av rapporten. Frågan redogörs därmed inte integrerat med redovisningen av gropkorrosion respektive spänningskorrosion, dvs. inte helt i enlighet med hur mark- och miljödomstolen tar upp frågan. Oavsett detta bedömer SSM att SKB:s redovisning av ytterligare och fördjupade experimentella och teoretiska utredningar kring saunaeffekten är vetenskapligt välgrundad, trovärdig och godtagbar. Vidare har SSM förståelse för att SKB har, genom att hålla diskussionen om saunaeffekten skild från redovisningen av korrosionsprocesser, försökt renodla rapporteringen för att inte komplicera sin analys i onödan.

SSM anser att dessa kompletterande utredningar, i synnerhet SKB:s senare uppsättning av tester med bentonitblock och överslagsberäkningar, har bekräftat de antaganden som ligger bakom valet av parametrar i motsvarande teoretiska modellering och har förstärkt bolagets tidigare slutsatser kring saunaeffektens försumbara inverkan på korrosion av kapseln i slutförvarsmiljön.

Korrosion av koppar i rent syrgasfritt vatten

Enligt SSM:s bedömning har processen korrosion av koppar i rent syrgasfritt vatten en försumbar betydelse med avseende på strålsäkerheten för ett slutförvar med använt kärnbränsle inneslutet i kopparkapslar. Den vetenskapliga grundfrågan huruvida en korrosionsreaktion överhuvudtaget äger rum i rent syrgasfritt vatten har inte varit avgörande för denna slutsats, utan snarare att den studerade reaktionen inte avser den kemisk reducerande sulfidmiljö som förväntas i slutförvaret, samt att omfattningen av reaktionen enligt etablerad kunskap är så liten att den knappast ens kan mätas och än mindre påverka kapslar med ett fem centimeter tjockt kopparhölje placerade i ett slutförvar på 500 meters djup. För att en korrosionsprocess inte bara ska initieras utan även fortskrida krävs ett materieutbyte med omgivningen. Processen kontrolleras därför av såväl den mycket begränsade termodynamiska drivkraften för reaktionen som de låga materieöverföringshastigheterna i slutförvarsmiljön.

SSM konstaterar att ett betydande antal experimentella studier kring processen har slutförts på uppdrag av såväl SKB som andra aktörer. Den vätgasutveckling som har kunnat uppmätas i olika typer av försöksuppställningar har generellt sett varit avtagande och mycket liten. Även om den skulle ha orsakats av den föreslagna korrosionsprocessen är betydelsen i kontexten slutförvaring liten. För att kunna verifiera att uppmätt vätgasutveckling verkligen har orsakats av kopparkorrosion och inte av någon annan orsak krävs att den har åtföljts av bildning av en korrosionsprodukt med högre termodynamisk stabilitet i jämförelse med kända fasta faser i systemet. Ingen information har kommit fram som verifierar att en hittills okänd korrosionsprodukt har bildats under dessa försök, som skulle kunna medföra en avgörande inverkan på kopparkapselns korrosionsförlopp.

SSM anser att inga ytterligare studier behövs utöver dem som SKB hittills har låtit utföra för att påvisa vätgasutveckling och korrosion för kopparprover exponerade i rent syrgasfritt vatten. Det behövs heller inga särskilda scenarier inom säkerhetsanalysen för att ytterligare belysa korrosion i rent syrgasfritt vatten.

Gropkorrosion på grund av reaktion med sulfid

SSM anser att SKB, genom den betydande omfattningen av studier och experiment som har utförts och som redovisas i det kompletterande underlaget, har fördjupat förståelsen för lokala korrosionsangrepp i sulfidmiljö och deras betydelse i slutförvarsmiljön. SKB har, baserat på sitt utökade experimentella underlag, definierat trovärdiga gränsvärden avseende tillförsel av sulfid samt sulfidhalt i närheten av kapselns yta under vilka gropkorrosion inte förväntas kunna ske.

SKB visar, med beaktande av bentonitlerans och bergets egenskaper att en tillräcklig stor tillförsel av sulfid för att gropkorrosion ska kunna äga rum är svår att erhålla i ett KBS-3-slutförvar vid Forsmark. Särskilt fokus har lagts på att analysera möjligheter för att gasformig vätesulfid skulle transporteras till kapselytan under bentonitbuffertens initiala omättade fas. SSM konstaterar att SKB genom sitt utökade experimentella underlag har tillfört information som inte tidigare funnits tillgänglig avseende potentiella korrosionsangrepp under denna buffertfas. SSM bedömer att SKB har visat att de sulfidflöden som förväntas i slutförvarsmiljön under denna tidsperiod kan begränsas så att de vida underskrider det gränsvärde för sulfidflöde som bolaget definierar för gropkorrosion.

I det kompletterande underlaget bedömer SKB att risken för en form av gropkorrosion under senare faser i slutförvarets utveckling inte helt kan uteslutas. SKB har därför integrerat ett beräkningsfall i huvudscenariot för slutförvarets utveckling som beaktar effekten av gropkorrosion, där processen antas inträffa i samband med bufferterosion.



SSM konstaterar att även ett explicit beaktande av gropkorrosion inte innebär någon signifikant ökning av de beräknade maximala radiologiska konsekvenserna.

Spänningskorrosion av koppar i sulfidmiljö

Spänningskorrosion är en lokal korrosionsform som är förhållandevis komplex då den innefattar en samverkan mellan kemiska och mekaniska förhållanden. Generellt fordras en bildning av en passiverande film på metallytan i kombination med att dragspänningar föreligger i metallen. SSM konstaterar att inget tillgängligt experimentellt underlag föreligger, varken från studier utförda i SKB:s regi eller från andra forskare, som visar på att sprickbildning av koppar som följd av spänningskorrosion förekommer vid sulfidhalter i närheten av de som förväntas i slutförvarsmiljön vid Forsmark. SSM anser att SKB:s kompletterande insatser, vilket innefattar studier för att förstå processens mekanismer, kapselns spänningstillstånd samt analys av materietransport av sulfid i deponeringshålen har ökat tilltron till att risken är mycket liten för att processen ska initieras och propageras vid låga sulfidhalter och låga sulfidflöden motsvarande de som förväntas i slutförvarsmiljön.

SSM konstaterar att SKB har utfört ett betydande antal nya studier för att belysa förutsättningarna för att en passiverande film ska kunna bildas, i första hand för att studera gropkorrosion men resultaten har även bäring på förutsättningarna för att de flesta former av spänningskorrosion ska kunna initieras. Dessa resultat visar generellt på att passiverande sulfidfilmer inte bildas vid låga sulfidhalter och låga sulfidflöden. SKB har även utfört beräkningar för att kartlägga kapselns spänningstillstånd och identifiera positioner i höljet med dragspänningar, vilket är en annan förutsättning för att spänningskorrosion ska kunna initieras.

Buffertens status har en betydande påverkan på materieöverföring av sulfid, vilket är av relevans för bedömning av spänningskorrosion eftersom tillförseln av sulfid avgör om en spänningskorrosionsspricka inte bara kan initieras utan även propageras i en utsträckning så att kopparhöljets integritet påverkas. SKB:s komplettering visar på ett mer utförligt och väl underbyggt sätt än tidigare hur förhållanden i ett förslutet slutförvar begränsar sulfid-tillförsel under omättade buffertförhållanden. Under mättade buffertförhållanden konstaterar SSM att tillförseln av sulfid till kapselytan från omgivande grundvatten är mycket begränsad vilket medför att SSM bedömer att risken för att spänningskorrosion är mycket liten under denna tidsperiod. Avseende eroderade deponeringshål instämmer SSM med SKB i att dessa förhållanden är relevanta för gropkorrosion (se ovan) snarare än spänningskorrosion, bland annat eftersom buffertens svälltryck eliminerats och eftersom fallet inträffar mycket lång tid efter pålastningen av kapseln.

SSM:s övergripande slutsats är att SKB:s insatser för att ytterligare belysa processens förutsättningar i sulfidmiljö har skapat en än större tilltro till att det råder mycket liten sannolikhet för att sprickor uppstår som kan tillskrivas spänningskorrosion vid de låga sulfidhalter som förväntas i slutförvarsmiljö. Processens komplexitet medför dock att det finns ytterligare frågor som kan utforskas för att belysa möjligheterna att vidare optimera slutförvarets detaljkonstruktion.

Väteförspädning

Beträffande väteförspädning har SKB sammanfattat den tillgängliga informationen om vätets inverkan på koppars materialegenskaper i slutförvaret. Redovisningen omfattar både det initiala innehållet av syre respektive väte i kapselns kopparhölje efter tillverkningen samt tänkbara mekanismer för vätetillförsel i slutförvarsmiljön och deras betydelse.



SKB har i samarbete med Posiva i Finland under de senaste åren på ett betydande sätt vidareutvecklat svetsmetoden för en kapsel tillverkad med OFP-koppar för att undvika och minimera förekomst av oxidföreningar. SSM bedömer att detta arbete visar att SKB i samband med drift av inkapslingsanläggningen kommer att kunna åstadkomma förslutningssvetsar med tillräckligt låg syrehalt med syftet att eliminera risken för s.k. vätesjuka på grund av oxidföreningar. SKB har även genomfört nya laboratorieundersökningar för att utvärdera andra effekter av artificiell väteladdning av koppar, förutom vätesjuka kopplat till oxidföreningar, så som ytlig sprickbildning och förändrade krypegenskaper vid förhöjda vätehalter.

SSM bedömer att sulfidkorrosion av koppar är mest relevant som tänkbar drivkraft för bildning av väte och väteladdning av koppar i ett slutförvar, men att effekten oavsett detta skulle vara mycket liten för det stora flertalet kopparkapslar som en följd av långsamma grundvattenflöden och den generellt begränsade tillgången på sulfidjoner i berget. Den långt mer begränsade tänkbara inträngningen av väte i slutförvarsmiljö i jämförelse med de experimentella studier där fenomenet har studerats medför lägre halter av väte i koppar och en mindre potentiell påverkan på koppars materialegenskaper än vad som observerats i experimenten. Lokal tillförsel av väte i korngränser i samband med lokala korrosionsprocesser skulle kunna ha en betydelse men SSM bedömer att sannolikheten för ett sådant fall är låg eftersom tillgängliga sulfidjoner som tillförs utifrån förväntas kunna konsumeras över hela kapselytan.

SSM anser att ytterligare experimentella studier med hög känslighet och detektionsförmåga som simulerar väteladdning av koppar i slutförvarsmiljö, samt inverkan av väteladdning i perspektivet spänningskorrosion och krypdeformation av kopparhöljet är berättigade fram till en kommande ansökan om driftstart. Syftet bör vara att underbygga krav på kapselns detaljutformning. Relevanta faktorer avser exempelvis inverkan av dragspänningarnas omfattning och placering i samband med uppbyggnaden av buffertens svälltryck respektive av definition av deformationer av kopparhöljet med avseende på placering och magnitud som inte äventyrar kapselns integritet.

Strålningens inverkan på gropkorrosion, spänningskorrosion och väteförsprödning

I SKB:s kompletterande redovisning framkommer att bolaget har låtit utföra ytterligare undersökningar och beräkningar med bäring på frågan om strålningens inverkan på korrosion och materialegenskaper. Den uppdaterade bilden av strålningskemiska processer, med hänsyn tagen till den begränsade tidsperioden under vilken förhöjda gamma-doser varar, visar att bildning av oxidanter på ett obetydligt sätt bidrar till allmän-, grop- och spänningskorrosion samt att väteförsprödning till följd av väteladdning förväntas vara mycket liten jämfört med det som kan uppstå från den betydligt mer uthålliga sulfidkorrosionen.

SSM konstaterar att SKB redovisar nytt underlag även för den direkta effekten av neutron- och gammastrålning inuti kapselmateriel (både koppar och gjutjärn), en fråga som inte specifikt nämns i mark- och miljödomstolens fem punkter. Myndigheten bedömer att de nya beräkningarna och försöken på ett trovärdigt sätt bekräftar att eventuella strålnings-inducerade skador i kapselmateriel inte har någon mätbar betydelse för materialets mekaniska egenskaper, elektriska ledningsförmåga eller kemiska sammansättning.



Strålsäkerhetsbetydelse och konsekvensberäkningar

SKB:s analys av risker i samband med kapselbrott i SR-Site och även i den senaste redovisningen illustrerar vikten av ett helhetsperspektiv när det gäller att beakta det mycket begränsade antal deponeringshål där de övriga två barriärerna förutom kapseln (bufferten och berget) kan förväntas bli försvagade eller där deras funktioner helt har fallerat som resultat av den långsiktiga utvecklingen av slutförvarssystemet. Detta kräver antingen en kombination av buffeterosion och korrosion i deponeringshål med förhållandevis höga grundvattenflöden alternativt mekaniska kapselskador på grund av jordskalvsrisk i deponeringshål som korsas av stora strukturer i berggrunden. SSM instämmer med SKB:s argument att de processer som skulle kunna påverka kapselns beständighet har visats ha ringa konsekvenser, mot bakgrund av kapselns utformning, så länge de övriga barriärerna uppfyller de säkerhetsfunktioner som tilldelas dem.

SSM anser det motiverat att beakta gropkorrosion i riskberäkningarna givet den argumentation som SKB för avseende tröskelvärden på sulfidflöden över vilka initiering av en lokal korrosionsprocess inte helt kan uteslutas. Detta kan under ett visst tidsintervall i förvarets senare utveckling (efter flera tiotusentals år) ge en något snabbare ökning av den potentiella risken, men har ingen betydande inverkan på förvarets beräknade omgivningspåverkan. SSM har upprepat en delmängd av SKB:s beräkningar och bedömer SKB:s tillvägagångssätt i samband med den utökade analysen av kravuppfyllelse för riskkriteriet som rimligt.

SSM anser att SKB:s redovisning av beräkningsfall som innefattar tänkta eller mycket pessimistiska antaganden om tidiga kapselskador är betydelsefull. SSM menar att konsekvensanalyser som påvisar begränsning av omgivningskonsekvenser även vid tänkta bortfall av säkerhetsfunktioner och enskilda barriärer ger tilltro till att slutförvarssystemet som helhet är robust. Resultat som presenteras i SKB:s kompletterande redovisning är beroende av användningen av ett mindre pessimistiskt sätt att modellera biosfären jämfört med den tidigare säkerhetsanalysen SR-Site. Detta tillvägagångssätt kan vara motiverat men utan en mer djupgående beskrivning av de antaganden som ligger bakom biosfärmodellen avstår SSM från att kommentera de specifika dosvärden som har beräknats. SSM har dock under sin beredning av SKB:s ansökan enligt kärntekniklagen låtit utföra en rad studier för att verifiera SKB:s konsekvensanalys. Bland annat har SSM:s externa experter analyserat konsekvenserna av ett tänkt bortfall av inneslutningsfunktionen hos samtliga kapslar i ett KBS-3-slutförvar vid Forsmark under olika tidsintervall. Dessa beräkningsfall använder SKB:s ursprungliga, mer pessimistiska biosfärmodeller och ger, från SSM:s utgångspunkt, tilltro till att den maximala årliga individdosen för den grupp som utsätts för den största risken inte överstiger ett värde som är i nivå med naturliga bakgrundsstrålningen, dvs. för ett scenario i vilket kapselns långsiktiga beständighet fullständigt har missbedömts.



Innehållsförteckning

Sammanfattning	1
1. Bakgrund	9
2. Granskningens genomförande	9
2.1 Omfattning och granskningsstrategi	9
2.2 Expertstöd	10
2.3 Rapportstruktur	12
3. Slutförvarsmiljön	12
3.1 SSM:s tidigare slutsatser	12
3.2 SKB:s tillkommande information	14
3.3 SSM:s uppdaterade bedömning	16
4. Saunaeffekten	18
4.1 SSM:s tidigare slutsatser	18
4.2 SKB:s tillkommande information	18
4.3 Synpunkter från SSM:s externa experter	22
Szakálos Materials Science AB	22
Galson Sciences Ltd	23
4.4 SSM:s uppdaterade bedömning	23
5. Korrosion i rent syrgasfritt vatten	25
5.1 SSM:s tidigare slutsatser	25
5.2 SKB:s tillkommande information	27
5.3 Synpunkter från SSM:s externa experter	29
Szakálos Materials Science AB	29
Galson Sciences Ltd	29
5.4 SSM:s uppdaterade bedömning	30
6. Gropkorrosion	31
6.1 SSM:s tidigare slutsatser	31
6.2 SKB:s tillkommande information	32
6.3 Synpunkter från SSM:s externa experter	36
Szakálos Materials Science AB	36
Galson Sciences Ltd	36
6.4 SSM:s uppdaterade bedömning	37
7. Spänningskorrosion	41
7.1 SSM:s tidigare slutsatser	41
7.2 SKB:s tillkommande information	42
7.3 Synpunkter från SSM:s externa experter	45
Szakálos Materials Science AB	45
Galson Sciences Ltd	45
7.4 SSM:s uppdaterade bedömning	46



8.	Väteförspredning	49
8.1	SSM:s tidigare slutsatser	49
8.2	SKB:s tillkommande information	50
8.3	Synpunkter från SSM:s externa experter	51
	Szakálos Materials Science AB	51
	Galson Sciences Ltd	52
8.4	SSM:s uppdaterade bedömning	52
9.	Strålningsinducerad korrosion och förspredning	54
9.1	SSM:s tidigare slutsatser	54
9.2	SKB:s tillkommande information	55
9.3	Synpunkter från SSM:s externa experter	59
	Szakálos Materials Science AB	59
	Galson Sciences Ltd	59
9.4	SSM:s uppdaterade bedömning	59
10.	Säkerhetsbetydelse och konsekvensberäkningar	61
10.1	SSM:s tidigare slutsatser	61
10.2	SKB:s tillkommande information	63
10.3	Synpunkter från SSM:s externa experter	65
	Quintessa Limited	65
	Southwest Research Institute	66
	Szakálos Materials Science AB	67
10.4	SSM:s uppdaterade bedömning	68
11.	Referenser	70

1. Bakgrund

Den 16 mars 2011 lämnade Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB) in ansökningar om tillstånd att få bygga en inkapslingsanläggning och ett slutförvar för använt kärnbränsle. Efter en omfattande granskning och flera kompletteringar av underlaget tillstyrkte Strålsäkerhetsmyndigheten (SSM) den 23 januari 2018 SKB:s ansökan enligt lagen (1984:3) om kärnteknisk verksamhet (kärntekniklagen) och överlämnade ärendet till regeringen. Samma dag lämnade även Mark- och miljödomstolen vid Nacka tingsrätt sitt yttrande till regeringen, med rekommendationen att ytterligare underlag behövs, särskilt avseende beständighet hos den kapsel som avses innesluta det använda kärnbränslet, för att regeringen ska kunna fatta beslut om tillåtlighet enligt miljöbalken.

I juni 2018 efterfrågade regeringen komplettering från SKB i miljöbalksärendet med hänvisning till de frågor som lyftes av mark- och miljödomstolen. Samtidigt gavs SKB tillfälle att yttra sig även i ärendet avseende prövning enligt kärntekniklagen. I mars 2019 lämnade SKB till regeringen kompletterande yttranden i de båda ärendena. Regeringen skickade därefter kompletteringarna på remiss.

Den större delen av SKB:s kompletterande material i de båda ärendena består av ett bemötande av fem huvudfrågor som togs upp i mark- och miljödomstolens yttrande till regeringen den 23 januari 2018. Samtliga frågor avser processer som kan påverka kapselns beständighet, och därmed dess roll i förhållande till slutförvarets skyddsförmåga på sikt. SKB:s svar på dessa frågor presenteras i en teknisk rapport på engelska (SKB TR-19-15) samt en kortare sammanfattning på svenska (SKBdoc 1718509). Dessa två dokument bygger på analys av resultaten från SKB:s senaste forskningsinsatser (dvs. arbete som avslutats och avrapporterats under perioden efter SSM:s respektive mark- och miljödomstolens beredning av tillståndsansökningarna) samt övriga forskningsresultat från studier som har utförts på uppdrag av SKB såväl som av andra aktörer. Som en del av kompletteringen har SKB även genomfört en delvis uppdaterad konsekvensanalys för strålsäkerhet efter slutförvarets slutliga förslutning, inklusive några nya analyser med syfte att ytterligare illustrera slutförvarssystemets robusthet mot hypotetiska initiala kapselfel.

Föreliggande granskningsrapport har tagits fram av SSM, i sin egenskap av remissinstans till regeringen, som stöd till myndighetens yttranden. Granskningen utgår från det material som redovisas i rapporten SKB TR-19-15 samt tillhörande underlagsrapporter. Syftet med granskningen har varit att bedöma huruvida SKB på ett tillfredsställande sätt har utrett och svarat på domstolens specifika frågor om kapselns integritet mot eventuella degraderings- och korrosionsprocesser. Granskningens fokus är uteslutande på dessa frågor och täcker därmed inte övriga delar av SKB:s kompletterande yttranden.

2. Granskningens genomförande

2.1 Omfattning och granskningsstrategi

SSM har granskat SKB:s kompletterande redovisning med avseende på bolagets presentation och tolkning av de senast genomförda vetenskapliga studierna med fokus på de osäkerheter som mark- och miljödomstolen identifierade i sitt yttrande, samt med hänsyn till forskningsresultatets betydelse för bedömning av slutförvarets strålsäkerhet efter förslutning. SSM:s roll som remissinstans till regeringen avseende SKB:s kompletteringar är att komma fram till en egen bedömning av det material som inlämnats till departementet och således inte att föra en separat detaljerad dialog med SKB kring tekniska frågor.

SKB presenterade för myndigheten den 14 maj 2019 en överblick över innehållet i det kompletterande materialet. Huvudsyftet med presentationen var att SSM skulle få en sammanfattning av det nya underlag som SKB hade tagit fram och de slutsatser som SKB själv dragit gällande mark- och miljödomstolens frågor. SSM lämnade inga kommentarer på det som presenterades vid mötet utöver några mindre frågor i klargörande syfte. Under granskningens genomförande begränsades kommunikationer med SKB till att be om kopior av underlagsrapporter. Inga ytterligare kompletteringar begärdes.

SKB:s redovisning innefattar specifika kapitel som är riktade mot de fem frågor som lyftes av mark- och miljödomstolen beträffande kopparkapselns integritet, nämligen:

- a) Korrosion på grund av reaktion i syrgasfritt vatten.
- b) Gropkorrosion på grund av reaktion med sulfid, inklusive saunaeffektens inverkan på gropkorrosion.
- c) Spänningskorrosion på grund av reaktion med sulfid, inklusive saunaeffektens inverkan på gropkorrosion.
- d) Väteförspredning.
- e) Radioaktiv strålningens inverkan på gropkorrosion, spänningskorrosion och väteförspredning.

Som bakgrund till sin hantering av dessa frågor anger SKB även en beskrivning av kunskapsläget avseende slutförvarsmiljön och dess utveckling efter slutförvarets förslutning, med betoning på vissa aspekter som har särskild betydelse för de identifierade processernas inverkan på kopparkapseln. Även den s.k. saunaeffekten, som kan betraktas som ett särskilt exempel av slutförvarsmiljöns utveckling, behandlas i enskilt kapitel. Slutligen, efter redovisning avseende de fem kapselfrågorna, för SKB en integrerad diskussion av bolagets syn på konsekvenser för strålsäkerhet efter slutförvarets förslutning.

SSM:s granskningsstrategi utgår från förutsättningen att en värdering av argument för och emot en viss process betydelse för slutförvarets skyddsförmåga behöver sträcka sig bortom frågan om huruvida processen finns överhuvudtaget eller om den kan inträffa i slutförvarsmiljön. Bland de övriga frågor som SSM tillämpar i sin granskning och utvärdering av SKB:s underlag finns följande:

- Har processen en betydande påverkan eller kan den försummas helt?
- Vilka faktorer i slutförvarsmiljön påverkar processen?
- Kan den själv eller i samband med andra processer orsaka kapselbrott eller skador på andra barriärer i slutförvarssystemet?
- Hur många deponeringshålspositioner kan påverkas och vilken tidshorisont är aktuell?
- Vad har processen för betydelse för uppfyllelse av SSM:s föreskriftskrav, inklusive riskkriteriet men även krav på optimering av detaljkonstruktion vid framtagande av metoden på industriell skala?

SSM:s bedömningar av SKB:s kompletterande redovisning görs och presenteras i denna granskningsrapport enligt strukturen i SKB:s rapport (SKB TR-19-15).

2.2 Expertstöd

I denna granskning har SSM inhämtat externt expertstöd i frågor om korrosionsprocesser och konsekvensanalys. Experternas uppdrag har varit att stödja myndigheten genom att analysera och kommentera SKB:s underlag utifrån de av mark- och miljödomstolen identifierade kompletteringsbehoven.

Sammantaget fyra olika konsultföretag har anlåtts av SSM i samband med denna granskning. Upphandlingsprocessen utgick från att endast organisationer med tidigare erfarenhet av att stödja myndigheten i sin granskning av SKB:s ansökningar skulle ha tillräcklig kunskap av bakgrunden till de aktuella frågorna för att kunna bidra effektivt inom den förhållandevisa korta tidsperioden som gällde för regeringens remiss. I den lista som följer ges en sammanfattande beskrivning av de uppdrag som har utförts av respektive organisationer:

- Szakálos Materials Science AB (SE). Uppdraget består av att granska SKB:s kompletterande material avseende inverkan av korrosionsprocesser och mekanismer på koppar. Domstolens fem frågor samt specifika dokument som identifieras av SSM ska explicit beaktas. Uppdragstagaren ska överväga om dessa processers och mekanismers omfattning i slutförvarsmiljön har beskrivits och hanterats korrekt i SKB:s redovisning av kapselns beständighet. Allmänna uttalanden eller bedömningar utan stöd angående SKB:s program, SKB:s säkerhetsbedömning och underlagsmaterial bör undvikas. Ansvariga konsulter är P. Szakálos och C. Leygraf (avtal **SSM2019-2484**).
- Galson Sciences Ltd (UK). Uppdraget består av att granska SKB:s kompletterande material avseende inverkan av korrosionsprocesser och mekanismer på koppar. Domstolens fem frågor samt specifika dokument som identifieras av SSM ska explicit beaktas. Uppdragstagaren ska överväga om dessa processers och mekanismers omfattning i slutförvarsmiljön har beskrivits och hanterats korrekt i SKB:s redovisning av kapselns beständighet. Allmänna uttalanden eller bedömningar utan stöd angående SKB:s program, SKB:s säkerhetsbedömning och underlagsmaterial bör undvikas. Ansvariga konsulter är T.W. Hicks och J.R. Scully (avtal **SSM2019-2486**).
- Southwest Research Institute (USA). Uppdraget består av att analysera och granska SKB:s redovisning av beräkningsfall och radiologiska konsekvenser i det kompletterande materialet. Konsulten förväntas genomföra egen modellering av radionuklidtransport och radiologiska konsekvenser för ett KBS-3-slutförvar vid Forsmark. Modelleringen ska ge en oberoende verifiering och granskning av robusthet hos resultat som presenteras av SKB. Ansvarig konsult är O. Pensado, med stöd av S. Stothoff (avtal **SSM2019-2487**).
- Quintessa Limited (UK). Uppdraget består av att granska SKB:s metoder för biosfärsmodellering. Oberoende modellering ska användas för att bedöma och verifiera eventuella ändringar till de modeller och parametervärden som användes i tidigare konsekvensanalyser. Ansvariga konsulter är R. Walke och R. Newson (avtal **SSM2019-6262**).

Vid tidpunkten då denna rapport färdigställdes inför SSM:s yttranden till regeringen över SKB:s kompletteringar hade tre av dessa rapporter diarieförts i sina slutliga versioner (Szakálos Materials Science AB, Galson Sciences Ltd., Quintessa Limited). För den sista har en preliminär version lämnats in till SSM för granskning (Southwest Research Institute). Endast mindre justeringar förväntas göras i den sista rapporten som en följd av ett fåtal kommentarer från SSM. Där hänvisning görs till experternas resultat och synpunkter inom denna rapport utgår SSM från innehållet i de senast tillgängliga versionerna.

SSM konstaterar att de externa experternas granskningsresultat inte har varit samstämmiga, i synnerhet när det gäller bedömning av SKB:s redovisning av korrosionsprocesser. Myndigheten har, som alltid i sitt granskningsarbete, baserat sina egna

slutsatser och bedömningar på den fullständiga omfattningen av tillgänglig information, och har värderat såväl SKB:s material som de externa experternas ställningstaganden, vilket finns beskrivet i denna granskningsrapport.

2.3 Rapportstruktur

Som noterats ovan återspeglar den övergripande strukturen i denna rapport upplägget i SKB:s kompletterande redovisning (SKB TR-19-15). För varje granskningsområde presenteras resultat från granskningen under fyra rubriker:

- SSM:s tidigare slutsatser. I samband med sitt tidigare arbete som beredande myndighet detaljgranskade SSM till ansökan tillhörande underlag, inklusive kompletterande tekniska redovisningar, avseende de frågor som togs upp av mark- och miljödomstolen. Här sammanfattas SSM:s publicerade bedömningar från januari 2018, baserade på den information som var tillgänglig under myndighetens beredning av SKB:s ansökan enligt kärntekniklagen.
- SKB:s tillkommande information. Här sammanfattas de kompletterande experiment och analys som redovisas av SKB i sin tekniska rapport (SKB TR-19-15) med tillhörande underlag. Där det har bedömts relevant innefattar SKB:s redovisning även nya resultat från studier som utfördes utanför SKB:s regi.
- Synpunkter från SSM:s externa experter. Här lyfter SSM betydande resultat samt övergripande slutsatser från konsulternas preliminära rapporter avseende SKB:s kompletterande material. Denna rubrik finns inte med i avsnittet om slutförvarsmiljön.
- SSM:s uppdaterade bedömning. Här beskriver SSM sin bedömning av SKB:s tillkommande information och dess betydelse mot bakgrund av tidigare slutsatser gällande de frågor som lyftes av mark- och miljödomstolen. Där det är relevant kommenterar myndigheten även den eventuella omfattningen av fortsatt arbete i området och dess relevans till frågor så som optimering av detaljkonstruktion vid framtagande av metoden på industriell skala.

SSM:s samlade bedömning av granskningsresultaten och deras betydelse för SSM:s övergripande ställningstagande i de frågor som lyftes av mark- och miljödomstolen, samt säkerhetsbetydelsen för ett KBS-3-slutförvar vid Forsmarksplatsen, anges i rapportens sammanfattning.

3. Slutförvarsmiljön

3.1 SSM:s tidigare slutsatser

Följande aspekter av slutförvarets långsiktiga utveckling bedömdes av SSM att vara av särskild betydelse för korrosion av kopparkapslar:

- Temperaturutveckling i slutförvaret och i synnerhet i kopparkapslarnas närhet
- Grundvattenflöden i berget under återmättnadsförloppet, samt i berget efter full återmättnad av bufferten.
- Återmättnadsförloppet som delvis styrs av grundvattenflöden i berget under omättade förhållanden, men även av lerans hydrauliska egenskaper.
- Den grundvattenkemiska utvecklingen i synnerhet med avseende på grundvattnets salthalt och innehåll av sulfider.

- Mikrobiell sulfatreduktion som genererar sulfider i berget och potentiellt även i bufferten och återfyllnaden.
- Diffusiv transport av sulfider och andra grundvattenkomponenter i bufferten och i kopparkapslarnas direkta närhet.

En tillförlitlig analys av dessa aspekter av slutförvarets långsiktiga utveckling kräver tillgång till omfattande mätningar av bergets egenskaper på förvarsdjup vid den utvalda Forsmarksplatsen. SSM konstaterade att SKB:s platsundersökningsprogram har varit omfattande och har hållit god standard. De omfattande resultaten som finns tillgängliga (SKB TR-08-05) ansågs överlag vara tillförlitliga och visa på att Forsmarksplatsen har lämpliga egenskaper för att så långt som möjligt isolera det använda kärnbränslet. Den förhållandevis konsekventa bild av förhållanden på olika djup i berggrunden vid Forsmark som gradvis växte fram under platsundersökningsprogrammet bedömdes medföra en hög tilltro till den platsbeskrivande modellering (SKB TR-08-05) som utgör en utgångspunkt för SKB:s säkerhetsanalys SR-Site (SKB TR-11-01).

Beträffande modellering av grundvattenflöden och termisk utveckling ansåg SSM att SKB:s utredningar var väl genomförda och baserade på ett omfattande dataunderlag. Långsiktig temperaturutveckling kan förutsägas med tillräcklig precision baserat på mätningar av bergets och de tekniska barriärernas termiska egenskaper. Flödena på förvarsdjup begränsas av den ringa förekomsten av vattenförande sprickor på förvarsdjup, vilket från korrosionssynpunkt innebär att tillförseln av korroderande ämnen överlag blir mycket låg, vilket är en fördel ur perspektivet att så långt som möjligt minimera korrosionsangrepp. De låga flödena innebär dock att ett stort antal deponeringshål förväntas få relativt långa återmättnadstider, vilket innebär att ytterligare analyser av betydelsen av omättade förhållanden ansågs vara betydelsefulla. Det påpekades att vid en framtida konstruktion av ett slutförvar behöver ytterligare information samlas in om spricknätverkets geometri och hydrauliska egenskaper, samt om det intakta bergets hydrauliska egenskaper.

Beträffande grundvattenkemi är det främst sulfidhalter, redoxförhållanden och salthalter som har betydelse för de tekniska barriärernas beständighet. Grundvattnets innehåll av sulfid orsakar sulfidkorrosion på kopparkapslarna och salthalten har betydelse för en eventuell framtida erosion av bufferten, vilket indirekt kan påverka omfattningen av kapselkorrosion. SSM ansåg att SKB:s analys av den grundvattenkemiska utvecklingen är väl motiverad och är baserad på ett godtagbart dataunderlag. Trots att SKB under en tidsperiod av flera årtionden har utvecklat en långtgående förståelse för geokemiska processer som påverkar de viktigaste grundvattenkemiska variablerna finns dock behov av en fortsatt utveckling av grundvattenkemiska modeller och insamling av ytterligare data från grundvattenprovtagning under en kommande konstruktionsfas.

En avvikelse från stabil långsiktig förekomst av reducerande kemiska betingelser på förvarsdjup kunde enligt SSM:s bedömning endast bero på en risk för infiltration av syresatta glaciala smältvatten långt in i framtiden i ett fåtal deponeringshål med de högsta grundvattenflödena. SKB:s diskreta fördelning av sulfidhalter som låg till grund för konsekvensanalysen i SR-Site befanns vara baserad på utförliga mätningar av hög kvalitet och en grundlig bearbetning av primärdata. Antagandet att uppmätta sulfidhalter förblir konstanta under hela säkerhetsanalysens tidsperiod är visserligen mycket förenklat men bedömdes sannolikt vara pessimistiskt eftersom kapselkorrosionshastigheten också då blir konstant och relativt hög för en delmängd av deponeringshålen med högst sulfidexponering. Fördelning av salthalter i Forsmarks berggrund ansågs vara väl känd och den förhållandevis höga nivån innebär att det inte föreligger någon risk för kemisk bufferterosion annat än på mycket lång sikt. SKB:s modellering av den långsiktiga salthaltsutveckling ansågs vara delvis ofullständigt motiverad, men detta hade dock ingen

avgörande betydelse för SSM:s bedömning av konsekvensanalysen eftersom modellering av utspädningsförloppet var mycket konservativt med avseende på kemiska processer som tillför grundvattnet lösta ämnen. Överlag ansågs Forsmarksplatsens grundvattensammansättning på försvarsdjup vara välkänd, bidra till de tekniska barriärernas beständighet och därmed vara lämplig för ett KBS-3 förvar.

Beträffande mikrobiella processer och i synnerhet mikrobiell sulfatreduktion konstaterade SSM att SKB har genomfört omfattande studier av processen i såväl en mättad buffert med fullt utvecklat svälltryck, som i berggrunden. Det ansågs av SSM vara väl belagt att mikrobiell sulfatreduktion är inhiberad eller mycket låg när ett tillräckligt högt svälltryck i bufferten har etablerats. Situationen ansågs dock vara mer svårbedömd för en omättad buffert. Detta är betydelsefullt eftersom långa återmättnadstider förväntas förekomma för ett större antal deponeringshål i den sprickfattiga Forsmarksberggrunden. Därmed kan således omättade förhållanden i direkt anslutning till kopparkapslar bli bestående en längre tid.

