



SKB rapport R-97-20

December 1997

Använt kärnbränsle - Barriärernas
säkerhetsmässiga betydelse

En delrapport från projektet
”Beskrivning av risk”

Patrik Sellin

Svensk Kärnbränslehantering AB

Svensk Kärnbränslehantering AB

Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co

SKB, Box 5864, S-102 40 Stockholm, Sweden

Tel 08-459 84 00 Fax 08-661 57 19

Tel +46 8 459 84 00 Fax +46 8 661 57 19

**ANVÄNT KÄRNBRÄNSLE -
BARRIÄRERNAS SÄKERHETSMÄSSIGA
BETYDELSE**

**EN DELRAPPORT FRÅN PROJEKTET
”BESKRIVNING AV RISK”**

Patrik Sellin

Svensk Kärnbränslehantering AB

December 1997

Förord

Frågor om hur radioaktivt material påverkar oss människor kan vara komplicerade. Breda kontakter med allmänhet, beslutsfattare men också med experter och vetenskapsmän har gjort det tydligt för oss på SKB att de behöver förklaras bättre. Debatten, där olika delar lyfts fram beroende på olika intressen, har inte gjort det lättare för en utomstående att få perspektiv på vad som är farligt, hur stora säkerhetsmarginaler som finns etc. Kraven att kunna överblicka konsekvenser över mycket långa tidsperioder och kraven på stora säkerhetsmarginaler är ovanliga, och går långt utöver vad som är normalt i samhället. Det är naturligt att detta kan vara svårt att förstå.

Samtidigt gäller att vi som arbetar med frågorna ofta i våra redovisningar tagit för givet att många har de grundläggande problemställningarna klara för sig. Det är idag uppenbart att vi måste lägga mycket mera möda på att förklara vilka risker och farligheter som våra förslag till lösningar avses ge skydd emot. Möjligheterna att på ett bättre sätt än tidigare beskriva risker är goda idag, efter många år av intensiv och bred forskning i internationellt samarbete. Man har haft möjlighet att tänka igenom grundläggande förhållanden och samlat på sig ett stort faktaunderlag. Det ger möjlighet att placera in olika problem i sina sammanhang och även ange storleksordningar.

Inom SKB har vi därför beslutat att ta upp en rad av de viktigaste frågorna inom ramen för ett särskilt projekt – ”Beskrivning av risk”. På nästa sida finns en lista på de rapporter som idag finns tillgängliga i denna serie. Tanken är att rapporterna skall utgöra ett aktuellt bibliotek som på ett populärvetenskaplig sätt redovisar riskerna kring hanteringen av det radioaktiva avfallet. Vår förhoppning är att rapporterna skall bidra till att lyfta fram de verkligt viktiga frågorna när det gäller att ta hand om det använda kärnbränslet. Allt eftersom arbetet med avfallsfrågorna går framåt kan rapporterna behöva uppdateras och nya skrivas.

Delrapporter – projektet ”Beskrivning av risk”

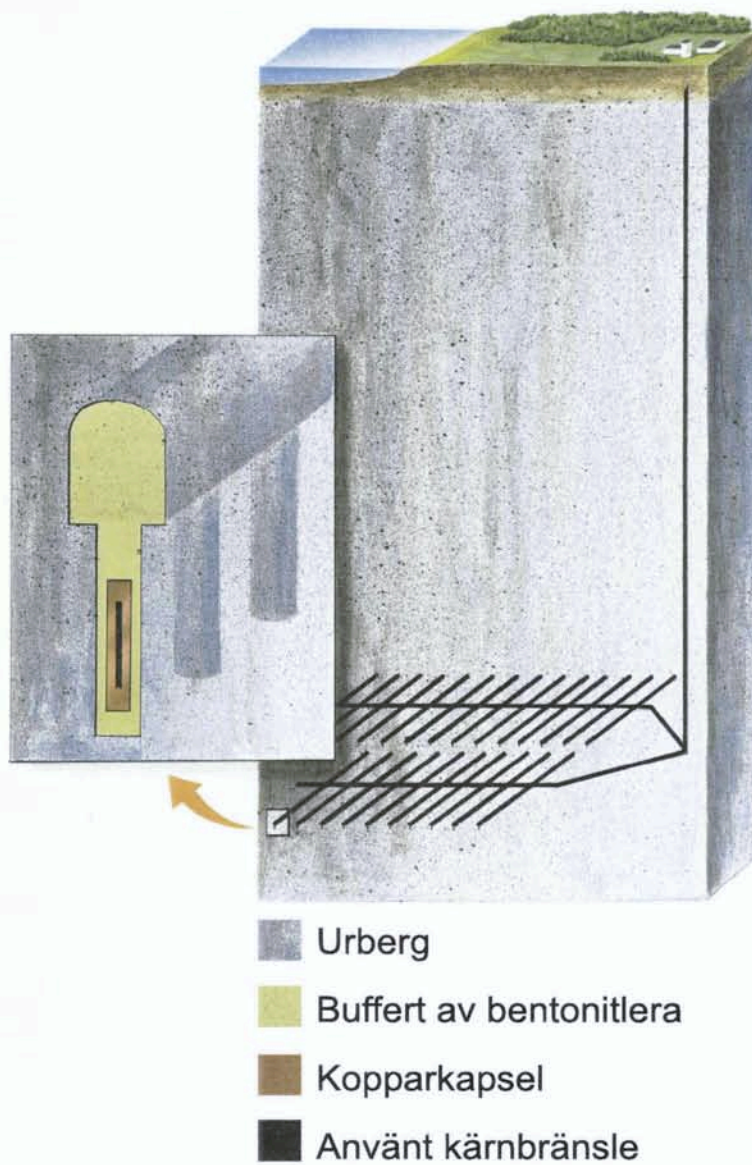
- Använt kärnbränsle - Hur farligt är det? (R-97-02)
- Plutonium - data, egenskaper m m (R-97-10)
- Vad betyder en istid för djupförvaret? (R-97-11)
- Använt kärnbränsle - Barriärernas säkerhetsmässiga betydelse (R-97-20)
- Använt kärnbränsle - Djupförvarets funktion och utveckling (R-97-21)
- Använt kärnbränsle - Transporter (R-97-22)
- Farliga ämnen i människans omgivning (R-97-23)

