

DokumentID 1395834	Version 1.0	Status Godkänt	Reg nr	Sida 1 (13)
Författare Lena Zetterström Evins, Allan Hedin			Datum 2013-05-21	

# Uppskattning av riskbidrag från bränslerester

## Om denna PM

Denna PM ska ge underlag till delfråga 4.2 c i SSM:s kompletteringsbegäran SSM 2011-2426-87

*Långsiktig utveckling av bränsleresternas egenskaper samt analys av riskbidrag från de sju kapslarna för bränslerester.*

## Innehåll

<b>1</b>	<b>Tillgänglig information om bränsleresterna</b>	<b>2</b>
<b>2</b>	<b>Antaganden</b>	<b>4</b>
2.1	Antal kapslar och hur de ska fyllas	4
2.2	Mängder epoxiingjutet material	4
2.3	Andel föroxiderat bränsle i vanliga bränslerester, dvs UO <sub>2</sub> -bränsle.	4
<b>3</b>	<b>Långsiktig utveckling av bränsleresterna</b>	<b>5</b>
3.1	Utveckling i torr luft	5
3.2	Korrosion av primäremballaget	6
3.3	Upplösning av bränsleresterna	6
3.4	Antagen långsiktig utveckling av olika typer av bränslerester	6
<b>4</b>	<b>Uppskattning av riskbidraget från dessa kapslar</b>	<b>7</b>
4.1	Kvantifiering av aktiviteten i bränsleresterna	7
4.2	Kvantifiering av fraktion föroxiderad och snabbupplöst bränslematris	8
4.2.1	Summering för vidare beräkning av riskbidrag	8
4.3	Uppskattning av riskbidrag	9
<b>5</b>	<b>Slutsats</b>	<b>11</b>
	<b>Referenser</b>	<b>12</b>

# 1 Tillgänglig information om bränsleresterna

Alla bränslerester som har transporterats till Clab finns dokumenterade i transportdokumenten. Information från dessa samt datahanteringssystemet i Clab är underlag till en sammanställning som har gjorts våren 2013 i syfte att svara på SSM:s kompletteringsbegäran. Sammanställningen återfinns i en Excelfil i SKBdoc (SKBdoc 1395837).

I ansökan ingår dock inte bara de bränslerester som i dag finns på Clab, utan även de som finns på Studsvik i dag, men ej är transporterade, samt de bränslerester som kan tänkas uppstå i framtiden. Både existerande och prognostiserade framtida rester har uppskattats och listats i excel-filen (SKBdoc 1395837).

Inför transport packas bränsleresterna på Studsvik i cylindriska hylsor (så kallade ML-hylsor), vilka i sin tur packas i cylindriska, tätsvetsade, heliumfyllda primäreballage (se SKBdoc 1189751 för en beskrivning av metoden). Primäreballagen är cirka en meter långa, och kan innehålla en lång hylsa eller tre korta hylsor. För att möjliggöra gasutbyte med primäreballaget borrar hål i hylsorna, så att luften i både hylsa och primäreballage byts mot helium innan svetsningen av primäreballaget färdigställs. Väggarna på primäreballaget är tre millimeter tjocka. Tolv primäreballage packas i en transportbox, vilken har samma dimensioner som ett PWR-element. I excel-filen (SKBdoc 1395837) finns en datapost per primäreballage. Den information som återfinns är:

- Transport-nr (F2T01-F2T20)
- Primäreballage (exempel: F-006 till och med F-270)
- Nummer på hylsa (exempel 111, IH18, ML15)
- Mängd U (g),
- Mängd, U-235 (g),
- Mängd, Pu (g),
- Medelanrikning, (%)
- Anrikningsintervall,
- Utbränning (MWd per kg U eller HM),
- Aktivitet (TBq),
- Resteffekt (W),
- Kemisk form (UO<sub>2</sub>-bränsle/epoxi-ingjutet/Oxid R1-bränsle)
- Kapsel (nummer på en kapsel med bränslerester: från 1 till 7)

Från sammanställningen i Excel-filen kan man få en överblick över vad som är tänkt att ingå i varje kapsel. Denna sammanställning klargör att mängden rester av vanligt UO<sub>2</sub>-bränsle som har transporterats till Clab är tillräcklig för att helt fylla fyra kapslar (kapsel 1-4), och delvis fylla två kapslar till (kapsel 5-6). Rester med epoxiingjutet material har också transporterats; denna typ av bränslerest är tänkt att placeras i kapsel 5. För två kapslar (5-6), återfinns poster som kallas "FUT"; detta är poster som motsvarar bränslerester, vilka finns på Studsvik men inte är packade i primäreballage ännu. I kapsel 5 finns 12 av dessa poster (det vill säga en transportbox som fyller en position i en PWR-kapsel). Alla dessa "FUT" är epoxiingjutna prover och den information som redovisas kommer från Safe Guard databasen, det vill säga uppskattad mängd U-235 och Pu. Resten av primäreballagen i kapsel 5 innehåller antingen UO<sub>2</sub>-bränsle, eller epoxiingjutna bränslerester. I kapsel 6 är endast en position fylld med en transportbox med transporterade primäreballage. I denna finns fyra primäreballage med oxiderat R1-bränsle (pulverform). En position upptas av "FUT" det vill säga existerande bränslerester som inte har skickats till Clab ännu. Två positioner i denna kapsel antas fyllas av framtida bränslerester. Detsamma gäller alla positioner i kapsel 7.