Det var två fall med koppling till mikrobiell aktivitet som särskilt diskuterades i SSM:s granskningsrapport (SSM, 2018). Den ena var frågan om huruvida en biofilm bestående av sulfatreducerande bakterier kan bildas på kopparkapslarnas ytor i en omättad buffert vilket skulle kunna innebära en snabbare tillförsel av sulfid i jämförelse med tillförseln via grundvatten och diffusion genom bufferten. Den andra frågan var om diffusion av vätesulfid i gasfasen i det omättade tillståndet kan medföra en snabbare tillförsel av sulfid till kopparkapslarna i jämförelse med diffusion i vattenfasen. En sådan tillförsel skulle kunna vara möjlig om mikrobiell sulfatreduktion äger rum i återfyllnaden för vilken ett funktionskrav kopplat till mikrobiell aktivitet saknas. Signifikansen för en sådan potentiellt snabbare tillförsel av sulfid i gasfasen förstärktes också efter att SKB som en komplettering till ansökan redovisade ett beräkningsfall med diffusion av gasformig vätesulfid till en kopparkapsel i en omättad buffert (SKBdoc 1437441), där vätesulfiden härrörde från återfyllnaden. Den ackumulerade korrosionen var i detta beräkningsfall 2 mm efter en tid på 2000 år med omättade förhållanden, vilket motsvarar en årlig korrosionshastighet på cirka 600 nm.

SSM konstaterade som en av sina viktigaste slutsatser under granskningen av SR-Site att SKB i kommande steg att sitt program bör fördjupa och förtydliga analysen av den omättade fasen. Detta innefattar ytterligare insatser för att kvantifiera återmättnadstider för olika delar av förvaret, förhållanden i slutförvaret som indirekt påverkas av återmättnadsförloppet samt för att förtydliga den säkerhetsmässiga betydelsen av kapselprocesser som skulle kunna påverkas av buffertens mättnadsgrad. Av de processer som mark- och miljödomstolen tar upp i sitt yttrande kan särskilt nämnas risken för gropkorrosion och spänningskorrosion. Båda dessa processer beskrivs dock i andra delar av denna granskningsrapport (se avsnitt 6 och 7).

3.2 SKB:s tillkommande information

I SKB:s sammanfattande rapport (SKB TR-19-15) beskrivs beträffande utvecklingen av slutförvarsmiljön i huvudsak ett antal nya studier för att utröna tillförsel av sulfid till en kopparkapsels yta för olika tillstånd i bufferten (omättat, mättat och eroderat tillstånd). SKB har också sammanställt ett antal utredningar om den omättade fasens karaktär (SKB TR-17-15). Detta rör sig dock främst om information som togs fram för att besvara SSM:s begäran av kompletteringar under tillståndsprövningsfasen, närmare bestämt information om frågor som rör fördelningen av återmättnadstider för deponeringshålspositioner i Forsmarksberget som SKB planerar att använda, konceptuella osäkerheter vid modellering av återmättnadsförloppet i bufferten, uppfyllelse av buffertens säkerhetsfunktioner för en bara delvis mättad buffert, samt möjligheter att artificiellt återmätta bufferten. SKB

bekräftar i SKB TR-19-15 den tidigare slutsatsen att en större andel av deponeringshålen kommer att ha en längre återmättnadstid än 1000 år under förutsättningen att den intakta bergmatrisen har en hydraulisk konduktivitet på 10^{-13} m/s. SKB redovisar även att den termiska modelleringen visar att ingen kapsel kommer att ha en högre temperatur än 95°C (ett tiotal år efter deponeringen). Temperaturen sjunker sedan till strax under 40°C 1000 år senare. SKB beskriver vidare att buffererosion i en utsträckning som möjliggör advektion kan ske i cirka 100 av totalt 6000 deponeringshål efter mer än 10 000-tals år. De två sistnämnda frågorna utgör viktiga randvillkor för analysen av kopparkapslarnas korrosionsförlopp, men ingen ny information har i detta avseende framkommit i den kompletterande redovisningen.

SKB beskriver kortfattat förutsättningar för att tillförsel av sulfid till kopparkapslarna kan vara mer betydande under en omättad period i jämfört med den mättade (SKB TR-19-15). Sulfid kan bildas via mikrobiell sulfatreduktion som drivs av konsumtion av vätagas eller olika former av organiskt material. Sulfatreducerande bakterier är endast aktiva i frånvaro av syre, men kan ändå överleva under lång tid i en oxiderande miljö. De kan också överleva utan vatten under längre perioder. Vid låga vattenaktiviteter som i en buffert som ännu inte blivit vattenmättad minskas dock, och till slut elimineras mikrobiell tillväxt, vilket förväntas ske vid vattenaktiviteter lägre än 0,9-0,97. Det sistnämnda gäller också för de högre temperaturer som inledningsvis förekommer nära en kapselyta. För en snabbare diffusion av sulfid under den omättade fasen i jämförelse med den mättade krävs dels en avgasning av upplöst sulfid, dels att sulfidmikrobiell sulfatreduktion äger rum i exempelvis återfyllnaden. SKB beskriver förutsättningar och omfattning av en bildning av gasformig sulfid ($H_2S(g)$), vilket beror på pH, protolysjämvikten för vätesulfid samt Henryslag-konstanten.

SKB:s experimentella studier för att ytterligare belysa ovanstående frågor har bestått av två undersökningar av gasfassammansättning för tillslutna stålammare med bentonit (ett med buffertblock och en central värmare av koppar för att simulera en kopparkapsel, samt ett med bara bentonitpellets), samt ett antal provrörsundersökningar utformade för att kunna detektera mikrobiell sulfatreduktion och bildning av vätesulfidgas under olika förhållanden. SKB har dessutom genomfört en teoretisk studie av diffusiv transport av gasformig sulfid i ett omättat deponeringshål.

I de förstnämnda mer storskaliga experimenten utformade som en skalmodell av KBS-3 konstaterade SKB att syrehalten i gasfas sjunker snabbt (inom loppet av ett par månader) till någon procent för kammaren med kopparvärmare. I den andra kammaren med bara bentonitpellets sker bara en marginell minskning av syrehalten under loppet av närmare ett år. I den första kammaren håller värmaren en temperatur på 80°C medan blocken har en nära konstant temperatur på 50°C. I den andra kammaren upprätthölls en konstant temperatur på runt 40°C. Den relativa luftfuktigheten (RH) i försöket med kopparvärmare stabiliserades efter en tid på 63 %. SKB tolkar dessa resultat som belägg för att en snabb förbrukning av syre inledningsvis kommer ske som ett resultat av kopparkorrosion under oxiderande betingelser. I inget av dessa båda försök har någon bildning av gasformig vätesulfid kunnat detekteras. Detta ansågs vara en indikation på att några betydande mängder sulfid inte bildas under de förhållandevis torra förhållanden som förväntas förekomma under en inledande omättad period i slutförvaret.

En orsak till att ingen gasformig sulfid bildades under de ovanstående försöken kan dock ha varit att allt syre inte förbrukades. Även om sulfatreduktion vare sig äger rum under mättade buffertförhållanden, eller vid initiala torra förhållanden, kan det finnas en period mellan dessa båda tillstånd med hög relativ fuktighet i en omättad buffert och mikrobiell aktivitet. För att undersöka detta genomförde SKB ytterligare försök i provrör med olika blandningar av bentonit, tillsatta mikrober, laktat, gips och näringsämnen. Ett yttre rör

med en kopparlösning användes för att detektera bildning av vätesulfidgas. Resultaten visar att sulfatreduktion äger rum om mikrober får tillgång till en fri vattenfas, men dock inte i en omättad buffert med hög luftfuktighet. SKB har också under försöken uteslutit en bildning av vätesulfid från sulfidmineral som ursprungligen finns i bentonitmaterialet.

SKB:s uppdaterade teoretiska modelleringsstudie av diffusion av gasformig vätesulfid i en omättad buffert visar med en detaljerad representation av deponeringshålets geometri maximala sulfidflux till kopparytan. Diffusion av vätesulfid med ett möjligt ursprung i återfyllnaden kan diffundera i buffertens gasfyllda porer så länge bufferten förblir omättad. Vartefter mättnadsförloppet fortskrider kommer dock de gasfyllda porerna gradvis försvinna vilket till slut eliminerar en fortsatt gasdiffusion av sulfid. SKB förutsatte liksom vid tidigare modelleringsinsatser (SKBdoc 1437441) att sulfid omedelbart konsumeras när det når kapsels yta, samt att en konstant koncentration av sulfid föreligger i återfyllnaden som en källa för fortsatt gasformig diffusion av sulfid genom bufferten. Detta bedömdes vara ett mycket konservativt antagande eftersom sulfidbildning inte har kunnat konstateras i de återfyllnadsmaterial som hittills har undersökts. SKB drar slutsatsen att det översta hörnet vid kopparkapselns lock kommer att bli mest exponerat för sulfidkorrosion via den transportvägen (SKBdoc 1696975). Maximala tillförseln motsvarar 10^{-10} mol/(m² s), vilket är cirka en tiopotens lägre i jämförelse med motsvarande, mer förenklade överslagsberäkningar som SKB presenterade tidigare.

SKB definierar som ett resultat av de uppdaterade utredningarna maximala sulfidflux till kopparkapselytor för de tre bufferttillstånden mättad buffert (10^{-12} mol/(m² s)), omättad buffert (10^{-10} mol/(m² s)), samt eroderad buffert (10^{-9} mol/(m² s)). Förekomst av omättade buffertförhållanden kan tänkas vara omfattade upp till de 6000 första åren i förvarets utveckling, medan eroderad buffert avser i huvudsak tider efter 100 000 år. De högsta sulfidflödena för eroderade förhållanden avser ett mindre antal deponeringshål exponerade för de högsta sulfidhalterna och de högsta grundvattenflödena.

3.3 SSM:s uppdaterade bedömning

SSM konstaterar att SKB har tillfört ny information om risken för sulfidbildning i återfyllnaden följt av transport av gasformig sulfid i en omättad buffert. Denna nya information styrker tilltron till att denna transportväg för att tillföra vätesulfid till kopparkapseln visserligen är möjlig, men sannolikt är mer begränsad än vad som har varit känt tidigare. Skillnaden mellan uppskattningar före och efter SKB:s kompletterande redovisning är ungefär en tiopotens. SKB antar att mikrobiell sulfatreduktion äger rum i återfyllnaden i samma omfattning som tidigare (gränssatt med randvillkoret 10^{-6} M sulfid), men att transporten är långsammare än vad som tidigare fastställts. Detta är ett av två fall med risk för lokal sulfidbildning som SSM lyfte upp i sin granskning. Beträffande det andra fallet, sulfidbildning inuti en omättad buffert exempelvis genom bildning av sulfat-reducerande bakterier på en kopparkapsel, anser SSM att SKB har visat att fallet ter sig mindre sannolikt än tidigare. Detta genom att visa att mikrobiell sulfatreduktion inte verkar förekomma i en miljö med hög luftfuktighet men utan en fri vattenfas. Detta innebär att processen har små möjligheter att generera sulfider inuti ett deponeringshål som på ett betydelsefullt sätt kan påverka kopparkapselns integritet. Det kan påpekas att dessa förutsättningar inte gäller för det särskilda fallet eroderad buffert orsakad av infiltration av glaciala smältvatten. Fallet glaciala smältvatten avser dock en mycket mera avlägsen tidshorisont än tidsperioden med omättade förhållanden.

Eftersom transportvägen gasformig diffusion genom en buffert hursomhelst endast är tillgänglig innan fullständig återmättnad har uppnåtts har de nya modelleringsresultaten ingen större betydelse för analysen av kopparkapselns långsiktiga livslängd i perspektivet

allmän korrosion, men frågan har likväl en betydelse för bedömningen av huruvida det finns förutsättningar för lokal korrosion att ha en stor betydelse. Kombinationen förekomst av dragspänning i kopparhöljet i samband med att buffertens svälltryck byggs upp samt förhållandevis snabb tillförsel av sulfid är faktorer som behöver vägas in vid en värdering av spänningskorrosionsrisk. De initialt förhöjda kapseltemperaturerna är också en faktor som påverkar risken för gropkorrosion (Macdonald m.fl. 2016). Risken för spänningskorrosion och gropfrätning är frågor som såväl SSM har tagit upp i sin granskning av tillståndsansökan, liksom mark- och miljödomstolen i sitt yttrande till regeringen. SSM kommenterar betydelsen av de nya resultaten i perspektivet risk för lokal korrosion i mer detalj i avsnitten om gropkorrosion och spänningskorrosion (se avsnitt 6 och 7).

SSM anser att SKB har som en del av sin komplettering utvecklat lämpliga metoder för att påvisa bildning av gasformig sulfid under olika typer av förhållanden såsom olika innehåll av sulfidmineral, förekomst av gips som källa för sulfat, tillgång till näringsämnen etc. SKB:s nuvarande resultat bedöms vara rimliga och förväntade, men SSM vill ändå påpeka att det ännu så länge rör sig om en begränsad uppsättning mätningar. Det är därför skäl för att SKB som en del av sitt fortsatta program vidareutvecklar dess testmetoder och implementerar dem för olika lermineral som avses att kunna användas i bufferten respektive i återfyllnaden. Sådan information kan användas för att inför kommande beslutssteg kunna få fram en mer fullständig och entydig information om den relativa betydelsen av en möjlig sulfidbildning i bufferten och gasformig sulfidtransport i en omättad buffert.

SSM anser att SKB även tagit fram ny information om förbrukning av syre i ett slutförvar direkt efter slutlig förslutning. Resultaten från de preliminära försöken visar som väntat att kopparkorrosion i den oxiderande miljön är en process som ger upphov till en snabb minskning av syrehalten i gasfasen. Omfattningen av denna typ av kopparkorrosion är hursomhelst liten med tanke på den begränsade mängd syre som kan inneslutas i förvaret direkt efter förslutning. SSM anser dock att ytterligare förståelse av syreförbrukningen ändå har en viss betydelse eftersom SKB:s tidigare redovisning inte var helt klagörande i detta avseende (SSM, 2018). En mer utförlig förståelse av processerna som förbrukar syre direkt efter förslutning kan till exempel ha en betydelse för att göra tillförlitliga tolkningar av vissa typer av fältförsök, samt för att kunna förtydliga analysen av risken för initiering av lokala korrosionsprocesser som kan äga rum inledningsvis under oxiderande betingelser. Risk för betydelsefulla korrosionsbidrag från den typen av processer har, som SSM har påpekat tidigare, bedömts vara mycket liten, men resultat från experiment med monitorering av gasfassammansättning kan ändå tydligare underbygga en sådan slutsats. Resultaten kan även ge ny betydelsefull information för bedömning av fördelning av längden för den oxiderande perioden i den fullständiga uppsättningen av deponeringshåll.

Beträffande slutförvarsmiljöfrågor som rör annat än tillgången till korroderande ämnen kan SSM konstatera att tillgång till ytterligare betydande ny information är avhängig att SKB kan påbörja en detaljundersökningsfas och konstruktion av tillfartsvägar ner till förvarsdjup. SSM har vid flera tillfällen påpekat betydelsen av att SKB vid planeringen av konstruktionsarbeten lämnar tillräckligt utrymme för att genomföra ytterligare mätningar som kan användas för att underbygga kommande säkerhetsanalyser och särskilt SAR-redovisningen. SSM har också påpekat betydelsen av att SKB i samband med konstruktion av deponeringstunnlar genomför verifierande mätningar för att säkerställa att bergets lokala egenskaper är lämpliga inför konstruktionen av deponeringstunnlar, liksom att SKB konstruerar s.k. demonstrationstunnlar för genomförande av ytterligare fältexperiment, detaljerade karaktäriseringar, samt demonstrationsexperiment nödvändiga för en kommande driftsfas.

SSM bedömer dock att SKB redan nu har tillgång till tillförlitlig information med avseende på förvarets temperaturutveckling, nuvarande grundvattenkemiska förhållanden, samt grundvattenflöden i berget på förvarsdjup, vilket alla är frågor av stor betydelse för analysen av korrosionsprocesser. Beträffande fördelning av tider till fullständig återmättnad för bufferten bedömer SSM att SKB i samband med ansökans kompletteringsfas tog fram betydelsefull ny information. Den mesta information talar för att en betydande andel av deponeringshålen kommer ha förhållandevis långa återmättnadstider på upp till flera tusen år. SSM vill dock påpeka att SKB endast har identifierat fall där olika fördelningar av tider till fullständig återmättnad redovisas för olika förutsättningar (så som olika hydraulisk konduktivitet för intakt berg). Med tanke på att mer utförlig information om bergets egenskaper kommer att vara tillgänglig efter att SKB ha konstruerat tillfartsvägar till förvarsdjup och gjort ytterligare undersökningar på plats, förväntar sig SSM att SKB kommer att få bättre statistik för att kunna identifiera den mest sannolika fördelningen av återmättnadstider vid kommande steg i slutförvarets utveckling.

4. Saunaeffekten

4.1 SSM:s tidigare slutsatser

Vid granskning av ansökan konstaterade SSM att SKB:s redovisning av processen saunaeffekt som kan ge upphov till anrikning av mineraler i närheten av kapselytan är vetenskapligt välgrundad. Slutsatsen att inga kloridsalter når mättnadsgränsen och anrikas i närheten av kapselytan bedömdes vara trovärdig. SSM ansåg vidare att SKB på ett lämpligt sätt har genom arbetet med laboratorie- och fältförsök samt kopplad termisk-, hydraulisk- och mekanisk (THM) modellering visat att processen sannolikt inte har någon stor betydelse för buffertens förmåga att begränsa korrosionsangrepp på kopparkapseln. SSM ansåg dock att SKB i kommande steg av sitt program behöver ta fram en utförligare analys av de kopplade THM-processerna med avseende på omfördelning av vattenånga och transport av ånga i pelletter med naturlig konvektion.

Beträffande retrogradupplösning och utfällning av vissa mineral (dvs. ett fåtal mineral som till skillnad från det stora flertalet har en löslighet som minskar istället för att öka med ökande temperatur) konstaterade SSM att detta är en parallell, och till saunaeffekten relaterad, process. Processen innebär i fallet KBS-3 att små mängder kalcit ($\text{CaCO}_3(\text{s})$) och anhydrit ($\text{CaSO}_4(\text{s})$) omfördelas från buffertens bulkfas till kapselytan. Denna effekt har kunnat verifieras via fältmätningar (SKB TR-09-29, avsnitt 9.2.2; SKB TR-13-21, avsnitt 3.3.3). SSM bedömde dock att utfällning av dessa sulfat- och karbonatmineraler endast sker i liten omfattning och har en marginell betydelse för kapselkorrosion. Den totala mängden av svavel som initialt introduceras i bufferten kan kontrolleras genom användning av acceptanskriterier vid val av buffertmaterial.

4.2 SKB:s tillkommande information

I SKB:s rapport SKB TR-19-15 kompletterades redovisningen av saunaeffekten med nya resultat från följande insatser:

- laboratorieförsök med bentonitringar och bentonitblock runt ett varmt kopparrör vilka har utformats för att representera slutförvarsmiljön,
- laboratorieförsök av ångtransport genom buffertprover bestående av både pelletter och block med syftet att validera och uppdatera SKB:s modellering av den långsiktiga buffertutvecklingen,
- fördjupad analys av resultat från olika fältförsök (främst Prototyp-, LOT- och FEBEX-försöket),



- massbalansmodellering med syftet att på ett utförligare sätt visa den eventuella omfattning av saunaeffekten bl.a. som ett underlag för bedömning av kopparkorrosion.

De första experimentella försök som redovisades i samband med tillståndsansökningarna genomfördes endast med bentonitpelletar (SKB R-13-42). Försöken fokuserade på att utreda transport av vattenånga genom det omättade område utanför bentonitblocken som fylls med bentonitpelletar samt vid gränssnittet mellan deponeringshål och deponeringstunnel. Försöken har visat att för bentonitpelletar i ett slutet system med begränsad volym och en temperaturgradient som motsvarar den i slutförvarsmiljön är transport av vattenånga mycket begränsad. Ångan kondenseras till stor del och tas upp av pelletarna vilket begränsar ångtransporten. Försöken har dock visat att en betydande andel av vattenångan kan transporteras bort utan att absorberas av pelletarna om systemet är öppet mot den omgivande luften. Detta tyder på att pelletarna återmättas främst genom att ta upp kondens från vattenångan samt att direktupptag av vattenånga är en mycket långsam process.

I SKB:s kompletterande information (SKB TR-19-15; SKB TR-15-09) redovisas resultat från en uppsättning försök i vilka transport av vattenånga i en spalt mellan bentonitblock och en kopparvärmare (som simulerar en kopparkapsel med använt kärnbränsle) har studerats. Syftet var att utveckla förståelse för hur vattenånga interagerar med omättade kompakterade bentonitblock. Spalten var ca 5 mm bred och matades med tillförsel av vatten nära värmaren i botten av systemet. De olika försök som ingick i studien utgick från olika konfigurationer av bentonitblock. I de försök där den inre spalten var öppen mot omgivningen demonstrerades (SKB TR-15-09, försök 2-4) att ansenliga mängder vattenånga kan transporteras genom spalten utan att tas upp av den förhållandevis torra bentoniten. I de försök där spalten istället var täckt med ett massivt bentonitblock (SKB TR-15-09, försök 5-7; SKB TR-17-07, försök 9) förekom endast små förluster av vattenånga till omgivningen. Försöken visade liksom vid de tidigare försöken med bentonitpelletar (SKB R-13-42) att den dominerande mekanismen för vattenupptag är kondensation av ånga.

Två ytterligare försök som genomfördes inom ramen för kompletteringen (SKB TR-17-07, kapitel 2) syftade till att undersöka betydelsen av om vattentillförsel sker via en bentonitkomponent istället för direkt till den inre spalten, vilket bättre representerar förhållandena i ett verkligt deponeringshål. Resultaten visar på ett lägre vattenupptag vid matning via en bentonitkomponent, som höll sig i princip vattenmättad under hela testets gång, även innefattande de delar som exponerades för högst temperatur nära den inre spalten. Detta innebär att förångning i den inre spalten och transport av ånga längs den inre spalten var liten i förhållande till omfördelning av vattenfasen i bentoniten. Ånga kondenserades i det massiva bentonitblocket på toppen av försöksuppsättningen. Sammanfattningsvis har samtliga av SKB:s försök visat att ånga kan röra sig relativt fritt i en pelletsfylld eller tom spalt, medan ångan kondenseras såväl i bentonitblocken som i bentonitpelletar om det finns en temperaturgradient. Ett massivt bentonitblock kan effektivt förhindra vidare ångtransport och ångan kondenseras och tas upp i vätskeform av blocket.

I ytterligare en kompletterande studie genomförd under år 2018 har ångtransport genom bentonitmaterial mätts och modellerats (SKBdoc 1712120). I detta fall fokuserades särskilt på två egenskaper hos bentonit nämligen; (1) ångtransportsförmåga genom bentonitblock och pelletsfyllning, samt (2) uppkomst av en jämvikt mellan relativ fuktighet i de gasfyllda porerna och det absorberade vattnet i bentonitmaterialiet. Den sistnämnda frågan har en betydelse eftersom jämviktsantagandet används i många modelleringsstudier. Testerna utfördes med intakta bentonitblock, delade block, pelletar samt även med en referens utan provkropp. I en testutrustning placerades en provkropp av

bentonit ovanför en bågare med vatten eller alternativt en saltlösning. Hela testutrustningen placerades sedan i ett klimatskåp. Testerna genomfördes dels under isotermiska förhållanden (dvs. med konstant temperatur), dels med termisk gradient med olika kombinationer av temperatur och relativ fuktighet i klimatskåpet, samt ovanpå vattnet eller saltlösningen. De olika provkropparna exponerades för olika gradienter av relativ fuktighet, och i de icke-isotermiska fallen även för olika temperaturgradienter. Ångtransport kvantifierades genom återkommande mätningar av massförlusten från bågaren med vatten. På motsvarande sätt kvantifierades vattenupptaget i bentonitprov genom att mäta provets massa (SKBdoc 1712120).

De ovanstående testerna modellerades teoretiskt med utgångspunkt från massbalans, permeabilitet för ånga samt från ångtransport driven av skillnader i fukthalt mellan olika delar av systemet. En jämvikt mellan relativ fuktighet i de gasfyllda porerna och det absorberade vattnet i bentonitmaterialet antogs också. Modellresultat och experiment visar en relativt god överensstämmelse, i synnerhet för de isotermiska testerna med bentonitblock. Detta har bl.a. bekräftat att SKB:s antagande av jämviktsförhållande mellan relativ fuktighet av gaser i porerna och absorberade vatten i fastfasmaterial av bentonit är rimligt. De utvärderade permeabilitetsvärdena för ånga är uppenbarligen i god överensstämmelse med de diffusionskoefficienter för ånga som sedan tidigare har varit implementerat i den materialmodell som har använts i SKB:s kopplade termiska, hydrauliska, mekaniska (THM) modelleringsverktyg (SKBdoc 1712120). Detta verktyg har tidigare använts för att simulera återmättnadsförloppet i ett slutförvar samt för att utvärdera testerna i flera fält- och laborieförsök (t.ex. SKB TR-10-11, SKB TR-13-22). Permeabilitetsvärden för ånga i fallet termisk gradient är dock högre än värdena för diffusivitet genom luft, speciellt för pelletar. Detta är enligt SKB en indikation på att transportmekanismer såsom naturlig konvektion i detta fall kan ha varit verksamma (SKBdoc 1712120).

SKB redovisar även resultat från fältförsöken i både Prototypförvaret (SKB TR-13-21) och LOT-försöken (SKB TR-09-29) av relevans för bedömning av saunaeffekten. I det fullstora Prototypförvaret har bentonitblock och bentonitringar i ungefär samma omfattning som förväntas i det planerade bränsleförvaret varit exponerade för värme (maximalt 85°C) och grundvatteninträngning under en period av åtta år. Grundvattnet vid Äspö är av Na-Ca-Cl-typ med en kloridkoncentration runt 8100 mg/L. Efter att ha avslutat försöket befanns genomsnittlig kloridkoncentration i två av bentonitringarna vara 2900 mg/L respektive 2200 mg/L. Fördelningen av kloridkoncentration längs radien av ringarna är relativt jämn utan någon anrikning av klorid runt den varma kopparkapseln (SKB TR-13-21, figur 3-2; SKB TR-19-15, figur 3-10). SKB:s förklaring till den uppkomna kloridkoncentrationen i bentonitringarna efter försöket är att porvattnet består av en blandning av Äspögrundvatten och det ursprungliga bentonitporvattnet från tillverkningen av bentonitringarna som har en kloridkoncentration på ca 900 respektive 600 mg/L (SKB TR-19-15, avsnitt 3.2.1).

I det småskaligare LOT-försöket A2 har bentonitringar varit exponerade för en högre temperatur på 130°C under en period av sex år. Blocken har återmättats genom inträngning av omgivande Äspögrundvatten med en kloridkoncentration på ca 7800 mg/L vid den aktuella bergvolymen. Den ursprungliga kloridkoncentrationen i bentonitporvattnet var 1350 mg/L. Efter att det sexåriga försöket hade avslutats befanns den genomsnittliga kloridkoncentrationen i bentonitringarna vara 4000 mg/L. Kloridkoncentrationen var relativt jämt fördelad i bentonitringarna utan anrikning av klorid nära det varma kopparröret (SKB TR-09-29, figur 9-2; SKB TR-19-15, figur 3-11).

FEDEX-försöket ("Full-scale Engineered Barrier Experiment in Crystalline Host Rock") är ett fullskalförsök för demonstration av analys av ett slutförvar som har genomförts vid

Grimsels berglaboratorium i Schweiz av den spanska organisationen ENRESA. Grundvattnet på denna plats har en mycket låg kloridkoncentration 0,1-27,0 mg/L (Garralón m.fl. 2017, tabell 16). I detta försök har bentonit från provinsen Almeria i Spanien varit exponerad för temperaturer på ca 90°C under en tidsperiod på 18 år (Fernandez m.fl. 2018). Den ursprungliga kloridkoncentrationen i porvattnet i bentonitblocken var ca 110 mg/L, (Garralón m.fl. 2017, tabeller 1 och 2). Till skillnad från resultaten från de ovan nämnda försöken vid Äspö, har anrikning av klorid närmare värmekällan observerats, med en lokalt, maximalt 6 gånger högre kloridkoncentration i jämförelse med den ursprungliga koncentrationen vid tillverkning av blocket. I delarna av bentoniten längre ifrån värmekällan är dock kloridkoncentrationen lägre än den ursprungliga (Fernández m.fl. 2018, figur 159; SKB TR-19-15, figur 3-13). Totalt har ingen ackumulation av klorid i buffertmaterialet skett i dessa tester, men likväl en omfördelning i porvattnet. Den dominerande processen som styr kloridhalten i buffertmaterialet bedöms av SKB liksom för försöken vid Äspö vara blandning av vatten av olika ursprung.

Förutom de ovanstående experimenten och simuleringar med detaljerade processmodeller, har SKB också analyserat saunaeffekten med hypotetiska överslagsberäkningar. Det krävs att 90 % av tillfört grundvatten indunstas och avgår i gasfas för att kunna öka kloridkoncentrationen från den ursprungliga nivån på ca. 0,2 mol/L till 2 mol/L. Betydande saltanrikning är således endast möjlig om i stort sett allt det inkommande grundvattnet förångas. Så länge en viss andel av tillkommande grundvatten förblir i flytande form kommer det medföljande saltet att fördelas i bufferten under mätnadsprocessen och större saltanrikning kommer därmed att undvikas.

SKB:s enkla massbalansmodelleringsinsatser (SKB TR-17-07, avsnitt 3.3) visar att det är högst osannolikt att kloridhalten i bufferten kan nå mätnadnivån och orsaka utfällning av fasta kloridfaser. Under perioden de första tusen åren när temperaturgradienten i deponeringshålet är så stor att avdunstning kan ske krävs en inflödes hastighet för grundvatten på mer än 10^{-4} L/min för att utfällning av fast natriumklorid överhuvudtaget ska kunna ske. Detta baseras på en mycket pessimistisk förutsättning att i princip hela det inflödande grundvattnet förångas förutom en mindre del som återmättar bufferten. Med denna höga inflödes hastighet motsvarar dock det ackumulerade flödet under 1000 år åtta gånger den tillgängliga porvolymen i ett deponeringshål. SKB:s THM (termisk-hydraulisk-mekanisk)-modellering visar dock att bentonitbufferten i deponeringshålet återmättas inom 2-35 år med en förhållandevis hög grundvattensinflödes hastighet på mellan 10^{-5} till 10^{-3} L/min (SKBdoc 1415879). Detta innebär att avdunstningen i så fall skulle ske under denna relativt korta period efter förslutning av deponeringshålet, vilket ger en i stort sätt försumbar ackumulation av klorid. SKB:s experimentella resultat (SKB TR-15-09, avsnitt 2.7) visar också att med en vatteninflödes hastighet på $5,5 \cdot 10^{-6}$ L/min, dvs. betydligt lägre än den postulerade nivån 10^{-4} L/min, tog bentoniten upp vattnet under hela försöksperioden. Detta innebär att den hastighet med vilken ånga skulle kunna ha transporterats ut från systemet i detta fall måste vara lägre än $5,5 \cdot 10^{-6}$ L/min. Även om dessa resultat skalas upp till den verkliga geometrin för ett verkligt deponeringshål blir en hypotetisk uttransport av ånga motsvara en nivå som är $6 \cdot 10^{-5}$ L/min, som fortfarande är mindre än det avgörande kriteriet för grundvattensinflödet på 10^{-4} L/min för att utfällning av fasta kloridfaser skulle kunna ske (SKB TR-19-15, avsnitt 3.4.2).

I SKB:s modellering som tidigare har använts till stöd till teknisk utveckling av buffertinstallation har den konvektiva transporten av vattenången i pelletfyllningen inkluderats. Under förutsättningen att inget grundvatten från omgivningen transporteras in till deponeringshålet kan endast 40 kg av vattnet i bentonitbufferten transporteras ut genom den mycket porösa pelletfyllningen till deponeringstunneln (SKB TR-17-06, avsnitt 4.2; SKB TR-19-15, avsnitt 3.4.3). SKB bedömer att detta är en mycket liten mängd i jämförelse med den totala mängden porvatten i ett deponeringshål på ca 5000 kg (SKB

TR-19-15, tabell 3-1). SKB:s förklaring till detta resultat är att temperaturen inom deponeringshålet avtar kraftigt från kapselytan till bergväggen. Luft- och ångtransport inom pelletfyllningen blir därför mycket begränsad. Om grundvatteninflödet beaktas sker ingen förändring av vare sig för temperaturen på toppen av deponeringshålet, eller för ångtransport till deponeringstunneln genom pelletfyllningen, men grundvatteninflödet bidrar till återmättnaden av pelletarna, vilket i sin tur minskar ångtransport genom pelletsåterfyllning.

Sammanfattningsvis drar SKB följande huvudsakliga slutsatser kring saunaeffekten (SKB TR-19-15);

- För att en betydande mängd av klorid kan komma ackumuleras i en omättad bentonitbuffert behöver huvuddelen av det inströmmade grundvattnet omvandlas till ånga, snarare än att i vätskeform kvarhållas i bufferten. Ackumulation av klorid i bufferten som helhet förutsätter att tillfört grundvatten förångas samtidigt som ångan transporteras bort från deponeringshålet. Mot bakgrund av en realistisk beskrivning av grundvatteninflöde in till ett omättat deponeringshål är det mycket osannolikt att en betydande borttransport av ånga förhindrar återmättnadsförloppet i nämnvärd omfattning. Detta bekräftas av SKB:s senast utförda THM-modelleringar, vilka visar att ett betydande vattenflöde genom omättade bentonitblock upprätthålls.
- De experimentella studierna visar att kapaciteten för ångtransport genom buffertblock inte är tillräckligt stor för att orsaka en betydande saltackumulation. Kondensation begränsar ångtransporten.
- SKB:s studier visar att spalterna mellan kapseln och bufferten i deponeringshålet och sprickorna i bentonitringarna/bentonitblocken, orsakade av eventuell torkning och ojämn svällning under installationsperioden, har liten påverkan på ångtransport. Huvuddelen av ångan transporteras istället genom bentonitblockens bulkmaterial även om det finns sprickor genom blocken.
- Analyser från fältförsök i svenska berggrunden med MX-80-bentonit så som LOT och Prototypförvaret vid Äspölaboratoriet visar inga tecken på att salt har ackumulerats i nämnvärd omfattning. Viss saltanrikning har observerats i FEBEX-försöket i den schweiziska kristallina berggrunden med omgivande grundvatten av låg salthalt. Även där visades dock en nettoförlust av den ursprungliga mängden klorid inuti bentonitbufferten.

Baserat på redovisningen ovan bedömer SKB att saunaeffekten inte har någon betydelsefull inverkan på ett KBS-3-bränsleförvar vid Forsmark och effekten har därför inte inkluderats i de kommande analyserna av gropkorrosion och spänningskorrosion av kopparkapseln.

4.3 Synpunkter från SSM:s externa experter

Szakálos Materials Science AB

SSM:s externa experter P. Szakálos och C. Leygraf anser att saunaeffekten kommer att fortgå fram till dess att bentonitsvällning och att uppbyggnaden av ett mottryck förhindrar vidare saltackumulation. Detta bedöms ta upp till 1000-tals år på grund av långsamma återmättnadstider för en stor andel av deponeringshålen. Man bedömer att sprickor och kanaler kommer kvarstå till full återmättnad vilket anses förhindra buffertens funktion under den varma initiala fasen. Man anser också att ackumulationen av salt kommer att förstöra bentonitens svällande egenskaper och funktion som diffusionsbarriär.

En analys av saunaeffektens betydelse för kapselintegritet presenteras som har baserats på av SKB beräknade inflöden till fördelningen av deponeringshål (SKB R-13-21). Deponeringshålen delas in i kategorier beroende på inflödes hastighet. Korrosionshastigheten beräknas med utgångspunkt från temperatur med en fördubbling av korrosionshastigheten för varje ökning av temperaturen med 10°C (Mattsson 1997) och en maximal årlig korrosionshastighet på 0,3 mm i samband med en fuktig miljö med riklig förekomst av salter och en temperatur på 80-90°C. För de mest utsatta deponeringshålen (ca 20 %) i termer av grundvattenflöden anses beräknad saltackumulation baserad på grundvattenflöden motsvara mellan 0,5-5 kg per år, vilket även i det lägre intervallet motsvarar en total saltackumulation på 500 kg i varje deponeringshål under de första 1000 åren. Kapslarna beräknas falla som en följd av allmän korrosion och gropfrätning inom mellan 300-500 år. För de resterande deponeringshålen (ca 80 %) med lägre grundvattenflöden kommer saltackumulationen pågå långsamt och kopparkapslarna kommer försvagas av saltackumulationen. Kapsellivslängden inom den sistnämnda kategorien bedöms infinna sig i tidsintervallet fram till 20 000 år som en följd av efterföljande kollaps under inverkan av omgivningstrycket på 50 bar. Dessa granskare bedömer dock att kapsellivslängder i denna kategori inte är konservativa eftersom dessa kapslar ändå kommer att ha fallerat av spänningskorrosion, väteförspridning och radiolys innan dess.