Innehåll

1	Inledning	1
2	Barriärer	2
2.1	Kapsel	2
2.1.1	Krav på kapseln	3
2.1.2	Kapselns funktion	3
2.1.3	Vad händer i en otät kapsel?	4
2.2	Buffert	5
2.3	Berg	5
2.4	Bränsle	7
2.5	Biosfären	8
2.6	Sammanfattning	8
3	Analys av barriärernas funktion med avseende på radionuklidtransport	9
4	Jämförelse av barriärernas betydelse	13
4.1	Fall I	13
4.2	Fall II	14
4.3	Fall III	14
4.4	Fall IV	15
4.5	Fall V	15
4.5	Fall VI	15
4.6	Fall VII	15
4.7	Fall VIII	15
5	Barriärernas förmåga att innesluta radionuklider	23

1 Inledning

Vid djupförvaring av använt kärnbränsle skapas säkerhet genom en kombination av tekniska och naturliga barriärer (figur 1). De tekniska barriärerna (kapsel och buffert) består av material med väl kända och gynnsamma egenskaper samt förutsägbar funktion. Dessa barriärer innesluter avfallet och de flesta radionuklider kommer att sönderfalla till insignifikanta nivåer medan de tekniska barriärerna är intakta. Den naturliga barriären (berget) ger en stabil och skyddad miljö för de tekniska barriärerna och garanterar deras livslängd. Den fördröjer också de radionuklider som eventuellt frigörs från de tekniska barriärerna. Den naturliga barriärens funktion fås genom att man lokaliserar förvaret till en plats som är tektoniskt stabil, har gynnsam grundvattenkemi och berg med låg vattenföring.



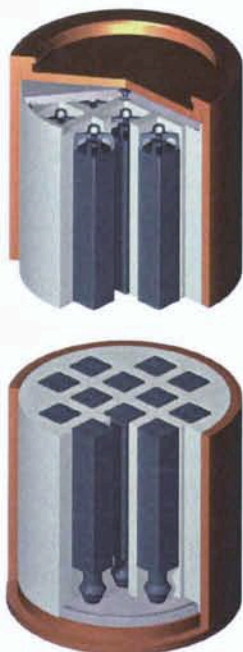
Figur 1. Slutförvaring enligt KBS-3-metoden

2 Barriärer

Använt kärnbränsle utgör huvuddelen av det avfall som skall deponeras i ett djupförvar. Vid deponeringstillfället innehåller bränslet ett hundratal olika radionuklider. Radionukliderna finns i olika mängd och har olika halveringstider. De flesta av nukliderna saknar betydelse för säkerheten, eftersom de antingen finns i liten mängd eller har kort halveringstid. Några få radionuklider finns dock i större mängd, exempelvis plutonium-239 och cesium-137. Några av dessa nuklider skulle kunna orsaka stor skada om de kom fria och måste därför isoleras på ett säkert sätt. Ett sätt att åstadkomma detta är med ett djupförvar enligt den så kallade KBS-3 metoden. Denna bygger på flerbarriärprincipen, en kombination av tekniska och naturliga barriärer; kapsel, buffertmaterial och berg, vilka isolerar det använda bränslet. Om isoleringen skulle brytas fördröjs och späds de radionuklider som frigörs i de olika barriärerna. I den här rapporten kommer de olika barriärernas förmåga att hålla kvar radionukliderna i fall av en läcka på kapselns kopparhölje att belysas.

2.1 Kapsel

Kapselns uppgift är att under lång tid helt innesluta det använda bränslet. Kapslarna är utformade så att de förblir täta under mycket långa tidsperioder. Kapseln har konstruerats för att motstå de kemiska och mekaniska påfrestningar den kan tänkas utsättas för i djupförvaret. Den består av ett kopparhölje och en insats av stål. Kopparhöljet är tätt och skyddar mot kemiska angrepp. Stålinnsatsen står för den mekaniska hållfastheten. I figur 2 visas kapselns planerade utformning.