Informationen om förväntat innehåll i de sju kapslarna summeras i tabell 1. Innehållet kan jämföras med utbränning och aktivitet för en typisk PWR kapsel, vilket anges i tabellens sista rad. (Table 6-3 i SKB 2010a, Spent Fuel Report TR-10-13).

**Tabell 1. Summering av tillgänglig information om existerande bränslerester (information från SKBdoc 1395837).**

Kapsel	Primär- emballage	Primär- emballage	Transport- box	Per kapsel	Per kapsel	Per kapsel	Kapsel	Kapsel	Emballage	Kapsel	Rest-typ
#	Antal i Clab	Antal FUT	Antal i Clab	U(kg)	U-235 (kg)	Pu (kg)	Medel- anrikning	Maximal medel- anrikning	Maxvärde Anriknings- intervall	Aktivitet (TBq)	
1	48		4	536	8	3	2	7,42	9,28	3394	UO2
2	48		4	518	8	2	2	5,71	9,3	2558	UO2
3	48		4	579	7	2	1	3,83	5,08	2603	UO2
4	48		4	575	12	3	2	5	19,8	5671	UO2
5	36	12	3*	233	6	4	2	4,03	5,43	2126	UO2 och epoxi- ingjutet
6	12	12	1^	123	3	2	1	2,6	5,6	865	UO2 och R1- pulver
7	0	0	0	?	?	?	?	?	?	?	?
<b>PWR(Typkapsel)</b>				~ <b>1800</b>						<b>16000</b>	

\*Transportnr: F2T17, F2T18, F2T19, F2T20

^Transportnr: F2T20

## 2 Antaganden

### 2.1 Antal kapslar och hur de ska fyllas

#### Bränslerester som uppkommer i framtiden

Som konstateras ovan (samt excelfilen SKBdoc 1395837), har viss andel av avfallet som ingår i de sju kapslarna inte ännu uppstått. Därmed har det antagits att det kommer att tillkomma en viss mängd bränslerester förutom de som redan finns eller har transporterats. Denna mängd har antagits fylla upp cirka 1,5 kapsel, det vill säga 48+24 primäremballage.

#### Existerande ej transporterade bränslerester (löpnummer "FUT")

Det finns existerande bränslerester på Studsvik, som i väntan på transport inte har packats i hylsor ännu. Denna delmängd innefattar både epoxiingjutet och "vanligt" UO<sub>2</sub>-bränsle, och antas fylla upp 24 primäremballage, eller två transportboxar. En transportbox (12 primäremballage) antas innehålla enbart epoxiingjutna bränslerester. De antaganden som har gjorts om mängder U-235 och Pu i dessa bränslerester baserar sig på Safe-Guard-data. Varje primäremballage med löpnummer "FUT" antas innehålla 150 gram U-235, 150 gram Pu och utbränningen antas vara 10 MWd/ kgU. Uran och plutoniuminnehållet är fördelat så att det stämmer överens med totala inventariet (enligt SafeGuard) på Studsvik 2012-12-07. Fördelningen och utbränningen är antagna värden.

### 2.2 Mängder epoxiingjutet material

#### Antal prov per primäremballage med epoxirester

Ett primäremballage med epoxirester kan tänkas innehålla 40–50 prov med uranfragment ingjutna i epoxi. Antagandet bygger på ett typexempel: Hylsan ML40 i transport 19 innehöll totalt 1 500 gram U varav cirka 23 gram U finns i varje prov.  $1\ 500/23=65$  prov.

Antal prov i ett primäremballage med epoxirester ansätts därmed till 50.

#### Mängd U och epoxi i ett epoxiingjutet prov

Ett epoxiingjutet prov väger cirka 72 gram varav det ingjutna bränslefragmentet väger cirka 23 gram. Detta är 31 procent av provets vikt. Vikten på epoxin i ett prov är cirka 49 gram. (Provet är cirka 38 cm<sup>3</sup> varav bränsle cirka 3 cm<sup>3</sup>.)

### 2.3 Andel föroxiderat bränsle i vanliga bränslerester, dvs UO<sub>2</sub>-bränsle.

#### Bränsleresternas fysiska form

Information från Studsvik indikerar att den andel av resterna som är bränslepinnar med kapsling och kutsar är 60–75 procent, och andelen mindre fragment och pulver är som mest 25–30 procent

Baserat på detta ansätts 70 procent av vikten som bränslerester med kapsling kvar, och bränslerester utan kapsling cirka 30 procent av vikten.

#### Bränsleresternas kemiska form/föroxidering

Lakdata av bränsleprov, vilka har tagits från bränslepinnar i Studsvik, kan användas för att uppskatta andel föroxiderad bränslematrix i vanliga bränslerester. Antagandet är att vid lakningsförsök i vanlig luft (det vill säga oxiderande miljö) motsvarar den andel uran som har lakats efter cirka 30 dagar allt föroxiderat samt en liten mängd bränslematrix, vilken har oxiderats och lösts upp i den oxiderande försöksmiljön. Andelen föroxiderad bränslematrix kan

på detta vis fastställas att vara mellan  $10^{-5}$  och  $10^{-4}$ , se till exempel Zwicky et al. (2011; TR-11-03), Johnson et al. (2012) och Ekeroth et al. (2012). För 70 procent av ”vanliga” bränslerester, vilka består av bränslerester med kapsling kvar ansätts därmed fraktionen  $10^{-4}$ , **eller 0,01 procent** föroxiderad matris för denna typ av bränslerest.