Galson Sciences Ltd.

SSM:s externa experter J.R. Scully och T.W. Hicks konstaterar att en begränsad avdunstning och uppkoncentrering av klorid kan förekomma nära kapseln. Avdunstningen skulle dock begränsas av kort avstånd från kapselytor till att kondensation sker i bufferten och att processen helt upphör vid full återmättnad varefter koncentration av klorid invid kapselytan minskar som en följd av diffusion. Det finns enligt dessa experter ingen mekanism för avdunstning och återvätning med förluster av vattenånga som i ett öppet system och en otillräcklig mängd klorid kan därför ansamlas för att uppnå övermättnad. En höjning av kloridhalt till 1 M anses vara osannolik. Man gör därför bedömningen att det är rimligt att SKB drar slutsatsen att saunaeffekten kommer att vara obetydlig i KBS-3-förvaret, även om en tydligare förklaring av observationerna från FEBEX-experimentet i Grimsel i Schweiz, där ökade kloridkoncentrationer observerades nära ytan av en värmare i bentonit, skulle ytterligare öka tilltron till denna slutsats. Granskarna anser att liknande argument som framförts med avseende på saunaeffektens betydelse med avseende på klorid också bör avse sulfid, men man konstaterar att SKB inte har adresserat denna fråga.

4.4 SSM:s uppdaterade bedömning

SSM är positiv till att SKB efter tillståndsansökningarna har genomfört ytterligare experimentella och teoretiska utredningar kopplade till saunaeffekten. SSM anser att underlaget förstärkts vilket har förtydligat SKB:s tidigare slutsatser kring saunaeffekten och dess möjliga betydelse för kopparkorrosionsfrågor. SKB:s angreppssätt har baserats på såväl laboratorieförsök med syfte att karakterisera bl.a. fuktvandring och ångtransport i bentonitmaterial, observationer från fältförsök, modellering med kopplade THM-modeller för att simulera buffertens utveckling efter förslutning av ett slutförvar, samt överslagsberäkningar för att gränssätta saunaeffektens inverkan för olika hypotetiska fall. Detta kombinerade angreppssätt bidrar till en allsidig belysning av fenomenet. SSM instämmer med SKB att saunaeffekten har marginell betydelse i ett KBS-3-bränsleförvar vid Forsmark och att SKB:s redovisning av saunaeffekten i deponeringshålen i den kompletterande informationen (SKB TR-19-15, kapitel 3) är trovärdig och godtagbar. En omfattande förångning av grundvatten som tillförs ett deponeringshål från det omgivande berget ter sig ytterst osannolik.

SSM konstaterar att kännedom om realistiska haltintervall för kloridkoncentrationer invid kopparkapseln har betydelse som randvillkor i analysen av korrosionsförloppet, så som bildning av olika typer av kopparsulfidfilmer vid olika kloridhalter (Martino m.fl. 2017; se vidare avsnitt 6 i denna granskningsrapport). SSM instämmer med SKB att bildning av fasta kloridfaser ter sig mycket osannolikt mot bakgrund av resultaten från SKB:s genomförda utredningar. Den inledande porvattensammansättningen i bufferten har snarare lägre kloridhalt än det omgivande grundvattnet och om man enbart beaktar det diffusiva utbytet tar koncentrationsutjämnningen tusen år eller mer (SKB TR-10-59), vilket motsvarar tidperioden vid vilken kapseln har en betydligt förhöjd temperatur. Mot bakgrund av bl.a. resultat från FEBEX-försöket kan dock en viss temporär förhöjning av kloridhalt vid buffertens inre rand i förhållande till buffertens genomsnittliga kloridhalt inte uteslutas, även om FEBEX-observationen avser en berggrund med grundvatten som har mycket lägre salthalt. SSM bedömer dock att en sådan modest höjning knappast kan kallas en saunaeffekt. Den bedöms inte på något avgörande sätt påverka analysen av kopparkapselns korrosionsförlopp.

SKB har definierat säkerfunktionsindikator med kloridkoncentration mindre än 2M för att undvika kloridkorrosion (SKB TR-11-01, figur 8-2). För att kloridkorrosion ska förekomma enligt SKB:s fördjupade analys som togs fram som en komplettering under tillståndsprövningsfasen (SKBdoc 1422182) krävs dock dels en högre kloridhalt än 2 M alternativt 3 M, dels ett pH lägre än 4 eller 4,5 för 3 M, vilket enligt SSM:s bedömning är ytterst osannolikt mot bakgrund av SKB:s analys av saunaeffekten samt vad gäller pH av bentonitmaterialets pH-buffringsförmåga.

SSM:s bedömning vad gäller saunaeffektens omfattning har i huvudsak baserats på följande sammanfattande argument: (1) försök med bentonitblock för att simulera förhållanden i ett deponeringshål visar att ångtransport genom pelletfyllningen och spalten mellan kapsel och bentonit är mycket begränsad, och kondensationen sker relativt jämnt fördelat. (2) försök med delade bentonitblock visar att sprickorna i bentonitblock och bentonitringar, om de förekommer på grund av exempelvis torkning och ojämnt initial svällning, har försumbar betydelse för ångtransport, transport sker i huvudsak genom de intakta delarna av blocken. (3) antaganden med avseende på mekanismer och parametrar i använda THM-modelleringsverktyg har genom jämförelser med experiment visats vara rimliga. (4) något tecken på anrikning av kloridsalter har inte kunnat noteras vid fältförsöken med MX-80 bentonit i Äspölaboratoriet. (5) teoretiska THM-modelleringar i allmänhet, och enkla massbalansmodelleringar för förenklade fall i synnerhet, har tydligt visat att omfattande anrikning av klorid i bufferten är osannolik. Utfällningen av kloridsalter som ger upphov till kloridanrikning i bentoniten kräver att en orimligt stor mängd av det inströmmande grundvattnet, som motsvarar flera gånger av den totala porvolymen i bufferten, förångas. THM-modelleringar visar att bufferten redan har blivit återmättad långt innan dess att denna mängd grundvatten kan tillföras deponeringshålet.

SSM anser dock, för fullständighetens skull, att processen retrogradupplösning/utfällning av vissa kalciumsulfat- och kalciumkarbonatmineraler bör inkluderas i redovisningen av saunaeffekten inom ramen för kommande säkerhetsredovisningar. Processen retrogradupplösning orsakas huvudsakligen av de initiala förhållandevise stora temperaturskillnaderna i bufferten, snarare än av vattenförångning. Förslaget att redovisa dessa båda processer tillsammans baseras på följande argument; (1) trots att orsaken till retrogradupplösning främst är temperaturskillnader kan förångning ändå förstärka retrogradupplösning, (2) båda effekterna sker parallellt och samtidigt under tidig termisk utveckling av bufferten, (3) båda effekterna har en viss påverkan på kemiska betingelser invid en kopparkapselyta.

Beträffande den måttliga förhöjningen av kloridkoncentration i närheten av värmarna under FEBEX-försöket, konstaterar SSM att detta har skett i ett grundvatten med flera tiopotenser lägre salthalt i jämförelse med Äspö och Forsmark. Det är en vedertagen kunskap att vatten med högre salinitet avdunstar långsammare än vatten med låg salinitet (Al-Shammiri 2002), men SSM anser ändå, i likhet med de externa experterna Scully och Hicks, att de vore av intresse att få resultaten från FEBEX ytterligare belysta.

Beträffande de externa experterna Szakálos och Leygrafs analys av saunaeffektens betydelse bedöms den av SSM att ha baserats på ett flertal tveksamma eller orealistiska förutsättningar, exempelvis: 1) att de grundvattenflöden som åberopas avser inflöden till tomma deponeringshål vid atmosfärstryck för ett öppet slutförvar, vilka inte blir bestående efter förslutningen av en deponeringstunnel, 2) att ingen hänsyn verkar ha tagits till att inkommande grundvatten bidrar till buffertens återmättnad, att så sker har visats experimentellt i samband med olika fältförsök med värmare som simulerar bränslets resteffekt (t.ex. Johannesson m.fl. 2007), 3) att ingen hänsyn verkar ha tagits till att bildad vattenånga kondenserar i deponeringshålet som en följd av temperaturgradienten, 4) att omgivningstrycket 50 bar (eller 5 MPa) är långt ifrån de laster som krävs för en kollaps av en kopparkapsel, vilket även gäller om höljet delvis skulle ha påverkats av korrosion eftersom det är insatsen som är den lastbärande komponenten. Trycktester med kapslar med fullstora tvärsnitt visar på experimentellt bestämda kollapslaster kring 130 MPa (SKB TR-05-18). 4) att korrosionshastighet förefaller att ha baserats på att kapseln kommer att ha fritt tillträde till luftsyre under hela återmättnadsperioden. Den åberopade referensen (Mattsson 1997) avser korrosion av kopparkapslar som förvaras i luften i avvaktan på slutförvaring inte kopparkapslar inplacerade i ett förslutet förvar. Fritt lufttillträde upphör i samband med att deponeringstunnlarna förslutits kort tid efter kapseldeponeringen.

SSM konstaterar att sprickbildning i bentonitblock av den typ som visas i Szakálos och Leygrafs rapport har förekommit i samband med särskilda försök inom SKB:s testverksamhet. I den av SKB föreslagna deponeringssekvensen kan denna typ av större sprickor undvikas även om skarvar mellan ringar och block kvarstår. Det har också visats vid tester med artificiella sprickor att dessa har en liten inverkan på ångtransport (SKB TR-19-15). Fuktvandring i omättade bentonitblock i samband med återmättnadsförloppet förväntas ske i bulkmaterialen snarare än i sprickor och skarvar som en följd av negativa porvattentryck i en omättad buffert. SSM anser vidare att den av Szakálos och Leygraf omnämnda degraderingsprocessen för bufferten inte primärt avser ackumulation av salt, utan en upplösning och utfällning av kisel. Denna process har granskats av SSM under tillståndsprövningen (SSM, 2018; avsnitt 4.7). Den förväntas ge en obetydlig påverkan på buffertmaterial givet att den maximala temperaturen i bufferten begränsas till under 100°C. SSM instämmer med att förekomst av höga kloridhalter kan ha en inverkan på vissa aspekter av kopparkapslarnas korrosionsförlopp så som korrosionsprodukternas morfologi, men konstaterar samtidigt att Szakálos och Leygraf inte har specificerat den korrosionsmekanism som skulle vara den direkta orsaken till att kopparkapslar kan falla till följd av just saltackumulationen.

5. Korrosion i rent syrgasfritt vatten

5.1 SSM:s tidigare slutsatser

SSM konstaterade vid granskning av ansökan att frågan dels avser konceptuell förståelse för korrosionsprocessen, dels strålsäkerhetsbetydelsen för processen i slutförvarsmiljön. Beroende på buffertens mycket betydande begränsning av transportprocesser som har en stark inverkan på olika kopparkorrosionsformer diskuterades processens betydelse separat

för kopparkapslar i intakta mättade deponeringshåll, omättade deponeringshåll samt slutligen för eroderade deponeringshåll.

Enligt SSM:s bedömning var frågan redan vid detta tillfälle rimligt väl undersökt både av SKB, och av oberoende instanser. Beträffande den konceptuella förståelsen för processen som sådan konstaterades att termodynamiken för relevanta kopparföreningar är ett väl undersökt område, och att en vätgasdrivande korrosion av koppar baserat på kända fasta faser skulle upphöra mycket snabbt i slutförvarsmiljön. Förklaringen till att vätgasutveckling kan ske i oväntat hög omfattning är enligt den ursprungliga studien bildning av en hittills okänd korrosionsprodukt med variabel sammansättning (H_xCuO_y ; Szakálos m.fl., 2007).

Vid en förväntad, mycket liten frigörelse av koppar(I)-joner och eventuell bildning av välkända faser som $Cu_2O(s)$ som en följd av kopparkorrosion är den termodynamiska drivkraften för korrosionsprocessen extremt liten men förekommer. Processen kan mot den bakgrunden inte sägas vara definitionsmässigt utesluten. Uppmätt vätgasbildning under vissa experiment är dock för hög för att kunna förklaras av traditionell termodynamik. SSM bedömde dock att den av Szakálos m.fl. framlagda hypotesen som innebar bildning av en okänd, och från korrosionssynpunkt mer gynnsam, korrosionsprodukt var ett i princip möjligt fall. SSM rekommenderade, mot bakgrunden av experimenten med en oväntat hög vätgasbildning (Szakálos m.fl. 2007), att fallet med en hypotetisk korrosionsprodukt som når kemisk jämvikt vid ett partialtryck av vätgas på omkring 1 mbar i enlighet med dessa experiment kan betraktas som en relevant alternativ konceptuell modell. Det bör påpekas att även den uppmätta högre än förväntade vätgasutvecklingen betraktades som liten i sammanhanget slutförvaring av använt kärnbränsle.

SSM ansåg att de omfattande transportbegränsningarna i synnerhet i deponeringshåll med en mättad buffert har en stor betydelse för att minimera strålsäkerhetsbetydelsen för denna hypotetiska process. Den långsamma materieöverföringen i en mättad buffert med fullt utvecklat svälltryck innebär att systemet kommer befinna sig nära kemisk jämvikt för denna typ av korrosionsprocess och att korrosionsprocessens hastighet i slutförvarsmiljö blir väsentligt lägre än i system med lägre materieöverföringsbegränsningar så som är fallet i korrosionsexperiment som utförs i syfte att optimera utfallet av den process som avses studeras, och sannolikt utan betydelse för kopparhöljets funktion som korrosionsbarriär.

Den hypotetiska betydelsen i omättade och eroderade deponeringshåll ansågs vara något mer svårbedömd. En konceptuell osäkerhet avser exempelvis förekomst av mikrobiella sänkor för bildad vätgas i närheten av kopparkapseln om buffertens svälltryck inte utvecklats. SSM konstaterade dock att processens betydelse kan begränsas genom kännedom av uppmätta korrosionshastigheter vid olika temperaturer från experiment där uppmätt vätgasbildning förutsätts ha orsakats av den postulerade korrosionsprocessen. Resultat pekar på att detta motsvarar korrosionshastigheter från 10-tals till som mest 100-tals nm per år, där den övre korrosionshastigheten avser de initialt förhöjda temperaturerna. Den förväntade kapsellängden blir baserat på förvarets förväntade temperaturutveckling och enkla överslagsberäkningar för korrosionsprocesser mer än 1 miljon år och då utgår beräkningarna från den pessimistiska förutsättningen att transportprocesser inte begränsar korrosionshastigheten. Med tanke på att omättade deponeringshåll förekommer under begränsad tid i slutförvarets utveckling, samt att eroderade förhållanden avser ett mindre antal deponeringshåll långt fram i tiden har dessa fall mycket begränsad men dock inte helt försumbar betydelse.

5.2 SKB:s tillkommande information

I SKB:s kompletterande underlag (SKB TR-19-15) dras den sammanfattande slutsatsen att det helt kan uteslutas att den föreslagna processen korrosion i rent syrgasfritt vatten kan ha någon betydelse i slutförvarsmiljön. Ett omfattande program med olika typer av forskning har genomförts för att undersöka giltigheten hos ett antal publicerade korrosions-experiment med en mer omfattande vätgasutveckling än vad som förväntas baserat på etablerade termodynamiska data. Denna vätgasutveckling har utgjort den huvudsakliga grunden för argumentationen kring att korrosionsprocessen trots allt kan förekomma och ha en betydelse för ett slutförvar. Den tillgängliga informationen som SKB åberopar som en grund för sitt ställningstagande utgörs av:

- teoretiska och experimentella studier för att hitta hittills okända kemiska föreningar i Cu-H-O systemet.
- egna korrosionsförsök för att påvisa vätgasutveckling och korrosion i rent syrgasfritt vatten.
- sammanfattning och kommentarer kring motsvarande korrosionsförsök genomförda av andra aktörer och i andra länder.
- hypotetisk ”what-if” analys av betydelsen av processen om den trots allt skulle förekomma.

SKB har vare sig genom experiment eller teoretiska simuleringar kunnat identifiera några hittills okända kemiska föreningar som kan förklara observationerna kring betydande vätgasutveckling i samband med korrosionsförsök med koppar i rent syrgasfritt vatten. Den förväntade vätgasbildningen med ett beräknat partialtryck för vätgas i ett slutet system med koppar och vatten når maximalt endast 10^{-6} mbar innan kemisk jämvikt uppnås (från frigörelse av koppar(I)-jonen i vattenlösning). Denna siffra är beräknad med programvaran PHREEQC och dessutom med motsvarande manuella beräkningar (Hedin m.fl. 2018, Appendix A). Liknande resultat har också tagits fram med programvaran OLI (SKBdoc 1602591). Dessutom drar man slutsatsen att vattenmolekyler kan dissocieras på kopparytor i omfattningen ett halvt monolager, vilket ger upphov till en viss vätgasbildning men ingen korrosion. Vätgasbildningen från någon av dessa mekanismer är knappt mätbar och alldeles för låg för att förklara vätgasbildningen hos de experiment som ursprungligen utförts av forskargruppen vid KTH (Szakálos m.fl. 2007).

Korrosionsexperiment utförda på uppdrag av SKB omfattar två olika metoder, varav den ena metoden som har utvecklats vid Uppsala universitet är avsedd att efterlikna KTH-försöken med ett metallineslutet system med två kamrar och ett palladiummembran för att avleda bildad vätgas (Ottoson m.fl. 2017). Den andra metoden, som har utvecklats av Microbial Analytics AB i Göteborg, har baserats på användning av provrör av glas med koppar och vatten med butylgummiförsegling med provtagning i en mindre gasvolym ovanför vattenytan (SKB TR-15-03). Den sistnämnda metoden har fördelen att bildad vätgas inte kan komma från korrosion av andra metalldelar i experimentuppställningen. Den sistnämnda typen av försök har även fördelen att många försök på ett enkelt sätt kan genomföras parallellt, exempelvis parallella studier av korrosion för olika kopparkvalitéer och koppar som ytbehandlats på olika sätt. Generellt har mycket mindre vätgas bildats vid dessa försök i jämförelse med försöken som har utförts på KTH, och analys av exponerade kopparytor från Uppsalaförsöken visar på en oxidation av koppar som är mindre än ett monolager under en exponeringstid på 29 månader. Initial kortvarig vätgasbildning i försök med den OFP-kopparkvalité som används till kapseltillverkning är enligt SKB troligen resultatet av avgasning av väte inuti kopparmaterialet som tillkommit under tillverkningsprocesser och som frigörs vid förhöjd temperatur, snarare än en biprodukt av kopparkorrosion. Detta styrks av att vätgas har detekterats under liknande försök med koppar helt utan en vattenfas.

Av publicerade vetenskapliga studier som utförts av andra aktörer och som indikerar vätgasutveckling, bildning av betydande mängd korrosionsprodukter och kopparkorrosion finns enligt SKB:s bedömning alternativa förklaringar till resultaten som inte är kopplade till korrosion i rent syrgasfritt vatten. Försöksuppställningen i sig kan exempelvis producera vätgas vilket kan detekteras i avsaknad av syre som först konsumeras genom oxidation av rena kopparytor. Denna förklaring nämns av SKB i samband med studien av Becker och Hermansson (2011). Korrosion av koppar i Erlenmeyerkolvar förseglade med palladium-membran är känsliga för inläckage av syre eftersom de inte har utförts i inertgasatmosfär (Hultquist m.fl. 2009). Motsvarande försök med kolvar förvarade i inert gas snarare än i luft med syre ger mycket mindre omfattande korrosionsangrepp (SKB R-13-34). Kinetikmodellering av kopparkorrosion samt experiment indikerar en korrosionshastighet på 1 nm per dag där korrosionshastigheten är beroende av materietransport och kinetik (Cleveland m.fl. 2014), men även av den termodynamiska drivkraften. I en kompletterande analys konstateras att även om kopparkorrosion i syrgasfritt vatten kan på teoretisk grund verifieras för ett ultrarent system, så har drivkraften för reaktionen över-skattats i den ursprungliga studien genom att förutsätta ett partialtryck för vätgas på 0,1 bar snarare än 10^{-9} bar (SKBdoc 1602591). Den senare mer realistiska siffran är framtagen med hjälp av kemiska jämviktsberäkningar för samtliga species i Cu-H-O systemet med hjälp av programvaran OLI. Viss produktion av vätgas i olika korrosionsexperiment med metallinneslutna system är enligt SKB härstammande från utrustningen, vilket är svårt att fullständigt eliminera.

Nyligen publicerade studier av andra aktörer innefattar kanadensiska korrosionsförsök med koppartrådar i glaskärl vid temperaturerna 30, 50 och 75°C (Senior m.fl. 2019). Försöken innefattar förutom exponering av koppar i rent syrgasfritt vatten även studier av vätgasutvecklingen i en vattenfas med olika salthalter, från 0,25 till 5 M NaCl (aq). Vid temperaturer under 50°C producerades försumbara mängder vätgas under detektionsgränsen (detektionsgränsen skulle motsvara en korrosion på maximalt cirka 2 nm per år). Vid högre temperaturer särskilt i kombination med högre salthalter utvecklades initialt mera vätgas i nivå med ett 10-tal nm per år, som dock har en avtagande trend som funktion av tiden. Författarna konstaterar att användning av bildad mängd vätgas ger en pessimistisk övre gräns för kopparkorrosion, samt att korrosionsprocessen korrosion i rent syrgasfritt vatten är så långsam att den enbart har ett akademiskt intresse utan praktiskt betydelse för slutförvaring med kopparkapslar.

I en finsk studie har korrosionsförsök utförts där koppar och rent avjoniserat vatten har inneslutits i Erlenmeyer-kolvar med palladiummembran och i glaskärl med butylgummiförsegling (Ollila 2019). Vid försöken med kolvar har exponeringstiden utökats från 2 till 7 år utan att kopparprovernas utseende förändrades nämnvärt vilket tyder på att bildningen av korrosionsprodukter har varit mycket begränsad. Viss förekomst av koppar(I)oxid (Cu_2O) och vätgas noterades dock. Glaskärlsexperimenten genomfördes dels med OFP-koppar, dels med 6N-Cu prover vid rumstemperatur och med en varaktighet som mest på 6 månader. Metallytorna var i stort sett rena efter att experimenten hade avslutats och kopparkoncentration i vattenlösning uppgick till i storleksordning 10^{-7} M, dvs. ungefär i nivå med lösligheten för koppar(I)oxiden. Vätgasutvecklingen för 6N-Cu översteg inte den i bakgrundsprover, medan en mer omfattande men dock med tiden avtagande vätgasutveckling kunde noteras för OFP-koppar. Detta resultat överensstämmer med SKB:s motsvarande experiment utförda vid Microbial Analytics AB.

SKB har utvärderat observationerna kring en högre än förväntad vätgasutveckling vid olika temperaturer (Hultquist 2011, 2015) i perspektivet hypotetisk betydelse för kapselns livslängd (Hedin m.fl. 2017). Metoden baseras på att man förutsätter att all observerad vätgasbildning orsakas av korrosion utan beaktande av andra tänkbara vätekällor. Om den observerade temperaturberoende vätgasbildningen kombineras med information om

förvarets temperaturutveckling erhålls en ackumulerad korrosion på runt 1 mm över tidsperioden en miljon år. En alternativ metod baseras på närmandet av kemisk jämvikt vid experimentellt bestämda partialtryck för vätgas, samt ett beaktande av buffertens transportmotstånd i avseendet borttransport av bildad vätgas. SKB konstaterar att den sistnämnda metoden ger en väsentligt lägre ackumulerad omfattning av korrosion, men man anser att den är mindre tillförlitlig än den första med tanke på behovet att kvantifiera vätgastransport och eventuell förbrukning av väte av olika orsaker så som mikrobiell aktivitet (Hedin m.fl., 2017).

SKB konstaterar avslutningsvis att de korrosionshastigheter som hypotetiskt kan kopplas till uppmätt vätgasbildning vid de försök som ursprungligen utförts av forskargruppen vid KTH inte kan förklara de ackumulerade korrosionsangrepp i storleksordningen 0,2 – 10 μm som har noterats vid fältförsök som LOT (SKB TR-09-29) med en varaktighet av något eller några år. Korrosionsangreppens omfattning anses istället vara kopplade till initial förekomst av syre.

5.3 Synpunkter från SSM:s externa experter

Szakálos Materials Science AB

SSM:s externa experter P. Szakálos och C. Leygraf anser att korrosion i rent syrgasfritt vatten demonstreras av förekomst av kuprit ($\text{Cu}_2\text{O}(\text{s})$) på korroderade kopparytor. Det extremt låga partialtrycket för vätgas som erhålls vid kemisk jämvikt anses endast gälla för ”torr” vätefri kuprit. Författarna menar att det finns minst två ytterligare former av relevanta korrosionsprodukter i detta sammanhang nämligen koppar(I)hydroxid ($\text{CuOH}(\text{s})$) och ”mättad” kuprit med högt väteinnehåll som når kemisk jämvikt vid partialtryck för vätgas inom intervallet 0,1 – 1 mbar. Man pekar också på korrosionsstudierna med mycket höga halter av klorid (Senior et al., 2019), med högre vätgasutveckling. Det faktum att frigjorda kopparjoner sorberar på bentonit anses utgöra ytterligare en drivkraft för den föreslagna korrosionsprocessen. För konsekvensanalysen konstateras dock att allmän korrosion som process (som även inbegriper förväntad mikrobiellt inducerad sulfidkorrosion) inte är gränssättande för kapselns livslängd eftersom det finns snabbare korrosionsprocesser.

Galson Sciences Ltd.

SSM:s externa experter J.R. Scully och T.W. Hicks konstaterar att omfattande experimentella studier har genomförts för att undersöka den ursprungligt formulerade hypotesen kring korrosion av koppar i rent syrgasfritt vatten. Författarnas helhetsbedömning av tillgängliga experimentella resultat är att de inte ger något stöd för spontan korrosion av koppar i rent syrgasfritt vatten. Föreslagna korrosionsprodukter så som $\text{Cu}(\text{OH})(\text{s})$ är termodynamiskt instabila. Den finns inte heller något experimentellt stöd för processen som vilar på konsensusförklaringar från flera undersökningar. Författarna noterar att det finns alternativa förklaringar förutom korrosion till mycket begränsad vätgasutveckling av intermittent karaktär som förekommit under flera experiment. Även om processen förutsätts äga rum blir korrosionsbidraget mycket mindre än vad som förväntas från sulfidkorrosion av koppar. Slutsatsen är därför att det saknas scenarier kopplat till processen som ytterligare behöver undersökas och att fortsatt forskning därför bör fokuseras kring den förväntade och mer relevanta sulfidkorrosionen av koppar.

5.4 SSM:s uppdaterade bedömning

SSM noterar att mer än ett decennium nu har passerat sedan de experimentella resultat som utgör grunden för den nuvarande diskussionen om korrosion i rent syrgasfritt vatten publicerades av forskare vid KTH (Szakálos m.fl. 2007), och mer än 30 år sedan idén om att en sådan process kan förekomma först föreslogs (Hultquist 1986). Studien som kom 2007 väckte stor uppmärksamhet och blev ett startskott för en rad undersökningar av den postulerade processen. Ett relativt stort antal studier avseende processen och dess potentiella omfattning har nu hunnit färdigställas och publiceras både nationellt och internationellt, av SKB respektive av andra aktörer, och detta bidrar således till att det nu finns en ny relativt omfattande experimentell grund för att kunna dra slutsatser om processen, och dess betydelse i en slutförvarsmiljö.

SSM konstaterar att viktiga detaljer kring resultat som åberopats till stöd för den föreslagna korrosionsprocessen strider mot sedan länge etablerad kunskap om kända kopparföreningars stabilitet och koppars korrosionsegenskaper. En signifikant vätgasutveckling orsakad av korrosion av koppar i syrgasfritt vatten motsägs av kända termodynamiska data. Jämviktsberäkningar baserat på data för kända komponenter i Cu-H-O systemet (dvs. koppar i rent vatten) visar att vätgasutvecklingen snarare upphör vid ett långt mycket lägre partialtryck kring 10^{-6} mbar efter en minimal oxidation av metallen och frigörelse av koppar(I)-joner. Den vätgasutveckling som förutses i detta fall är av så liten omfattning och har så liten drivkraft att den förmodligen är mycket svår att mäta, och är utan strålsäkerhetsbetydelse för ett slutförvar.

SSM anser att, även om det alltid bör finnas beredskap för att utveckla och ompröva grundläggande vetenskap, bör det också hållas i åtanke att den gängse förståelsen för koppars korrosionsegenskaper, liksom traditionell termodynamik för kopparföreningar, har varit känd länge och har länge varit accepterad av vetenskapssamhället i stort. SSM:s samlade bedömning av den information som framkommit sedan publiceringen av de experimentella resultat som gav upphov till det stora intresset för frågan (Szakálos m.fl. 2007) och fram till nu, är att korrosionsbidrag från den postulerade processen korrosion i rent syrgasfritt vatten i ett slutförvar förväntas vara försumbara. Det måste anses som osannolikt att det finns någon ännu ej isolerad och karakteriserad korrosionsprodukt som på ett avgörande sätt kan påverka korrosionsprocessens omfattning i slutförvarsmiljö på det sätt som föreslagits. För att en eller flera hittills okända kopparföreningar ska kunna påverka korrosionsförloppet behöver de utgöra mera termodynamiskt stabila faser än kända föreningar i Cu-H-O systemet. SSM känner inte till någon information som tyder på att sådana kemiska föreningar har isolerats, identifierats och karakteriserats experimentellt. För att verifiera att uppmätt partialtryck för vätgas i intervallet 0,1 – 1 mbar uppstått i samband med bildning av en hypotetisk hittills okänd fast fas så skulle en sådan fas behöva isoleras och karakteriseras med avseende på termodynamiska egenskaper.

Experimentellt uppmätt vätgasutveckling som stöd för processen gav visserligen ursprungligen ett viktigt skäl till att i detalj undersöka denna process på det sätt som har genomförts, men är, i avsaknad av annan väl underbyggd information om korrosionsprodukter som oundvikligen behöver bildas, inte tillräcklig för att verifiera den föreslagna processen. Det bör också påpekas att den process som har föreslagits och experimentellt studerats inte är direkt tillämplig för slutförvarsmiljön där kopparkapslarna exponeras för en kemiskt reducerande sulfidmiljö, snarare än rent syrgasfritt vatten. Även om kapselkorrosion som en följd av sulfidjoner generellt är mycket långsam tack vare den begränsade tillgången på sulfidjoner förväntas exponerade kapslar på sikt bli täckta av en sulfidfilm, snarare än av en (hydr)oxidfilm. Sulfidkorrosion av koppar producerar vätgas som skulle inhibera den föreslagna korrosionsprocessen, vilket även kan gälla för

eventuella koppar(I)joner som sorberats på bentonitlera. För andra komponenter i grundvatten förutom sulfid är förmodligen klorid mest betydelsefull pga. bildningen av starka komplex med koppar(I)-joner. Korrosionsexperiment visar att kloridhalten i grundvatten påverkar sulfidfilmens struktur (Chen m.fl. 2017a). En direkt påverkan på korrosionsprocessen som ger upphov till en betydande vätgasbildning även utan sulfidtillförsel avser dock enligt resultat från termodynamiska beräkningar endast kombinationen höga kloridhalter och låga pH-värden (SKBdoc 1398014). Låga pH värden kan dock inte förekomma i slutförvarsmiljön tack vare den rikliga förekomsten av pH-buffrande mineral.

Oavsett ovanstående bedömning finns ett värde i att utröna implikationer av om observationer kring vätgasbildningshastighet och jämviktstryck som har noterats vid vissa försök verkligen skulle ha orsakats av korrosion. Om materieöverföringsbegränsningar i buffert och berg bortses ifrån fås ändå generellt låga korrosionshastigheter i storleksordning 10-100 nm per år. Den ackumulerade skadan på den föreslagna kapselutformningen blir liten under sådana förhållanden och relevanta tidsperioder, dock inte helt försumbar som ovan. I detta fall blir en viktig begränsande faktor den experimentellt kvantifierade minskade vätgasutvecklingen med avtagande temperatur (Hultquist m.fl., 2015). Om en diffusionsstyrd borttransport av bildat väte genom en mättad buffert beaktas så erhålls ackumulerad korrosion som är ytterligare flera tiopotenser lägre för mättade deponeringshål. Den hypotetiska korrosionsprocessens avstannande vid tämligen låga partialtryck för vätgas (0,3 – 1 mbar) förklaras nämligen av ett närmande av kemisk jämvikt. Om så skulle vara fallet blir långsam materieöverföring i slutförvarsmiljön snarare än minskande temperatur den mest betydelsefulla begränsande faktorn.

Sammanfattningsvis är den mest avgörande frågan ur SSM:s strålsäkerhetsperspektiv om den postulerade processen korrosion av koppar i rent syrgasfritt vatten i den förväntade slutförvarsmiljön skulle påverka bedömningen av den föreslagna kopparkapselns utformning, och äventyra den föreslagna dimensioneringen av korrosionsbarriären. SSM anser att nytillkommen information ger ytterligare belägg för att processen endast sker i enlighet med vedertagen termodynamisk data och att den hursomhelst inte utgör något hinder för användning av koppar som en korrosionsbarriär i KBS-3 systemet på det sätt som har föreslagits. En viktig utgångspunkt för SSM:s ställningstagande är att KBS-3 metoden bl.a. av tillverknings skull har baserats på en 50 mm tjock korrosionsbarriär som medför generell tålighet i avseendet upprättande av en inneslutningsfunktion och goda marginaler för att motstå korrosionsprocesser.

6. Gropkorrosion

6.1 SSM:s tidigare slutsatser

SSM gjorde i samband med granskningen av SKB:s ansökan bedömningen att ett fall där kopparkapslarna påverkas av gropkorrosion inte helt kan uteslutas. Slutsatsen baserades på förutom den ursprungliga säkerhetsredovisningen också på ett flertal kompletteringar som begärdes in inom ramen för SSM:s beredning av ansökan enligt kärntekniklagen.

SSM:s slutsats om gropkorrosion baserades på att en passiverande film av kopparsulfid behöver bildas på kopparytan och sedermera delvis brytas ned för att möjliggöra lokal korrosion. Passiverande och kompakta kopparsulfidfilmer har i ett flertal studier visats kunna bildas vid sulfidhalter på omkring 0,5 mM (Chen m.fl. 2010, 2011a, 2011b, 2012). Motsvarande studier utförda i SSM:s regi (Mao m.fl. 2014) tillämpade elektrokemiska analysmetoder för att studera koppars korrosionsegenskaper vid något lägre sulfidhalter (0,2 mM) och vid varierande kloridhalt (0,01-5 M). Omfattningen av gropkorrosion karakteriserades i denna studie av gropfrättningsfaktorn PF ("Pitting Factor"), vilken

befanns variera mellan 4-14. I studien angavs skäl till en förväntad minskning av PF som funktion av tid och temperatur. Det har även visats att endast porösa kopparsulfidfilmer utan passiverande egenskaper bildas vid lägre sulfidhalter.

SSM konstaterade att sulfidhalter på förvarsdjup vid Forsmark är låga, generellt en eller ett par tiopotenser lägre än de nivåer som diskuteras ovan, men myndigheten pekade ändå ut två tänkbara fall då högre sulfidhalter skulle kunna förekomma lokalt i direkt anslutning till en kopparkapselyta. Det ena fallet innefattar att sulfid bildas direkt vid kopparytan genom mikrobiell sulfatreduktion innan buffertens svälltryck har byggts upp. Det andra fallet innefattar mikrobiell bildning av vätesulfid i återfyllnadsmaterialet som i gasform tillförs kapselytan via diffusion genom en ännu ej återmättad bentonitbuffert. Både fallen associeras således endast med den period då bufferten ännu inte uppnått full återmättnad.

För mättade förhållanden i bufferten gjordes bedömningen att risk för gropkorrosion är betydligt mindre eftersom de två ovanstående fallen kan uteslutas, och eftersom sulfid då endast kan tillföras genom långsam diffusion i vattenfasen. Korrosionsformer för kopparkapslar som är gynnade i deponeringshål med lång återmättnadstid respektive i deponeringshål i vilka eroderade förhållanden kan uppstå är endast i liten omfattning additiva eftersom de är kopplade till omgivande berg med helt olika lokala egenskaper. SSM konstaterade att ytterligare insatser för att bättre kvantifiera återmättnadsförloppet i deponeringshålsskala bör genomföras i kommande steg av SKB:s program. SSM föreslog att gropkorrosion under reducerande förhållanden explicit bör beaktas i SKB:s scenarioranalys för att utvärdera processens betydelse under olika förutsättningar under slutförvarets utveckling. SSM föreslog också att ackumulation av sulfid invid kapselytan vid behov kan begränsas eller möjligen helt elimineras med rimliga åtgärder, såsom exempelvis kravställning av mängder och förekomstformer för organiskt material i buffert och återfyllnad.