Figur 2. Kapsel för använt kärnbränsle

2.1.1 Krav på kapseln

Vid bestämning av kopparhöljets dimensioner har man tagit hänsyn till koppars korrosionshastighet och avklingningstakten hos de radioaktiva ämnena. Kopparhöljets vägg tjocklek avgör hur lång tid det tar innan kapseln penetrerats p g a korrosion. Kapseln bör vara tät åtminstone till dess att det använda bränslets radioaktivitet avklingat till nivåer jämförbara med aktiviteten hos naturligt uran, dvs ca 100 000 år. Förutom krav på täthet, korrosionsbeständighet och hållfasthet ställs följande krav på kapseln och dess utformning;

- värme och strålning ska begränsas
- höga temperaturer kan orsaka processer som försämrar buffertens egenskaper, strålning kan indirekt påverka korrosionen av kopparhöljet
- bottentrycket mot bufferten får inte bli för stort
- kapselns vikt och utformning får inte vara sådan att den sjunker ned genom bufferten
- ingen risk för kriticitet om vatten skulle komma in i kapseln

Den kapselutformning som visas i figur 2 är inte slutgiltig. Olika alternativ studeras, gemensamt för dem alla är ett kopparhölje som skyddar mot korrosion och en inre tryckbärande komponent som ger mekanisk hållfasthet. Olika kopparkvaliteter kan bli aktuella. För den inre komponenten kan alternativa utformningar och material komma ifråga. Olika tillverkningsmetoder kommer också att utvärderas. Valet av utformning och tillverkningsmetod görs mot bakgrund av djupförvarets funktionskrav, radiologiska risker för driftpersonal, driftsäkerhet, miljö och ekonomi. Möjligheterna att utföra en gedigen kvalitetskontroll av de färdiga kapslarna är också mycket viktigt. Brister i kontrollen av kapslarna kan vara det största hotet mot deras integritet.

2.1.2 Kapselns funktion

Kapselns kopparhölje bidrar till isoleringen genom att totalt innesluta bränslet så att inga radionuklider kan lämna kapseln. Stållinsatsen bidrar till isoleringen genom att ge kapseln mekanisk hållfasthet så den inte bryts sönder utan förblir tät. Dessutom bidrar både kopparhöljet och stållinsatsen till att skärma av bränslets gamma- och neutronstrålning.

Även en otät kapsel har stor förmåga att hålla kvar radionukliderna inom sig. Kapseln består som tidigare nämnts av ett kopparhölje och en stållinsats. Bränslet ligger i rör av legeringen zirkaloy. För att radionuklider ska föras ut ur kapseln måste vattnet passera kopparhöljet, stållinsatsen och zirkaloyrören, lösa upp radionuklider i bränslet, och sedan ta sig ut igen. För att det ska vara möjligt måste både kopparhölje, stållinsats och zirkaloyrör ha läckor. Om så är fallet är tomrummen som är tillgängliga för transport inne i kapseln begränsade. Det tillgängliga transportutrymmet minskas ytterligare genom att sprickor och hålrum successivt fylls med korrosionsprodukter.

Det finns flera hinder för transport genom kapseln, deras exakta betydelse är svår att avgöra. Till exempel brukar man anta att vatten kan ta sig in mellan den gjutna stållinsatsen och dess lock, men hur stor är denna passage? Några av zirkaloyrören kommer att ha skadats under reaktorns drift, men hur många, var är läckorna placerade och hur ser de ut? Hur kommer korrosionsprodukterna att fördela sig inne i kapseln, osv. Eftersom det är

mycket svårt att exakt förutsäga transportmotståndet inne i kapseln, brukar man i säkerhetsanalyser antingen; inte tillgodoräkna det sig alls; eller använda sig av förenklade konservativa antaganden; eller tillgodoräkna sig motståndet i bättre definierade delar t ex ett hål i kopparhöljet.

2.1.3 Vad händer i en otät kapsel?

Om det skulle gå hål på kopparhöljet kan vatten ta sig in i kapseln. Till en början sipprar vattnet genom hålet p g a att det hydrostatiska trycket utanför kapseln är större än trycket inne i kapseln. När vattnet kommer in i kapseln reagerar det med järnet i stålinsatsen och bildar magnetit (Fe_3O_4) och vätgas (H_2), ett vätgastryck byggs upp. När trycket inne i kapseln blivit lika stort som trycket utanför finns inte längre någon tryckskillnad som kan pressa in vatten. Vattentillförseln fortsätter då genom diffusion av vattenånga genom vätgasen.

Under tiden vatteninflödet drivs av tryckskillnaden kan vattennivån inne i kapseln stiga. Om nivån överhuvudtaget stiger, och hur mycket den stiger beror på hur mycket vatten som kan transporteras genom hålet och stålhöljets korrosionshastighet. Om inflödet är större än mängden vatten som förbrukas vid korrosionen fylls vatten på. Det förutsätter ett relativt stort hål, beräkningar visar att ett cirkulärt hål måste ha en diameter på 2,5 mm (area ca 8 mm²) för att vattennivån ska stiga.

Om vattennivån stigit över hålet i kopparhöljet när tryckjämvikt uppnås mellan kapseln och omgivningen, fortsätter vätgastrycket att öka över vattenytan i kapseln och vattnet drivs ut. Detta är det enda utflöde i flytande form man kan få ur kapseln. Utflödet fortsätter till nivån sjunkit under hålet. Då ventileras vätgasen ut, tryckjämvikt uppstår och transporten genom hålet drivs av diffusion. Det innebär att ämnen som är lösta i en vätska transporteras från områden med höga koncentrationer till områden med låga. Diffusionen är liten i förhållande till korrosionshastigheten, allt tillfört vatten förbrukas vid korrosionen. Även vattnet som redan finns inne i kapseln kommer att förbrukas och kapseln blir gasfylld.