För de första 30 dagarna av lakning uppvisar fragment av bränsle (utan kapsling) inga skillnader i andel frigjord uran jämfört de med kapsling (Ekeroth et al. 2012: ”In all tests the cumulative release fraction for U was below 0.01%”). Dock finns det viss variation när det gäller provpreparering, och i vissa fall mals bränsleprov ner till finare kornstorlekar. Det är tänkbart att den ökade ytarean förorsakad av denna malning påverkar lakningsexperimenten, och möjligen även andel föroxiderad matris. Ett exempel på resultat från lakning av bränslepulver ges i Figure 7 i Ekeroth et al. (2012) där data från en serie korta lakningar av bränslepulver presenteras; trots en initialt snabbare frigörelse av Cs-137, visar detta prov dock inte någon högre frigjord andel Cs-137 under de första 0–30 dagarna. Detta indikerar, att inte heller bränslepulver har en föroxiderad andel som inte överstiger 0,01 procent; beroende på osäkerheter gällande variationer i provpreparering, hanteras detta dock pessimistiskt och fraktionen ansätts till  $10^{-3}$ , **eller 0,1 procent** föroxiderad matris för denna typ av bränslerest.

Notera att föroxideringen endast sker innan placering av bränsleresterna i primäremballaget, eftersom luften i emballaget ersätts med inert atmosfär. Därmed förväntas dessa bränslerester, efter tätsvetsning av primäremballaget, att utvecklas som vanligt inkapslat bränsle.

## 3 Långsiktig utveckling av bränsleresterna

### 3.1 Utveckling i torr luft

De bränslerester som uppkommer från Studsviks verksamhet består av kapade bränslepinnar med Zirkaloykapsling kvar, samt en mindre del fragment utan kapsling. Detta bränsle har utsatts för en luftkontakt i torr Hot Cell-miljö under ett flertal år. Notera att det är just denna typ av material som används vid lakningsförsök. Det som kan hända under denna period av torr lagring i kontakt med luft är en långsam oxidation av  $UO_2$  till  $UO_{2+x}$ . Denna process kallas för föroxidering, och att det går långsamt visas av till exempel Leenaers et al. (2001); efter 25 år i torr luft blir endast 0,02 procent av ett MOX-bränsle föroxiderat. Man har påvisat att använt kärnbränsle, till skillnad från ren  $UO_2$ , bildar  $U_4O_9$  (s), vilket också benämns  $UO_{2.25}$ . Oxidationen kan fortsätta, och gå så långt som  $UO_{2.42}$ , men bränslet behåller trots detta den kubiska kristallstrukturen om oxidationen sker vid en lägre temperatur än  $150\text{ }^\circ\text{C}$  (se Einzinger et al. 1992, Thomas et al. 1993, Cobos et al. 1998). Detta visar att oxidation av använt kärnbränsle skiljer sig från hur ren  $UO_2$ (s) reagerar vid oxidation (se till exempel McEachern och Taylor 1998), samt att bildningen av högre oxider ( $U_3O_8$ (s), eller  $UO_{2.67}$ ) kan förväntas vara begränsad om temperaturen hålls under  $150\text{ }^\circ\text{C}$ . Föroxideringen avslutas då bränsleresterna placeras i den inerta atmosfären i primäremballaget.

Vad gäller epoxiingjutna prov, förväntas ingen reaktion mellan epoxin och bränslefragmenten så länge epoxin är opåverkad. Hur den epoxi som har använts i Studsvik genom åren har påverkats och kommer att påverkas av den strålning och den värme den under lång tid i torr miljö kommer att utsättas för är osäkert. Det kan noteras, att i de fall där epoxiliknande organiska material har övervägts för användning i samband med immobilisering av radioaktivt avfall, handlar detta enbart om lågaktivt avfall eftersom organiska polymerer inte är tillräckligt resistent mot strålning (se till exempel IAEA 1988 och US DOE 1999) för att anses lämpade som stabil avfallsform för högaktivt avfall (High Level Waste, HLW).

## 3.2 Korrosion av primäremballaget

Primäremballagen är tätsvetsade stålbehållare med tre millimeter tjocka väggar (SKBdoc 1189751). Detta betyder att vatten kan komma i kontakt med bränsleresterna först efter att primäremballagets stålväggar har penetrerats genom korrosion. I den anoxiska miljö som råder inne i en läckande kapsel förväntas metallkorrosionen ske med en hastighet på cirka  $0,15 \mu\text{m}/\text{år}$  (SKB 2010b: Data Report TR-10-52, s 81). Det betyder att en tre millimeter tjock stålbehållare penetreras på cirka 20 000 år.

Anaerobisk korrosion av stål producerar korrosionsprodukter i form av järnoxid, mest sannolikt magnetit (SKB 2010c: Fuel and Canister Process Report TR-10-46, s 95) och fortsatt korrosion av magnetit antas producera goethit (SKB 2010b: Data Report TR-10-52, s 103). Dessa korrosionsprodukter förväntas helt eller delvis täcka primäremballaget vid den tidpunkt då korrosionen penetrerar primäremballaget och vatten börjar interagera med bränsleresterna. Sådana korrosionsprodukter kommer dessutom att ha bildats genom korrosion av den omgivande PWR-insatsen i kapseln.