6.2 SKB:s tillkommande information

SKB:s komplettering till SR-Site innefattar ett betydande antal nya vetenskapliga studier av olika aspekter av gropkorrosion av koppar i sulfidmiljö. Dessa studier och experiment ligger till grund för den uppdaterade analys som utförs i (SKB TR-19-15) avseende processens betydelse i slutförvarsmiljön under reducerande kemiska betingelser.

Avseende gropkorrosion kan SKB:s kompletterande underlag delas in i tre kategorier:

- bildning av sulfidfilm på kopparytan
- studier av den korroderade kopparytans morfologi och topografi
- betydelsen av processen i förväntad slutförvarsmiljö

Utöver allmän korrosion identifierar SKB två olika typer av lokala korrosionsformer med olika mekanismer (SKB TR-19-15, figur 5-1; SKBdoc 1706406, avsnitt 2): gropkorrosion och mikrogalvanisk korrosion.

I studier utförda vid Western University i Ontario, Kanada (Chen m.fl. 2017b, 2018) har det visats att kopparytor täckta av tunna Cu_2S -filmer kan fungera som anoder som är galvaniskt kopplade till tjockare filmer som fungerar som katoder, vilket driver transport av koppar från anoder till katoder (Chen m.fl. 2017b) som kopparsulfidkomplex och kopparsulfidkluster (Chen m.fl. 2018). Denna mekanism benämns mikrogalvanisk korrosion.

SKB illustrerar schematiskt de morfologiska effekterna på kopparytan som uppstår som följd av mikrogalvanisk korrosion av koppar vid sulfidkoncentrationer högre än 0,5 mM i (SKB TR-19-15, figur 5-1 c). Gropar av grundare natur, i jämförelse med gropar som bildas genom gropkorrosion, bildas som följd av att anod- och katodarean är av liknande storlek. Mer specifikt kan det vid högre sulfidkoncentrationer (> 0,5 mM) ske filmtillväxt

som inte är jämnt fördelad över hela kopparytan, och man erhåller då tjockare och tunnare filmer. Lokalt på ytan kan det då uppstå en potentialskillnad mellan de mer porösa delarna på ytan, och delar som har en mer kompakt och tunn film. Detta kan i sin tur leda till en mikrogalvanisk koppling mellan dessa sektioner, vilket renderar en lokalt förhöjd korrosionshastighet i jämförelse med allmän korrosion som sker under de mer porösa delarna av kopparsulfidfilmen (Chen m.fl. 2017b).

SKB har låtit utföra experiment för att studera hur bildning av en kopparsulfidfilm sker mekanistiskt, liksom hur den bildade filmens egenskaper varierar beroende på i vilken omgivning kopparytan exponeras (SKB TR-19-15, avsnitt 5.3). Processen studeras dels under naturligt korroderande förhållanden, dels genom elektrokemiska experiment där potentialen kontrolleras med cyklisk voltametri. Effekten av olika anjoner på den bildade sulfidfilmens egenskaper har även studerats.

Under naturliga korroderande förhållanden har kopparprover exponerats i lösningar av varierade koncentrationer av sulfid- och kloridjoner. SKB har låtit kartlägga egenskaper hos bildade kopparsulfidfilmer som funktion av sulfidkoncentration, kloridkoncentration och sulfidflöde, simulerat i experimentuppställningen genom att låta diskelektroder rotera med varierande hastighet (bl. a. Chen m.fl. 2017a, King m.fl. 2017). Filmtillväxt sker i gränsskiktet mellan kopparsulfidfilmen och lösningen, och inte i gränsskiktet mellan metallytan och filmen (Martino m.fl. 2017), vilket innebär att kopparjoner måste transporteras genom filmen, och att vätesulfidjoner måste transporteras till filmytan, för att tillväxten ska fortgå. Vid stagnanta förhållanden och låga sulfidkoncentrationer ($\leq 0,1$ mM) bildas porösa filmer medan det vid höga sulfidkoncentrationer och högre sulfidflöden inducerade genom omrörning bildas kompakta filmer. Under stagnanta förhållanden är korrosionshastigheten transportbegränsad. Genom att utföra försök med en roterande diskelektrod kan man simulera ett högre sulfidflöde till filmytan vid samma bulkkoncentration, vilket kan öka gränsskiktets koncentrationen av vätesulfidjoner förutsatt att flödet är större än konsumtionshastigheten av sulfid vid filmytan. I sådana fall bildas kompakta kopparsulfidfilmer (Chen m.fl. 2010). SKB:s slutsats baserat på de studier som har diskuterats ovan är att under naturligt korroderande förhållande så kan kompakta sulfidfilmer endast bildas vid höga sulfid- och låga kloridkoncentrationer (SKB TR-19-15, avsnitt 5.3.1).

Baserat på elektrokemiska experiment under vilka potentialen kontrolleras (bl.a. Chen m.fl. 2017b, Martino .fl. 2014, Martino m.fl. 2017) har SKB låtit kartlägga vilka typer av filmer som kan bildas på kopparytan. Detta innefattar huruvida filmen är passiverande samt under vilka betingelser passivering kan ske (SKB TR-19-15, figur 5-9). I dessa typer av mätningar, så kallade cyklisk voltametri, mäts strömstyrkan som funktion av potential. Om ett passiverande skikt bildas vid scanning från lägre till högre potential, minskar strömstyrkan vid scanning i motsatt riktning, eftersom oxidationen av metallen hämmas av den bildade passiverade filmen. Erhålls ingen skillnad mellan de båda riktningarna har endast en porös icke-passiverande film bildats (Martino m.fl. 2104, 2017) och aktiv upplösning av metallen fortskrider.

Typ I-filmer benämns Cu_2S -filmer som är porösa och som bildas vid låga sulfidkoncentrationer oavsett sulfidflöde. Typ II-filmer kännetecknas av ett poröst bi-lager av filmer där den inre filmen är tunnare än den yttre. Denna typ av film kan bildas vid intermediära sulfidkoncentrationer och vid förhöjda kloridkoncentrationer. Eftersom korrosionsprodukternas (koppar(II)sulfid) molvolym är större än den för metallen sker en expansion och sprickbildning som medför att filmerna generellt blir porösa. Typ III-filmer är delvis passiverande och bildas endast vid höga sulfidkoncentrationer och höga sulfidflöden (Martino m.fl. 2014, 2017). I detta fall fyller koppar(I)sulfid igen mellanrummen mellan de porösa koppar(II)sulfidfilmerna, alternativt konverterar redan bildad Cu_2S till CuS

(Martino m.fl. 2014, figur 13). SKB:s huvudsakliga slutsats från dessa experiment är att passiverande kompakta kopparsulfidfilmer endast kan bildas vid höga sulfidkoncentrationer i kombination med höga sulfidflöden för att underhålla gränsskiktetskoncentrationen av vätesulfidjoner invid filmytan (SKB TR-19-15, avsnitt 5.3.2).

Effekten av olika anjoner, sulfat, karbonat och klorid, på filmens egenskaper har också studerats. Sulfationer hämmar bildandet av sulfidfilmer eftersom sulfat adsorberar starkt på kopparytan och blockerar tillförseln av sulfid. Detta innebär bildning av porösa kopparsulfidfilmer även vid höga sulfidhalter. Även klorid minskar tendensen att bilda passiverande kopparsulfidfilmer eftersom klorid på ett liknande sätt som sulfat adsorberar på kopparytan och blockerar möjligheten att bilda heltäckande sulfidfilmer. Liknande, fast svagare, effekter erhöles även för höga vätekarbonathalter (Martino, 2018).

Huttunen-Saarivirta m.fl. (2018) har tillämpat punktdefektmodellen PDM ("Point Defect Model") för att tolka elektrokemiska impedansspektroskopimätningar (EIS) på Cu_2S -filmer, vilka har bildats under fritt korroderande förhållanden och i samband med exponering för sulfatreducerande bakterier. SKB anser dock att PDM-modellen inte är applicerbar för att tolka experiment i vilka aktiv upplösning fortfarande pågår då passivering är ett initialt antagande som finns integrerat i modellen (Martino m.fl. 2019).

SKB:s huvudsakliga ståndpunkt avseende tillväxt av kopparsulfidfilmer är att dessa förväntas vara porösa till sin karaktär. Detta gäller dock inte om en hög sulfidkoncentration blir bestående invid filmytan, vilket är en situation som kan uppstå om tillförsel av sulfid är högre än vad som kan konsumeras genom korrosion. Tillväxt av filmer förväntas dock vara transportbegränsade och styras av tillförseln av sulfid, vilket medför porösa filmer med en linjär filmtillväxt. Passivering under stagnanta och naturligt korroderande förhållanden har endast observerats vid sulfidhalter över 0,1 mM. Tillväxt av kompakta filmer förväntas följa en parabolisk kinetik, vilket innebär att filmtillväxten styrs av diffusivt flöde av kopparjoner genom den kompakta filmen (Chen m.fl. 2017b, figur 1).

SKB har analyserat korroderade kopparytors topografi och morfologi under den sulfidfilm som bildas som följd av korrosion (SKB TR-19-15, avsnitt 5.4). Studierna har fokuserats på ytprofiler och morfologi för kopparprover som har exponerats för sulfidlösning, för gasformig sulfid för att simulera omättade förhållanden i bufferten samt för sulfatreducerande bakterier som bildar en biofilm på koppar.

Efter att ha avlägsnat bildade korrosionsprodukter från försök vid sulfidhalter från 0,05 mM och uppåt har den underliggande kopparytans profil studerats närmare. Vid försök som har utförts vid sulfidhalter om 0,5 mM erhålls korrosionsprofiler som är ojämna till sin karaktär. SKB anser att denna ojämnheter beror på mikrogalvanisk korrosion. Gropfrättningsfaktorer, definierat som kvoten mellan maximalt observerat korrosionsdjup och korrosionsdjupet som följd av allmän korrosion, från dessa försök uppgår till maximalt 20 (SKB TR-19-15, tabell 5-1).

SKB har även låtit studera ytmorfologi hos kopparytor som exponerats för gasformig vätesulfid (SKB TR-18-14). Såväl partialtryck för vätesulfid som experimentens längd varierades. Filmtjockleken hos bildad kopparsulfid var som väntat tjockast för de kopparprover som exponerats för högst sulfidhalt (1 vikt-% vätesulfid i gasfasen), och under längst tid (30 dagar) (SKB TR-18-14, avsnitt 3.2). Under samma förhållanden konstaterades en viss ojämnheter i den korroderade ytan men denna ojämnheter bedömdes inte vara orsakad av lokal korrosion (SKB TR-18-14, avsnitt 4). Ytkarakteriseringen byggde på jämförelse med oexponerade referensprover snarare än med den initiala ytprofilen av samma prov före exponering.

Frågan om en biofilm kan bildas på kopparytan under förhållanden då den mättade buffertens svälltryck inte hämmar mikrobiell aktivitet har undersökts genom analys av korrosionsprofiler på kopparprover som exponerades i biotiska lösningar under varierande tidsperioder. Kopparprover och förödlade sulfatreducerande bakterier (SRB) exponerades dels i en näringsfattig lösning, avsett att simulera grundvattnet i slutförvarsmiljö, dels i en mer näringsrik lösning. Korrosionsdjupet befanns som väntat öka med näringshalt och exponeringstid för de biotiska proverna (SKB TR-18-14). Även abiotiska referens-experiment genomfördes i vilka sulfid tillsattes motsvarande en halt på 3 mM.

Efter att de bildade kopparsulfidfilmerna i de olika försöken avlägsnats studerades de underliggande korrosionsprofilerna genom jämförelser med oexponerade referensprover. Korrosionsangrepp som kunde tolkas som en följd av lokal korrosion erhöles från försök i abiotisk lösning, och i den biotiska lösningen med högst näringshalt och längst exponeringstid. Mikrobiell sulfatreduktion medförde i det sistnämnda fallet en sulfidhalt på 12 mM. Korrosionsprofilerna bedömdes av SKB vara jämförbara med de som observerades i andra abiotiska försök (SKBdoc 1706406) i vilka angreppen kategoriserades som en följd av mikrogalvanisk korrosion. Förutom studierna som genomförts i SKB:s regi har motsvarande resultat erhållits från andra försök med kopparkorrosion under en biofilm (Chen m.fl. 2014, Dou m.fl. 2018). De resulterande sulfidhalterna som följd av mikrobiell sulfatreduktion i dessa försök motsvaras av de abiotiska förhållanden vid vilka mikrogalvanisk korrosion har observerats (Chen m.fl. 2017b).

Baserat på de resultat som har erhållits definierar SKB en nedre gräns för sulfidflux över vilken passiverande förhållanden och lokal korrosion kan uppstå (SKB TR-19-15, tabell 5-2). Under denna gräns anser SKB att det inte finns någon risk för lokal korrosion. För att sedan kunna uppskatta processernas betydelse i slutförvarsmiljön jämförs sedan detta tröskelvärde med maximala beräknade sulfidflöden som kan tänkas kunna uppstå i slutförvarsmiljön under olika buffertförhållanden så som omättad intakt buffert, mättad intakt buffert samt eroderad buffert.

För att kunna uppskatta ett tröskelvärde för sulfidflöde utifrån de experiment man låtit utföra tillämpar SKB två olika tillvägagångssätt. Som nämnts i avsnittet om sulfidfilmens egenskaper ovan menar SKB att porösa filmer växer linjärt eftersom de styrs av tillförsel av sulfidjoner, och således begränsas av materieöverföring av sulfid. Baserat på kurv-anpassningar till resultat från de försök som utförts i (Chen m.fl. 2017b) vid en sulfidhalt på 0,05 mM, vid vilken en porös film har observerats, erhålls ett sulfidflöde på $3 \cdot 10^{-10}$ mol/(m² s) (King m.fl. 2017). SKB uppskattar dock konservativt ett tröskelvärde för sulfidflöde baserat på mätningar av hastigheten för konsumtion av sulfid i lösning och erhåller då $2 \cdot 10^{-8}$ mol/(m² s) (King m.fl. 2017, figur 3). För att sätta dessa värden i relation till förväntad slutförvarsmiljö jämför SKB sedan tröskelvärdena med sulfidflöden som erhöles för de åtta deponeringshål (av totalt sex tusen) påverkade av de högsta grundvattenflödena och för olika uppmätta halter sulfid i Forsmarks grundvatten (SKB TR 19-15, figur 5-16).

Avseende omättade buffertförhållanden argumenterar SKB baserat på beräkningar (SKBdoc 1696975) att det maximala gasformiga sulfidflödet som kan erhållas i slutförvarsmiljö är $7 \cdot 10^{-11}$ mol/(m² s). Detta är mer än två storleksordningar under det ovan beskrivna tröskelvärdet under vilket korrosion är transportbegränsad och lokal korrosion utesluten. Förutsättningar för lokal korrosion, eller mikrogalvanisk korrosion, finns därmed inte för omättade förhållanden enligt SKB:s analys (SKB TR-19-15, avsnitt 5.5.3). Gränsskiktetskoncentrationen av vätesulfid vid kopparytan är nära noll vid en transportbegränsad kinetik, medan den sulfidkoncentration som fordras för att underhålla mikrogalvanisk korrosion enligt experimentella observationer snarare motsvarar 0,5 mM (Chen m.fl. 2017b).

Vid mättade förhållanden konstaterar SKB att tröskelvärde för uppkomst av kompakta passiverande filmer underskrids med cirka fyra storleksordningar, även för det högsta uppskattade sulfidflödet under sådana förhållanden. I detta fall är gränsskiktsskoncentrationen av sulfid vid kopparytan nära noll eftersom det högsta sulfidflödet som kan uppnås i ett deponeringshål är $1,5 \cdot 10^{-12}$ mol/(m² s). Vid ett så lågt flöde konsumeras sulfid genom korrosion innan en betydande gränsskiktsskoncentration hinner byggas upp.

I eroderade deponeringshål är en betydligt mer omfattande sulfid tillförsel möjlig i jämförelse med mättade intakta förhållanden eftersom sulfid kan nå kopparytor via advektion. Det högsta sulfidflödet vid eroderade buffertförhållanden uppskattas till 10^{-9} mol/(m² s) (King m.fl. 2017), vilket är jämförbart med det tröskelvärde för sulfidflöde som har uppskattats från linjär tillväxt av en porös kopparsulfidfilm (se ovan). Det behöver samtidigt beaktas att den koncentration vid vilken man observerat mikrogalvanisk korrosion (0,5 mM) är jämförbar med den högsta uppmätta koncentrationen i Forsmarks grundvatten (0,12 mM). SKB kan därför inte utesluta att mikrogalvanisk korrosion skulle kunna ske under eroderade buffertförhållanden. Processen har därför propagerats med beräkningsfallet eroderad buffert till dosberäkningarna med syfte att uppdatera analysen av kravuppfyllelse. I denna beräkning beaktas resultat från försök i sulfidlösningar, som uttrycks som kvoten av det maximala observerade relativa djupet på en grop från mikrogalvanisk korrosion i förhållande till korrosionsdjupet som motsvarar allmän korrosion (SKBdoc 1706406). Detta motsvarar en gropfrättningsfaktor (PF) på 20. Denna PF appliceras i de uppdaterade dosberäkningarna för de kapslar i deponeringshål i vilka bufferterosion förväntas orsaka advektiva förhållanden och där det resulterande sulfidflödet förväntas överskrida $2 \cdot 10^{-10}$ mol/(m² s) (SKB TR-19-15, avsnitt 5.5.4).

6.3 Synpunkter från SSM:s externa experter

Szakálos Materials Science AB

SSM:s externa experter P. Szakálos och C. Leygraf diskuterar resultat från ett antal experiment och fältförsök, bland andra FEBEX-försöket, vissa försök utförda i SKB:s regi, och även laboratorieförsök för jämförelser mellan korrosionsangrepp i abiotiska och biotiska lösningar (Marja-aho m.fl. 2018). Szakálos och Leygraf anser att SKB:s argument avseende en kompakt kopparsulfid som förutsättning för lokal korrosion är felaktigt, baserat på analys av ett antal kopparytor som har exponerats för anoxiska förhållanden under ett antal experiment, bl.a. FEBEX. Szakálos och Leygraf ifrågasätter även SKB:s bedömning att korrosion som följd av mikrobiell aktivitet aldrig har observerats i förhållanden jämförbara med förväntat slutförvarsmiljö och menar på att studierna är representativa för slutförvarsmiljön i Forsmark.

Galson Sciences Ltd.

SSM:s externa experter J.R. Scully och T.W. Hicks kommenterar utförligt den vetenskapliga diskussion som föreligger avseende förutsättningar för och observationer kring passivering av kopparytor exponerade i sulfidmiljö. Scully och Hicks konstaterar att en förklaring till de olika observationerna härrör från att olika kopparmaterial har använts, men man påpekar även att det finns ytterligare förutsättningar som behöver beaktas såsom till exempel förekomst av defekter i passivfilmen för att filmen ska kunna brytas ned lokalt och gropbildning ska kunna initieras. De externa experterna anför vidare att SKB:s slutsatser avseende förekomsten av mikrogalvanisk korrosion behöver förstås ytterligare. Scully och Hicks betonar att jämförelse kring förutsättningar för lokala

korrosionsfenomen med system i andra industriella tillämpningar skulle kunna belysa processen ytterligare.

6.4 SSM:s uppdaterade bedömning

SSM anser att SKB:s huvudsakliga argumentation kring förutsättningarna för gropkorrosion, så som att det mekanistiska förloppet för gropkorrosion utgår från att en passiverande kopparsulfidfilm har bildats på kopparytan, är väl underbyggt. SSM konstaterar att SKB, baserat på sitt utökade experimentella underlag, har kunnat definiera gränsvärden för sulfidkoncentration och sulfidflöde, under vilka en passiverande kopparsulfidfilm inte bildas. SSM bedömer att dessa gränsvärden är rimliga. SSM anser vidare att SKB:s tillvägagångssätt att jämföra dessa erhållna gränsvärden för sulfidflöden med uppskattade sulfidflöden i olika faser av buffertens utveckling (omättad, mättad och eroderad buffert) är ett lämpligt förfarande för att utröna förutsättningar för processens initiering och propagering i slutförvarsmiljön och under olika skeden i slutförvarets utveckling.

Osäkerheter kopplade till lokala korrosionsangrepp under omättade buffertförhållanden var en fråga som SSM tog upp i sin granskningsrapport från tillståndsprovningen (SSM, 2018). SSM anser att SKB genom sitt utökade experimentella underlag har tillfört betydande ny information avseende risken för lokala korrosionsangrepp under den omättade fasen. Exempel på sådana studier är exponering av koppar för gasformig vätesulfid liksom experimentella studier kring betydelsen av mikrobiell aktivitet för korrosionsprocesser. Detaljerade bedömningar avseende dessa experiment och tillhörande resultat återfinns längre ned i detta avsnitt.

Avseende mättade buffertförhållanden under vilka bufferten förblir intakt bedömer SSM att risken för gropkorrosion är mycket liten. Denna slutsats baseras på att materieöverföring med hög tilltro förblir diffusionsstyrd och mycket långsam under sådana förhållanden.

SKB har inte kunnat utesluta risken för gropkorrosion för de deponeringshål i vilka betydande bufferterosion har ägt rum. Denna slutsats har baserats på de etablerade gränsvärdena för sulfidkoncentration och sulfidflöden och beräknade sulfidflöden för omättade förhållanden. Under dessa förutsättningar kan kapselbrott äga rum i en relevant tidskala och SKB därför integrerat ett beräkningsfall i riskanalysen som beaktar effekten av gropkorrosion för fallet eroderad buffert. SSM konstaterar därmed att den explicita hanteringen av processen i konsekvensanalysen genom ett försiktigt val av gropfrättningsfaktor medför att processens strålsäkerhetsmässiga betydelse har blivit beaktad. SSM bedömer de uppdaterade konsekvensberäkningarna i avsnitt 10 i denna granskningsrapport.

Eftersom sulfidflöden under omättade buffertförhållanden underskrider gränsvärdet för gropkorrosion har detta fall inte förts vidare till konsekvensanalysen. SKB har gjort det troligt att sulfidflöden under den omättade fasen är väsentligt lägre än vad som var känt under tillståndsprovningen av ansökan. SSM bedömer därför att risken för betydande gropkorrosion under den omättade fasen ytterligare har minskat. Eftersom denna bedömning delvis är baserad på en begränsad informationsmängd anser SSM att gropkorrosion bör på ett tydligare sätt integreras i SKB:s kommande säkerhetsanalyser för att bättre förstå dess eventuella betydelse för exempelvis optimering av detaljkonstruktion och tillverkningskrav. SKB kan behöva tillämpa åtgärder för att ytterligare minska risk för ackumulering av sulfid i kopparkapslarnas omedelbara närhet, exempelvis genom en tydligare kravställning av mängder och förekomstformer av organiskt material i buffert och återfyllnad.

SSM ser positivt på att ett betydande tillskott av vetenskapliga studier har utförts på uppdrag av SKB som en del av kompletteringen. Dessa har medfört en fördjupad förståelse för lokala korrosionsfenomen och deras eventuella betydelse i slutförvarsmiljön. Studierna bedöms överlag att ha hög vetenskaplig kvalitet med en belysning av processen från flera perspektiv, med hjälp av bland annat elektrokemiska experiment för att studera passivering av kopparytan i sulfidmiljö, och även metallografiska studier för att kartlägga kopparytans topografi och morfologi. Studierna inkluderade koppar som har korroderats i både abiotisk och biotisk sulfidlösning, samt även i en gasfas efter reaktion med gasformig sulfid.

SSM har även för att skaffa sig ett oberoende underlag att jämföras med SKB:s teoretiska och experimentella studier av korrosionsprocesser i sulfidmiljö låtit genomföra ett antal korrosionsexperiment i sulfidmiljö (dnr SSM2016-4485). Slutrapporten väntas publiceras under hösten 2019. De experimentella studierna inriktades mot att reproducera de av SKB finansierade experimentella studierna i huvudsak innefattande lokala korrosionsfenomen hos koppar i sulfidmiljö (bl.a. Chen m.fl. 2017b, 2018). Preliminära resultat från dessa nyligen utförda elektrokemiska potentiodynamiska studier indikerar att passiveringsegenskaperna hos OFP-koppar skiljer sig från de hos ren koppar. Under sådana kemiska betingelser då gropbildning börjar induceras på ren koppar observeras däremot ingen gropbildning på OFP-koppar, som är det kopparmaterial som ska användas för kopparkapseln.

I en annan studie som delvis har finansierats av SSM (Huttunen-Saarivirta m.fl. 2018) har elektrokemiska impedansspektroskopiexperiment (EIS) genomförts. Försöksresultaten tolkas inom ramen för PDM ("*Point Defect Model*"), en teoretisk modell som har utvecklats av Digby Macdonald och hans medarbetare (Macdonald 1992) för att beskriva tillväxt, *steady state*-egenskaper samt även nedbrytning av passiverande filmer på metaller och metallegeringar. Modellen postulerar att passiverande filmer utgörs av två filmlager, varav det inre lagret, barriärlagret som innehar punktdefekter, växer mot metallen och det yttre, porösa lagret som inte innehar punktdefekter, växer utåt mot lösningen genom utfällning av katjoner som transporteras genom barriärlagret samt genom upplösning av barriärlagret på samma position (Huttunen-Saarivirta m.fl. 2018, Figur 1).

Experimenten i studien innefattar exponering av kopparprover för sulfatreducerande bakterier i simulerat grundvatten under 10 månader. Egenskaperna hos den bildade kopparsulfidfilmen på kopparytan tolkas sedan inom ramen för PDM-beskrivningen. Den bildade filmens passiverande barriärlager utgör endast 0,3 % av filmens tjocklek medan den övriga delen är en porös kopparsulfidfilm. Nedbrytning av passiveringen, eller initiering av gropbildning, observeras dock inte av Huttunen-Saarivirta för OFP-koppar i SRB-innehållande simulerat grundvatten. Man observerade inte heller någon nedbrytningspotential eller gropkorrosionspotential i de elektrokemiska impedansspektroskopiska (EIS) mätningarna som utfördes för att analysera den bildade filmens egenskaper inom ramen för PDM. Att man inte observerar någon nedbrytning av den passiverande filmen förklaras med att nedbrytningspotentialen (gropkorrosionspotentialen), vilken av författarna förväntades vara överträdd jämfört med tidigare studier (Mao m.fl. 2014), i det aktuella försöket har ökat och ligger utanför det potentialfönster som scannades i experimentet (Huttunen-Saarivirta m.fl. 2018). Ändringen i nedbrytningspotentialen ansågs bero på att kloridkoncentrationen, temperaturen och scanningshastigheten skiljer sig i jämförelse med tidigare experiment (Mao m.fl. 2014). I Mao m.fl. (2014) fastställdes en nedbrytningspotential för ren koppar, dvs. inte OFP-koppar, vid liknande betingelser som i den aktuella studien av Huttunen-Saarivirta m.fl. (2018). I försök som tidigare utförts i SKB:s regi (Martino m.fl. 2017) i syfte att reproducera resultaten i (Mao m.fl. 2014) när Shoemith och medarbetare i stället

slutsatsen att vad som observeras är kloridinducerad anodisk upplösning av koppar genom bildning av lösliga kopparklorid-species.

SSM konstaterar, i likhet med sina externa experter J.R. Scully och T.W. Hicks, att det råder en diskussion i den vetenskapliga litteraturen avseende huruvida koppar kan passiveras i sulfidmiljö och vilka förutsättningar som i sådana fall fordras, och att det finns vissa skillnader i synen på definitionen av passivering som ett elektrokemiskt fenomen. SSM noterar dock avseende denna diskussion, liksom Scully och Hicks, att Macdonald och hans medarbetare instämmer med de SKB-finansierade forskarna om att OFP-koppar inte genomgår groppkorrosion vid sulfidkoncentrationer på 0,1 mM (Huttunen-Saarivirta m.fl. 2019). I perspektivet långsiktig strålsäkerhet bedömer SSM att det är denna, för grupperna, gemensamma slutsats avseende groppkorrosion som har störst relevans för ett KBS-3-slutförvars långsiktiga strålsäkerhet.

Vidare noterar SSM att Macdonald erhåller resultat som tyder på att OFP-koppar inte genomgår groppkorrosion i lösningar med sulfidkoncentrationer på 0,1 mM men att ren koppar vid samma betingelser uppvisar tendenser till groppkorrosion (dnr SSM2016-4485). Mot denna bakgrund anser SSM att det skulle vara fördelaktigt att utreda vilken roll fosfor har rent mekanistiskt för lokala korrosionsprocesser. En ökad mekanistisk förståelse för denna typ av processer som funktion av materialsammansättningen skulle ge ytterligare möjligheter för att korrelera ställda materialkrav med degraderingsprocesser som kan ha betydelse för långsiktig strålsäkerhet.

SKB har studerat bildade sulfidfilmers egenskaper som funktion av andra anjonkoncentrationer (sulfat, karbonat och klorid). SSM konstaterar att SKB:s resultat generellt tyder på att passivering av sulfidfilmer hämmas av andra anjoner som adsorberar på kopparytan och förhindrar heltäckande tillväxt av kopparsulfidfilmer, vilket renderar porösa filmer. SKB diskuterar inte explicit denna observation i samband med sin analys av en eventuell saunaeffekt, vilken i huvudsak avser potentiell utfällning av fasta kloridfaser efter förångning och borttransport av vatten från kapselytan. SSM kan dock konstatera en sauna-effekt som innefattar sulfat-, karbonat-, och/eller kloridfaser skulle tillgängliggöra motsvarande anjoner, vilket enligt de ovanstående observationerna snarare hämmar än främjar lokala korrosionsprocesser. SSM:s bedömning av SKB:s underlag kopplat till sauna-effekten återfinns i avsnitt 4 i denna granskningsrapport.

SSM anser att det har skett en betydande utveckling av SKB:s förståelse för lokala korrosionsprocesser som bygger på metallografiska undersökningar av korroderade kopparytor och dess profiler efter korrosionsangrepp. SKB har utfört studier i olika medier under olika betingelser vilket inkluderar sulfidlösningar, gasformig sulfid och även i biotiska lösningar. SSM bedömer att detta underlag bidrar till att ge en mer allsidig överblick av effekterna av lokala korrosionsprocesser vilket inte fanns tillgängligt i samband med SSM:s granskning av SKB:s ursprungliga ansökan.

SSM konstaterar att studierna som simulerar omättade förhållanden genom att exponera kopparprover för gasformig vätesulfid har utförts under förhållandevis kort tid. Proverna visar ändå på en viss ojämnhet i korrosionsprofilerna som författarna till studien menar beror på den enligt referensprover ursprungliga oexponerade kopparytans ojämnhet. Slutsatsen är således att ingen lokal korrosion har förekommit. SSM anser det dock vara värt att notera att det försök som utfördes vid högst halt gasformig sulfid motsvarar en vätesulfidhalt i vattenlösning på 0,2 mM, vilket är jämförbart med koncentrationer i sulfidlösningar som genererat lokala korrosionsangrepp. SSM anser därför att ytterligare experimentella studier under kommande steg i SKB:s program är berättigade för att på ett mer definitivt sätt karaktärisera förutsättningar för och effekter av möjliga korrosionsprocesser under buffertens återmättnad som en följd av tillförsel av gasformig vätesulfid

från återfyllnaden. Sådana resultat kan eventuellt bidra till optimering av detaljkonstruktioner och tillverkningskrav.

Beträffande påverkan av mikrobiell aktivitet på kopparkorrosion noterar SSM att det utöver SKB:s studier har utförts ytterligare experiment (Huttunen-Saarivirta m.fl. 2016; Huttunen-Saarivirta m.fl. 2017). I (Huttunen-Saarivirta m.fl. 2016) studeras och jämförs kopparkorrosion som skett i biotiska och abiotiska lösningar. Baserat på gravimetriska mätningar, i vilka massan av kopparprover före och efter exponering mäts och jämförs, erhålls korrosionshastigheter i biotiska lösningar som är cirka hälften av de som erhålls för kopparproverna som exponerats i abiotiska lösningar. Korrosionen kategoriserades i fallet med biotisk lösning som av allmän karaktär. I (Huttunen-Saarivirta m.fl. 2017) studerades korrosion av kopparprover exponerade för simulerat grundvatten innehållandes mikroorganismer tagna från platsen Olkiluoto där det finska slutförvaret för använt kärnbränsle håller på att byggas. I de biotiska experimenten erhöles resultat från röntgendiffraktionsmätningar som visade att ett Cu_2S -lager hade bildats på kopparytan. I det biotiska experimentet som fortgick under längst tid var den resulterande sulfidkoncentrationen i lösningen vid slutet av experimentet, som följde av mikrobiell sulfatreduktion, 0,2 mM. Inga lokala korrosionsangrepp rapporterades i denna studie.

SSM noterar att Szakálos och Leygraf i sin granskning åberopar resultat från samma forskargrupp (Marja-aho m.fl. 2018) och där man utgår ifrån att förhållanden under experimenten är jämförbara med förväntad slutförvarsmiljö vid Forsmark. I Marja-ahostudien exponeras kopparprover för en vattenlösning i kemisk jämvikt med bentonit och i vilken sulfatreducerande bakterier hade tillsatts. Den mikrobiella aktiviteten under dessa experiment medförde en resulterande sulfidhalt som uppgick till 0,2 mM. Försöken innefattade dock inte kompakterad bentonitlera med en kapacitet att begränsa kopparyornas exponering för sulfid. SSM anser således att försöksupställningen inte är representativ för slutförvarsmiljön med materieöverföringsbegränsningar, liksom de begränsningar av mikrobiell aktivitet som har visats uppnås i en buffert med utvecklat svälltryck, vilket dock antyds i Szakálos och Leygrafs granskning.

SSM anser att SKB:s tolkning av korrosion till följd av en bildad biofilm med sulfatreducerande bakterier är rimlig, nämligen att de lokala angrepp som har observerats i (SKB TR-18-14) har uppstått som en följd av mikrogalvanisk korrosion enligt en mekanism analog med den som sker under abiotiska förhållanden och som har rapporterats i (Chen m.fl. 2017b). Denna förklaring innebär att sulfatreducerande bakterier i första hand bidrar till att förhöja sulfidhalten invid kopparytan snarare än att utgöra en integrerad del av korrosionsmekanismen. Trots begränsad betydelse inom ramen för konsekvensanalys anser SSM, i likhet med experterna Scully och Hicks, att en ökad förståelse för förutsättningarna för mikrogalvanisk korrosion bör eftersträvas. SSM anser även att SKB i kommande steg av sitt program bör genomföra fler studier för att tydligare utröna eventuella mekanistiska bidrag från sulfatreducerande bakterier på korrosionen. SSM vill dock påpeka att mikrobiell påverkan på korrosion hur som helst har en begränsad påverkan på strålsäkerheten efter förslutning eftersom processen endast avser eroderade förhållanden i deponeringshål och möjligen även den inledande fasen då bufferten är omättad, vilka utgör förhållanden då mikrobiell aktivitet i anslutning till kopparytan inte kan uteslutas. SKB har redan ett utförligt underlag kring processen under den tid bufferten har utvecklat fullt svälltryck (Motamedi m.fl., 1996; Motamedi, 1999; Pedersen m.fl., 2000a, 2000b; Pedersen, 2010).

SSM noterar att Szakálos och Leygraf anför att gropkorrosion har ägt rum under anoxiska betingelser i fältförsök och hänvisar till resultat i SKB:s fältförsök *Alternative Buffer Material* (ABM) (SKB TR-18-17) liksom till FEBEX-försöken (Wersin och Kober 2017). Man menar att denna slutsats kullkastar SKB:s argument att kompakta sulfidfilmer

erfordras för att möjliggöra lokala korrosionsangrepp. SSM konstaterar dock att studien fastslår (Wersin och Kober 2017, avsnitt 5.1.2) att observerade korrosionsangrepp, både allmänna och lokala tillskrivs resultatet av korrosion under oxiderande förhållanden, det vill säga som en följd av reaktion med kvarvarande syre. SSM instämmer i detta avseende med studiens författare. Avseende ABM-försöken konstaterar SSM att de gropliknande defekter som Szakálos och Leygraf åberopar i sin granskningsrapport som resultatet av anoxisk gropkorrosion, även har observerats på referensprover som under försökets gång förvarades inomhus vid rumstemperatur (SKB TR-18-17, avsnitt 4).

SSM konstaterar att SKB (SKB TR-19-15) har modifierat sin konsekvensanalys genom att explicit beakta mikrogalvanisk korrosion för kopparkapslar i deponeringshål med eroderad buffert. SSM noterar vidare att SKB har valt en gropfrättningsfaktor (PF) 20 för att representera korrosionsprocessen i konsekvensberäkningarna, vilket är det högst uppmätta experimentella värdet i försöksserien (SKB TR-19-15, tabell 5-1). I andra studier postuleras att PF tenderar att minska med såväl tid som temperatur och når konstanta värden som underskrider de som SKB ansätter i sitt beräkningsfall (MacDonald m.fl. 2016, avsnitt 5.5). SSM bedömer således SKB:s antagna PF-värde som rimligt och bygger på konservativa antaganden. SSM bedömer mer utförligt resultaten i SKB:s uppdaterade riskanalys i avsnitt 10 i denna rapport.