Då vatten kommer in i kapseln börjar stålinsatsen att korrodera. Korrosionshastigheten beror som tidigare nämnts av vattnets pH och jonstyrka. För de förhållanden som kan tänkas råda i förvaret beräknas den årliga korrosionen bli 0,0001 - 0,001 mm (1 mm på 1 000 - 10 000 år). Om spalten mellan kopparhöljet och stålinsatsen är vattenfylld kan sk galvanisk korrosion uppstå. I anaerob miljö innebär det en initialt högre korrosionshastighet, maximalt dubbelt så stor, till dess det skyddande magnetitskiktet hinner byggas upp. Efter det styrs korrosionshastigheten av magnetitskiktet. I en syresatt miljö kan den galvaniska korrosionen vara betydande. Skulle kapseln börja läcka under den inledande syresatta perioden begränsas emellertid syretillförseln av den låga transporthastigheten genom bufferten.

Allt eftersom stålet korroderar försämras insatsens hållfasthet. Om stålet korroderar med en hastighet av 0,001 mm om året över hela sin yta, beräknas stålinsatsen mista sin bärförmåga efter drygt 10 000 år. Det korroderade stålet bildar magnetit. Magnetit har lägre densitet än stål och kommer därför att fylla tomrummen inne i kapseln. Eftersom tomrummen är fyllda finns ingen risk att kapseln kollapsar totalt, trots att insatsen mist sin bärförmåga. Den

bildade magnetiten kommer på sin större volym att trycka på kopparkapseln, trycket kan leda till nya brott på kapseln och/eller att hålet i kopparkapseln vidgas. Trycket från den bildade magnetiten kan också skada insatsen så att kanalerna för bränsleelementen bryts. Den minskade bärförmågan gör också kapseln mer känslig för yttre belastningar. Möjligheterna för radionuklider att transporteras ut ur en läckande kapsel förändras således på lång sikt. Vatten- och vattenångtransporten genom kapseln både är svår att beräkna och ändras med tiden. Därför antar man ofta i säkerhetsanalyser att kapseln kommer att bli helt vattenfylld någon viss tid efter en läcka uppstår, att vattnet omedelbart når bränslet och löser radionuklider som sedan transporteras ut genom hålet i kapseln.

2.2 Buffert

Buffertens primära uppgift är att bidra till isoleringen genom att skydda kapseln från kemiska och mekaniska påfrestningar. Om en kapsel skulle vara otät ska bufferten förhindra och fördröja uttransporten av radionuklider.

Bufferten hindrar kapselkorrosion genom att förhindra intransport av korroderande ämnen. Inget flöde av vatten förekommer genom bufferten, all transport av korroderande ämnen sker genom diffusion, en utomordentligt långsam process. Den möjliga intransporten av korroderande ämnen blir en flaskhals för kopparkorrosion.

Genom sin plastiska konsistens skyddar bufferten kapseln från mekaniska påfrestningar. Ett plastiskt material som utsätts för yttre belastning får en kvarstående formförändring. Den tillförda energin tas upp vid formförändringen och materialets egenskaper förblir desamma som före deformationen. De rörelser som kan tänkas uppstå i berget invid deponeringshålen tas upp genom plastiska deformationer i lerbufferten.

Om kapseln skulle läcka måste radionukliderna tränga igenom bufferten för att de ska kunna transporteras vidare genom berget. Transport genom bufferten kan bara ske genom diffusion. På grund av att utrymmet mellan partiklarna i bufferten är mycket trångt filtreras större partiklar. Flertalet radionuklider reagerar med leran i olika sorptionsprocesser. Med det menas att lösta ämnen fäster på en fast fas. En radionuklid som når bufferten och börjar diffundera ut i lerans porvatten kommer att röra sig mycket långsamt. De molekyler som först når porvattnet kommer att sorberas på lermineralen. Först när jämvikt mellan koncentrationerna i det fasta materialet och vattnet uppnåtts kan radionukliden vandra vidare. Det kan ta flera tusen år innan de första spåren av en sorberande radionuklid når buffertens utsida.

2.3 Berg

Berget bidrar till isoleringen av avfallet genom att

- göra det använda bränslet otillgängligt för människor
- ge kapseln och bufferten en stabil miljö

Djupförvaret byggs på stort djup i vanligt förekommande berg utan potentiellt värdefulla naturresurser. Detta för att undvika att människor bygger eller borrar i närheten av förvaret och på så sätt ofrivilligt kommer i kontakt med bränslet eller skadar barriärerna.

Bergets viktigaste bidrag till isoleringen är indirekt, nämligen att ge kapseln och bufferten en stabil miljö såväl kemiskt som mekaniskt. Med stabil miljö menas i detta fall att de kemiska och mekaniska förändringarna inte ska vara så stora att de tekniska barriärernas funktion hotas. Förändringarna ska dessutom vara förutsägbara i ett tidsperspektiv på 100 000-tals år.

Djupförvarets tunnlar och deponeringshål placeras in i berget med hänsyn till sprick-systemet. Mekaniska belastningar på berget tas i första hand upp som rörelser längs befintliga sprickor.