## 3.3 Upplösning av bränsleresterna

Vid den tidpunkt då vatten kommer in i primäremballaget kommer bränsleresterna att börja lösas upp. Den föroxiderade delen av bränslet kommer att lösas upp snabbare än den intakta bränslematrisen, vilken förväntas lösas upp med samma låga hastighet som en helt opåverkad bränslematris. Som diskuterades ovan kan andelen föroxiderad matris uppskattas från lakningsförsök med bränslebitar genomförda i Studsvik. Vad gäller upplösningssprocessen för den föroxiderade matrisen, kan information hämtas från lakningsstudier av bränsle som har preparerats så att föroxideringen har maximerats till  $\text{UO}_{2,44}$ . Dessa studier visar en modest påverkan på upplösningshastigheten. Bränslet lakades (efter kontrollerad föroxidering) i kontakt med luft och resultaten visar att upplösningshastigheten ökade med mindre än en storleksordning jämfört med vanlig bränslematris (Gray et al. 1993, Gray och Thomas 1994, Serrano et al. 2001). Det är dock inte säkerställt att det kontrollerat föroxiderade bränsle som användes i dessa försök är helt representativt för de föroxiderade bränslerester som ska slutförvaras. Därför antas pessimistiskt omedelbar upplösning av den föroxiderade fraktionen hos bränsleresterna.

Effekter på epoxiingjutna bränslerester på grund av interaktion med grundvatten är svåra att uppskatta. Degradering av epoxi kan förväntas bilda en uppsättning olika organiska ämnen, till exempel karboxylat (se till exempel Nakache et al. 2011), till vilka metalljoner kan binda och transporteras som komplex (Giordano 2002). Hur detta skulle kunna påverka upplösningshastigheten av de bränslefragment som är inneslutna i epoxi är osäkert och inga data finns i dagsläget tillgängliga för att kvantifiera detta.

Baserat på detta följer här en beskrivning av den antagna långsiktiga utvecklingen av bränsleresterna i de sju kapslarna.

## 3.4 Antagen långsiktig utveckling av olika typer av bränslerester

**Kapsel 1-4:** Vanligt  $\text{UO}_2$ -bränsle i syrefria, täta primäremballage. Den inerta atmosfär som råder i primäremballaget bedöms inte påverka bränslets långsiktiga utveckling under perioden före vattenkontakt. Vid vattenkontakt antas den andel av vanliga bränslerester som är föroxiderad ingå i den snabbt frigjorda pulsen. Den andel som inte är föroxiderad löser upp sig med samma långsamma hastighet som vanlig bränslematris. Den föroxiderade fraktionen antas pessimistiskt lösa upp sig omedelbart.

**Kapsel 5:** I denna kapsel förekommer 33 primäremballage med epoxiingjutna bränslefragment. Så länge epoxin är opåverkad förväntas ingen reaktion mellan epoxin och bränslefragmenten. Hur epoxin påverkas av att utsättas för strålning och värme under lång tid i torr miljö är osäkert. Vad som sker med epoxin från tidpunkten då vatten läcker in i primäremballaget är också osäkert. Pessimistiskt kan det antas att olika organiska komplexbildare och kolloider frigörs, vilka skulle kunna påverka upplösningen av bränslematrisen. För att pessimistiskt hantera dessa osäkerheter, antas att allt epoxiingjutet material löser upp sig omedelbart. I scenarier där bentoniten är intakt, förväntas dock bentoniten filtrera dessa kolloider och komplex, och på så sätt begränsa radionuklidtransporten ut ur förvaret. För övriga bränslerester i denna kapsel förväntas utvecklingen vara likadan som utvecklingen den i kapsel 1-4.

**Kapsel 6:** Det mesta materialet i denna kapsel är vanligt  $UO_2$ -bränsle, vilket utvecklas så som bränslet i kapslarna 1-4. Fyra primäremballage innehåller material i pulverform. Detta pulver har framställts genom oxidation av metalliskt bränsle från R1-reaktorn (SKBdoc1189751). Dessa primäremballage har transporterats till Clab från Studsvik (transport nr F2T20), och har därmed genomgått en utredning med avseende på långsiktig säkerhet (se SKBdoc 1200854). Det pulver som har transporterats består av  $UO_{2+x}$ , med cirka 0,1 volym, metalliskt uran i cirka en procent av partiklarna. Detta motsvarar cirka 0,05 gram metall för den totala mängden av cirka 43 kg pulver. I den bedömning av långsiktig säkerhet som gjordes då (2009, SKBdoc 1200854), anges att efter oxideringen från metall till oxid, antas hela radionuklidinventariet (utom U) förekomma i separata faser. Upplösningen av R1-oxidens radionuklidinventarium antas därmed ske omedelbart vid vattenkontakt och motsvarande radionuklidhalter begränsas bara av motsvarande lösligheter. Här bör man notera att detta inte motsvarar mer än cirka 1,6 TBq (SKBdoc 1395837). Man bör också notera att urandioxidmatrisen förväntas vara lika svårslöslig som vanligt  $UO_2$ -bränsle, och att därmed inga ökade uranutsläpp förväntas.