7. Spänningskorrosion

7.1 SSM:s tidigare slutsatser

Spänningskorrosion av koppar associeras, baserat på sedan tidigare välkända mekanismer, i första hand med bildandet av ett passiverande oxidskikt, förekomst av dragspänningar samt vissa aggressiva species i den omgivande miljön (så som acetat, ammonium och nitrit), vilket för slutförvaret möjligen skulle kunna ske under den inledande oxiderande fasen efter förslutning då det fortfarande finns syrgas kvar i deponeringshålen. SSM konstaterade dock att perioden med oxiderande betingelser sannolikt inte sammanfaller med en period med utvecklade dragspänningar i kopparhöljet. Den oxiderande fasen bedömdes ta slut innan återmättnaden av bufferten med utveckling av hydrostatiskt- och svälltryck kunnat ge upphov till betydande dragspänningar i kopparhöljet. SSM ansåg därför att denna typ av process är av mindre betydelse för slutförvarets långsiktiga strålsäkerhet.

SSM konstaterade att vid tidpunkten för SSM:s yttrande till mark- och miljödomstolen var antalet vetenskapliga studier som adresserat frågor kopplat till en eventuell spänningskorrosion av koppar i sulfidmiljö i frånvaro av syre mycket begränsat. De föreslagna mekanismerna för spänningskorrosion fordrar att en passiverande film har bildats på kopparytan samt att dragspänningar föreligger som kan initiera och propagera en sprickbildning. Närvaron av en passiverande film som förutsättning för processen medförde att SSM:s bedömning med avseende på spänningskorrosion i sulfidmiljö i stort överensstämde med den som gjordes för gropkorrosion i sulfidmiljö. Risker för att spänningskorrosion bedömdes som mycket liten om sulfidhalterna i slutförvarsmiljön konsekvent håller låga nivåer så att ingen kompakt, passiverande film av kopparsulfid kan bildas på kopparytan. I samband med att bufferten nått full återmättnad elimineras såväl risken för transport av gasformig sulfid som eventuella gynnsamma förutsättningar för mikrobiell aktivitet. SSM drog därför slutsatsen att risken för spänningskorrosion är liten efter att full återmättnad uppnåtts.

Eftersom dessa förhållanden inte nödvändigtvis gäller för omättade förhållanden bedömde SSM att denna tidiga fas i slutförvarets långsiktiga utveckling behöver uppmärksammas

mera i kontexten spänningskorrosion i sulfidmiljö. SSM ansåg att SKB behöver genomföra en utförligare analys kring förutsättningar för spänningskorrosion i slutförvarsmiljön samt mer explicit redovisa konsekvenser kopplat till att processen kommer till stånd med beaktande av inte bara kemiska betingelser utan även lastsituationen i deponeringshål för det breda intervallet av återmättnadstider som förutses som en följd av varierande förekomst av vattenförande sprickor i det omgivande berget.

På samma sätt som för gropkorrosionsprocessen konstaterade SSM att SKB behöver eftersträva en förbättrad förståelse för det detaljerade återmättnadsförloppet i deponeringshålsskala. Mot bakgrund av att SSM bedömer att gropkorrosion och spänningskorrosion under reducerande förhållanden inte helt kan uteslutas betonades i (SSM, 2018) vikten av att processen beaktas i kontexten av en scenarioanalys för att utröna processens betydelse under olika förutsättningar under slutförvarets utveckling.

SSM konstaterade att förutsättningar som medför ökad spänningskorrosionsrisk så som en betydande ackumulation av sulfid invid kapselytorna vid behov kan påverkas och reduceras med rimliga åtgärder, såsom exempelvis kravställning av mängder och förekomstformer av organiskt material i buffert och återfyllnad.

SKB diskuterade i SR-Site den så kallade Aaltonen-mekanismen, som inte kräver att en passiverande sulfidfilm har bildats på kopparytan. Mekanismen associerades å andra sidan även den med betydande halter sulfid i anslutning till kopparytan, vilket bedöms vara ett osannolikt fall under mättade buffertförhållanden. SSM noterade dock att SKB inte helt kunnat utesluta denna mekanism och konstaterade därför att ytterligare insatser behövde genomföras.

7.2 SKB:s tillkommande information

SKB:s kompletterande material (SKB TR-19-15) fokuserar på att adressera processens betydelse i slutförvarsmiljö i sulfidmiljö i enlighet med mark- och miljödomstolens yttrande till regeringen. SKB:s komplettering till SR-Site innefattar ett antal nya vetenskapliga studier av olika aspekter av spänningskorrosion av koppar i sulfidmiljö. Dessa studier och experiment ligger till grund för den uppdaterade analys som utförs i (SKB TR-19-15) avseende processens betydelse i slutförvarsmiljön.

SKB:s kompletterande underlag kan delas in i två kategorier:

- Genomgång och bedömning av befintliga vetenskapliga studier med koppling till spänningskorrosion i sulfidmiljö
- Analys av betydelsen av processen i förväntad slutförvarsmiljö

SKB diskuterar även interkristallin korrosion IGC (*InterGranular Corrosion*) som en process besläktad med spänningskorrosion där korrosion ytligt propagerar längs med korngränser i kopparmaterialet.

Spänningskorrosion har studerats experimentellt i första hand genom dragprovning av kopparprover i sulfidlösningar för att belysa mekanismer och förutsättningar för spänningskorrosion. SKB presenterar i TR-19-15 översiktligt resultaten från de olika studierna och bedömer dess tillämpbarhet.

Studierna av Taniguchi m.fl. (Taniguchi och Kawasaki, 2008; Taniguchi m.fl., 2007 och 2008) resulterade i de första konstaterade fallen med spänningskorrosion av koppar i vattenlösningar med hög sulfidkoncentration. Dessa studier är utförda vid sulfidhalter kring maximalt 10 mM och med en koppartyp som benämns PDO-koppar och som innehar låga halter fosfor om tiotals vikt-ppm. Förekomst av ytliga sprickor om 50 µm

kunde konstateras efter exponering vid den högsta sulfidhalten om 10 mM. Även viss försämring av materialegenskaper, såsom duktilitet, kunde konstateras. Författarna själva tolkar dessa resultat som att koppar genomgår spänningskorrosion vid sulfidhalter på 5-10 mM sulfid, medan korrosion vid lägre halter snarare utgörs av en form av interkristallin korrosion. SKB:s motsvarande analys av resultaten från dessa studier är att sprickbildningen även vid den högsta sulfidhalten är lokaliserade till korngränser. Detta innebär en form av interkristallin korrosion där dragspänningarna i försöksuppställningen medför att sprickorna vidgas, snarare än att sprickorna är resultatet av en mer renodlad form av spänningskorrosion.

SKB lät upprepa försöken som gjordes av Taniguchi (SKB TR-12-06) under liknande förhållanden, fast på prover baserade på OFP-koppar. I dessa försök erhöles inga resultat som tydde på spänningskorrosion även om vissa tendenser till interkristallina korrosionsangrepp noterades. Slutsatsen från studien var att korrosionshastigheten i sprickspetsen kontrolleras av inåtriktad sulfiddiffusion vilket i praktiken innebär att processen blir transportbegränsad (SKB TR-12-06, avsnitt 4).

I studier utförda av VTT i Finland gjordes också experiment med syftet att reproducera de ursprungliga försöken av Taniguchi m.fl. I dessa uppställningar (Arihathi m.fl., 2011) användes provstavar som försetts med sprickanvisningar för att kontrollera initiering och lokalisering av spricktillväxt. Ingen sprickpropagering skedde i dessa försök men däremot viss inträngning av sulfid i regionen framför sprickspetsen för den initialt anvisade sprickan.

Studier finansierade av SSM har haft ambitionen att genom en form av dragprovning SSRT (*Slow Strain Rate Testing*) av OFP-koppar i sulfidmiljö identifiera ett tröskelvärde för dragspänning och sulfidkoncentration under vilka spänningskorrosion inte skulle kunna ske (SSM Report 2017:02). Försöken utfördes i sulfidlösningar med varierad halt (0,01, 0,1 och 1 mM). Vid den högsta halten konstaterades viss sprickbildning även om sprickorna noterades vara grunda, cirka 50 µm. Författarna till studien postulerade baserat på resultaten ett tröskelvärde för sulfidkoncentration på mellan 1 mM och 0,1 mM under vilket spänningskorrosion inte förväntas kunna förekomma. Tröskeln för dragspänningar uppskattades till 160 MPa för försöken utförda i lösningen med den högsta sulfidhalten. I följdstudier analyserades väteinnehållet i proverna som hade använts vid dragprovningen (Forsström m.fl., 2017). De exponerade proverna uppskattades ha en vätehalt på omkring 1 vikt-ppm, vilket är en ökning från 0,5 vikt-ppm som OFP-kopparmaterialet initialt innehöll (SKB TR-19-15, avsnitt 6.2.4). Författarna menar att väte som har absorberats i bulken kan påverka spänningskorrosionsmekanismer genom att exempelvis stabilisera vakanser. SKB noterar att samma förhöjda vätehalt har observerats både i de delar av provet som exponerats för sulfidlösning och de som har varit oexponerade. Man ifrågasätter därför dessa mätningar eftersom väte inte bedöms kunna ha transporterats till de oexponerade delarna under den förhållandevis korta försöksperioden.

SKB har nyligen låtit genomföra ytterligare studier (SKB TR-17-16; SKB TR-19-13) i syfte att belysa de resultat som erhållits av Taniguchi och Kawasaki (2008) samt av Becker och Öijerholm (2017) inom ramen för de SSM-finansierade studierna. Sprickliknande defekter identifierades i kopparmaterialet för experiment utförda vid höga sulfidhalter (1 mM och 2 mM). SKB:s slutsats är att defekterna inte har uppstått till följd av spänningskorrosion, utan snarare är kopplade till interkristallin korrosion i korngränser som sedan vidgats som en följd av pålagda dragspänningar.

SKB har även ytterligare analyserat Aaltonen-mekanismen, som möjligen kan initieras utan förekomst av ett passiverande kopparsulfidskikt på metallytan. Injektion av vakanser vid sprickspetsen som en följd av höga korrosionsströmmar skulle kunna leda till glidning



i materialet, vilken möjligen kan aktivera dislokationer i materialet och så småningom orsaka sprickpropagering. Vakansinjektion har experimentellt uppmätts vid en pålagd strömdensitet motsvarande storleksordningen 1 mA/cm^2 , vilket motsvarar en korrosionshastighet i storleksordningen 10 mm/år (SKB R-18-03). I avsnittet som rör slutförvarsmiljön beräknas de högsta sulfidfluxen som kan uppstå under de olika faserna av buffertens möjliga tillstånd, omättad, intakt eller eroderad (SKB TR-19-15, avsnitt 5.5) vilka kan översättas till korrosionsströmdensiteter. För det mest pessimistiska fallet med eroderad buffert uppskattas korrosionsströmdensiteten till 10^{-5} mA/cm^2 vilket är flera storleksordningar lägre än vad som fordras för att kunna injicera vakanser i koppar.

SKB konstaterar att spänningskorrosionsmekanismer som fordrar tillgång till sulfidjoner vid sprickspetsen inte kan underhållas under förhållanden med lågt sulfidflöde och låga sulfidkoncentrationer vid kopparytan. Det finns ingen drivkraft för sulfidjoner att transporteras till sprickspetsen, utan sulfidjonerna kan reagera var som helst på kopparytan. SKB argumenterar för att balans mellan tillgång på sulfidjoner för att underhålla sprickpropagering och momentan konsumtion av sulfidjoner som når kopparytan innebär att reaktionskinetik för elektrokemiska ytreaktioner kan få en betydelse. Fosfat har använts i vissa av studierna för att buffra pH. Fosfat kan dock inhibera korrosionshastigheten så att korrosionshastigheten blir kinetikstyrd i närvaro av fosfatjoner och transportstyrd utan (Ha och Scully, 2013). Enligt SKB utgör detta en förklaring till varför uppkomst av spricklikande defekter vid en given sulfidkoncentration har noterats vid försök med fosfat, men inte vid försök utan fosfat.

SKB konstaterar att det inte finns någon vedertagen strikt definition av vad som utgör en spricka. Oavsett vilken definition som tillämpas noterar dock SKB att den djupaste spricka som har rapporterats i samband med spänningskorrosionsförsök uppgår till $50 \text{ }\mu\text{m}$. Detta motsvarar storleken av ett korn i OFP-koppar. I slutförvarsmiljö förväntas tillförseln av sulfid vara styrd av materietransport. Den begränsade tillgången på sulfid i slutförvarsmiljön styrd av materieöverföringsbegränsningar medför också att tillgången till vätgas, som bildas som korrosionsprodukt, blir mycket begränsad. Detta innebär att även postulerade degraderingsmekanismer som styrs av vätetillgång blir hämmade under förväntade slutförvarsbetingelser.

Som nämnts ovan fordrar spänningskorrosionsmekanismer att det, utöver kemiska förutsättningar med en tillräckligt korrosiv miljö, föreligger dragspänningar i höljet som underhåller sprickpropageringen. SKB har gjort omfattande insatser för att simulera spänningssituationen i kopparhöljet (SKBdoc 1614038, SKBdoc 1707582) under olika lastfall som kan uppstå efter förslutning med syfte att kartlägga maximala dragspänningar som lokalt kan uppstå i höljet. De finita elementsimuleringarna visar att störst dragspänningar erhålls vid bottenflänsen. Lägre dragspänningar erhöles för ett fall där man alternerat designparametrarna för kapseln och inte har något gap alls mellan hölje och insats.

I det så kallade MiniCan-försöket (SKB TR-12-09, SKB TR-16-12) som initierades vid Äspö-laboratoriet 2007, installerades fem miniatyrkapslar med initiala defekter, små hål i kopparhöljet, för att utröna kemiska effekter på insatsen om kopparhöljet initialt innehöll defekter. I tre av försöken användes lågdensitetslera medan de andra två innehöll bentonitblock med samma densitet som ska användas i slutförvaret för använt kärnbränsle. Tecken på lokala korrosionsangrepp kunde inte observeras vare sig på kapselväggen eller i svetsen (SKB R-13-35, avsnitt 4). I försöket användes även U-formade prover och prover med en initialt ditplacerad spricka, så kallade WOL prover (*Wedge Open Load*), vilka syftade till att studera kopparkorrosionsprocesser (SKB TR-12-09, avsnitt 7.2.1) bl.a. spänningskorrosion. Tendenser till sprickbildning noterades i några av WOL-proverna (SKB TR-16-

12, figurer 4-6; 4-7) men dessa kunde inte entydigt tillskrivas resultatet av spänningskorrosion. Vid mikroskopiska undersökningar av sprickspetsen kunde man inte finna några spår av sulfid och klorid vilket vore förväntat om sprickpropagering skett genom spänningskorrosion. De bildade sprickorna propagerade vinkelrätt mot den initiala sprickan vilket är ett tecken på utmattningskorrosion (SKB TR-16-12, avsnitt 4.4).

Avseende förväntade kemiska betingelser i slutförvarsmiljön konstaterar SKB att den sulfidkoncentration vid vilken sprickliknande defekter observerats är en till två storleksordningar högre än den högsta halten som uppmätts vid Forsmarkplatsen. Ett annat sätt att utvärdera tillgången på sulfidjoner är att kvantifiera flux eller transport per area- och tidsenhet, vilket är det mest relevanta måttet på tillgången på sulfidjoner vid en kopparyta i slutförvaret. Skillnaden blir i detta fall ännu större mellan experimentens värden och de som förväntas i slutförvarsmiljön. Skillnaden blir ungefär fem storleksordningar vid fullt utvecklat buffertryck. Även i de fall då bufferten har eroderats blir sulfidflöden i slutförvarsmiljön enligt SKB ungefär tre storleksordningar lägre än vad som krävs för att underhålla de mekanismer som har analyserats inom ramen för rapporterade spänningskorrosionsförsök.

SKB konstaterar sammanfattningsvis att:

- Ytliga sprickdefekter är svårtolkade och kan ha olika ursprung. De visar inte entydigt att spänningskorrosion av koppar kan förekomma i sulfidmiljö. Studierna är dessutom utförda med extrema laster och aggressiva kemiska förhållanden i förhållande till förväntade betingelser i slutförvarsmiljön.
- Nya teoretiska studier visar på att mindre justeringar av designparametrar kan minska nivåerna på de dragspänningar som kan uppstå lokalt i kopparhöljet, om så skulle behövas.
- Baserat på förväntade sulfidflöden i slutförvarsmiljö efter förslutning finns det inte förutsättningar för de experimentellt undersökta processerna så som spänningskorrosion och interkristallin korrosion, att initieras och propageras under förväntade slutförvarsförhållanden. Detta gäller även fallet då bufferten eroderats, vilket enligt analyserna skulle medföra det högsta sulfidflödet.

7.3 Synpunkter från SSM:s externa experter

Szakálos Materials Science AB

SSM:s externa experter P. Szakálos och C. Leygraf diskuterar i huvudsak spänningskorrosion av koppar baserat på studierna av Taniguchi och Kawasaki (2008) samt de SSM-finansierade försök som utförts vid Studsvik (Becker och Öijerholm, 2017). Baserat på sina egna tolkningar av studiernas resultat landar Szakálos och Leygraf i slutsatsen att spänningskorrosion av koppar kommer att ske vid en sulfidkoncentration på 0,1 mM vilket i sin tur kommer att leda till tidiga kapselbrott. Vidare anser Szakálos och Leygraf att 40% av kapslarna bedöms falla inom 100-200 år efter förslutning och resterande kapslar inom 1000 år som följd av kapseldegraderingsprocesser, bland annat spänningskorrosion.

Galson Sciences Ltd.

SSM:s externa experter J.R. Scully och T.W. Hicks fokuserar i huvudsak sin granskning av SKB:s underlag på spänningskorrosion som följd av reaktion med sulfid, samt spänningskorrosion som följd av vakansinjektion. Avseende spänningskorrosion som följd av reaktion med sulfid konstaterar SSM:s externa experter att spänningskorrosion av

koppar observerats vid sulfidflöden som är fyra storleksordningar större än vad som förväntas i slutförvarsmiljö. Dessa externa experter påpekar dock att försöksperioden längd har varit förhållandevis kort. Det kan därför inte uteslutas att processen har en betydelse i slutförvarsmiljön. Dessutom påpekas att den metod som i huvudsak har tillämpats (SSRT) för att studera processen, inom både de av SKB initierade projekten så väl som av andra forskare, inte är bäst lämpad för att utvärdera extremt långsam sprickbildning vilket skulle kunna vara relevant för kapselns integritet under slutförvarets utveckling. Avseende vakansinjektion anför experterna liknande synpunkter att metodernas känslighet i viss utsträckning kan ifrågasättas om syftet är att detektera vätestabilisering av vakanser.

7.4 SSM:s uppdaterade bedömning

SSM konstaterar inledningsvis att SKB, som en del av kompletteringen, har genomfört en utförlig genomgång av det vetenskapliga underlag som finns tillgängligt avseende spänningskorrosion av koppar i sulfidmiljö. SSM ser också positivt på att SKB nyligen har låtit utföra egna experimentella studier i syfte att ytterligare belysa betydelsen av processen i ett slutförvar.

SSM noterar att inga till dags dato utförda studier visar på tendenser till sprickbildning som en följd av spänningskorrosion av sulfid har observerats vid sulfidhalter som underskrider 1 mM. Resultat från nya experimentella studier har slutförts utan att sprickförekomst som kan tillskrivas spänningskorrosion har kunnat observeras (t.ex. SKB TR-19-13). SSM anser att SKB:s totala insatser för att ytterligare belysa processens förutsättningar i sulfidmiljö (SKB TR-19-15, kapitel 6), som förutom insatser för förståelse av processens mekanismer innefattar analys av materietransport av sulfid i deponeringshålen och kapselns spänningstillstånd, har skapat en större tilltro till att risken för att processen ska initieras och propageras vid låga sulfidhalter och låga sulfidflux i paritet med de som förväntas i slutförvarsmiljön är mycket liten.

Med tanke på att spänningskorrosion är en komplex korrosionsform som innefattar en samverkan mellan utvecklingen av kapselns mekaniska tillstånd och slutförvarets kemiska miljö anser dock SSM att SKB även fortsättningsvis bör studera spänningskorrosion och interkristallin korrosion för att underbygga framtida säkerhetsanalyser. Exempelvis lyfter SSM:s externa experter Scully och Hicks fram betydelsen av att tillämpa mer precisa metoder och utföra experiment under längre försökstider för att studera extremt långsam sprickbildning och sprickpropagering. SSM anser att de synpunkter som Hicks och Scully anför bör beaktas av SKB i kommande forskningsinsatser relaterade till risk för spänningskorrosion. En ytterligare fördjupad förståelse för processen och dess mekanistiska förutsättningar bör kunna utgöra underlag för att avgöra om någon typ anpassning av kapselns eller buffertens detaljutformning är motiverad för att ytterligare optimera deras robusthet mot spänningskorrosion. Till exempel bedömer SSM som tidigare att förutsättningar för en betydande ackumulation av sulfid invid kapselytan vid behov skulle kunna reduceras ytterligare med rimliga åtgärder, såsom exempelvis en tydligare kravställning av mängder och förekomstformer av organiskt material i buffert och återfyllnad.

En av flera viktiga förutsättningar som avgör spänningskorrosionsrisk är om en passiverande kopparsulfidfilm kan bildas på kopparytan. SSM konstaterar att SKB inför kompletteringen har tillfört betydande ny information inom detta område som på ett tydligare sätt än tidigare visar att sulfidfilmerna får olika egenskaper och karaktär beroende på sulfid- och kloridhalt och vid olika materieöverföringsbetingelser (Chen m.fl. 2017a, 2017b, 2018). Kompakta potentiellt passiverande filmer erhöles endast vid sulfidkoncentrationer i det högre intervallet. Experiment som SSM låtit genomföra har visat att

OFP-koppar är mindre benägen att påverkas av lokal korrosion i jämförelse med ren koppar, men samtidigt har en viss osäkerhet framkommit kring förutsättningar för en passivering av sulfidfilmer. Dessa experiment har dock utformats för att studera gropkorrosion snarare än spänningsskorrosion och frågeställningen beskrivs därför i detalj i avsnitt 6 som avhandlar gropkorrosion i denna granskningsrapport. Även om frågan har en viss relevans även i detta sammanhang, konstaterar SSM att spänningsskorrosion fordrar mer specifika betingelser för att sprickpropagering ska kunna upprätthållas, så som att en kontinuerlig tillförsel av sulfid sker till en sprickspets i en spricka som initierats i en region på kapseln med dragspänningar.

Buffertens status har en betydande påverkan på materieöverföring av sulfid, vilket är av relevans för bedömning av spänningsskorrosionsrisk eftersom tillförseln av sulfid avgör om en spänningsskorrosionsspricka inte bara kan initieras utan även propageras i en utsträckning så att kopparhöljets integritet påverkas. SSM konstaterade i den ursprungliga granskningen av SKB:s ansökan (SSM, 2018) att omättade buffertförhållanden kan medföra snabbare tillförsel av sulfid i jämförelse med mättade förhållanden, genom antingen gasformig tillförsel av sulfid eller som en följd av mikrobiell sulfatreduktion i anslutning till kapselytan. SKB:s komplettering visar på ett mer utförligt och väl underbyggt sätt hur förhållanden i ett förslutet slutförvar begränsar dessa båda processer (se avsnitt 3 i denna granskningsrapport). SSM vidhåller dock sin bedömning att SKB även fortsättningsvis behöver vida åtgärder för att erhålla ytterligare information med syfte att underbygga ytterligare analyser kring spänningsskorrosionsrisk. Exempel på detta är att i samband med detaljundersökningar av berget ta fram mer information om den intakta bergmatisens hydrauliska egenskaper, samt ytterligare studera alternativa återfyllnadsmaterial för att definiera den möjliga omfattningen av mikrobiell sulfatreduktion i dessa material. Den intakta bergmatisens egenskaper har betydelse för kvantifieringen av återmättnadsförloppet i deponeringshålskala, vilket i sin tur har betydelse för att definiera omfattningen och fördelning av sulfidtransport i närheten av kapselytorna.

Efter full återmättnad av bufferten begränsas tillförsel av sulfid till kapselytan från omgivande grundvatten av både långsam diffusion i vattenfasen i bufferten, och i de allra flesta deponeringshål i ännu högre utsträckning av låga grundvattenflöden. SSM bedömer att risken för att spänningsskorrosionssprickor av sulfid initieras och propageras på ett sätt som påverkar höljets integritet är mycket liten under denna tidsperiod. Avseende eroderade deponeringshål med advektion och de högsta sulfidflödena instämmer SSM med SKB att dessa förhållanden är mera relevanta för gropkorrosion (eller mikrogalvanisk korrosion) snarare än spänningsskorrosion, eftersom buffertens svälltryck då har eliminerats och eftersom fallet inträffar mycket lång tid efter pålastningen av kapseln. Avseende deponeringshål med eroderad buffert och advektiva förhållanden bedömer SSM att de även generellt har betydligt mindre strålsäkerhetsbetydelse, i första hand därför att de förväntas uppstå långt in i framtiden och att de utgör endast ett fåtal medan återmättnadsfasen under en viss tid innefattar samtliga deponeringshål.

En viktig skillnad i jämförelse med gropkorrosionsfallet är att förekomst av dragspänningar i kopparhöljet utgör en nödvändig förutsättning för spänningsskorrosion. Samtliga experimentella studier av spänningsskorrosion har inkluderat en mekanisk pålastning av exponerade prover (Taniguchi och Kawasaki, 2008; Becker och Öijerholm, 2017). SSM ser därför positivt på att SKB har genomfört mer detaljerade simuleringar av kapselns spänningstillstånd för olika lastsituationer (SKBdoc 1614038, SKBdoc 1707582), bland annat för att bättre förstå samtliga omgivningsfaktorer som påverkar spänningsskorrosionsrisk. För normalfallet är bottenflänsen och förslutningssvetsen vid toppflänsen mest exponerad för dragspänningar. SSM konstaterar att dragspänningar nära förslutningssvetsen har en särskild betydelse i sammanhanget eftersom det övre hörnet av

kapseln samtidigt kan förväntas vara exponerad för det högsta sulfidflödet (SKBdoc 1696975). Renodlade flänsspänningar bör däremot ha en liten betydelse eftersom de avser delar av kapseln som inte direkt bidrar till inneslutningsfunktionen. SSM anser att SKB bör, i samband med optimering av den detaljerade kapselutformningen, utforska möjligheter för anpassning i syfte att minska dragspänningarnas omfattning och utbredning. Detta eftersom SKB:s simuleringar visar att en minskning av gapet mellan hölje och insats reducerar dragspänningarna. Beträffande fallen med ojämn svällning av bufferten anser SSM att SKB på ett tydligare sätt bör särskilja mellan troliga och extrema gränssättande fall i kommande säkerhetsanalyser. En annan utvecklingsmöjlighet som också skulle kunna bidra till optimering av detaljkonstruktionen av kapseln är att studera omfördelning av dragspänningar vid en postulerad påbörjad sprickbildning.

Beträffande SSM:s egen forskning kring spänningskorrosion, så har experimentella försök genomförts för att kartlägga de kemiska förutsättningar som fordras för att sprickinitiering ska kunna förekomma. Sulfidkoncentrationen 1 mM har postulerats som ett tröskelvärde under vilket spänningskorrosion inte har observerats (Becker och Öijerholm 2017, avsnitt 5). Försöken innefattade dragprovning (SSRT) av exponerade provstavar för att studera förutsättningar för spänningskorrosion vid tre olika sulfidhalter 1 mM, 0,1 mM och 0,01 mM. Författarna till rapporten noterar en sprickbildning som tillskrivs effekten av spänningskorrosion vid sulfidkoncentrationen 1 mM. Vissa spricktendenser noterades på kopparytan även vid sulfidhalten 0,1 mM. Författarna påpekar dock liknande defekter som de som noterats för proverna exponerade vid 0,1 mM även hade observerats inuti det oexponerade bulkmaterial. Spricktendenser som följd av spänningskorrosion avskrevs därför för nivån 0,1 mM. SSM delar författarnas uppfattning i detta avseende. SSM har initierat en uppföljande fortsättningsstudie (dnr SSM2018-2132) i syfte att mera precist ringa in det tröskelvärde för sulfidkoncentration under vilket spänningskorrosion inte kan induceras. Rapporten från denna studie väntas att bli publicerad under vintern 2019-2020. Preliminära resultat indikerar att slutsatserna från den tidigare studien består.

Den så kallade Aaltonen-mekanismen (Aaltonen m.fl., 1998), har föreslagits som en spänningskorrosionsmekanism som inte kräver passivering av kopparytan. Sprickpropagering skulle i detta fall ske som en följd av injektion av vakanser som destabiliserar gittret, skapar spänningar och sedermera sprickinitiering och sprickpropagering. Det har postulerats att processen förstärks av att inträngande väte stabiliserar de vakanser som bildats i materialet invid sprickspetsen (Jagodzinski m.fl. 2000). SSM anser att de kemiska förutsättningar som associeras med mekanismen med betydande halter sulfid är mycket osannolika i slutförvarsmiljön och att processen därmed hur som helst är av mindre strålsäkerhetsbetydelse. Även aspekten med vätestabilisering bedöms vara av mindre betydelse med tanke på den begränsade mängd väte som potentiellt kan tränga in i kopparmaterialet under förväntade slutförvarsbetingelser.

SSM noterar att SKB i sin bedömning av de olika experimentella studier som genomförts lyfter in ytterligare en korrosionskategori, interkristallin korrosion, utan att närmare definiera skillnaden mellan denna kategori och spänningskorrosion i sulfidmiljö, vilket är den mekanism som lyfts fram i mark- och miljödomstolens yttrande. SSM förväntar sig att SKB vid kommande säkerhetsanalyser på ett tydligare sätt definierar de mekanistiska skillnaderna mellan de korrosionsprocesser som har diskuterats för att ge bättre möjligheter att kunna särskilja på vilka randvillkor och externa förutsättningar som krävs för att de olika processerna skulle kunna få en betydelse för slutförvarets långsiktiga skyddsförmåga.

Avseende en eventuell påverkan på spänningskorrosion av den av Szakálos och Leygraf postulerade reaktionen med syrgasfritt vatten under anoxiska förhållanden, vilket betonades i deras kommentarer (SSM2011-1135-26) till SSM:s promemoria ”Tematisk

sammanställning av SSM:s beaktande av remissinstansernas synpunkter i kapselfrågor” (SSM2011-1135-25, Bilaga 2), bedömer SSM att en sådan effekt ofrånkomligen blir liten. Under antagandet att den postulerade processen sker, skulle dess omfattning under de reducerande förhållanden i sulfidmiljö som förväntas långsiktigt vara försumbar i jämförelse med effekten av den huvudsakliga korrosionsprocessen, allmän sulfidkorrosion, som dominerar långsiktigt, en process vars omfattning är rimligt förutsägbart givet information om bl.a. grundvattensammansättningar och tillgång på organiskt material. Vidare visar kvantkemiska studier på att sulfidering av kopparoxidtyper är starkt exotermisk (Stenlid m.fl. 2017, figur 3) under reducerande förhållanden. Under förutsättningen att en koppar(I)(hydr)oxidfas bildas som följd av den postulerade korrosionsprocessen är produkten således inte stabil långsiktigt och dess potentiella bidrag till lokala korrosionsfenomen såsom spänningskorrosion bedöms av SSM att vara högst osannolik.

I sin granskningsrapport av SKB:s komplettering menar Szakálos och Leygraf att SSRT-studierna vid Studsvik (Becker och Öijerholm, 2017) visar på sprickbildning som följd av spänningskorrosion vid sulfidkoncentrationer på 0,1 mM. SSM konstaterar att författarna till rapporten inte tolkar sina resultat på samma sätt som Szakálos och Leygraf. De spricktendenser som observerades vid kopparytan vid nämnda sulfidhalt återfanns även längre in i materialet, där någon exponering för sulfidjoner inte kan ha ägt rum. Spricktendenserna i kopparmaterialet tillskrevs således inte resultatet av spänningskorrosion (Becker och Öijerholm, 2017, avsnitt 3). Huvudslutsatsen från den studien var att sprickbildning som följd av spänningskorrosion kunde detekteras vid sulfidkoncentrationer på 1 mM (Becker och Öijerholm, 2017, avsnitt 5). SSM delar således inte Szakálos och Leygrafs bedömning kring denna förutsättning för spänningskorrosion.

Avseende scenariot som Szakálos och Leygraf postulerar, att 40 % av kapslarna bedöms falla inom 100-200 år efter förslutning och resterande kapslar inom 1000 år som följd av kapseldegraderingsprocesser, bland annat spänningskorrosion, kommenteras detta i avsnitt 10 i denna granskningsrapport.

8. Väteförspredning

8.1 SSM:s tidigare slutsatser

SSM konstaterade vid myndighetens granskning av tillståndsansökan att SKB då främst hade adresserat i huvudsak två möjliga former av inverkan av väte på koppars materialgenskaper (SSM, 2018). Dessa innefattade dels vätereduktion av kopparoxider i kopparmaterialet, dels utskiljning av vätegasbubblor. SSM noterade att SKB:s materialval med OFP-koppar medför att risken för den förstnämnda formen är mycket låg, men att förslutningssvetsen är mer känslig i detta sammanhang. SKB:s svetsmetod friktionsomrörningssvetsning hade visats kunna ge upphov till oxidslingor i svetsfogen. Följdefeffekten skulle kunna bli att svetsen på sikt skadas genom tillförsel av väte som reagerar med oxidslingorna i svetsen. Detta leder till bildning av vattenmolekyler i korngränser, s.k. vätesjuka. Även om svetsning i skyddsgas i kombination med noggrann rengöring av ytor, som omfattas av svetsmetoden, har potential att avsevärt minska oxidförekomst i svetsen återstod enligt SSM:s bedömning olika utvecklingsmoment innan metodens lämplighet fullt ut skulle kunna fastställas.

Beträffande ytlig bubbelbildning konstaterade SSM att djupare inträngning av väte behöver beaktas så som diffusion av atomärt väte utan begränsning. SSM ansåg även att SKB behöver beakta risken för en successiv sprickpropagering även om ackumulation av väte i koppar endast avser ytskiktet, i synnerhet om en sådan ackumulation sker i regioner av kopparkapseln med höga kryptöjningar. SSM ansåg vidare att det var oklart i vilken

omfattning olika processer, så som gammabestrålning, sulfidkorrosion, samt korrosion i rent syrgasfritt vatten ger upphov till väteladdning av koppar i slutförvarsmiljön.

8.2 SKB:s tillkommande information

I SKB:s rapport SKB TR-19-15 sammanfattas den tillgängliga informationen om vätetts inverkan på koppars materialegenskaper i slutförvaret. De olika momenten som adresseras är:

- Friktionsomrörningssvetsning (FSW-svetsning) i inert atmosfär med skyddsgas
- Litteratursammanställning av genomförda försök med tillförsel av väte till koppar
- Analys av betydelsen av vätetillförsel i slutförvarsmiljö med beaktande av fallen bubbelbildning respektive ingen bubbelbildning

SKB inleder sin redovisning med att konstatera att som en tumregel anses metalliska material, som koppar, med en fcc-struktur ("face centered cubic") generellt vara mindre känsliga för väteförspredning (el. HE "Hydrogen Embrittlement"). Det utgör dock ingen definitiv grund för att avfärda HE och ett antal konkreta åtgärder för att minimera dess potentiella inverkan behöver därför vidtas. SKB avser att tillämpa ett tillverkningskrav för kopparhöljet med närvarande maximalt 0,6 vikts-ppm väte. Man har också ett relaterat krav på ett maximalt innehåll av syre i koppar på 5 vikts-ppm. Syre har betydelse i sammanhanget påverkan av väte eftersom en vätereduktion av syre i oxidform av tillförd väte ger upphov till bildning av vattenmolekyler, företrädesvis i korngränser (dvs. vätesjuka).