De större sprickzonerna fungerar som ett slags stötdämpare. Genom att placera deponeringshålerna med respektavstånd från större sprickor erhålls en mekaniskt stabil miljö. Berget ska erbjuda en kemiskt stabil miljö med reducerande förhållanden och en grundvattenkemi som i övrigt ger försumbar påverkan på buffert och kapsel. Vattnet ska vara fritt från löst syre och vara neutralt, dvs ha ett pH-värde på ca 7. Salthalten får inte vara extremt hög eller låg.

Berget ger en kemiskt stabil miljö genom att löst syre förbrukas nära ytan dels genom reaktioner med organiskt material och dels genom reaktioner med bergets mineral, främst järnmineral. På förvarsdjup finner man i allmänhet gynnsamma grundvattenkemiska förhållanden.

Om isoleringen bryts ska berget fördröja och sprida utläckande radionuklider genom att

- hålla kvar radionukliderna genom *retentionsprocesser* av olika slag
- fördela i tid och rum genom olika transportvägar med olika transporttider

Man kan säga att bergets förmåga att fördröja och sprida har en fysikalisk och en kemisk del. Den fysikaliska delen har att göra med grundvattnets rörelser och den kemiska med bergets, grundvattnets och radionuklidernas kemiska egenskaper.

Grundvattnet rör sig i bergets spricksystem. Radionuklider som är lösta i vattnet kan följa med grundvattnets rörelser, det kallas *advektion*. Vattnets flödehastighet varierar både mellan sprickor och inom en spricka. Där sprickor korsar varandra kan vattnet blandas. På så sätt sprids lösta ämnen i bergvolymen, ett fenomen som kallas *dispersion*. Genom diffusion kan lösta ämnen transporteras in i det massiva bergets mikroporer.

All transport av radionuklider genom berget påverkas av advektion, dispersion och diffusion. Så gott som samtliga radionuklider påverkas även av sorptionsprocesser av olika slag. Den advektiva transporten begränsas av det långsamma vattenflödet och den låga vattenomsättningen. Lösta radionuklider sprids i bergvolymen genom dispersion. Det långsamma vattenflödet och kontakten med sprickytor ger radionukliderna möjligheter att diffundera i det massiva bergets mikroporer. Radionuklider sorberar på sprickytor, sprickmineral och inne i mikroporerna.

2.4 Bränsle

Det vore kanske fel att kalla det använda kärnbränslet en av förvarssystemets barriärer - det är ju det avfall som ska isoleras. Men eftersom bränslet är utomordentligt svårslösligt i vatten fungerar det som en barriär för de radionuklider som finns inbäddade i det. Vissa av radionukliderna är i en form som är mer svårslöslig än bränslet själv. För dem begränsar lösligheten möjligheten att transporteras ut från en läckande kapsel.

Kärnbränsle består av keramen urandioxid (UO_2). Uran- och syreatomerna i urandioxiden sitter bundna till varandra i ett gitter, även kallat *bränslematrisen*. Innan bränslet placeras i reaktorn kan det hanteras utan strålskyddsåtgärder. Vid driften i kärnreaktorn bildas radioaktiva isotoper av olika ämnen genom fission och neutroninfångning. Det är framförallt de ämnen som bildas vid driften som bidrar till bränslets farlighet. De flesta bildade ämnena, såväl fissionsprodukter som aktinider, sitter inbakade i bränslematrisen ungefär som russinen i en kaka. För att de ska kunna lösas upp och spridas måste den omgivande urandioxiden först ha lösts eller korroderat bort.

Förhållandena under driften i kärnreaktorn påverkar *nuklidinventariet*, dvs mängd och typ av radionuklider. Även bränslets förmåga att fungera som barriär påverkas av driftsförhållandena. För nuklidinventariet är det framförallt utbränningsgraden, dvs den totala mängd energi som utvunnits ur varje element, som har betydelse. Om utbränningsgraden är hög har en stor andel av bränslets uran-235 kärnor klyvts, många plutoniumkärnor har bildats och klyvts, och mängden radionuklider blir större.

Frigörelsen av radionuklider från använt kärnbränsle sker enligt de flesta forskarna i tre kronologiskt överlappande processer:

1. snabb upplösning av fissionsprodukter som frigjorts till gapet eller bränsleytorna under driften
2. selektiva angrepp av ojämnt fördelade fissionsprodukter vid korngränser
3. allmän upplösning av bränslematrisen med samtidig frigörelse av fissionsprodukter och aktinider

Hur radionukliderna frigörs beror på deras egenskaper samt var och i vilken form de förekommer i det använda bränslet. Av avgörande betydelse är också sammansättningen på det vatten som eventuellt kommer i kontakt med bränslet. Vattnets sammansättning har betydelse både för bränsleupplösning och -korrosion samt för lösligheten av de olika radionukliderna.

2.5 Biosfären

Radionukliderna kan transporteras runt i ekosystemen på olika sätt. En radionuklid som t ex hamnar i ett jordlager kan beroende på nuklidens och jordens egenskaper bilda någon slags förening som kan tas upp av mikroorganismer, föras vidare till någon växt som finns

på platsen och senare till något djur eller kanske tillbaka till jordlagret. Beroende på var i systemet en radioaktiv nuklid befinner sig kan människor exponeras för dess strålning.