## 4 Uppskattning av riskbidraget från dessa kapslar

Bränsleresterna planeras att placeras i kapslar med PWR-insats. En typisk PWR-kapsel innehåller följande (Spent Fuel Report, Table 6-3): cirka 1 800 kg U, utbränning 44,8 MWd/kgU; Aktivitet 16 000 TBq. Nedan följer en jämförelse med dessa siffror, för att illustrera mängd och aktivitet hos de olika bränsleresterna. Den typiska PWR-kapseln kallas nedan för "typ-PWR".

### 4.1 Kvantifiering av aktiviteten i bränsleresterna

**Kapsel 1-4:** Endast  $UO_2$ .

Mängd U per kapsel är max 579 kg (cirka 33 % av typ-PWR). Medelanrikning: 1–2 procent, medelutbränning: 9–15 MWd/kgU. Medelaktivitet i dessa fyra kapslar är 3 557 TBq, vilket är cirka 22 procent av typ-PWR.

**Kapsel 5:** Epoxiingjutet (33 primäremballage) och resten (48–33=15 primäremballage) vanligt  $UO_2$ -bränsle.

Total mängd U i kapseln: 233 kg. Medelanrikning: 2 %. Medelutbränning: 15 MWd/kgU. Aktivitet 2 126 TBq, vilket är cirka 13 % av typ-PWR.

Mängd epoxiingjutet: Det finns 33 primäremballage som noteras innehålla epoxi. Alltså är det uppskattningsvis cirka  $33 \times 50 = 1\,650$  prov, och  $1\,650 \times 23 = 37,95$  kg U i epoxiingjutna rester, och  $49 \times 1650 = 80,85$  kg epoxi. Aktiviteten i de primäremballage som innehåller epoxiingjutet material uppgår till 544 TBq vilket är 3,4 % av typ PWR (och 25 % av denna kapsels aktivitet).

**Kapsel 6:** R1-pulver (fyra primäremballage) och resten vanligt UOX.  
Mängd U i kapseln: 123 kg. Medelanrikning: 1 %. Medelutbränning: 12 MWd/kgU.  
Hela kapselns aktivitet 865 TBq vilket är cirka 5,4 % av typ PWR).  
R1-oxiden (fyra primäremballage): Vikt: 42,85 kg. Medelanrikning: 0,7 % (naturligt uran),  
Medelutbränning: 0,2 MWd/kgU. Aktivitet 1,6 TBq vilket endast är cirka 0,01 % av typ-PWR  
(och cirka 0,2 % av denna kapsels aktivitet).

## 4.2 Kvantifiering av fraktion föroxiderad och snabbupplöst bränslematris

### Kapsel 1-4:

Mängd kapslat material: 70 % av. Av detta är  $10^{-4}$  föroxiderat (se avsnitt 2.3).  
 $0,0001 \times 70 \% = 0,0007 \%$ . Kapslat material ger: 0,007 % av inventariet av alla radionuklider ingår i den snabbupplösta fraktionen.

Mängd okapslat material är 30 % av vikten. Av detta är  $10^{-3}$  föroxiderat (se avsnitt 2.3).  
 $0,001 \times 30 \% = 0,03 \%$ . Okapslade fragment: ger 0,03 % av inventariet av alla radionuklider ingår i den snabbupplösta fraktionen.

Summering av dessa ger **0,037 % av inventariet** av alla radionuklider för dessa fyra kapslar, vilka ingår i den snabbupplösta fraktionen för dessa fyra kapslar.

### Kapsel 5:

Mängd vanliga rester: 233 kg U-40 kg U = 193 kg U (75 % av kapselns aktivitet). Av detta är antas 0,037 % av inventariet vara föroxiderat.

Epoxi-ingjutna rester: 40 kg U (25 % av denna kapsels aktivitet): **100 %** av detta antas ingå i den snabbupplösta fraktionen.

### Kapsel 6:

Mängd vanliga rester: cirka 84 kg U (99,8 % av denna kapsels aktivitet).

Av detta antas 0,037 % av inventariet vara föroxiderat.

R1-pulver cirka 38 kg U (0,2 % av kapselns aktivitet) Det antas att **100 %** av radionuklidinventariet i detta blir omedelbart upplöst vid vattenkontakt; uranoxiden kommer dock troligen att lösas upp lika långsamt som vanliga bränslerester.

### Kapsel 7:

Innehållet måste helt och hållet antas; avfallet har ej uppkommit ännu. Det antagna innehållet i kapsel 7 (samt halva kapsel 6) antas ha samma sammansättning som de övriga resterna.

### 4.2.1 Summering för vidare beräkning av riskbidrag

Jämförelse med typ-PWR: aktivitet 16 000 TBq:

#### Kapsel 1-4 (Per kapsel):

Medelaktivitet 3557 TBq = 22 % av aktiviteten för typ-PWR.

Fraktion snabbupplöst: 0,037 %

#### Kapsel 5:

Totalt 2126 TBq = 13,3 % av typ-PWR.

Vanliga rester: aktivitet 1 582 TBq = 9,9% av aktiviteten för typ-PWR.