SKB beskriver problematiken kring oxidtillförsel vid svetsning då olika upphettade ytor oxideras vid ett lufttillträde. SKB avser att använda en standardiserad metod (ASTM, 2016) för att utvärdera benägenheten hos utgångsmaterialet att påverkas av vätesjuka. Testning av kopparprover som svetsas med FSW-metoden i skyddsgas visade att materialet inte var benäget att påverkas av vätesjuka. Den ovanstående ASTM-metoden behöver under driftfasen kompletteras med monitorering av syrehalten i skyddsgasen då svetsens slutliga syrehalt inte kan mätas med oförstörande provningsmetoder (Björck m.fl., 2019). Oxidskikt så tunna som 10 nm kan dock upptäckas med blotta ögat som en färgavvikelse. Materialprovning visar att duktiliteten hos FSW-svetsat gods med skyddsgas är densamma som för basmaterialet med upp till en oxidtjocklek av 0,1 μm . För material där tjockare oxidskikt, från en till flera μm , avsiktligt har producerats noteras en märkbar försämring av duktiliteten, vilket enligt SKB visar att metallografiska undersökningar av oxidförekomster är en användbar metod för att upptäcka risk för en negativ materialpåverkan. Korrosionsegenskaper för svetsgodset kunde inte särskiljas från motsvarande för basmaterialet (Björck m.fl., 2019).

Laboratoriestudier av hur koppar påverkas av väteladdning har i huvudsak genomförts under senare år som en del av slutförvarsprogrammet. Vid några studier som utfördes långt tidigare konstaterades dock att vätgasbubblor kan bildas i koppar som ett resultat av väteladdning (Wampler, 1976) samt att elektrokemisk laddning med väte kan ge försämrade materialegenskaper (Panagopoulos och Zacharopoulos, 1994). I slutförvarssammanhang har en serie experiment genomförts med väteladdning av OFP-koppar. Man har använt elektrokemiska metoder i syfte att snabbt uppnå en betydande väteladdning för att undersöka materialets HE känslighet (t.ex. Martinsson och Sandström, 2012). För att nå en pessimistisk maximal effekt av väteladdning användes rekombinationshämmare i kombination med den elektrokemiska laddningen. Vätgasbubblor bildas då i materialet upp till ett djup av 100 μm . Vid ytterligare väteladdning ökar inte vätehalter vilket förklaras med att ytterligare ökning kompenseras av utflöde av väte. Av bildat väte vid elektrolysen under försöket uppskattas cirka en tiotusendel (10^{-4}) att tillföras metallen (s.k. "pick-up factor"). Från ett teoretiskt perspektiv förväntas en mycket liten andel av bildat

väte tillförs metallen med tanke på att bindning till ytan är mer energetiskt gynnsamt än förekomsten i bulkmaterialet (SKBdoc 1708457).

SSRT-dragförsök (*Slow Strain Rate Testing*) har genomförts med en likartad elektrokemisk väteladdning av OFP koppar vid 20 och 50°C (Yagodzinsky m.fl., 2012). Draghållfasthet och brottförlängning reducerades med cirka 10 % i förhållande till oladdade prover, enligt SKB:s bedömning troligen på grund av bildning av porer och intergranulära sprickor i ytskiktet. I en annan studie genomfördes elektrolytisk laddning av väte i enkristallprover med rekombinationshämmare vilket gav vätehalter på cirka 4 vikt-ppm (Yagodzinsky m.fl., 2018). Vätet fanns delvis i molekylär form i vätebubblor. Vätet orsakar en viss deformationshärdning som tros bero på att vätet stabiliserar bildningen av vakanser i materialet. SKB:s senaste studie inom området är Leijon m.fl. (SKB R-17-17) vilken består av krypförsök som har genomförts med OFP-koppar vid 23, 50 och 70°C (med rekombinationshämmare). Trots användning av rekombinationshämmare rekombineras en större del av det bildade vätet och går inte in i metallen. Maximalt uppnåddes 12 vikt-ppm och intergranulära sprickor med max djup på 100 µm. Krypprovning av väteladdade prover visar på vissa försämringar av krypegenskaperna jämfört med icke-laddade prover.

Beträffande betydelsen i slutförvarsmiljön konstaterar SKB att väte upplöst i det omgivande grundvattnet inte kan tränga in i kopparkapslarna, samt att radiolys vid kapselytan ger en låg väteladdning för slutförvarsdosen 69 kGy (ytterligare 0,2 vikts-ppm; Lousada m.fl., 2016). SKB bedömer att sulfidkorrosion på lång sikt kan ge den mest betydande väteladdningen, men att denna begränsas av låg korrosionshastighet som i sin tur styrs av det låga sulfidflödet mot kapselytor. SKB konstaterar att en korrosion av koppar i rent syrgasfritt vatten i enlighet med etablerad termodynamik ger en helt försumbar väteladdning. Det är rimligt att förutsätta att en liten andel av bildat väte från sulfidkorrosion kan tillföras materialet, enbart cirka en tiotusendel enligt SKB. SKB definierar två teoretiska fall för att avgöra säkerhetsbetydelsen av processen, ett fall med bubbelbildning och ett fall utan. För det första fallet konstaterar SKB att det finns åtskillig empirisk information för att kunna dra slutsatsen att endast ett mindre ytskikt påverkas (cirka 100 µm). Även för mycket tunna prover är påverkan på materialegenskaperna liten, och därför bör man kunna dra slutsatsen att effekten är ännu mycket mindre för en 50 mm tjockt kopparhölje. Det andra fallet är tillförd väte i atomär form som alltså inte bildar vätegasbubblor. SKB betonar att detta är ett teoretiskt fall som inte kunnat konstateras experimentellt. Trots detta kan man göra en överslagsberäkning som baseras på att väte tränger in i materialet vid kapselns yttre yta och sedan diffunderar in i hålrummet i kapseln. Även om ”pick-up factor” ökas från 0,01 % till 10 % och den drivande kraften för diffusion antas vara maximal, vilket erhålls om ett nollrandvillkor ansätts på insidan av kapseln och maximala sulfidflöden på cirka 10^{-10} mol/m²s antas, stannar den maximala ökningen av vätehalten i kopparmaterialet på cirka 1,7 vikt ppm.

8.3 Synpunkter från SSM:s externa experter

Szakálos Materials Science AB

SSM:s externa experter P. Szakálos och C. Leygraf anser att även enstaka oxidpartiklar i en friktionsomrörningssvets är oacceptabla. Eftersom det inte går att detektera oxidföreningar med oförstörande provning måste friktionsomrörningssvetsning anses vara en osäker metod för icke-legerad koppar.

Szakálos och Leygraf anser att det bildas blåsor och sprickor i korngränserna i koppar även i djupare regioner av metallen efter bara ett par veckors exponering i samband med

korrosionsexperiment. Denna slutsats baseras på en tolkning av resultat från Becker och Öijerholm (2017). Efter ett antal års exponering i slutförvarsmiljön anses hela kopparkopparhöljets tjocklek dels bli väteladdad och dels innehålla blåsor och sprickor. För vätesjuka och väteförspredning krävs det inga externa laster eller inre spänningar. Man bedömer baserat på dessa argument att 40 % av kapslarna kommer att falla inom ett till två hundra år efter deponeringen.

Galson Sciences Ltd.

SSM:s externa experter J.R. Scully och T.W. Hicks anser att klassisk väteförspredning genom mekanismerna HEDE (*"Hydrogen Enhanced Decohesion Embrittlement"*) och HELP (*"Hydrogen Enhanced Local Plasticity"*) liksom vätesjuka inte utgör några farhågor. Koppars gynnsamma duktilitet förhindrar sprickbildning genom dessa mekanismer. Det måste också anses som kommersiellt tillgänglig bästa möjliga teknik att kontrollera oxidation under svetsningsmomentet, och tillämpning av dessa tekniker anses eliminera risken för vätesjuka.

Experterna anser dock att injektion av vakanser i samband med väteladdning vid långsam sulfidkorrosion behöver studeras ytterligare. Denna typ av väteförspredning är en form av väteinducerad spänningskorrosionsmekanism, som skiljer sig från men också delvis överlappar en spänningskorrosionsmekanism med anodisk upplösning som grund. Skillnaden är dock att det inte är den anodiska upplösningen i sig som ger spricktillväxt, utan snarare av vätes lokala påverkan. Väte minskar energinivån som behövs för att injektera vakanser vid denna typ av lokala korrosionsangrepp. Argument som att låga vätehalter har uppmätts i exponerade prover eller att den s.k. "pickup-faktorn" är mycket låg, anses inte ensamt kunna användas för att avfärda mekanismen eftersom väte kan nå mycket högre nivåer lokalt vid korngränserna. Det faktum att små effekter av väteladdning har påvisats i samband med dragprovning (SSRT) kan förklaras av att vätepenetrationen inte har nått tillräckligt långt för att påverka koppars bulkegenskaper. Experterna rekommenderar därför ytterligare försök genomförs med "notchade" eller förspäckta prover under längre försökstider och med känsligare mätmetoder i jämförelse med SSRT. Spänningskorrosion som består av faserna initiering och propagering, kan ha en inkubationstid vilket försvårar experimentella observationer, men problemet reduceras genom användningen av denna typ av prover eftersom initieringsfasen elimineras. Experterna anser sammanfattningsvis att existensen av en spänningskorrosionsmekanism i samband med väteladdningen på lång sikt orsakar sprickbildning i kopparkoppar inte kan uteslutas baserat på tillgängligt underlag och därför bör ytterligare undersökas.

8.4 SSM:s uppdaterade bedömning

SSM konstaterar att SKB i samarbete med finska Posiva har under de senaste åren på ett betydande sätt vidareutvecklat FSW-svetsmetoden för att undvika och minimera förekomst av oxidföroreningar (Björck m.fl., 2017). Detta innefattar studier av metoder för rengöring av metallytor, respektive olika utformningar av svetsning med skyddsgas. SKB har också studerat och utvecklat metoder för att detektera oxidföroreningar. SSM bedömer att detta arbete har varit framgångsrikt. SKB bedöms i samband med drift av Clink-anläggningen att kunna åstadkomma förslutningssvetsar med tillräckligt låg syrehalt med syftet att eliminera risken för vätesjuka på grund av oxidföroreningar i svetsen. Det behövs ytterligare insatser för att demonstrera metodens tillförlitlighet under en lång driftsperiod, men SSM anser att den fullständiga utvecklingen av svetsmetoden är en driftsfråga som bör hanteras i samband med ansökan om att få ta en slutförvarsanläggning i drift, snarare än en tillståndsprövningsfråga. Grundläggande för tillståndsprövningen är att SKB har tagit fram en ändamålsenlig metod för förslutningssvetsning baserad på

definierade acceptanskriterier för att gränssätta negativ inverkan på kapslarnas långsiktiga integritet.

SSM anser att SKB har i den nya redovisningen på ett tydligare sätt än tidigare analyserat och diskuterat omfattning och betydelse av väteladdning av koppar i slutförvarsmiljön (SKB TR-19-15). SSM bedömer att sulfidkorrosion av koppar är den process som skulle kunna ha störst betydelse för tillförsel av väte till metallen, följt av en viss initial väteladdning från väte bildat genom radiolys under inverkan av gammastrålfältet. SSM anser att experimentella bevis för väteinträngning i samband med sulfidkorrosion är begränsade, men det bedöms ändå vara sannolikt att väteinträngning i metallen i ett verkligt förvar med ett sulfidskikt på kopparytorna är mindre än för de rena laboratorie-system som hittills har studerats. Detta kan exempelvis förklaras av att vätebildningen sker i anslutning till filmen snarare än metallytan, men detta kan inte förutsättas utan ytterligare experimentellt stöd. SSM anser dock att det finns betydande stöd för att sulfidkorrosionen och en eventuell associerad väteinträngning kommer vara liten för det stora flertalet kopparkapslar som en följd av den generellt mycket begränsade tillförseln av sulfidjoner (beroende på generellt låga grundvattenflödes hastigheter i anslutning till deponeringshålen och låga sulfidhalter). Det bör dock påpekas att användningen av analyser som ursprungligen tagits fram för att visa begränsad påverkan från korrosions-synpunkt kan antyda en missvisande, och en för hög väteladdning, för de mest exponerade kapselpositionerna, t.ex. genom antaganden som att sulfidkoncentrationer i grundvatten i anslutning till ett specifikt deponeringshål är konstant i många tusentals år, liksom att eventuell mikrobiell bildning av sulfid i återfyllnaden kontinuerligt upprätthålls även på mycket lång sikt. Mer utförlig förståelse av faktorer som kontrollerar fördelningen av sulfidjoner i grundvatten på förvarsdjup bör kunna tas fram i samband med detaljundersökningar under en konstruktionsfas.

En förväntad mer begränsad inträngning av väte i slutförvarsmiljö i jämförelse med de experimentella studier där fenomenet har studerats, medför också lägre halter av väte och en mindre potentiell påverkan på koppars materialegenskaper. Vid de experimentella studierna som har utförts med en omfattande och snabb elektrokemisk väteladdning har påverkan avsett ytliga delar av de förhållandevis tunna exponerade kopparproverna, vilket talar för att betydelsen skulle vara mindre för ett verkligt kopparhölje med tanke på dess mycket mer betydande tjocklek. En betydande påverkan på koppars bulkegenskaper kan därför anses liten.

En låg genomsnittlig vätehalt av kopparhöljet och en liten påverkan på materialegenskaperna är dock, som påpekas av Hicks och Scully (2019), inte på egen hand ett tillräckligt kriterium för att avfärda inverkan av en väteladdning av koppar. Väte skulle kunna ha en större negativ inverkan om det tillförs lokalt till korngränser i samband med spänningsskorrosion. SSM konstaterar dock att det eventuella existensen av en sådan mekanism som kan undersökas ytterligare genom laboratorieexperiment, inte är liktydigt med att mekanismen har en stor betydelse i slutförvarsmiljön. Processen kräver att en tillräckligt snabb makroskopisk tillförsel av en specifik komponent i grundvattnet som generellt förekommer i mycket låga halter, nämligen vätesulfid, sker till en och samma område på kapselytan under så lång tid att ett lokalt spänningsskorrosionsangrepp båda kan initieras och propageras till att påverka en betydande del av kapselns tjocklek. Detta område behöver också sammanfalla med en av de mindre delar av kapseln som är exponerade för dragspänningar. Den begränsade tillgången på sulfid innebär också motsvarande begränsningar för vätetillförseln som behövs för att underhålla denna korrosionsmekanism. Ett relaterat skäl som talar emot en sådan process är också att kopparhöljet generellt inte förväntas vara passiverat och att konsumtionen av tillgängliga sulfidjoner därmed inte kan förväntas ske lokalt, utan kan ske över hela kapselytan. Med tanke på gradvis utveckling av förhållanden i buffert och berg är det också sannolikt att

variationer i den makroskopiska transport av sulfidjoner medför motsvarande variationer för korrosionens lokala omfattning som funktion av tiden. Skäl för detta är exempelvis återmättnadsförloppet av bufferten, intermitterant mikrobiell bildning av sulfidjoner i anslutning till deponeringshålen i omgivande grundvatten eller i återfyllnaden, samt gradvisa variationer i kemiska förhållanden och grundvattenflöden.

SSM anser dock att ytterligare studier som dels simulerar väteladdning av koppar i slutförvarsmiljö, dels inverkan av väteladdning i perspektivet spänningskorrosion är berättigade åtminstone fram till en kommande ansökan om driftstart. Mot bakgrund av kommentarerna ovan från J.R. Scully och T.W. Hicks är användning av metoder med hög känslighet och detektionsförmåga av stor betydelse. Syftet med dessa studier bör vara att underbygga de krav på de tekniska barriärernas detaljutformning som är relaterade till t.ex. inverkan av dragspännings omfattning och placering på kapseln i samband med uppbyggnaden av buffertens svälltryck. Exempelvis bör en utformning eftersträvas som undviker att dragspänningar och potentiellt hög sulfidbelastning sammanfaller på kapselytan. Väteladdning kan möjligen också ha en betydelse i sammanhanget utbredning respektive den maximala deformationen av kopparhöljet som inte äventyrar kapsels integritet. Den sistnämnda effekten bör beaktas vid en verifierande analys av betydelsen av krypdeformation för kopparkapslar med realistiska kapselgeometrier, en fråga som inte togs upp av domstolen men som lyftes i SSM:s granskning av SR-Site (SSM, 2018).

Beträffande Szakálos och Leygrafs konstateranden kring friktionsomrörningssvetsningens brister anser SSM att risken för att en väteladdning av metallen orsakar sprickbildning rimligtvis är korrelerad med oxidföreningarnas omfattning och placering i materialet, och således kan kontrolleras genom kravställning i samband med tillverkning. Defekter av olika typer i kopparhöljet och förslutningssvetsen kan ha en stor betydelse, men då behöver deras frekvens, karaktäristik och placering beaktas. SSM instämmer dock med Szakálos och Leygraf att tillgängliga OFP-metoder har begränsningar, och att de därför åtminstone inledningsvis behöver kompletteras med förstörande provning under utvecklingen av tillverkningsmetoder på industriell skala som kvarstår att genomföras innan slutförvarets driftsfas. SSM kommenterar dessa externa experters kapselbrottsfördelning i avsnitt 10 i granskningsrapporten.

9. Strålningsinducerad korrosion och försprödning

9.1 SSM:s tidigare slutsatser

Strålningsinverkan kan vara av kemisk eller mekanisk natur. Med kemisk inverkan på kapseln avses i första hand korrosion så som exempelvis spänningskorrosion, och gropkorrosion av koppar orsakad av oxiderande ämnen från radiolys av vatten, samt väteförsprödning orsakad av väteatomer som bildas från radiolys eller korrosion. Med mekanisk inverkan menas strålningens påverkan på koppars mikrostruktur och därmed på dess mekaniska egenskaper och motståndskraft mot olika lastsituationer i slutförvarsmiljön.

Baserat på den förhållandevis korta tiden med ett betydande gammastrålfält vid kapselns ytteryta instämde SSM med SKB att allmän korrosion som följd av reaktion mellan kopparytan och bildade radiolysprodukter i grundvattnet kommer att medföra en mycket liten reduktion av kopparhöljets tjocklek och därmed inte någon väsentlig påverkan på kapselns skyddsförmåga.

Beträffande strålningsinverkan på gropkorrosion av koppar ansåg SSM, baserat på experimentella resultat från främst Björkbacka (2015), att även om omfattningen av

korrosionsangreppen har begränsad betydelse skulle exempelvis en passivering av oxidlagret under inverkan av strålfältet kunna ha betydelse för risken för lokala korrosionsangrepp såsom gropkorrosion under det fortsatta korrosionsförloppet. SSM ansåg med stöd av SSM-finansierad forskning (Macdonald m.fl., 2012) att SKB inte hade beskrivit risk för gropkorrosion på ett tillräckligt allsidigt sätt för att kunna utesluta denna process i de av SKB analyserade scenarierna.

Beträffande strålningsinverkan på spänningskorrosion ansåg SSM att det var svårt att baserat på SKB:s dåvarande underlag helt eliminera spänningskorrosionsrisk under den tidsperiod då mekaniska dragspänningar föreligger genom kapselns kopparkapsel samtidsvis som korroderande kemiska ämnen produceras från radiolys av vatten och luft. SSM instämde med SKB att spänningskorrosionsrisk under oxiderande förhållanden i perspektivet slutförvarets långsiktiga utveckling kan betraktas som mycket liten, baserat på det faktum att tidsperioden med betydande närvaro av syre (ett nödvändigt villkor för denna typ av spänningskorrosion) sannolikt är kort och inte sammanfaller med en tidsperiod med fullt utvecklade dragspänningar. Angående radiolysens inverkan på kopparkorrosion på insidan av en försluten kapsel, ansåg SSM att spänningskorrosion inte helt kan uteslutas. SSM efterlyste därför en analys som explicit fastställer acceptabla koncentrationsnivåer för kväveföreningar inuti kapseln för att utesluta en skadlig inverkan av radiolys från gammastrålning.

Beträffande strålningsinverkan på väteförspredning av kapseln konstaterade SSM att det fanns studier som visar på att väteinträngning i koppar kan ske från en gammabestrålad vattenfas. Tillfört väte föreligger i detta fall initialt i atomär form, vilken har en högre reducerande förmåga än molekylärt väte. Väteladdning av betydande omfattning från en gammabestrålad vattenfas har verifierats i samband med höga strålnivåer och processen kan också förväntas i mindre omfattning under tidiga faser av slutförvarets utveckling.

9.2 SKB:s tillkommande information

SKB har utrett ytterligare strålningsinverkan på gropkorrosion av koppar genom att jämföra relevanta resultat från en doktorsavhandling (Björkbacka 2015; Björkbacka m.fl. 2012, 2013) med nya resultat från laboratorieförsök (SKBdoc 1706535), och med SKB:s tidigare experimentella observationer och modelleringsresultat.

I avhandlingen redovisades experimentella resultat från gammabestrålning av både polerade och opolerade kopparprover av kapselmaterialet med hjälp av en Cs-137-källa. Den högsta ackumulerade dosen var ca 95 kGy, vilken är i samma storleksordning som den totala dosen för kopparkapseln i slutförvaret. Exponeringstiden för experimenten har dock förkortats från ett hundratal år i slutförvarsmiljön till en praktiskt hanterbar tid på ca. ett till två hundra timmar. Dosraten var därför flera tusen gånger högre vid experimenten i jämförelse med den som kapseln kommer att vara exponerad för (720 Gy/h vid experimenten jämfört med högst 0,18 Gy/h på kapselns yttre yta).

SKB anser att förutsatt allmänkorrosionsdjup orsakat av gammastrålning framtaget i säkerhetsanalysen SR-Site (SKB TR-11-01) fortfarande är att betrakta som konservativt mot bakgrund av de nya observationerna i avhandlingen (cirka 14 μm i SR-Site jämfört med cirka 0,2 μm i avhandlingen). Dessutom anser SKB att den i avhandlingen observerade omfattningen av lokalkorrosion (gropkorrosion) är begränsad och även den ger ett försumbart bidrag till kapselns totala korrosion (SKB TR-19-15, avsnitt 8.2.2).

SKB redovisar en fördjupad förståelse av mekanismer för strålningskemi i heterogena system i allmänt, och strålningskemi vid gränssnittet koppar/vatten och koppar/gas under strålningsinducerad kopparkorrosion i synnerhet (SKBdoc 1706535; SKB TR-19-15,

avsnitt 8.3). Det har observerats att omfattning av kopparkorrosion inducerad av gammastrålning vid experiment med kopparpelletar i syrgasfritt vatten är två tioposer högre än vad som predikteras av strålningskemiska modeller för vattenradiolys i homogena system (Björkbacka 2015, tabell 5; Björkbacka m.fl. 2013). Det är dessutom svårt att förklara experimentella observationer (Björkbacka 2015; SKB doc 1706535) kring reaktionen mellan koppar och väteperoxid (H_2O_2) med sedan tidigare etablerad förståelse för strålningskemiska mekanismer i heterogena system bestående av exempelvis övergångsmetalloxider och vatten (t.ex. Hiroki och LaVerne 2005; Jonsson, 2010). Det har tidigare antagits att väteperoxid, en viktig produkt av vattenradiolys, katalytiskt sönderdelas till hydroxylradikaler som sedan binds till exempelvis oxidtytor i heterogena system. För att kvantifiera oxidationen av urandioxid orsakad av väteperoxid behöver det beaktas att processerna sönderdelning/ytkomplexering och oxidation konkurrerar med varandra.

Den gängse förståelsen av denna typ av mekanismer kan dock inte förklara de ovan beskrivna observationerna kring kopparkorrosion i ett gammastrålfält, och i synnerhet inte observationen att kopparkorrosion fortgår även efter att all väteperoxid har blivit konsumerad (SKBdoc 1706535). Det har också experimentellt visats att väteperoxid förbrukas via en reaktion med kopparpulver med en hastighet som är proportionell mot förhållandet mellan pulvrets ytarea och vätskevolymen i systemet (Björkbacka 2015, figur 33). Det visades också att när allt syre avlägsnades ur systemet med hjälp av genomblåsning med kvävgas upphörde oxidationen av koppar (SKBdoc 1706535). Baserat på dessa observationer och teoretiska resonemang, har SKB tagit fram en uppdaterad förståelse för mekanismerna för kopparkorrosion i ett gammastrålfält (SKB TR-19-15, avsnitt 8.3; SKBdoc 1706535). Den mest aktiva oxidanten i systemet har visats vara syre snarare än väteperoxid (väteperoxid antogs vara den dominerande oxidanten i samband med kopparkorrosion bl.a. baserat på analogi med oxidation av urandioxid i ett gammastrålfält). Syre härstammar inte direkt som en produkt av radiolysen, utan bildas vid katalytisk sönderdelning av väteperoxid på ytan av kopparoxider (SKB TR-19-15, avsnitt 8.3).

De modeller som tidigare har använts för beräkning av korrosionsdjup, i bl.a. Björkbacka (2015), har uppdaterats med de ovannämnda mekanismerna, och dessa har sedan använts för att tolka de experimentella observationerna från Björkbacka (2015). Den uppdaterade modellen förutsäger under motsvarande förhållanden korrosionsdjup som överensstämmer relativt väl med experimentella resultat (SKBdoc 1706535, figur 5). Modellen har även använts för att modellera strålningsinducerad kopparkorrosion i samband med en dosrat som är jämförbar med den i slutförvarsmiljön, dvs. 1 Gy/h, vilket visar på en mer betydande korrosion vid lägre dosrat (1 Gy/h) än vid högre (540 Gy/h) under förutsättningen att totalt ackumulerad dos är konstant (100 Gy). (jmf. figurer 5 och 6 i SKBdoc 1706535). SKB förklarar denna dosratseffekt på kopparkorrosion med att vid lägre dosrat blir radikalkoncentrationer lägre vilket gynnar reaktionen mellan väteperoxid och kopparytan. SKB konstaterar dock att även dessa uppdaterade modelleringsresultat bekräftar att SKB:s tidigare uppskattning av korrosionsdjup under gammabestrålning i SR-Site fortfarande är konservativ, med ett korrosionsdjup på ca 0,85 μm från den uppdaterade modelleringen i jämförelse med 14 μm i SR-Site (SKB TR-19-15, avsnitt 8.3).

Sammanfattningsvis konstaterar SKB att även med hänsyn tagen till resultaten från tillkommande experimentella och teoretiska studier efter SR-Site är SKB:s uppskattning av allmänskorrosion av koppar i gammastrålfält i slutförvarsmiljön fortfarande konservativ. Beträffande strålningens inverkan på lokalkorrosion i form av gropkorrosion konstaterar SKB att observationerna av grunda gropar på ytan av korroderade kopparprover (Björkbacka, 2015) möjligen indikerar att provernas yta har blivit passiverad efter att ha



blivit exponerad för hög gammadosrat i vatten. Efter att gammastrålningsstyrka invid kopparytan avtar till en försumbar nivå är det dock mycket osannolikt att en sedan tidigare passiverad yta förblir passiverad under lång tid i slutförvaringsmiljön. Förhållanden som gynnar passivering av koppar i aeroba miljöer, så som hög koncentration av karbonat i kombination med låga kloridkoncentrationer, överensstämmer enligt elektrokemiska studier med kopparelektroder i vattenlösningar inte med slutförvaringsmiljön (King och Lilja, 2014).

Beträffande *gammastrålningsinverkan på spänningskorrosion* av kopparhöljet, har SKB uppdaterat sina teoretiska beräkningar (SKB TR-19-15, avsnitt 8.4, SKB TR-19-14) samt har utfört nya experimentella försök (SKB TR-19-15, avsnitt 8.5, SKB TR-19-12) för att studera effekten av gamma- och neutronstrålning på materialegenskaper hos kopparhöljet.

SKB:s uppdaterade beräkningar för hur både neutron- och gammastrålning påverkar materialet (SKB TR-19-14), visar på något lägre effekter av strålning på kopparhöljets materialegenskaper i form av antal förflyttningar per atom, dpa (*"displacement per atom"*) i jämförelse med tidigare beräkningar. De är dock fortfarande i samma storleksordning som de som redovisades i ansökan (SKB TR-01-32). De nya beräkningarna tar hänsyn till olika interaktioner mellan fotoner och elektroner samt neutroner och joner på ett mer detaljerat sätt än tidigare genom användning av en annan beräkningskod. Indata har hämtats från en uppdaterad databas för nukleära applikationer. SKB understryker betydelsen av att resultaten är i samma storleksordning trots att man har använt olika beräkningskoder och olika databaser. Ingen av beräkningarna tar hänsyn till den termiska glödningseffekten som mildrar strålningspåverkan, vilket gör beräkningarna konservativa.

SKB har utfört ytterligare experimentella undersökningar (SKB TR-19-12) i vilka kopparprover har exponerats för en ackumulerad gammastråldos på 100 kGy, vilket motsvarar den totala dos som kapseln kommer att utsättas för i slutförvaret. Experimenten utfördes på prover tillverkade av ren koppar vid rumstemperatur. Efter bestrålning analyserades proven med HR-TEM (*"High-Resolution Transmission Electron Microscopy"*) och PALS (*"Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy"*). Dessa metoder valdes ut för att kunna upptäcka eventuella skillnader i mikrostruktur eller kristallstruktur hos materialet före och efter bestrålning. Man utförde även nanoindenteringsmätningar för att analysera eventuella förändringar i hårdhet eller E-modul, samt mätningar av elektrisk resistivitet för att studera bestrålningens påverkan på materialets elektriska konduktivitet. Resultaten från HR-TEM och PALS visade att det inte fanns några tydliga skillnader mellan de bestrålade proven och referenserna. SKB konstaterar att de obestrålade proven innehåller ganska höga koncentrationer av dislokationer, dislokationsloopar och stapelfel. Detta kan eventuellt ha försvårat möjligheten att se eventuella skillnader mellan bestrålat och obestrålat material. En teoretisk analys visade att båda mikroskopimetoderna saknar den känslighet som krävs för att kunna detektera skillnader mellan bestrålat och obestrålat material. Övriga två metoder visade inte heller några mätbara skillnader mellan egenskaperna hos bestrålat och obestrålat material. SKB konstaterar att de utökade experimentella undersökningarna bekräftar att ingen betydande påverkan kan visas, vilket är i linje med resultaten från utförda beräkningar som visade att strålskadorna sker i så liten omfattning av de sannolikt inte skulle kunna detekteras.

SKB tar hänsyn till följande faktorer för att bedöma risken för spänningskorrosion:

- Orsakar strålningen så mycket skador/förändringar i grundmaterialet att bestrålat material får sämre motstånd mot spänningskorrosion jämfört med obestrålat material?
- Bildas det korrosiva ämnen i samband med radiolys?

- Sker det någon passivering av kopparytan i samband med bestrålning och påverkas korrosionspotentialen?

SKB anser att det har visats att bestrålning inte signifikant påverkar materialets mikrostruktur eller mekaniska egenskaper. I princip är det möjligt att gammastrålning av kvävgasmolekyler i luften utanför kapseln kan orsaka bildning av ammonium och nitrit, ämnen som anses öka spänningskorrosionsrisken under oxiderande förhållanden (SKB TR-10-67). Experimentella resultat visar dock att nitrat, som inte anses öka risken för spänningskorrosion för koppar, dominerar. En sammanställning av tidiga studier visar att det kan bildas små mängder ammonium (King, 1996). Två nyare studier som SKB refererar (SKB TR-19-15, avsnitt 8.6.2) rapporterar att det varken bildas ammonium eller nitrit (Björkbacka m.fl. 2017, Ibrahim m.fl. 2018). Utförda experiment har gjorts vid både realistiska och accelererade förhållanden samt för totala doser som är representativa för kopparkapseln i slutförvarsmiljön. SKB hänvisar vidare till en studie som visar att gammastrålning vid dosrater som är betydligt högre än vid kopparkapselns yta inte påverkar korrosionspotentialen (King och Litke 1987).

För att ytterligare belysa frågan om gammastrålning kan påverka risken för spänningskorrosion diskuterar SKB ett antal experimentella studier i vilka kopparprover har exponerats för såväl dragspänningar som ett gammastrålfält (Yunker 1990, Yunker och Glass 1987, Johnson m.fl. 1996). Gemensamt för dessa studier är att ingen sprickbildning har kunnat observeras trots att provningen har genomförts vid höga dragspänningar och höga dosrater.

SKB har även analyserat *strålningsinverkan på väteförsprödning* av kopparhöljet baserat på resultat från ett flertal studier i litteraturen (SKB TR-19-15, avsnitt 8.6.3). För att uppskatta omfattning av väteinträngning i koppar hänvisar SKB till resultat från experimentella försök (Björkbacka 2015) i vilka kopparprover bestrålades med en ackumulerad gammados motsvarande den som kopparkapseln förväntas bli exponerad för i slutförvaret. Den experimentellt bestämda korrosionshastigheten från bestrålningen (ca. 6×10^{-12} mol m⁻² s⁻¹) är två tiopotenser lägre än den beräknade korrosionshastigheten orsakad av sulfidkorrosion under omättade förhållanden i bufferten. Den sistnämnda beaktades i samband med analysen av risk för väteförsprödning pga. sulfidkorrosion (SKB TR-19-15, avsnitt 7.4.3). SKB anser att det har visats att väteinträngning i koppar pga. sulfidkorrosion är alltför begränsad för att på ett betydande sätt påverka kopparhöljet tack vare den låga koncentrationen av sulfid i grundvatten och bentonitlerans transportmotstånd (se vidare avsnitt 8 i denna granskningsrapport). För fallet väteinträngning i koppar som en följd av radiolys vid kapselytan kan samma slutsats dras, men med en ännu större säkerhetsmarginal.

SKB hänvisar även till Lousada m.fl. (2016) i samband med sin analys av inverkan på väteförsprödning pga. strålningsinducerad väteladdning av koppar i vatten. Studien visar att ca 0,2 vikt-ppm väte tas upp i 0,25 mm tunna kopparfolier efter gammabestrålning med en omfattning av 69 kGy och en dosrat på 486 Gy/h. SKB konstaterar att väteupptag av denna omfattning liksom den i studien slutliga vätehalten på 0,4 vikt-ppm ligger i nivå med vätehalten i OFP-kapselkoppar efter avslutade tillverkningsprocesser. Eftersom effekten avser en representativ gammados i slutförvarssammanhanget anser SKB att bestrålningen inte kommer att orsaka en i sammanhanget skadlig väteförsprödning.

Baserat på experimentella observationer av väteupptag i koppar under gammastrålning och analysen av väteflödet och väteupptaget i avsnitt 7.4 i SKB TR-19-15 drar SKB den sammanfattande slutsatsen att flödet av atomärt väte vid kopparytan är för litet för att kunna orsaka en skadlig försprödning av kapselhöljet i slutförvaret.

9.3 Synpunkter från SSM:s externa experter

Szakálos Materials Science AB

SSM:s externa experter P. Szakálos och C. Leygraf diskuterar i huvudsak vikten av att studera hur kopparegenskaperna påverkas av den kombinerade effekten av gammastrålning och närvaron av en vattenfas. De nya experiment som SKB har utfört är undersökningar där kopparprover enbart har exponerats för en ackumulerad gammastråldos av 100 kGy vilket motsvarar den totala slutförvardsdosen (SKB TR-19-15). Eftersom proverna inte samtidigt exponerades för syrgasfritt vatten understryker granskarna att samverkans effekten inte har utretts och att det finns risk att viktiga aspekter inte har undersökts fullt ut. Exempel som tas upp är bildning av nya defekter i bulkmaterial till följd av gammastrålningsglödning samt förändringar i ytstruktur. Gammastrålning kan leda till ökad diffusion av väte in i bulkmaterial samt ökad väteinducerad vakansbildning under tidig plastisk deformation. Detta skulle i sin tur öka risken för spröd krypdeformation, väteförspädning och spänningskorrosion.

Szakálos och Leygraf hänvisar till en KTH-studie (Lousada m.fl. 2016) för att visa att koppar som exponeras för gammastrålning och syrgasfritt vatten får ett ökat väteupptag. I de externa granskarnas rapport finns i slutet ett projektförslag, i vilket man avser att studera effekten av den kombinerade effekten av gammastrålning och exponering i syrgasfritt vatten genom att använda en tidigare utforskad teknik, HEXRD (*High-Energy Synchrotron X-Ray Diffraction*). Med denna metod kan man analysera eventuella fasomvandlingar och små förändringar i gitterparametrar hos enskilda korn. Syftet med ett sådant projekt är att studera vad som händer med materialegenskaperna när väteatomer i koppar ackumuleras vid defekter såsom vakanser. För koppar bedöms det finnas brister i förståelsen av väterelaterade mikrostrukturella effekter.

Galson Sciences Ltd.

SSM:s externa experter J.R. Scully och T.W. Hicks har värderat effekterna av strålning på gropkorrosion, SCC och HE i koppar. De drar slutsatsen att strålning inte förväntas förändra mikrostrukturen, vilket hade kunnat vara en bidragande orsak till en ökad löslighet av väte eller en förändrad deformationsmod för koppar. Frågan huruvida korrosionspotentialen påverkas av radiolytiska oxidanter så att de rådande reaktionerna som skulle kunna driva SCC eller HE går snabbare, men det motsägs av att de hittills redovisade experimenten som inte visar på några betydande förändringar av korrosionspotentialen. Restoxidanter från strålning förändrar endast marginellt korrosionshastigheterna, vilket därmed förväntas endast på marginalen påverka inverkan av vakansgenerering.