Exponeringen kan vara yttre genom att man vistas på en förorenad markyta. Den kan ske via inandning om nukliden är i gasform eller förts upp i luften via damm, eller via intag med föda. Exponeringen sker då genom att man dricker vatten eller mjölk eller äter växter, fisk, ägg eller kött som innehåller radionuklider. Det kan också tänkas att någon äter förorenad jord, kanske framförallt barn men även vuxna som smakar på osköljda bär eller grönsaker. Den stråldos en människa slutligen får beror både på hur exponeringen sker och på hur radionukliden transporterats fram till exponeringsplatsen.

Konsekvenserna vid ett utsläpp beror således på radionukliden, recipienten, transport och exponeringsvägarna. Dessa i sin tur beror på platsens naturliga förutsättningar och klimat och hur människan genom sin markanvändning, bevattning, vattendistribution, konsumtion av livsmedel mm utnyttjar platsen.

2.6 Sammanfattning

Tabell 1: Barriärernas funktion

<i>Barriär</i>	<i>Primär funktion</i>	<i>Andra gynnsamma egenskaper</i>
Kapsel	Total inneslutning av det använda bränslet	Även en defekt kapsel begränsar uttransporten av radionuklider
Buffert	Bära kapseln, förhindra strömning av grundvatten, tillåta att vätgas kan transporteras ut, leda bort värme, finnas kvar med bibehållna egenskaper under lång tid, filtrera kolloider	Begränsning av transport av korrosiva ämnen till kapselns yta, sorption av radionuklider, filtrering av mikroorganismer, stabilisering av deponeringshålets väggar
Berg	Ge stabil mekanisk och kemisk miljö	Begränsa vattenomsättning nära kapslarna. Begränsa och fördröja uttransporten av radionuklider
Bränsle	-	Låg upplösningshastighet, svårlösta nuklider
Biosfär	-	Utspädning

3 Analys av barriärernas funktion med avseende på radionuklidtransport

Förvarets uppgift är att i första hand isolera avfallet och i andra hand om att hindra att radionuklider ger upphov till skadliga doser i biosfären om isoleringen bryts. För att belysa betydelsen av de olika barriärernas funktion när det gäller detta, har ett antal beräkningsfall genomförts. Beräkningsfallen baseras på ett förvar av KBS-3 typ där barriärfunktion efter barriärfunktion successivt tas bort och dosen i biosfären beräknas för ett antal utvalda radionuklider. Beräkningsfallen är:

- I Alla barriärer fungerar som förväntat, dvs kapseln är tät under mycket lång tid.
- II Kapseln har en initial defekt, ett hål med 0,1 mm i diameter som har undgått kvalitetskontrollen. Efter tvåhundra år har bufferten mättats med vatten och kapseln vattenfylld. Allt bränsle är då tillgängligt för vattnet. Ingen hänsyn tas till stålinsatsens eller zirkaloyens barriärfunktion.
- III Som fall II, men bufferten är omedelbart mättad och kapseln omedelbart vattenfylld.
- IV Som fall III, men hålet i kapseln är stort, 2,5 mm i diameter. Ett sådant hål kommer med säkerhet att upptäckas vid tillverkningskontrollen
- V Som fall IV, men kapseln har inget transportmotstånd. Bränslet är, praktiskt sett, deponerat direkt i bufferten.
- VI Som fall V, men utan buffertfunktion. Bränslet är deponerat direkt i berget. Transporten av radionuklider antas dock vara som lösta ämnen - ingen transport med partiklar.
- VII Som fall VI, men med partikeltransport. I detta fall har sorptionen och matrisdiffusionen i berget har försvunnit. Den enda begränsande faktorn är tiden det tar för vattnet att transporteras genom berget.
- VIII Detta fall är med för jämförelse. Här antas att inget förvar har byggts och det använda bränslet har lämnats i CLAB utan övervakning och underhåll. Bergsalarna där har vattenfylld och grundvatten kan strömma igenom och ta med sig radionuklider ut till Östersjön utan fördröjning.

Beräkningsfallen finns sammanfattade i tabell 2. I samtliga fall, utom VIII, antas att vatten-transporttiden från förvaret till ytan är hundra år och att vattenflödet på förvarsnivå är en liter per kvadratmeter och år. Dessa värden är tagna från säkerhetsanalysen SKB 91 och är typiska framräknade värden för Finnsjön i Uppland, vilket anses som en plats med relativt höga flöden.

I samtliga fall antas att radionukliderna kommer ut i Östersjön. Detta gör att de framräknade doserna blir lägre än om nukliderna skulle komma ut i en sjö eller brunn, men avsikten med den här studien är inte att göra en full konsekvensanalys, utan att illustrera de olika barriärernas betydelse.