Fraktion snabbupplöst: 0,037 %

Epoxiingjutet: aktivitet 544 TBq = 3,4 % av aktiviteten för typ-PWR

Fraktion snabbupplöst: 100 %



**Kapsel 6 (NB: halvfull):**

Totalt 865 TBq = 5,4 % av aktiviteten för typ PWR.

Vanliga rester: 863,4 TBq = 5,4 % av aktiviteten för typ-PWR.

Fraktion snabbupplöst: 0,037 %

R1-pulver: Aktivitet 1,6 TBq = cirka 0,01 % av aktiviteten för typ-PWR,

Fraktion snabbupplöst: 100 %

**Kapsel 7** (och halva kapsel 6): resterna har ej ännu uppkommit. Aktiviteten anses likställd med 1,5 kapslar med samma sammansättning som ovan.

### 4.3 Uppskattning av riskbidrag

Två scenarier gav bidrag till den beräknade risken i säkerhetsanalysen SR-Site: *i*) skjuvscenariot där kapslar antas ha skadats av jordskalvsinducerade sekundära skjuvrörelser i sprickor som skär kapselpositioner samt *ii*) erosions/korrosionsscenarioet där kapslar antas ha skadats av korrosion som skett med en förhöjd hastighet efter att bufferten förlorats genom erosion. Det senare gav det största riskbidraget och var också det där känsligheten för bränsleupplösningshastigheten var störst. Därför görs en uppskattning av riskbidraget från bränsleresterna endast för detta scenario och med ett pessimistiskt förenklat angreppssätt enligt följande.

I erosions/korrosionsscenarioet antas löslighetsgränser inte kunna tillämpas eftersom det kolloidfilter som bufferten normalt utgör antas ha gått förlorat. Dessutom är grundvattnets flödes hastighet genom de aktuella deponeringshålen hög vilket i många fall ger en alltför hög vattenomsättning i deponeringshålet för att lösligheter ska ge någon begränsning i nuklidkoncentrationer. För dessa förhållanden gäller därför att utsläppet från närområdet till det omgivande berget, av nuklider bundna i bränslematrisen, är proportionellt mot nuklidinventariet i matrisen multiplicerat med upplösningshastigheten hos matrisen.

För de typer av bränslerester som är aktuella här finns ännu inget kvalitetssäkrat vetenskapligt underlag för att anta en bränsleupplösningshastighet som begränsar utsläppen av föroxiderade bränsledelar, epoxiingjutet bränsle eller bränslepulver. För att dessa bränslefraktioner ska bli tillgängliga behöver dock inte bara kopparkapseln och gjutjärnsinsatsen skadas, utan även de fyra transportboxarna samt de innanför dessa liggande  $4 \times 12 = 48$  enskilda primäremballagen som ryms i varje kapsel. Primäremballagen är tillverkade av tre millimeter rostfritt stål. Med den antagna medelkorrosionshastigheten för bränslets metalldelar i SR-Site (0,15 mikrometer/år; TR-10-52 sidan 81) blir den förväntade tiden för att korrodera igenom ett primäremballage cirka 20 000 år (se även avsnitt 3.2) efter att kopparkapseln skadats så att vatten kan tränga in. De olika emballagen kommer att penetreras vid olika tidpunkter. I det följande antas att spridningen i tidpunkten för primäremballagens penetration är 1 000 år, vilket bedöms som en pessimistiskt liten spridning när den förväntade korrosionstiden är mer än tio gånger så lång. Detta innebär också att utsläppet från kapseln av snabbupplösta delar av bränslet antas ske under dessa 1 000 år. Det finns ytterligare faktorer som begränsar och fördröjer utsläppet från kapseln, till exempel diffusion av radionuklider genom de delar av primäremballage och kapseln där inträngt vatten kan antas vara stagnant samt sorption av nuklider till diverse material i kapselns inre. Ingen ansats att tillgodoräkna detta har gjorts.

Därför antas för de föroxiderade, epoxiingjutna och pulverformiga fraktionerna av bränslet att utsläppshastigheten är sådan att hela dessa inventarier släpps ut på 1 000 år. Därmed kan utsläppshastigheten för dessa fraktioner jämföras med den för matrisbundna delar av opåverkat bränsle, där hela inventariet antas frigöras på i medeltal  $10^7$  år. (Den omedelbart tillgängliga fraktionen av bränslet, IRF, ingår inte i jämförelsen eftersom denna tänks frigöras omedelbart också för opåverkat bränsle.) För att jämföra riskbidraget från bränsleresterna med det från hela mängden opåverkat bränsle i förvaret behöver inventariet för de två i hela förvaret tas hänsyn

till. Jämförelsen görs med riskbidraget från hela förvaret eftersom syftet är att utröna om bränsleresterna ger ett signifikant tillskott till den beräknade risken för hela förvaret.

Antag för jämförelsen att en av de 6 000 kapslarna i förvaret drabbas av en skada. För var och en av kapslarna är alltså skadesannolikheten 1/6000. Sannolikheten att det ska vara någon av kapslarna 1–4 blir 4/6 000, att det är kapsel 5, 6 eller 7 blir vardera 1/6 000 och att det är någon av kapslarna med opåverkat bränsle 5 993/6 000.

För den kapsel som skadas blir utsläppet av matrisbundna nuklider lika med dess inventarium av matrisbundna nuklider multiplicerad med utsläppshastigheten för matrisbundna nuklider. Den senare är 1/1 000 per år för de snabbupplösta delarna av bränsleresterna och 1/10<sup>7</sup> per år för övrigt inventarium i förvaret.