9.4 SSM:s uppdaterade bedömning

SSM bedömer att SKB:s redovisning av inverkan av gammastrålning på allmän- och gropkorrosion av koppar är vetenskapligt välgrundad och godtagbar. SSM instämmer med SKB att inverkan av gammastrålning på allmän korrosion av kopparkapseln i slutförvarsmiljön har en försumbar betydelse bl.a. baserat på det i sammanhanget korta tidsintervallet som gammastrålfältet vid kopparytan är betydande. Denna slutsats från säkerhetsanalysen SR-Site bekräftas av tillkommande experimentella studier som visar att SKB:s tidigare antagande om korrosionsdjup kopplat till denna process är konservativt.

Beträffande gammastrålningens inverkan på lokal korrosion så som gropkorrosion av kopparkapseln, ser SSM positivt på de uppdateringar som gjorts baserat på nyligen tillkommande studier. De experimentella resultaten i Björkbacka (2015) har bl.a.

analyserats på nytt med hjälp av en fördjupad förståelse för strålningskemiska mekanismer i det heterogena systemet med koppar och vatten. SSM instämmer med SKB att gammastrålning har en liten betydelse även i perspektivet lokal korrosion av koppar. Denna bedömning har delvis baserats på att den totala slutförvarsdosen leder till mycket grunda gropar (Björkbacka, 2015), men framför allt på att strålfältet inte långsiktigt förväntas medföra en passivering av kopparytan. Även om en passivering skulle komma till stånd under den första tidsperioden skulle den bildade oxidfilmen inte förbli stabil i en sulfidmiljö. SKB:s resonemang innebär att lokal korrosion i alla händelser avser en i sammanhanget kort period på upp till 300 år då gammastrålfältet ger upphov till en betydande bildning av radiolytiska oxidanter. I frånvaro av sådan bildning upphör processen.

De experimentella studier utförda av Björkbacka (2015) innefattade bestrålning kopparprover i rent vatten. Slutförvarsmiljön avser dock grundvatten och porvatten med ett innehåll av lösta joner så som sulfat, vätekarbonat och klorid. SSM konstaterar att det är vedertagen kunskap att klorid är en effektiv ”städare” (”scavenger”) genom att kemiskt reagera med hydroxylradikaler som produceras genom bestrålning av vattenlösningar (Draganić och Draganić 1971, kapitel 4, avsnitt V.B; Spinks och Woods 1964, kapitel 7). Denna mekanism kan förväntas leda till en ytterligare minskning av bildningen av stabila kopparoxidfilmer. Tidigare studier har gett en godtagbar förståelse för denna typ av reaktioner (t.ex. Litke m.fl. 1992), men ytterligare studier skulle etablera förståelsen på en högre nivå. SSM anser trots de förväntade små effekterna av denna typ av processer att det finns ett värde i att SKB i kommande steg av sitt program fortsätter med experimentella och teoretiska studier av strålningskemiska mekanismer av betydelse för bl.a. lokal korrosion av kopparkapseln i slutförvaret. SSM konstaterar att strålfältets inverkan på kopparkapseln är en oundviklig effekt vid slutförvaring av använt kärnbränsle och exempelvis skulle dosratens betydelse för inverkan på lokalkorrosion kunna studeras vidare.

Beträffande gammastrålningsinverkan på materialegenskaper noterar SSM att denna specifika fråga inte lyfts av mark- och miljödostolen. Ändå ser SSM positivt på att SKB har utfört ytterligare experimentella undersökningar där kopparprover har exponerats för en ackumulerad gammastråldos av 100 kGy samt att de utökade experimentella undersökningarna bekräftar att ingen betydande påverkan kan visas, vilket är i linje med resultaten från utförda beräkningar som visade att strålskadorna sker i så liten omfattning av de sannolikt inte skulle kunna detekteras. Den teoretiska analys som SKB utförde visade att de två mikroskopimetoder som användes saknar den känslighet som krävs för att kunna detektera skillnader mellan bestrålat och obestrålat material. SSM konstaterar dock att SKB har använt de bästa mikroskopimetoder som fanns tillgängliga vid tillfället för mätningen. SSM konstaterar att mikroskopimetoderna och deras känslighet utvecklas i snabb takt och det kan finnas metoder med högre upplösning att tillgå inom en snar framtid.

SSM noterar att de experimentella undersökningarna har utförts på ren koppar. SKB redovisar inga studier på fosforlegerad koppar. Tillsatserna av fosfor skulle kunna ge förändrat beteende hos materialet, till exempel kan antal defekter och typ av defekter förändras efter det att fosfor har tillsatts. Dessutom skulle ytterligare verifierande bestrålningsexperiment med fosforlegerad koppar vara värda att genomföra för att studera samverkans effekter med hög bestrålning, tillgång till en vattenfas samt hög temperatur. En samverkan mellan faktorerna strålning, tillgång till en vattenfas och temperatur skulle möjligen kunna ge upphov till defekter i mikrostrukturen av betydelse för kapselns mekaniska egenskaper. SSM anser därmed att det finns ett värde i att fortsätta med dessa typer av experiment som en del av ett forskningsprogram för en fördjupad grundläggande förståelse för processer som kan ha en påverkan på kapselns integritet. Huvuddelen av dessa studier bör kunna utföras med sedan länge etablerade metoder. Utvecklingen av

mikroskopimetoder kan med tiden också ge nya insikter i hur defekterna beter sig i bulkmaterial.

Beträffande strålningens inverkan på väteförsprödning av kopparhöljet bedömer SSM att SKB:s redovisning är trovärdig och godtagbar. SSM anser att SKB genom experiment och stöd från forskningsresultat i litteraturen har visat att strålningen i liten omfattning bidrar till väteladdning, jämfört med den som mer långsiktigt och lokalt kan uppstå till följd av sulfidkorrosion. SSM delar SKB:s slutsats att strålningen har liten betydelse i perspektivet väteförsprödning. SSM:s bedömning har baserats på de undersökningar som SKB har hänvisat till, vilka tydligt visar att den maximala mängden av atomärt väte, från korrosion och radikaler från radiolys som möjligen kan tränga in i kopparhöljet är begränsad.

10. Säkerhetsbetydelse och konsekvensberäkningar

10.1 SSM:s tidigare slutsatser

Konsekvensanalysen utgör den del av en säkerhetsanalys där de radiologiska effekterna av utsläpp från ett slutförvar beräknas genom matematisk modellering av frigörelsen av radioaktiva ämnen från det använda kärnbränslet, radionuklidtransport genom tekniska barriärer och berg, transport och omsättning av radioaktiva ämnen i biosfären. SKB:s metoder för konsekvensanalys har utvecklats under hela slutförvarsprogrammet genom framtagande av en systematisk beskrivning av bl.a. förvarssystemet och dess utveckling under lång tid, bergets egenskaper och långsiktiga utveckling samt genom att undersöka olika typer av exponeringsvägar i biosfären som kan förekomma under olika tidsperioder av slutförvarets långsiktiga utveckling. Exempel på särskilt viktiga områden inom konsekvensanalysen som SSM har granskat ingående i samband med SKB:s säkerhetsanalys SR-Site innefattar (SSM, 2018):

- Frigörelse av radioaktiva ämnen från använt kärnbränsle när det kommer i kontakt med grundvatten.
- Fördelning av grundvattenflödes hastigheter i nära anslutning till deponeringshål på förvarsdjup, samt transporttider för lösta ämnen i transportvägar upp till markytan.
- Buffertens och bergets transportegenskaper beskriven av porositet, diffusivitet, och flödesväta ytor.
- Retardationsmekanismer för radioaktiva ämnen i bufferten och berget så som sorption, matrisdiffusion, medfällning och utfällning av sekundära faser.
- Ythydrologisk modellering, radionuklidtransport i vattendrag och den marknära miljön, samt upptag av radionuklider i biosfären av människor, växter och djur.
- Degraderingsprocesser för tekniska barriärer.
- Förvarsplatsens långsiktiga utveckling i synnerhet i berget på förvarsdjup till följd av t.ex. landhöjningen, klimatförändringar, och kommande glaciationscykler.

Konsekvensanalysen består av en komplex kedja av beräkningar. SSM:s bedömning av detta omfattande material utgick dels från egna beräkningar för att verifiera SKB:s resultat (Xu m.fl. 2015), men även från granskning av SKB:s metodik för att säkerställa att ett systematiskt angreppssätt har använts (Klos m.fl. 2012). Följande moment med koppling till metodikfrågor ingick i SSM:s genomförda granskningsarbete:

- Dokumentation, kvalitetssäkring och ”benchmarking” av koder som har använts vid beräkningar (Hicks 2014, Robinson 2012)
- Systematik vid urval av data som används vid beräkningar med avseende på spårbarhet och användning av expertbedömningar



- Beskrivning av förvarssystemet som en grund för modellutformning, så som hur information från platsundersökningar, karaktärisering av tekniska barriärer, och forskningsresultat har tillämpats.

SSM bedömde att SKB:s arbete med avseende på de tre ovanstående punkterna vid framtagning av säkerhetsanalysen SR-Site har varit tillfredställande. Denna bedömning utgick från ett granskningsarbete baserat på följande moment:

- Reproduktion av viktiga resultat i SR-Site med hjälp av alternativa beräkningskoder (t.ex. Mohanty och Pensado 2014)
- Ämnesvis granskning av SKB:s dokumentation för att identifiera eventuell avsaknad av information, alternativa tolkningar av primärdata och vetenskapliga brister.
- Användning av alternativa konceptuella modeller och förenklade beräkningar för rimlighetsbedömningar (Klös m.fl. 2014)
- Kontroller av dataanvändning genom granskning av spårbarhet i SKB:s dokumentation och ett antal särskilda kvalitetsgranskningar, exempelvis genom granskning av fältmätningar i samband med genomförandet vid Forsmark respektive användning av data från den vetenskapliga litteraturen (ex. Chapman m.fl. 2009, Baldwin och Hicks 2012).

SSM:s sammanfattande slutsats är att SKB:s kvantifiering av dos/risk i samband med de specifika kapselbrottfallen är baserad på dokumenterade och väl motiverade dataunderlag, konceptuella beskrivningar av processer samt beräkningsmodeller (SSM, 2018). De redovisade dosuppskattningarna för de olika fall som SKB redovisar bedöms därför vara rimligt tillförlitliga. Dessa omfattar kvantifiering av konsekvenser kopplat till ett visst utsläpp av radioaktiva ämnen inducerat av ett eller flera kapselbrott vid en eller flera specifika tidpunkter i slutförvarets långsiktiga utveckling efter slutlig förslutning. Fallen som SKB har presenterat omfattar beräkningar som har tillämpats dels för att demonstrera kravuppfyllelse, dels för att illustrera slutförvarets robusthet.

SSM konstaterade även att SKB:s konsekvensberäkningar är förenliga med internationella riktlinjer och i stor utsträckning påminner om de säkerhetsanalyser som har använts i andra länder med jämförbara slutförvarsprogram. Vissa skillnader föreligger dock internationellt som främst beror på den något annorlunda kravbilderna i olika länder respektive skillnader i val av berggrund med olika egenskaper. Risker för människors hälsa kopplat till en specifik dosbelastning har utvärderats i enlighet med SSM:s föreskriftkrav (SSMFS 2008:37), vilka i sin tur har baserats på ICRP:s rekommendationer. SSM:s föreskrifter innehåller inga kvantitativa krav med avseende på risker förknippade med exponering av växter och djur för joniserande strålning. SSM bedömer dock att SKB:s beräkningar med avseende på miljöpåverkan baserade på ERICA tool är väl lämpade och har används på ett rimligt sätt (SSM, 2018). Framtagning av ERICA tool har skett inom ramen för ett internationellt samarbete kring miljöriskbedömningar kopplade till radioaktiva ämnen.

Det konstaterades att parametrering av modeller inom SR-site är rimlig även om specifika frågeställningar identifierades med avseende på en rad olika frågor. Ytterligare insatser kommer att krävas inför kommande steg i SKB:s program för att ytterligare öka tilltron till parameterintervall och genomförda beräkningar. Vissa parametrar har varit föremål för ett omfattande internationellt samarbete och har granskats tidigare i samband med ett flertal tidigare säkerhetsanalyser, exempelvis termodynamiska data för löslighetsberäkningar, radionuklidinventarier, bränsleupplösningshastigheter, och Kd-värden för att kvantifiera olika radioaktiva ämnens sorptionsegenskaper. Andra parametervärden har anpassats efter plats- och konceptspecifika förutsättningar, men den tillämpade metodiken är ett resultat av internationella samarbeten som pågått under lång tid. Rent platsspecifika

parametrar för radionuklidtransportmodellering så som fördelning av vattenförande sprickor i berggrunden och grundvattenflödes hastigheter har baserats på omfattande platsundersökningsdata från Forsmark (Chapman m.fl., 2009).

SSM har i stor utsträckning med tillfredställande resultat kunnat reproducera SKB:s radionuklidtransport-, biosfärs- och konsekvensberäkningar (SSM, 2018). För att uppnå den goda överensstämmelsen krävdes dock en del kompletterande information från SKB. SSM har också genomfört beräkningar inom en rad andra områden som bildar grunden för förståelsen av slutförvarets egenskaper och långsiktiga utveckling, så som bergmekanisk modellering (Backers m.fl., 2012) och grundvattenflödesmodellering (Geier, 2014). SSM har i sin granskning identifierat en rad frågeställningar och utvecklingsbehov för SKB:s kommande modelleringsinsatser, vilka förväntas utgöra en av flera utgångspunkter för framtagning av framtida säkerhetsanalyser (SSM, 2018).

I ett KBS-3 förvar kan spridning av radioaktiva ämnen endast ske om kapselns inneslutande funktion av någon anledning fallerar. Detta innebär dock inte att kapseln är viktigare än de båda andra barriärerna i systemet, eftersom det är tre barriärernas samverkande funktioner som avgör skyddsförmågan. Slutförvarets långsiktiga skyddsförmåga styrs därför av hur barriärerna påverkar varandra och hur hela barriärsystemet utvecklas som funktion av tiden. Bufferten och berget bidrar med avgörande förutsättningar för att dels uppnå kapselns långsiktiga inneslutning, dels för att upprätthålla systemets huvudsakliga andra säkerhetsfunktion förutom inneslutning, dvs. fördröjning av utsläpp av radioaktiva ämnen till biosfären. Fördröjning ger förutsättning för en stor del av radionuklidinventariet att avklinga, samt styr fördelning av eventuella utsläpp i tid och rum. I säkerhetsanalysen SR-Site identifierade SKB två mycket olika processer och händelser som ger upphov till kapselbrott, nämligen mekaniska kapselskador relaterade till möjliga framtida skjuvrörelser i berget nära vissa särskilt exponerade deponeringshål till följd av närliggande stora jordskalv, och korrosionsskador på kopparkapselns som föregås av erosion av bufferten i särskilt exponerade deponeringshål till följd av inflöde av glaciala smältvatten i slutförvaret. SKB genomförde omfattande beräkningar för att kvantifiera omfattning och tidsförlopp av dessa båda händelsekedjor i syfte att beräkna antalet fallerade kapslar. Jordskalvsfrågorna ligger utanför ramen för SKB:s komplettering. Mot bakgrund av de frågor som mark- och miljödomstolen identifierade konstaterade SSM att en viktig fråga var risken för lokala korrosionsprocesser till följd av snabbare tillförsel av korroderande ämnen under den tid som bufferten är omättad i förhållande till den tid då den är mättad. Denna fråga adresseras därför i korthet nedan. Beträffande SKB:s beräkningar av allmän korrosion för olika bufferttillstånd så som omättad, mättad och eroderad bedömde SSM att dessa har utförts på ett i huvudsak korrekt vis.

10.2 SKB:s tillkommande information

I SKB:s sammanfattande rapport (SKB TR-19-15) redovisas två typer av uppdaterade dosberäkningar på samma sätt som i SR-Site, det vill säga dels formella kravuppfyllelseberäkningar, dels hypotetiska beräkningar för att utröna det föreslagna förvarssystemets robusthet. SKB utgår från en sammanfattande bedömning av de processer som mark- och miljödomstolen omnämnde i sitt yttrande. Samtliga processer utvärderas för de tre möjliga bufferttillstånden: a) omättad buffert, b) mättad buffert, och c) eroderad buffert. SKB:s bedömning av mark- och miljödomstolens punkter sammanfattas som följer:

- Korrosion i rent syrgasfritt vatten utesluts för samtliga bufferttillstånd baserat på en utvärdering av de vetenskapliga bevisen för att reaktionen skulle kunna förekomma.



- En form av gropkorrosion pga. sulfid (benämnd mikrogalvanisk korrosion) beaktas i de uppdaterade dosberäkningarna genom att ansätta en gropfrättningsfaktor för eroderade deponeringshål. Saunaeffekten som i princip endast skulle kunna vara relevant för tiden med omättade deponeringshål bedöms även under denna period vara försumbar. Biotisk påverkan utesluts till följd av näringsbrist och buffertens egenskaper.
- Spänningskorrosion på grund av reaktion med sulfid utesluts eftersom sulfidkoncentrationer eller sulfidflux är alltför begränsade under de utvärderade bufferttillstånden, och för den initiala omättade fasen också beroende på avsaknaden av dragspänningar. Saunaeffekten anses även i detta fall ha en försumbar betydelse.
- Effekter av väteförsprödning utesluts baserat på lågt inflöde vid kopparytan och att en möjlig inträngning har begränsad räckvidd i materialet.
- Den joniserande gammastrålningen är försumbar efter de första 300 åren. Den bedöms även under denna första tidsperiod orsaka försumbar materialpåverkan och korrosionseffekt på kopparhöljet.

Den uppdaterade demonstrationen av kravuppfyllelse i förhållande till SSM:s riskkriterium har baserats på en processanalys och beskrivning av slutförvarsmiljöns utveckling som i begränsad omfattning avviker från vad som tidigare presenterades i säkerhetsanalysen SR-Site (SKB TR-11-01). De viktigaste faktorerna utgörs av:

- Grundvattenflöden som kvantifierats med data från SKB:s platsundersökningsprogram och som beskrivs med tre konceptuella modeller med alternativa beskrivningar av hur transmissivitet är korrelerat med sprickstorlek.
- Uppmätt fördelning av sulfidkoncentration i Forsmarks grundvatten och därifrån härledda flux av sulfid till en kopparkapselyta med beaktande av transportprocesser i den omgivande bufferten och berget.
- Buffertens tillstånd som omättad, mättad intakt samt eroderad. Baserat på SKB:s kriterium och matematiska modell för bufferterrosion omfattas ett mindre antal deponeringshål i kategorin eroderade hål. SKB har även en långt mer pessimistisk modell för bufferterrosion som omfattar alla deponeringshål, vilken dock har modifierats något. SKB ansatte tidigare för detta fall att bufferten i samtliga deponeringshål var initialt eroderade, men i den nuvarande modellen uppkommer inte advektiva förhållanden förrän efter 20 000 år. Tiden motiveras med att den innefattar tempererade förhållanden utan risk för inträngning av glaciala smältvatten.
- Det ojämna korrosionsdjupet som orsakas av den nu medräknade mikrogalvaniska korrosionen (en form av gropkorrosion) kvantifieras genom att ansätta en gropfrättningsfaktor på 20. Den innebär att den lokala korrosionshastigheten ökas i motsvarande omfattning i förhållande till fallet allmän korrosion, vilket SKB betraktar som ett särskilt pessimistiskt antagande. SKB avser att ta fram en mer realistisk hantering i kommande säkerhetsanalyser baserat på ytterligare studier.

SKB:s uppdaterade kravuppfyllelseberäkningar visar att det finns förutsättningar att uppfylla SSM:s riskkriterium. Toppdosen i tidskalan fram till en miljon år ökar i marginell omfattning. Ökning av dos under ett intervall fram till 100 000 år går dock snabbare i synnerhet om den pessimistiska modellen för bufferterrosion tillämpas. De förnyade dosberäkningarna innebär ingen väsentlig förändring av den beräknade totala risken.

Mot bakgrund av diskussion och krav på uppdaterad redovisning av kapselprocesser har SKB också förnyat och utökat analysen av betydelsen av tidiga hypotetiska kapselbrott. De viktigaste aspekterna av dessa beräkningar utgörs av:

- Kapselns tillstånd i samband med förlusten av inneslutningsförmåga har en betydelse för hur snabbt radioaktiva ämnen kan spridas. I SR-Site (SKB TR-11-



01) fanns ett fall där en fallerad kapsel antogs ha en kapselskada med storleken 10-tals cm. I kompletteringen lyfts dock ett fall med mer begränsade skador fram eftersom det är svårt att föreställa sig ett rimligt realistiskt scenario som leder fram till denna typ av kapselskada. SKB förutsätter tidig uppkomst av en mindre kapselskada, ett genomgående hål med en diameter på 4 mm, för samtliga deponerade kapslar. Baserat på tidigare analyser (SKB TR-97-19), dras slutsatsen att det tar först 1000 år innan kapseln blir vattenfylld och en spridning av radioaktiva ämnen kan påbörjas. Därefter deformeras kapseln pga. korrosion av järninsatsen som medför att kapseln sväller och att höljet spricker upp ytterligare. Efter 10 000 år är kapselskadorna så omfattande att kapseln i sig inte kan tillgodoräknas en funktion för att begränsa spridningen av radioaktiva ämnen.

- Buffertens tillstånd har också en stor betydelse för effekten av tidiga kapselskador. Till att börja med förutsätts att bufferten redan från början är vattenmättad, vilket är pessimistiskt i detta sammanhang eftersom det annars skulle ta betydligt längre tid för kapseln att vattenfyllas. SKB betraktar i övrigt de båda fallen bufferterosion enligt modellen i SR-Site, samt ingen bufferterosion
- Representationen av biosfären har en viktig betydelse för vilka konsekvenser som beräknas för ett visst givet utsläpp av radioaktiva ämnen. SKB har i samband med säkerhetsanalysen SR-Site använt landskapsspecifika doskonverteringsfaktorer (LDFs) för att beräkna doser i samband med hypotetiska fall för kapselskador. I detta fall beaktas endast de biosfärsobjekt som för varje nuklid och varje tidpunkt ger den högsta dosen. Den totala dosen beräknas sedan med en summering. I de uppdaterade dosberäkningarna för att visa kravuppfyllelse använder SKB något reviderade LDF-värden. I robusthetsberäkningarna används dock istället en mer realistisk dynamisk representation av biosfären som beaktar systemets gradvisa utveckling till följd av landhöjningen. SKB bedömer att den dynamiska modellen ger en mer realistisk beskrivning av det verkliga systemet i synnerhet för fall som innefattar att många kapslar fallerar.

Resultaten från SKB:s förnyade robusthetsberäkningar visar att beräknad dos aldrig överskrider en dos som motsvarar SSM:s riskkriterium (årlig dos av 14 μ Sv), trots att samtliga kapslar initialt förutsätts att ha ett mindre genomgående hål. Beräkningsfallet som beaktar bufferterosion är på sikt som väntat förknippat med en högre dos. SKB påpekar att dessa beräkningar inte kan tas som en intäkt för att kraven på långsiktig strålsäkerhet kan uppfyllas utan att tillgodoräkna sig kapselns långsiktiga skyddsförmåga eftersom samtliga osäkerheter i robusthetsberäkningarna inte har beaktats på ett fullt ut systematiskt sätt. Beräkningarna visar likväl att slutförvaret har en mycket betydande skyddsförmåga även för fall där samtliga kapslar fallerar på ett tidigt stadium.

10.3 Synpunkter från SSM:s externa experter

Quintessa Limited

SSM:s externa experter R. Walke och R. Newson har granskat biosfärsfrågor i kompletteringen och har genomfört vissa egna beräkningar i samarbete med Southwest Research Institute (SwRI; se nedan). Utflöden från geosfären ("far-field fluxes") har beräknats av SwRI och kombinerats med de LDF-värden som SKB använder i SR-Site. Beräkningsresultaten är i ungefärlig överensstämmelse med SKB:s resultat, dvs. en årlig effektiv dos nära 1 μ Sv för både fallet med respektive utan tidig advektion i deponeringshål. Skillnaden är att den högsta dosen beräknas komma betydligt tidigare jämfört med SKB:s beräkningar i TR-19-15. I dessa kompletterande beräkningar har SKB inkluderat de båda radionukliderna Rn-222 och Po-210 i sönderfallskedjan för U-238, vilket inte gjordes i de ursprungliga SR-Site-beräkningarna. Detta bedömer Quintessa vara



rimligt men anser att SKB inte diskuterar eller motiverar hur lämplig modellen för Rn-222-transport är. Modellen är utvecklad för transport av Rn-222 i gasfas från förvar till biosfär, inte för transport av Rn-222 i grundvatten från förvar till biosfär. Quintessa noterar också att Rn-222 som bildas från sönderfall av Ra-226 i biosfären fortfarande inte beaktas av SKB. Det noteras även att SKB:s antaganden kring ventilation och byggnadsvolymer ger ett lägre dosbidrag från Rn-222, jämfört med om rekommendationer från UNSCEAR (2000) tillämpas.

Beträffande det hypotetiska beräkningsfallet i vilket samtliga kapslar är skadade redan vid slutförvarets förslutning, konstaterar Walke och Newson att SKB har uppdaterat Kd och CR-värden, samt har tillämpat en tidsberoende biosfärsmodell snarare än LDF-modellen som användes i samband med SR-Site beräkningarna. Quintessa anser att den nya biosfärsmodellen är mer realistisk och lämplig för modellering av nuvarande tidsperiod med tempererat klimat, men inte för senare perioder i slutförvarets utveckling. Vidare konstaterar Walke och Newson att kompletteringen (SKB TR-19-15) inte innehåller någon information om hur flux av radionuklider från slutförvaret fördelas mellan olika biosfärsobjekt. Walke och Newson noterar också att de högsta doserna för C-14 beräknas för landskap med sjöar och att den av SKB valda tidpunkten 10 000 år, för förvärrad kapselskada, sammanfaller med den tidpunkt då landskapet ovanför förvaret enbart består av land. Vad gäller SKB:s val av Kd och CR-värden för i synnerhet I-129 och Se-79 menar Walke och Newson att valen av Kd-värden är väl motiverade. Men att valen av CR-värden inte är lika övertygande underbyggda.

Southwest Research Institute

SSM:s externa experter O. Pensado och S. Stothoff redogör för förutsättningar för lokal korrosion där bl.a. en linjär filmtillväxt som funktion av tiden indikerar bildning av en icke-passiverande film, vilket har visats experimentellt. Vid koncentrationer runt 1 mM avviker dock filttillväxten från den linjära beteendet vilket kan antyda risk för bildning av passiverande filmer. Bildning av passiverande filmer utgör en förutsättning för risken för lokal korrosion. Experterna anser dock att gropkorrosion är mycket osannolik i slutförvarsmiljön, bl.a. eftersom SKB:s gränsvärden för sulfidflux som medför gropkorrosionsrisk är försiktigt formulerade. I de allra flesta positionerna i berget på förvarsdjup är sulfidtillgången allt för begränsad. Man anser också att användning av gropfrättningsfaktor (PF) 20 är ett lämpligt valt värde för att representera mikrogalvanisk korrosion.

Egna beräkningar har formulerats för att definiera antalet kapselpositioner som skulle kunna dels falla inom en miljon år, dels påverkas av lokal korrosion. Dessa beräkningar utgår från de av SKB etablerade diskreta fördelningarna för sulfidkoncentration och den semi-korrelerade flödesmodellen som tillsammans används för att etablera en fördelning av korrosionshastigheter. Genomsnittliga korrosionshastigheter över 0,05 μm per år är tillräckliga för att penetrera kopparhöljet inom en miljon år baserat på antagandet jämnt fördelad allmän korrosion, men för att uppnå tillräckligt höga sulfidflux som är kompatibla med bildning av en passiverande filmer och risk för gropkorrosion behöver den genomsnittliga korrosionshastigheten vara minst dubbelt så hög. Detta innebär att risken för mikrogalvanisk korrosion inte har någon påverkan alls på antalet kapselpositioner som kan falla inom en miljon år. Denna typ av korrosion påverkar dock tiden fram till brott för de kapselpositioner med högst sulfidflöde och som kommer att falla inom en miljon år.

De externa experterna har genomfört radionuklidtransportberäkningar för att undersöka betydelsen av mikrogalvanisk korrosion i eroderade deponeringshål med samma förutsättningar som SKB (dvs. genom att ta hänsyn till gropfrättningsfaktorn 20). Detta



arbete utgör en direkt fortsättning av tidigare insatser från dessa externa experter (Pensado, 2017) för att reproducera SKB:s tidigare konsekvensberäkningar med samma typ av beräkningskod. De nya beräkningarna som beaktar groppfrättningsfaktorn 20 visar på en årlig medeldos på 1 μSv , och är en faktor 2 högre än SKB:s motsvarande resultat, vilket i sammanhanget kan betraktas som en liten avvikelse.

Experterna har även gjort egna analyser av generella förutsättningar för korrosion i mättade och omättade deponeringshål. Det konstateras att diffusiv transport av sulfid respektive förutsättningar för mikrobiell bildning av sulfid är så begränsade i en mättad buffert att både mikrogalvanisk korrosion och kapselbrott kan anses uteslutet inom tidsintervallet en miljon år. För att utvärdera en gränssättande situation konstruerades ett fall där sulfid tillförsel tillförsel sker genom ett hypotetiskt rör som tangerar en punkt på buffertens rand. I detta fall uppkommer dock en mycket liten sannolikhet att en kapsel fallerar inom en miljon år baserat på fördelningar av sulfidhalter och grundvattenflödes hastigheter.

Beträffande omättade förhållanden genomfördes beräkningar som beaktar ett antal effekter som försumrats i SKB:s motsvarande beräkningar. Man konstaterar inledningsvis att en första fråga om porvatten i återfyllnadsmaterial kan innehålla μM koncentrationer av sulfid eftersom bentonit har visats kunna fastlägga betydande mängder av tillsatt sulfid. En av de viktigaste frågeställningarna vid modelleringen av gasformig sulfid är diffusionskoefficientens beroende av vattenmättnadsgrad. Vid SKB:s beräkningar av lokala sulfidflöden erhålls som mest $6,5 \cdot 10^{-11} \text{ mol}/(\text{m}^2, \text{s})$, vilka minskades om hänsyn togs till den ökande mättnadsgraden som funktion av tiden. O. Pensado och S. Stothoff konstaterade dock att SKB har gjort vissa förenklingar som kan ha betydelse, så som att vara sig Henryslagkonstanten, diffusionskoefficienten för H_2S , eller den motsvarande dissociationskonstanten för sulfid har korrigerats för temperaturskillnader. Diffusionskoefficienten befanns vara relativt okänslig för temperatur, men den likaledes försummade betydelsen av förändringar i omgivningstryck med tanke på förvarsdjupet har relativt stor betydelse. Experternas egna beräkningar visar att vissa av de studerade faktorerna ökar sulfidflödet medan andra minskar det. Det maximalt beräknade lokala sulfidfluxet är ungefär en faktor 3 högre än SKB:s motsvarande beräkningar. Det konstaterades dock att högsta flux av sulfid avser en hörnregion på kapseln som kan betraktas som en singularitet och att diskretisering av modellen därför har en betydelse för fluxberäkningarna. Lokalt höga flux kan anses vara en artefakt som inte kan representera långsiktigt uthålliga korrosionshastigheter. Slutsatsen är att sulfidkorrosion under den tidsmässigt begränsade omättade perioden är osannolik som ett skäl för betydande kapselskador

Szakálos Materials Science AB

SSM:s externa experter P. Szakálos och C. Leygraf bedömer att samtliga kapslar kommer falla under en förhållandevis kort tidsperiod. Två möjligheter diskuteras i rapporten: i) ett vad som bedöms vara ett realistiskt fall innebär att 40 % av kapslarna fallerar mellan 100 år och 200 år, och resterande kapslar fallerar inom 1000 år, ii) ett snarlikt konservativt fall där 40 % av kapslarna fallerar inom 100 år och resterande kapslar fallerar inom 1000 år. De av Szakálos och Leygraf postulerade snabba degraderingsprocesserna som förutsätts medföra dessa korta kapsellivslängder är spänningsskorrosion (SCC), väteförspredning (HE) och vätesjuka (HS) i svetsfogarna. En analys av kapselbrott som en följd av saunaeffekten har också presenteras i vilken kapslar fallerar dels i tidsskalan upp till några hundra år, dels i tidsskalan upp till 20 000 år. Författarna anser dock att de längre tiderna i denna analys inte gäller eftersom de andra diskuterade kapseldegraderingsprocesserna ger en kortare kapsellivslängd.

10.4 SSM:s uppdaterade bedömning

SSM konstaterar att SKB:s uppdaterade riskanalys som explicit beaktar gropkorrosion (av SKB benämnd mikrogalvanisk korrosion) representerad med gropfrättningsfaktorn 20 medför små förändringar i slutförvarets långsiktiga risk i jämförelse med SR-Site, med endast ett fåtal kapslar som faller under en miljon år. Som konstateras av Pensado och Stothoff är den låga sannolikheten för penetration av kopparhöljet, trots det mer punktformiga korrosionsangreppet för de mest utsatta kapselpositionerna, i första hand en konsekvens av att både höga grundvattenflödes hastigheter och förhållandevis höga sulfidhalter i grundvatten fortfarande måste föreligga i ett och samma deponeringshål. Detta innebär att två var för sig mindre sannolika omständigheter måste sammanfalla. Det bör också påpekas att antagandet att höga sulfidhalter förblir bestående i ett antal deponeringshål under extremt lång tid på det sätt som antas i SKB:s analys förmodligen leder till en överskattning av ackumulerad korrosion. I andra hand är den låga sannolikheten också kopplat till att beräkningsfallet som beaktar mikrogalvanisk korrosion endast avser ett mindre antal deponeringshål för vilka betydande buffererosion har förutsetts äga rum. Den relativt sätt mindre betydelsen av denna omständighet, i förhållande till den som ges av fördelningar för grundvattenflöden och sulfidhalt, illustreras av att skillnaden mellan grundfallet och det särskilda fallet advektion i alla deponeringshål efter 20 000 år (dvs. tidig buffererosion i alla deponeringshål) är liten.

De uppdaterade konsekvensberäkningarna medför inget behov att justera SSM:s tidigare bedömning kring SKB:s förutsättningar att uppfylla SSM:s riskkriterium (SSM, 2018). SSM anser fortfarande att SKB har förutsättningar att uppfylla riskkriteriet. Med förutsättningar menas här att SSM förväntar sig att SKB efter att ha konstruerat tillfartsvägar till förvarsdjup och ytterligare har undersökt Forsmarksbergets egenskaper, har vidareutvecklat tillverknings och provningsmetoder för tekniska barriärer, samt har slutfört utredningar som föranleds av SSM:s tidigare granskningskommentarer, kan erhålla den information som krävs för att SSM i en förlängning kan ge ett godkännande för påbörjad provdrift, dvs. deponering av de första förslutna kopparkapslarna med använt kärnbränsle.

Faktorer som bidrar till säkerhetsmarginaler är den låga frekvensen av vattenförande sprickor på förvarsdjup, den planerade användningen av acceptanskriterier för deponeringshålspositioner (för att undvika att deponeringshålen korsas av stora strukturer i berget och lokala förekomster av höga grundvattenflöden), den betydande kapseltjockleken och generellt låga koncentrationer av sulfid i grundvatten på förvarsdjup. De två förstnämnda faktorerna bidrar även till gynnsamma förutsättningar i perspektivet begränsa spridning av radioaktiva ämnen om en eller flera kapslar av något skäl skulle falla under de tidsperioder som specificeras i SSM:s föreskrifter och allmänna råd. Säkerhetsbetydelsen av de övriga två barriärerna förutom kapsel, bufferten och berget, avser i detta korrosionssammanhang att de begränsar omfattningen av en uthållig tillförsel av sulfid, vilken är en förutsättning för propagering av sulfidinducerade korrosionsprocesser (allmän korrosion, gropkorrosion, spänningskorrosion). I SSM:s granskning av SKB:s tillståndsansökan efterlystes en utförligare analys av korrosionsprocesser kopplat till gasformig transport i omättade deponeringshål (SSM, 2018). Ny tillkommen information inom detta område visar på att betydelsen av mikrobiell sulfidbildning och snabbare tillförsel av sulfid via gasdiffusion under denna fas sannolikt är mer begränsad än vad SSM tidigare har förutsatt.