Tabell 2 Förutsättningarna i de olika beräkningsfallen

Barriär/fall	Kapsel	Buffert	Berg	Bränsle	Biosfär
I	Intakt	Intakt	Intakt	Nuklidlöslighet	(Östersjön)
II	0,1mm hål - vattenfylls efter 200 år	Intakt	Intakt	Nuklidlöslighet	Östersjön
III	0,1mm hål - omedelbart vattenfylld	Intakt	Intakt	Nuklidlöslighet	Östersjön
IV	2,5 mm hål - omedelbart vattenfylld	Intakt	Intakt	Nuklidlöslighet	Östersjön
V	Ingen kapsel	Intakt	Intakt	Nuklidlöslighet	Östersjön
VI	Ingen kapsel	Saknas	Intakt	Nuklidlöslighet	Östersjön
VII	Ingen kapsel	Saknas	Ingen sorbtion, ingen matrisdiffusion	Nuklidlöslighet	Östersjön
VIII	Ingen kapsel	Saknas	Saknas	Nuklidlöslighet	Östersjön

Använt bränsle består av ett hundratal olika radionuklider. Dessa har sinsemellan mycket olika egenskaper, framförallt skiljer sig halveringstiderna åt. De kemiska egenskaperna och därigenom nuklidernas transportegenskaper kan skilja med många storleksordningar. I praktiken är det bara en handfull nuklider som har betydelse för säkerheten och därför har bara åtta nuklider valts som illustration ut i beräkningsfallen. De är:

- Cs-137** Cesium-137 är den fissionsprodukt som, tillsammans med strontium-90 dominerar aktiviteten i förvaret vid förslutning. Den har en halveringstid på 30 år och finns i relativt stor mängd. Cesiumatomens storlek gör att den passar dåligt in i urandioxidstrukturen och en del cesium har därför transporterats till bränslets yta under reaktordriften. Detta gör att en viss mängd lättlösligt cesium finns tillgängligt om vatten skulle komma i kontakt med bränslekutsarna. Cesium är en alkalimetall, vilket gör att den har hög löslighet. Cesium sorberar på buffertmaterialet men dess kemiska egenskaper gör att den diffunderar relativt snabbt genom bufferten. Strontium-90 är en annan viktig radionuklid med egenskaper som påminner om cesium-137, men är inte lika rörlig och är därför inte med i den här illustrationen.
- Am-241** Americium-241 är den aktinid som dominerar alfastrålningen i förvaret under de första tusen åren (i början tillsammans med plutonium-238). Den förekommer inuti urandioxiden, men bildar egna svårlösliga fasta faser om den skulle frigöras. Americium sorberar starkt både i buffert och berg. Detta i kombination med den relativt korta halveringstiden (433 år) gör att americium-241, i praktiken, aldrig kommer att lämna de tekniska barriärerna.
- Pu-239** Plutonium-239 är en av de viktigaste radionukliderna på grund av det stora inventariet. Halveringstiden är 24 100 år vilket gör att det dominerar alfaaktiviteten under mycket lång tid och måste därför hållas isolerad mycket länge. Plutonium är mycket svårlöst, även om det frigörs ur urandioxiden.

Plutonium sorberer också mycket starkt på buffert och berg. Plutonium-240 och americium-243 liknar plutonium-239, men finns i mindre mängder och har kortare halveringstider.

- Np-237 Neptunium-237 finns i mindre mängd än plutonium, men har mycket lång halveringstid (2 miljoner år). Liksom americium och plutonium är neptunium mycket svårslösligt och sorberar starkt.
- I-129 Jod-129 är en mycket långlivad fissionsprodukt (17 miljoner år) den är mycket löslig och sorberar varken på buffert eller berg. Den passar också ganska dåligt i urandioxiden så en del jod finns på bränslet yta. Jodidjonens negativa laddning gör dock att den transporteras relativt långsamt genom bufferten. Klor-36 liknar jod-129.
- C-14 Kol-14 bildas inte som fissionsprodukt utan är en aktiveringsprodukt från föroreningar i bränslet och bränsleelementens metalldelar. En stor del av kolet sitter därför inte inuti urandioxiden, utan finns tillgängligt om bränslet kommer i kontakt med vatten. Det är svårt att förutsäga vilken kemiska form kol kommer att ha i förvarsmiljö, men det är troligt att den är löslig och sorberar dåligt.
- Tc-99 Teknetium-99 är en fissionsprodukt med 210 000 års halveringstid. I bränslet förekommer en stor del utav teknetiumet i mycket svårslösliga metalliska klumpar tillsammans med ädelmetaller. Teknetium sorberar både i buffert och berg, men inte så bra som t ex plutonium. Det finns en hel del fissionsprodukter som liknar teknetium, men dessa finns i betydligt mindre mängder eller har kortare halveringstider.
- Ra-226 Radium bildas som dotterprodukt till plutonium-238, uran-238 och uran-234 via torium-230. Vid deponeringstillfället finns det mycket lite radium, men med tiden så växer det in och når sitt maximum efter några hundrausen år. Radium är relativt svårslösligt, men den relativt korta halveringstiden (1 600 år) gör att aktiviteten i vattnet ändå kan bli ganska hög. Radium sorberar i buffert och på berg, men inte så starkt. Protaktinium-231 är en dotterprodukt till uran-235 som också växer in och når ett maxinventarie efter några hundrausen år. Protaktinium är liksom radium ganska svårslösligt och kan sorbera relativt starkt.

Egenskaperna hos de radionuklider som använts i beräkningarna finns sammanfattade i tabell 3.