Riskbidraget för en viss kapseltyp, räknad som utsläpp från närområdet, blir proportionell mot sannolikheten att just den kapseltypen skadas multiplicerad med utsläppet av matrisbundna nuklider för den kapseln.

En riskjämförelse görs i tabell 2, där inventarierna i de sex kapslarna med känt innehåll är hämtade från avsnitt 4.2.1.

Ett relativt riskbidrag för varje kapseltyp har beräknats som:

$$\text{Relativt riskbidrag} = (\text{Skadesannolikhet för kapseltypen}) \times (\text{Andel av medelaktivitet för PWR}) \times [(\text{Fraktion snabbupplöst})/1\ 000\ \text{år} + (\text{fraktion normalupplösning}/10^7\ \text{år})]$$

Detta ger ett onormerat, relativt riskbidrag, det vill säga de olika bidragens summa blir inte lika med ett (näst sista raden i tabellen). För att förenkla jämförelsen har de relativa riskbidragen normerats i sista raden, som därigenom anger andelen av det totala riskbidraget för respektive kapseltyp. Summan av dessa bidrag är alltså lika med ett.

Tabell 2 visar att kapslarna med bränslerester i denna förenklade och pessimistiska analys står för cirka 5,4 procent av den totala risken med kapslarna med opåverkat bränsle står för drygt 94 procent. I beräkningen har inventarierna för de 5½ kapslar för vilka inventariet i dag kan antas vara känt tagits med. Om de ytterligare 1½ prognostiserade kapslarna inkluderas och antas ha samma sammansättning på bränsleinnehållet stiger riskbidraget till cirka sju procent.

Analysen kan utvidgas och göras mindre pessimistisk, till exempel genom att inkludera spridning i geosfären för många av de ingående nukliderna. En sådan spridning har nästan ingen effekt på det vanliga inventariet, som löses upp kontinuerligt under 10<sup>7</sup> år, medan det skulle ha en kraftigt reducerande effekt på de nuklider i bränsleresterna som har en signifikant sorption i geosfären. För dessa är den 1 000 år långa utsläppstiden ofta kort i jämförelse med spridningen i transporttiderna i geosfären.

I sammanfattning bedömer SKB att riskbidraget från föroxiderat, epoxiingjutet och pulverformigt bränsle är maximalt cirka sju procent av det totala riskbidraget. De epoxiingjutna bränsleresterna står för den helt dominerande delen av dessa sju procent. Observera att resultatet av denna pessimistiskt förenklade beräkningen av riskbidraget från bränsleresterna innebär en ökning av den beräknade risken för hela förvaret med cirka sju procent, jämfört med den risk som redovisas i SR-Site och där bränsleresterna inte är medräknade. Notera också att denna ökning bara gäller under de första 1 000 åren efter att en kapsel med epoxiingjutet bränsle tänks ha skadats.

**Tabell 2. Riskbidrag från olika typer av bränslerester samt från opåverkat bränsle. Benämningen "vanliga rester" avser de bränslerester där den yttersta delen av bränslematrisen antas vara föroxiderad medan huvuddelen av matrisen är opåverkad.**

	Kapsel 1-4 Vanliga rester	Kapsel 5		Kapsel 6		Kapslar med opåverkat bränsle
		Vanliga rester	Epoxi	Vanliga rester	Pulver	
Antal kapslar	4	1		1		5993
Skadesannolikhet för denna kapseltyp	4/6000	1/6000		1/6000		5993/6000
Andel av medelaktivitet per kapsel	0,22	0,1	0,034	0,054	0,0001	1
Fraktion "snabbupplöst"	$3,70 \cdot 10^{-4}$	$3,70 \cdot 10^{-4}$	1	$3,70 \cdot 10^{-4}$	1	0
Fraktion normalupplösning	1	1	0	1	0	1
Relativt riskbidrag	$6,89 \cdot 10^{-11}$	$7,83 \cdot 10^{-12}$	$5,67 \cdot 10^{-9}$	$4,23 \cdot 10^{-12}$	$1,67 \cdot 10^{-11}$	$1,0 \cdot 10^{-7}$
Andel av totalt riskbidrag	0,00065	0,00007	0,0536	0,00004	0,00016	0,946

## 5 Slutsats

Riskbidraget från oxidpulvret från R1 är minimalt pga liten mängd samt mycket låg aktivitet (lågutbränt, naturligt uran). Ökat riskbidrag från bränslerester bedöms uppkomma främst från epoxiingjutet bränsle samt från föroxiderat, vanligt UO<sub>2</sub>-bränsle. Den bedömning som presenteras här innefattar ett stort mått av pessimism då både andel föroxiderat och andel epoxiingjutet antas lösas upp omedelbart.

Totalt sett bedöms riskbidraget från de i dag existerande bränsleresterna uppgå till cirka 5,4 procent av den totala risken från opåverkat bränsle; detta ökar till cirka sju procent om framtida rester tas med i beräkningen. Risken utgörs till allra största delen av bidraget från de epoxiingjutna bränslefragmenten, och bedömningen som ligger till grund för detta baseras på ett pessimistiskt antagande om att hela radionuklidinventariet i denna typ av bränslerest löser upp sig omedelbart. Bedömningen om riskbidrag skulle minska drastiskt om tillräcklig information fanns tillgänglig för att kunna ange en mer realistisk effekt av epoxin på bränslematrisen.