SSM anser att systemets robusthet har visats genom att även fall som involverar genomgående hål i samtliga kopparkapslar ger förhållandevis små omgivningskonsekvenser. SKB har i sin komplettering tillfört två nya beräkningsfall för att illustrera systemets robusthet, ett fall med 4 mm hål genom kopparhöljet och intakt buffert, samt ett annat fall med 4 mm hål genom kopparhöljet i kombination med erosion av bufferten i enlighet med buffererosionsmodellen i SR-Site (som innebär att advektiva

förhållanden uppstår i ett begränsat antal deponeringshål). Dessa beräkningar ger upphov till årliga doser som ungefär motsvarar SSM riskkriterium. Den betydligt lägre omgivningspåverkan för dessa fall i jämförelse med motsvarande fall som redovisas i SR-Site tillskrivs en vidareutvecklad dynamisk biosfärsmodell som explicit beaktar systemets gradvisa utveckling under inverkan av landhöjningen och som SSM bedömer vara mer realistisk. Även i SR-Site visades dock att i fall som involverar många kapselbrott snarare än ett fåtal ger ett lägre bidrag till individdosen per fallerad kapsel eftersom spridningen av radioaktiva ämnen fördelas över större områden och flera biosfärsobjekt. SSM har i sin bedömning av systemets robusthet i första hand utgått från de tidigare beräkningarna som för fallen med omfattande kapselskador som resulterar i årliga doser för närboende kring bakgrundsnivån (dvs. 1-2 mSv; SKB TR-10-50). SSM har även själva och med hjälp av externa experter konstruerat och analyserat liknande fall (Strömberg m.fl., 2019; Pensado, 2017). Den förhållandevis låga dosbelastningen för denna typ av fall innebär att slutförvaret har en betydande skyddsförmåga även utan kapselns inneslutningsfunktion.

Den höga skyddsförmågan hos ett förslutet slutförvar för även ganska extrema fall med frekventa tidiga kapselskador beror på, vilket också har nämnts ovan, de gynnsamma hydrogeologiska egenskaperna hos Forsmarksberget på förvarsdjup (generellt låga och glest förekommande grundvattenflöden), men även på långsam bränsleupplösning i reducerande kemisk miljö, förekomsten av kemiska och fysikaliska retardationsmekanismer för läckande radioaktiva ämnen i berget, såsom sorption och matrisdiffusion. Bufferten bidrar med liknande retardationsmekanismer till ytterligare reduktion av dos/risk för fall med omfattande kapselbrott, förutom för deponeringshålen med högsta grundvattenflöden under den postglaciala perioden.

Szakálos och Leygraf postulerar i sin granskning två snarlika fall som innebär att samtliga kapslar fallerar inom ett tusen år. SSM konstaterar att dessa båda fall är mycket lika hypotetiska fall som har analyserats av SKB (SKB TR-10-50) och av SSM:s externa experter, vilka innebär att samtliga kapslar fallerar antingen momentant eller jämnt fördelat inom en tidsperiod på 1000 år och ger upphov till en maximal årlig dos runt 1 mSv och i nivå med bakgrundstrålningen. SSM vill understryka att analys av sådana fall är att betrakta som hypotetiska med syftet att förstå systemets känslighet. I rapporten av Szakálos och Leygraf åberopas av författarna ”snabba” korrosionsprocesser (bl.a. SCC, HE, HS), citat från forskningsrapporter, samt observationer av exponerade kopparytor, som grund för slutsatsen att samtliga kapslar kommer fallera inom tidsperioden 1000 år. SSM anser det dock inte vara möjligt att dra långtgående slutsatser baserat på denna typ av observationer och underlag. De observationer som betonas av Szakálos och Leygraf kan bl.a. avse initialt förekommande defekter i koppar, korrosion under initialt förekommande oxiderande förhållanden, korrosion under experimentella förhållanden som avsiktligt har anpassats för att inducera och accelerera den studerade degraderingsprocessen, och även avse förhållandevis små korrosionsangrepp. SSM konstaterar dock att oavsett om de av Szakálos och Leygraf åberopade ”snabba” processerna verkligen kommer att förekomma i ett förslutet slutförvar eller inte så krävs inte bara att en sådan korrosionsprocess har initierats utan även att den har propagerats till dess att kopparhöljet fallerar. Annars sker inte någon spridning av radioaktiva ämnen. En analys av kapselbrott behöver beakta att omfattningen av korrosionsangrepp i slutförvarsmiljön ibland 6000 deponerade kopparkapslar kommer att vara beroende på lokala förutsättningar för materietransport bland annat beroende på buffertens status, och på det omgivande bergets lokala täthet, liksom även i viss mån av lokala grundvattenkemiska betingelser.

Det finns i underlaget från Szakálos och Leygraf även en kvantitativ analys som leder fram till en kapselbrottsfördelning associerad med saunaeffekten som SSM bedömer vara baserad på realistiska förutsättningar (se avsnitt 4 i denna granskningsrapport för SSM:s motivering till detta). För de övriga degraderingsprocesserna som anses leda till tidiga



kapselbrott (bl.a. SCC, HE, HS) finns dock inte motsvarande beräkningar och inte heller någon form av kvantitativ analys av omgivningsfaktorer som styr och påverkar de olika korrosionsmekanismerna i slutförvarsmiljö, och som skulle ha kunnat ge en grund för att bedöma rimligheten i de av Szakálos och Leygraf postulerade tidsintervallen för kapselbrott med avseende på olika korrosionsprocesser.

11. Referenser

Aaltonen P., Jagodzinski Y., Tarasenko A., Smouk S., Hänninen H., 1998. *Low-frequency internal friction of pure copper after anodic polarisation in sodium nitrite solution*. Corrosion Science 40, 903–908.

Al-Shammiri, M., 2002. *Evaporation rate as a function of salinity*. Desalination, 150, pp. 189–203.

Ariilahti E., Lehtikuusi T., Olin M., Saario T., Varis P., 2011. *Evidence for internal diffusion of sulphide from groundwater into grain boundaries ahead of crack tip in Cu OFP copper*. Corrosion Engineering, Science and Technology 46, 134–137.

ASTM, 2016. *ASTM B577-16: Standard test methods for the detection of cuprous oxide (hydrogen embrittlement susceptibility) in copper*. West Conshohocken, PA: ASTM International.

Backers T., Stephansson O., Sonnerfelt L., Lanaro F., 2012. *Influence of Temperature And Fluid Pressure On the Fracture Network Evolution Around Deposition Holes of a KBS-3V Repository Concept At Forsmark, Sweden*. International Society for Rock Mechanics and Rock Engineering, ISRM International Symposium - EUROCK 2012, 28-30 May, Stockholm, Sweden, ISRM-EUROCK-2012-148.

Baldwin T., Hicks T., 2012. *Documentation and Traceability of Data in SKB's Safety Assessment SR-Site: Initial Review Phase*, SSM Technical Note 2012:36, Swedish Radiation Safety Authority.

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

Becker R., Öijerholm J., 2017. *Slow strain rate testing of copper in sulfide rich chloride containing deoxygenated water at 90 °C*. SSM Report 2017:02, Swedish Radiation Safety Authority.

Björck M., Pehkonen H., Vuori L., Tigerström M., Lahtonen K., Valden M., Purhonen T., Cederqvist L., 2017. *Evaluation of a gas shield for friction stir welding of copper canisters*. Posiva SKB Report 02, Posiva Oy, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Björck M., Taxén C., Vuoristo T., Elger R., Zavalis T., Wikström L., Sparr M., 2019. *Embedded oxide particles in FSW*. Posiva SKB Report 10, Posiva Oy, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Björkbacka Å., 2015. *Radiation induced corrosion of copper*. Doctoral Dissertation. Royal Institute of Technology, Stockholm, Sweden.

Björkbacka Å., Hosseinpour S., Leygraf C., Jonsson M., 2012. *Radiation induced corrosion of copper in anoxic aqueous solution*. Electrochemical and Solid-State Letters, 15, C5–C7.



- Björkbacka Å., Hosseinpour S., Johnson M., Leygraf M., Jonsson M., 2013. *Radiation induced corrosion of copper for spent nuclear fuel storage*. Radiation Physics and Chemistry, 92, 80–86.
- Björkbacka Å., Johnson C. M., Leygraf C., Jonsson M., 2016. *Role of the oxide layer in radiation-induced corrosion of copper in anoxic water*. The Journal of Physical Chemistry C, 120, 11450–11455.
- Björkbacka Å., Johnson C. M., Leygraf C., Jonsson M., 2017. *Radiation induced corrosion of copper in humid air and argon atmospheres*. Journal of the Electrochemical Society 164, C201–C206.
- Chapman N., Geier J., Tsang C-F., Tirén S., Stephansson O., Bath A, 2009. *SDM-Site Forsmark, Review of SKB TR-08-05 (Site description of Forsmark at Completion of the Site Investigation Phase) and supporting documentation*. INSITE Report M-09-06, Swedish Radiation Safety Authority.
- Chen J., Qin Z., Shoesmith D. W., 2010. *Kinetics of corrosion film growth on copper in neutral chloride solutions containing small concentrations of sulfide*. Journal of the Electrochemical Society 157, C338–C345.
- Chen J., Qin Z., Shoesmith D. W., 2011a. *Rate controlling reactions for copper corrosion in anaerobic aqueous sulphide solutions*. Corrosion Engineering, Science and Technology 46, 138–141.
- Chen J., Qin Z., Shoesmith D. W., 2011b. *Long-term corrosion of copper in a dilute anaerobic sulfide solution*. Electrochimica Acta 56, 7854–7861.
- Chen J., Qin Z., Shoesmith D. W., 2012. *Copper corrosion in aqueous sulfide solutions under nuclear waste repository conditions*. In Scientific basis for nuclear waste management XXXV: symposium held in Buenos Aires, Argentina, 2–7 October 2011. Warrendale, PA: Materials Research Society. (Materials Research Society Symposium Proceedings 1475), 465–470.
- Chen J., Qin Z., Martino T., Shoesmith D. W., 2017a. *Effect of chloride on Cu corrosion in anaerobic sulphide solutions*. Corrosion Engineering, Science and Technology 52, 40–44.
- Chen J., Qin Z., Martino T., Shoesmith D. W., 2017b. *Non-uniform film growth and micro/macrogalvanic corrosion of copper in aqueous sulphide solutions containing chloride*. Corrosion Science 114, 72–78.
- Chen J., Qin Z., Martino T., Guo M., Shoesmith D. W., 2018. *Copper transport and sulphide sequestration during copper corrosion in anaerobic aqueous sulphide solutions*. Corrosion Science 131, 245–251.
- Chen S., Wang P., Zhang D., 2014. *Corrosion behavior of copper under a biofilm of sulfate-reducing bacteria*. Corrosion Science 87, 407–415.
- Cleveland C., Moghaddam S., Orazem M. E., 2014. *Nanometer-scale corrosion of copper in de-aerated deionized water*. Journal of The Electrochemical Society 161, C107–C114.



- Dou W., Jia R., Jin P., Liu J., Chen S., Gu T., 2018. *Investigation of the mechanism and characteristics of copper corrosion by sulfate reducing bacteria*. Corrosion Science 144, 237–248.
- Draganić I. G., Draganić Z. D., 1971. *The radiation chemistry of water*. Academic Press.
- Fernández A. M., Sánchez-Ledesma D. M., Melón A., Robredo L. M., Rey J. J., Labajo M., Clavero M. A., Carretero S., González A. E., 2018. *Thermo-hydro-geochemical behaviour of a Spanish bentonite after of the FEBEX in situ test at the Grimsel Test Site*. Technical report CIEMAT/DMA/2G216/03/16. Nagra Arbeitsbericht NAB 16-25, Nagra, Switzerland.
- Forsström A., Becker R., Öijerholm J., Yagodzinskyy Y., Hänninen H., Linder J., 2017. *Hydrogen absorption in copper as a result of corrosion reactions in sulphide and chloride containing deoxygenated water at 90 °C in simulated spent nuclear fuel repository conditions*. In Proceedings of EUROCORR 2017 – The Annual Congress of the European Federation of Corrosion, 20th International Corrosion Congress and Process Safety Congress, Prague, Czechia, 3 – 7 September 2017.
- Garralón A., Gómez P., Turrero M.J., Torres E., Buil B., Sánchez L., Peña J., 2017. *Hydrogeochemical characterisation of the groundwater in the FEBEX gallery*. Nagra Arbeitsbericht NAB 16-14, Nagra, Switzerland.
- Geier J., 2014. *Assessment of flows to deposition holes – main review phase*. SSM Technical Note 2014:05, Swedish Radiation Safety Authority.
- Ha H. M., Scully J. R., 2013. *Effects of phosphate on pit stabilization and propagation in copper in synthetic potable waters*. Corrosion 69, 703–718.
- He X., Ahn T., Gwo J-P., 2018. *Corrosion of copper as a nuclear waste container material in simulated anoxic granitic groundwater*. Corrosion 74, 158–168.
- Hedin A., Lilja C., Johansson A. J., 2017. *Copper corrosion in pure water – scientific and post-closure safety aspects*. Proceedings of the 16th International High-Level Radioactive Waste Management Conference, Charlotte, NC, 9 – 13 April 2017. American Nuclear Society.
- Hedin A., Johansson A. J., Lilja C., Boman M., Berastegui P., Berger R., Ottosson M., 2018. *Corrosion of copper in pure O₂-free water?* Corrosion Science 137, 1–12.
- Hicks T., 2014. *QA in SKB's Groundwater Flow Modelling*. SSM Technical Note 2014:46, Swedish Radiation Safety Authority.
- Hiroki A., LaVerne J. A., 2005. *Decomposition of hydrogen peroxide at water-ceramic oxide interfaces*. Journal of Physical Chemistry B, 109, 3364–3370.
- Hultquist G., 1986. *Hydrogen evolution in corrosion of copper*. Corrosion Science 26, 173–176.
- Hultquist G., Szakálos P., Graham M. J., Sproule G. I., Wikmark G., 2009. *Detection of hydrogen in corrosion of copper in pure water*. In Proceedings of the 17th International Corrosion Congress, Las Vegas, Nevada, 6 – 10 October 2008. Houston, TX: NACE International, 2378–2386.



- Hultquist G., Graham M. J., Szakálos P., Sproule G. I., Rosengren A., Gråsjö L., 2011. *Hydrogen gas production during corrosion of copper by water*. Corrosion Science 53, 310–319.
- Hultquist G., Graham M. J., Kodra O., Moisa S., Liu R., Bexell U., Smialek J. L., 2015. *Corrosion of copper in distilled water without O₂ and the detection of produced hydrogen*. Corrosion Science 95, 162–167.
- Huttunen-Saarivirta E., Rajala P., Carpén L., 2016. *Corrosion behaviour of copper under biotic and abiotic conditions in anoxic ground water: electrochemical study*. Electrochimica Acta 203, 350–365.
- Huttunen-Saarivirta E., Rajala P., Bomberg M., Carpén L., 2017. *Corrosion of copper in oxygen-deficient groundwater with and without deep bedrock micro-organisms: Characterisation of microbial communities and surface processes*. Applied Surface Science 396, 1044–1057.
- Huttunen-Saarivirta E., Ghanbari E., Mao F., Rajala P., Carpén L., Macdonald D., 2018. *Kinetic properties of the passive film on copper in the presence of sulfate-reducing bacteria*. Journal of the Electrochemical Society 165, C450–C460.
- Huttunen-Saarivirta E., Rajala P., Carpén L., Wang J., Ghanbari E., Mao F., Dong C., Yang J., Sarifi-Asl S., Macdonald D., 2019. *Response to Comments on E. Huttunen-Saarivirta et al. "Kinetic Properties of the Passive Film on Copper in the Presence of Sulfate-Reducing Bacteria" [J. Electrochem. Soc., 165, C450 (2018)]*. Journal of the Electrochemical Society 166, Y17–Y26.
- Ibrahim B., Zagidulin D., Behazin M., Ramamurthy S., Wren J. C., Shoesmith D. W., 2018. *The corrosion of copper in irradiated and unirradiated humid air*. Corrosion Science, 141, 53–62.
- Jagodzinski Y., Aaltonen P., Smouk S., Tarasenko O., Hänninen H., 2000. *Internal friction study of environmental effects on metals and alloys*. Journal of Alloys and Compounds, 310, 256–260.
- Johansson L.E., Börgesson L., Goudarzi R., Svemar C., 2007. *Prototype repository: A full scale experiment at Äspö HRL*. Physics and Chemistry of the Earth Parts A/B/C 32(1-7):58-76.
- Johnson L. H., LeNeveu D. M., King F., Shoesmith D. W., Kolar M., Oscarson D. W., Sunder S., Onofrei C., Crosthwaite J. L., 1996. *The disposal of Canada's nuclear fuel waste: a study of postclosure safety of in-room emplacement of used CANDU fuel in copper containers in permeable plutonic rock. Volume 2: vault model*. Report AECL-11494-2, COG-96-552-2, Atomic Energy of Canada.
- Jonson M., 2010. *Chapter 11. Radiation-induced processes at solid-liquid interfaces*. In: Wishart J. F., Rao B. S. M., (ed.). Recent Trends in Radiation Chemistry. World Scientific.
- King F., 1996. *The potential for stress corrosion cracking of copper containers in a Canadian nuclear fuel waste disposal vault*. Report AECL-11550, COG-96-94, Atomic Energy of Canada.



- King F, Chen J, Qin Z, Shoesmith D, Lilja C, 2017. *Sulphide mass-transport control of the corrosion of copper canisters*. Corrosion Engineering, Science and Technology 52, 210–216.
- King F., Lilja C., 2014. *Localised corrosion of copper canisters*. Corrosion Engineering, Science and Technology, 49, 420–424.
- King F., Litke C. D., 1987. *The corrosion of copper in synthetic groundwater at 150 °C. Part I. The results of short- term electrochemical tests*. Technical Record TR- 428, Atomic Energy of Canada.
- Klös R., Limer L., Shaw G., Wörman A., 2012. *Initial review phase – Dose Assessment Methodology*, SSM Technical Note 2012:59, Swedish Radiation Safety Authority.
- Klös R., Limer L., Shaw G., Wörman A., 2014. *Modelling comparison of alternative biosphere models with LDF models and evaluation of selected parameter values used in the biosphere dose assessment - Main review phase*. SSM Technical Note 2014:35, Swedish Radiation Safety Authority.
- Korzhavyi P. A., Soroka I. L., Isaev E. I., Lilja C., Johansson B., 2012. *Exploring monovalent copper compounds with oxygen and hydrogen*. PNAS 109, 686–689.
- Li Y., Lousada C. M., Soroka I. L., Korzhavyi P. A., 2015. *Bond network topology and antiferroelectric order in cupric CuOH*. Inorganic Chemistry 54, 8969–8977.
- Litke C. D., Ryan S. R., King F., 1992. *A mechanistic study of the uniform corrosion of copper in compacted clay- sand soil*. Report AECL- 10397, COG- 91- 304, Atomic Energy of Canada Limited, Canada.
- Little R., Maul P., Robinson P., Watson C., 2012. *Review of SKB's Radionuclide Transport Methodology*. SSM Technical Note 2012:55, Swedish Radiation Safety Authority.
- Lousada C M, Soroka I L, Yagodzinsky Y, Tarakina N V, Todoshchenko O, Hänninen H, Korzhavyi P A, Jonsson M, 2016. *Gamma radiation induces hydrogen absorption by copper in water*. Nature Scientific Reports 6, 24234. doi:10.1038/srep24234.
- Macdonald D. D., 1992. *The Point Defect Model for the Passive State*. Journal of the Electrochemical Society, 139, 3434–3449.
- Macdonald D. D., Sharifi-Asl S., 2011. *Is Copper Immune to Corrosion When in Contact With Water and Aqueous Solutions?* SSM Report 2011:09, Swedish Radiation Safety Authority.
- Macdonald D. D., Sharifi-Asl S., Engelhardt G. R., Urquidi-Macdonald M., 2012. *Issues in the corrosion of copper in a Swedish high level nuclear waste repository*. SSM Report 2012:11, Swedish Radiation Safety Authority.
- Macdonald D. D., Sharifi-Asl S., Engelhardt G. R., 2014. *Issues in the Corrosion of Copper in a Swedish High Level Waste Repository: Phase III. Role of Sulphide Ion in Anodic and Cathodic Processes*. SSM Technical Note 2014:57, Swedish Radiation Safety Authority.



Macdonald D. D., Mao F., Dong C., Sharifi-Asl S., 2016. *Measurements of Parameter Values for Predicting Corrosion Phenomena on Copper in Swedish HLNW Repositories*. SSM Report 2016:30, Swedish Radiation Safety Authority.

Mao F., Dong C., Sharifi-Asl S., Lu P., Macdonald D. D., 2014. *Passivity Breakdown on Copper: Influence of Chloride Ion*. *Electrochimica Acta*, 144, 391–399.

Marja-aho M., Rajala P., Huttunen-Saarivirta E., Legat A., Kranjc A., Kosec T., Carpén L., 2018. *Copper corrosion monitoring by electrical resistance probes in anoxic groundwater environment in the presence and absence of sulfate reducing bacteria*. *Sensors and Actuators A: Physical*, 274, 252–261.

Martino T., 2018. *Electrochemical and corrosion examination of copper under deep geologic conditions for the application of nuclear waste containers*. PhD thesis. Western University, London, Canada.

Martino T., Chen J., Qin Z., Shoesmith D. W., 2017. *The kinetics of film growth and their influence on the susceptibility to pitting of copper in aqueous sulphide solutions*. *Corrosion Engineering, Science and Technology* 52, 61–64.

Martino T., Chen J., Guo M., Ramamurthy S., Shoesmith D W., Noël J J, 2019. *Comments on E. Huttunen-Saarivirta et al. "Kinetic Properties of the Passive Film on Copper in the Presence of Sulfate-Reducing Bacteria" [J. Electrochem. Soc., 165, C450 (2018)]*. *Journal of the Electrochemical Society*, 166, Y13–Y16.

Martinsson A., Sandström R., 2012. *Hydrogen depth profile in phosphorus-doped, oxygen-free copper after cathodic charging*. *Journal of Materials Science* 47, 6768–6776.

Mattsson E., 1997. *Utvändig korrosion hos kopparkapslar i avvaktan på slutförvar och under slutförvarets inledningsskede*. SKB Projekt PM Inkapsling 97-3420-22.

Mohanty S., Pensado O., 2014. *Reproduction of SKB's Canister Failure Calculations - What-If and 'Residual' Scenario to Illustrate Barrier Functions*. SSM Technical Note 2014:33, Swedish Radiation Safety Authority.

Motamedi M., 1999. *The survival and activity of bacteria in compacted bentonite clay in conditions relevant to high level radioactive (HLW) repositories*. PhD thesis. University of Gothenburg, Sweden.

Motamedi M., Karland O., Pedersen K., 1996. *Survival of sulfate reducing bacteria at different water activities in compacted bentonite*. *FEMS Microbiology Letters* 141, 83–87.

Ollila K., 2019. *Copper corrosion experiments in pure water under anoxic conditions*. Posiva Working Report 2018-19, Posiva Oy, Finland.

Ottosson M., Boman M., Berastegui P., Andersson Y., Hahlin M., Korvela M., Rerger R., 2017. *Copper in ultrapure water, a scientific issue under debate*. *Corrosion Science* 122, 53–60.

Panagopoulos C. N., Zacharopoulos N., 1994. *Cathodic hydrogen charging and mechanical properties of copper*. *Journal of Materials Science* 29, 3843–3846.



Pedersen K, Motamedi M, Karnland O, Sandén T, 2000a. *Cultivability of microorganisms introduced into a compacted bentonite clay buffer under high-level radioactive waste repository conditions*. Engineering Geology 58, 149–161.

Pedersen K, Motamedi M, Karnland O, Sandén T, 2000b. *Mixing and sulphate-reducing activity of bacteria in swelling, compacted bentonite clay under high-level radioactive waste repository conditions*. Journal of Applied Microbiology 89, 1038–1047.

Pedersen K, 2010. *Analysis of copper corrosion in compacted bentonite clay as a function of clay density and growth conditions for sulfate-reducing bacteria*. Journal of Applied Microbiology 108, 1094–1104.

Pensado O., *Radionuclide release rates associated with bounding cases featuring relatively early canister failures in a spent fuel repository*, SSM Technical Note 2017:15, Swedish Radiation Safety Authority.

Robinson P., 2012. *Review of the MARFA Code*. SSM Technical Note 2012:62, Swedish Radiation Safety Authority.

Szakálos P., Hultquist G., Wikmark G., 2007. *Corrosion of Copper by Water*. Electrochemical and Solid-State Letters, 10 (11) C63–C67.

Senior N. A., Newman R. C., Artymowicz D., Binns W. J., Keech P. G., Hall D. S., 2019. *Communication – A method to measure extremely low corrosion rates of copper metal in anoxic aqueous media*. Journal of The Electrochemical Society 166, C3015–C3017.

Sipilä K, Arilahti E, Lehtikuusi T, Saario T, 2014. *Effect of sulphide exposure on mechanical properties of Cu-OFP*. Corrosion Engineering, Science and Technology 49, 410–414.

SKBdoc 1398024. Lilja C., 2013. *Influence of high chloride concentration on copper corrosion*. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1415874. Åkesson M., 2013. *Conceptual uncertainties and their influences on bentonite hydration*. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1415879. Malmberg D., Åkesson M., Kristensson O., 2013. *Supplementary material in addition to SR-Site modelling report TR-10-11 as requested by SSM. 2.0. The distribution of saturation times in the Forsmark repository*. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1422182, ver 2.0. King F., Chen J., Martino T., Partovi-Nia R., Qin Z., Shoosmith D. W., Lilja C., 2014. *Sulphide mass-transport limited corrosion*. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1437441. Lilja C., Sellin P., Hedin A, 2014. *Svar till SSM på begäran om komplettering rörande grundvattenkemi på kort och medellång sikt*. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1602591 ver 2.0, King F., Orazem M. E., 2017. *Preliminary report on the development of a kinetic model for the corrosion of copper in pure water*. Svensk Kärnbränslehantering AB.



SKBdoc 1614038, Hernelind J., 2019. *Extended canister analyse with emphasis on tensile stresses and uneven swelling pressure*. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1696975 ver 2.0, Eriksson P., Hedin A. 2019. *Modelling of sulphide fluxes in unsaturated buffer and backfill for a KBS-3 repository*. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1701925, Stahlén J, 2019. *Exposure of Copper to Sulphate Reducing Bacteria and Verification of a Biofilm. Batch 1*. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1701933, Johansson L, 2019. *Exposure of Copper to Sulphate Reducing Bacteria and Verification of a Biofilm. Batch 2*. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1706406, Chen J, Guo M, Martino T, Ramamurthy S, Noël J J, Shoesmith D W, Lilja C, Johansson A J, 2019. *The distribution of corrosion damage to copper surfaces exposed to aqueous sulphide solutions*. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1706535. Soroka I., Jonsson M., 2019. *Radiation induced corrosion of copper – an update on the mechanism*. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1707582, 2019, Hernelind J., 2019. *Design parameters effect on tensile stresses for the copper shell*. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1708457 ver 1.0, Lousada C. M., Korzhavyi P. A., 2019. *Hydrogen sorption capacity of crystal lattice defects and low Miller index surfaces of copper*. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1712120. Åkesson M., Börgesson L., Sandén T., Goudarzi R., 2019. *Vapor transport in bentonite. Laboratory investigations and theoretical study*. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKBdoc 1718509, *Komplettering om kapselintegritet*, Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB R-13-21. Joyce S., Swan D., Hartley L. 2013. *Calculation of open repository inflows for Forsmark*, Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB R-13-34. Ollila K., 2013. *Copper corrosion experiments under anoxic conditions*, Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB R-13-35. Smart N., Rose S., Nixon D., Rance A., 2013. *Metallographic analysis of SKB MiniCan experiment 3*. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB R-13-42. Birgersson M., Goudarzi R., 2013. *Studies of vapor transport from buffer to tunnel backfill (Sauna effects)*. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB R-17-15. Granfors M., 2017. *Round-robin of hydrogen content in copper determined by melt extraction and gas analysis*. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB R-17-17. Leijon G., Ahlström J., Andersson-Östling H. C. M., 2018. *In situ hydrogen charging of OFP copper during creep*. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB R-18-03. Huotilainen C, Saario T, Toivonen A, 2018. *Review of the Aaltonen-mechanism*. Svensk Kärnbränslehantering AB.



SKB TR-97-19. Bond A. E., Hoch A. R., Jones G D., Tomczyk, A. J., Wiggin R. M., Worraker W. J., 1997. *Assessment of a spent fuel disposal canister. Assessment studies for a copper canister with cast steel inner component.* Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB TR-01-32. Guinan M. W., 2001. *Radiation effects in spent nuclear fuel canisters.* Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB TR-05-18. Nilsson K.F., Burström M., Andersson C.G., 2005. *Pressure tests of two KBS-3 canister mock-ups.* Svensk Kärnbränslehantering AB

SKB TR-08-05. *Site description of Forsmark at completion of the site investigation phase. SDM-Site Forsmark.* Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB TR-09-29. Karnland O., Olsson S., Dueck A., Birgersson M., Ulf Nilsson, Hernan-Håkansson T. Pedersen K., Nilsson S., Eriksen T. E., Rosborg B., 2009. *Long term test of buffer material at the Äspö Hard Rock Laboratory, LOT project. Final report on the A2 test parcel.* Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB TR-10-11. Åkesson M., Kristensson O., Börgesson L., Dueck A., Hernelind J., 2010. *THM modelling of buffer, backfill and other system components. Critical processes and scenarios.* Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB TR-10-47. *Buffer, backfill and closure process report for the safety assessment SR-Site.* Svensk Kärnbränslehantering AB. Updated 2014-01.

SKB TR-10-50. *Radionuclide transport report for the safety assessment SR-Site.* Svensk Kärnbränslehantering AB, Uppdaterad 2015-05.

SKB TR-10-59. Sena C., Salas J., Arcos D., 2010. *Aspects of geochemical evolution of the SKB near field in the frame of SR-Site.* Svensk Kärnbränslehantering AB, Uppdaterad 2014-01.

SKB TR-10-65. Sena C., Salas J., Arcos D., 2010. *Thermo-hydro-geochemical modelling of the bentonite buffer. LOT A2 experiment.* Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB TR-10-67. King F., Lilja C., Pedersen K., Pitkänen P., Vähänen M., 2010. *An update of the state-of-the-art report on the corrosion of copper under expected conditions in a deep geologic repository.* Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB TR-11-01 (Art818), 2011. *Redovisning av säkerhet efter förslutning av slutförvaret för använt kärnbränsle. Huvudrapport från projekt SR-Site.* Svensk Kärnbränslehantering AB, Uppdaterad 2012-12.

SKB TR-12-06. Bhaskaran G., Carcea A., Ulaganatha, J., Wang, S., Huang Y., Newman R. C., 2013. *Fundamental aspects of stress corrosion cracking of copper relevant to the Swedish deep geologic repository concept.* Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB TR-12-09. Smart N., Rance A., Reddy B., Fennell P., Winsley R., 2012. *Analysis of SKB MiniCan Experiment 3.* Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB TR-13-21. Olsson S., Jensen V., Johannesson L.-E., Hansen E., Karnland O., Kumpulainen S., Kiviranta L., Svensson D., Hansen S., Lindén J., 2013. *Prototype Repository. Hydro-mechanical, chemical and mineralogical characterization of the buffer*



and tunnel backfill material from the outer section of the Prototype Repository. Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB TR-13-22. Svemar C., Johannesson L.-E., Grahm P., Svensson D., Kristensson O., Lönnqvist M., Nilsson U., 2016. *Prototype Repository. Opening and retrieval of outer section of Prototype Repository at Äspö Hard Rock Laboratory. Summary report.* Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB TR-15-03. Johansson J., Blom A., Chukharkina A., Pedersen K., 2015. *Study of H₂ gas emission in sealed compartments containing copper immersed in O₂-free water.* Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB TR-15-09. Birgersson M., Goudarzi R., 2016. *Vapor transport and sealing capacity of buffer slots ("sauna" effects).* Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB TR-16-12. Gordon A., Sjögren L., Taxén C., Johansson A.J., 2017. *Retrieval and post-test examination of packages 4 and 5 of the MiniCan field experiment.* Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB TR-17-07. Birgersson M., Goudarzi R., 2017. *Summary report on "sauna" effects.* Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB TR-17-15. Sellin P.(ed), Åkesson M., Kristensson O., Malmberg D., Börgesson L., Birgersson M., Dueck A., Karnland O., Hernelind J., 2017. *Long re-saturation phase of a final repository. Additional supplementary information.* Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB TR-17-16. Taxén C., Flyg J., Bergqvist H., 2018. *Stress corrosion testing of copper in sulfide solutions.* Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB TR-18-14. Gordon A., Pahverk H., Börjesson E., Sjögren L., Karlsson O., Bergqvist H., Lindberg F., Johansson A.J., 2018. *Corrosion morphology of copper in anoxic sulphide environments.* Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB TR-18-17. Gordon A., Pahverk H., Börjesson E., Johansson A.J., 2018. *Examination of copper corrosion specimens from ABM 45, package 5.* Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB TR-19-12. Padovani C., Pletser D., Jurkschat K., Armstrong D., Dugdale S., Brunt D., Faulkner R., Was G., Johansson A. J., 2019. *Assessment of microstructural changes in copper due to gamma radiation damage.* Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB TR-19-13. Taxén C., Flyg J., Bergqvist H., 2019. *Stress corrosion testing of copper in near neutral sulphide solutions.* Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB TR-19-14. Yang Q., Toijer E., Olsson P., 2019. *Analysis of radiation damage in the KBS-3 canister materials.* Svensk Kärnbränslehantering AB.

SKB TR-19-15. *Supplementary information on canister integrity issues.* Svensk Kärnbränslehantering AB, 2019-03.

Spinks J. W. T., Woods R. J., 1990. *An introduction to radiation chemistry*, 3rd edition. John Wiley & Sons.



SSM, 2018. *Strålsäkerhet efter slutförvarets förslutning. Beredning inför regeringens prövning. Slutförvaring av använt kärnbränsle*. SSM Rapport 2018:07, Strålsäkerhetsmyndigheten, 2018-01.

Stenlid J. H., Johansson A. J., Leygraf C., Brinck T., 2017. *Computational analysis of the early stage of cuprous oxide sulphidation: a top-down process*. Corrosion Engineering, Science and Technology, 52, 50–53.

Strömberg B., Sonnerfelt L., Öberg H., 2019. *Exploratory what-if analysis of some debated canister failure modes in the review of a licence application for the construction and operation of a spent nuclear fuel repository in Sweden*. Advances in Geosciences 49, 67–75.

Szakálos P., Hultquist G., Wikmark G., 2007. *Corrosion of Copper by Water*. Electrochemical and Solid-State Letters, 10 (11) C63–C67.

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

Taniguchi N., Kawasaki M., Morimasa M., 2007. *Effect of sulfide on the corrosion behavior of pure copper under anaerobic condition and possibility of super long lifetime for copper overpacks*. Japan Atomic Energy Agency Report, JAEA-Research 2007-022.

Taniguchi N., Kawasaki M., Morimasa M., 2008. *Effect of electrode potential and material grade on the behavior of stress corrosion cracking of pure copper in synthetic seawater containing sulfide*. Japan Atomic Energy Agency Report, JAEA-Research 2008-118.

UNSCEAR, 2000. *Sources and effects of ionizing radiation: UNSCEAR 2000 report to the General Assembly with scientific annexes. Vol. I. Annex A: Dose assessment methodologies*. New York: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation.

Wampler W. R., Schober T., Lengeler B., 1976. *Precipitation and trapping of hydrogen in copper*. Philosophical Magazine 34, 129–141.

Wersin P., Kober F. (eds.), 2017. *Metal Corrosion and Iron-Bentonite Interaction Studies*. Nagra Arbeitsbericht NAB 16-16, Nagra, Switzerland.

Xu S., Dverstorp B., Lindgren G., Nordén M., Röhlig K.-J., 2015. *A structured approach to independent modelling in support of a licensing review*. Proceedings of the 15th International High-Level Radioactive Waste Management Conference (IHLRWMC), Charleston, SC, USA, April 12-16, 2015. pp.18–26.

Yagodzinskyy Y, Malitckii E, Saukkonen T, Hänninen H, 2012. *Hydrogen-enhanced creep and cracking of oxygen-free phosphorus-doped copper*. Scripta Materialia 67, 931–934.

Yagodzinskyy Y, Malitckii E, Tuomisto F, Hänninen H, 2018. *Hydrogen-induced strain localisation in oxygen-free copper in the initial stage of plastic deformation*. Philosophical Magazine 98, 727–740.



Yunker W. H., 1990. *Corrosion behavior of copper-base materials in a gamma-irradiated environment*. Report WHC-EP-0188, Westinghouse Hanford Company, Richland, Washington.

Yunker W. H., Glass R. S., 1987. *Long-term corrosion behaviour of copper-base materials in a gamma-irradiated environment*. In Bates J K, Seefeldt W B (eds). *Scientific basis for nuclear waste management X: symposium held in Boston, Massachusetts, USA, 1 – 4 December 1986*. Pittsburgh, PA: Materials Research Society. (Materials Research Society Symposium Proceedings 84), 579–590.