## Referenser

**Cobos J, Papaioannou D, Spino J, Cocquerelle M, 1998.** Phase characterisation of simulated high burn-up  $UO_2$  fuel. *Journal of Alloys and Compounds* 271–273, 610–615.

**Einzig R E, Thomas L E, Buchanan H C, Stout R B, 1992.** Oxidation of spent fuel in air at 175 to 195°C. *Journal of Nuclear Materials* 190, 53–60.

**Ekeroth E, Cui D, Low J, Granfors M, Zwicky H-U, Spahiu K, Evins L Z, 2012.** Instant release fractions from corrosion studies with high burnup LWR Fuel. I Scientific basis for nuclear waste management XXXV. Warrendale, PA: Materials Research Society. (Materials Research Society Symposium Proceedings 1475). doi:10.1557/opl.2012.565

**Giordano T H, 2002.** Transport of Pb and Zn by carboxylate complexes in basinal ore fluids and related petroleum-field brines at 100°C: the influence of pH and oxygen fugacity. *Geochemical Transactions* 3, 56–72.

**Gray W J, Thomas L E, 1994.** Initial results from dissolution testing of various air oxidized spent fuels. I Barkatt A, Van Konynenburg R A (red). Scientific basis for nuclear waste management XVII: symposium held in Boston, Massachusetts, USA, 29 November – 3 December. Pittsburgh, PA: Materials Research Society. (Materials Research Society Symposium Proceedings 333), 391–398.

**Gray W J, Thomas L E, Einziger R E, 1993.** Effects of air oxidation on the dissolution rate of LWR spent fuel. I Interrante C G, Pabalan R T (red). Scientific basis for nuclear waste management XVI: symposium held in Boston, Massachusetts, USA, 30 November – 4 December 1992. Pittsburgh, PA: Materials Research Society. (Materials Research Society Symposium Proceedings 294), 47–54.

**IAEA, 1988.** Immobilization of low and intermediate radioactive wastes with polymers. Vienna: International Atomic Energy Agency. (IAEA Technical Reports Series 289)

**Johnson L, Günther-Leopold I, Kobler Waldis J, Linder H P, Low J, Cui D, Ekeroth E, Spahiu K, Evins L Z, 2012.** Rapid aqueous release of fission products from high burn-up LWR fuel: experimental results and correlations with fission gas release. *Journal of Nuclear Materials* 420, 54–62.

**Leenaers A, Verwerft M, Boulanger D, Itagaki N, Matsumura T, 2001.** Microstructure of spent MOX fuel stored under dry air for 25 years. I Proceedings of 8th International Conference on Environmental Management, Brugge, Belgium, 30 September – 4 October 2001.

**McEachern R J, Taylor P, 1998.** A review of the oxidation of uranium dioxide at temperatures below 400°C. *Journal of Nuclear Materials* 254, 87–121.

**Nakache M, Aragon E, Belec L, Perrin F-X, Roux G, Le Gac P-Y, 2011.** Degradation of rubber to metals bonds during its cathodic delamination, validation of an artificial ageing test. *Progress in Organic Coatings* 72, 279–286.

**Serrano J A, Glatz J P, Toscano E H, Barrero J, Papaioannou, 2001.** Influence of low-temperature air oxidation on the dissolution behaviour of high burn-up LWR spent fuel, *J. Nucl. Mater.* 294, pp. 339-343.

**SKB, 2010a.** Spent nuclear fuel for disposal in the KBS-3 repository. SKB TR-10-13, Svensk Kärnbränslehantering AB.

**SKB, 2010b.** Data report for the safety assessment SR-Site. SKB TR-10-52, Svensk Kärnbränslehantering AB.

**SKB, 2010c.** Fuel and canister process report for the safety assessment SR-Site. SKB TR-10-46, Svensk Kärnbränslehantering AB.

**Thomas L E, Einzinger R E, Buchanan H C, 1993.** Effect of fission products on air oxidation of LWR spent fuel. Journal of Nuclear Materials 201, 310–319.

**US DOE, 1999.** Mixed waste encapsulation in polyester resins. Innovative Technology Summary Report No. DOE/EM-0480. U.S. Department of Energy.

**Zwicky H-U, Low J, Ekeröth E, 2011.** Corrosion studies with high burnup light water reactor fuel. Release of nuclides into simulated groundwater during accumulated contact time of up to two years. SKB TR-11-03, Svensk Kärnbränslehantering AB.

### **Opublicerade dokument**

**SKBdoc 1395837 ver 1.0.** Bränslerester från Studsvik fördelade i kapslar för Kärnbränsleförvaret. Svensk Kärnbränslehantering AB.

**SKBdoc 1189751 ver 1.0.** Mellanlagring i Clab och slutförvaring av bränslerester från den nedlagda forskningsreaktorn R1. Arbetsrapport-Technical Note S-08/08, SVAFO. Svensk Kärnbränslehantering AB.

**SKBdoc 1200854 ver 2.0.** Korrosionsprodukter från R1 bränsle – Konsekvenser för långsiktigt säkerhet. Svensk Kärnbränslehantering AB.