Tabell 3: Radionuklidernas egenskaper

Egenskap/ Nuklid	Halveringstid	Förekomst i avfallet	Löslighet	Sorption	Andra liknande nuklider
Cs-137	30 år	Delvis på bränslets yta	Hög	Måttlig	Sr-90
Am-241	433 år	I urandioxiden	Låg	Stark	Pu-238, Cm-244 Pu-240, Am-243
Pu-239	24 100 år	I urandioxiden	Låg	Stark	
Np-237	2 140 000 år	I urandioxiden	Låg	Stark	
C-14	6540 år	Delvis i avfallets metalldelar	Hög	Svag	
I-129	16 700 000 år	Delvis på bränslets yta	Hög	Svag	Cl-36
Tc-99	210 000 år	Delvis i separata faser	Låg	Måttlig	Sn-126
Ra-226*	1 600 år	I urandioxiden	Ganska låg	Måttlig	Pa-231*

4 Jämförelse av barriärernas betydelse

Resultaten från beräkningarna (fall II - fall VII) finns redovisade som dos till människa i biosfären (Sv/år och kapsel) och frigörelse av radionuklider från bufferten (Bq/år) i figur 3 till 8. Dessa resultat kan jämföras med maxdoserna från fall I som finns i tabell 4. Resultaten diskuteras i omvänd ordning, dvs börjar med det mest ogynnsamma fallet för att sedan diskutera förtjänsten med varje ny barriär. En sammanfattning av ”förbättringen”, dvs sänkningen av maxdosen, för varje nuklid med adderade barriärer finns i tabell 1-5. Maxdosen för jod-129 i de olika beräkningsfallen visas i figur 3.

4.1 Fall I

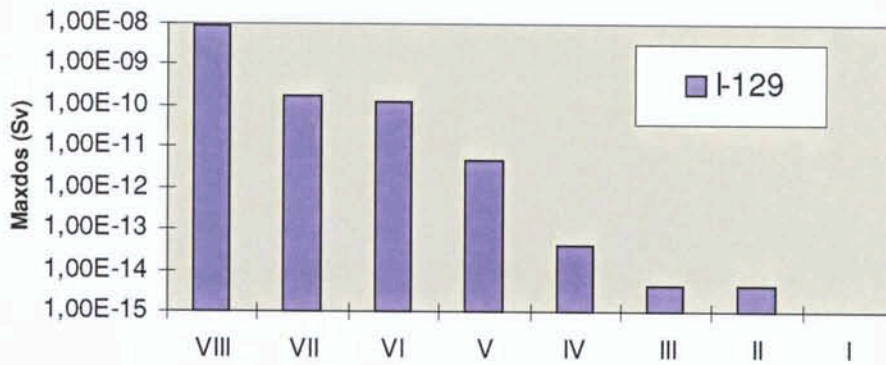
Tabell 4: Maxdosen från fall I räknat på innehållet i en kapsel

Nuklid	Maxdos (Sv/år)
Cs-137	0,002
Am-241	10^{-7}
Pu-239	10^{-9}
Np-237	10^{-12}
C-14	$2 \cdot 10^{-8}$
I-129	$8 \cdot 10^{-9}$
Tc-99	$5 \cdot 10^{-14}$
Ra-226	$4 \cdot 10^{-6}$

Fallet baseras på att allt bränsle lämnas i CLAB, som överges. Anläggningen fylls med inläckande grundvatten och radionuklider börjar omedelbart lakas från bränslet och börjar läcka ut till Östersjön. De enda processer som tillgodoräknas är utspädningen i bassängerna och de individuella radionuklidernas löslighet.

Resultaten i det här fallet är räknat på inventariet i en kapsel. Detta är givetvis inte realistiskt med de givna förutsättningarna. Hela inventariet i ”förvaret” kommer att läcka samtidigt, vilket gör att konsekvenserna av det här fallet är värre relativt de andra fallen än vad resultaten visar. Den totala dosen är proportionell mot antalet läckande kapslar, vilket innebär att den totala dosen från detta fall är ca 4 000 gånger högre än den som redovisas i tabellen.

Radionukliderna kommer omedelbart ut i biosfären. Cesium-137 har kort halveringstid (hög specifik aktivitet) och hög löslighet, vilket gör att dosen blir hög. Om strontium-90 hade varit med i denna beräkning hade resultatet liknat det för cesium-137. Americium-241 har också kort halveringstid, men dess låga löslighet begränsar dosen. De långlivade nukliderna med låg löslighet (neptunium-237 och teknetium-99) ger, till och med i detta extremt ogynnsamma fall, låga doser, även om man skulle räkna på hela förvaret. Maxdosen för radium-226 kommer efter ca 300 000 år.



Figur 3. Maxdosen för jod-129 i de olika beräkningsfallen

4.2 Fall II

Bränslet placerat i urberg på ett förvarsdjup av 500 m, men utan vare sig kapsel eller buffert. Vattentransporttiden till ytan antas vara 100 år och vattenflödet 1 000 gånger lägre än i fall I. Det antas att all transport av radionuklider sker i form av partiklar, dvs fragment frigörs från bränslet och dessa sorberar inte under transporten genom berget. Detta är också ett mycket ogynnsamt och orealistiskt fall. De nuklider som gav den högsta dosen i fall I, cesium-137 och radium-226 dominerar även här, men maxdoserna för dessa är väsentligt lägre (en faktor 1 400 respektive 257). Den kraftiga reduktionen beror på att en del utav inventariet av dessa nuklider hinner sönderfalla under transporten genom berget. Maxdosen för övriga nuklider sänks med ungefär en faktor 40, till stor del beroende på det låga vattenflödet på stora djup. Resultaten från beräkningen visar att ett totaldosen från ett förvar där varken kapsel, buffert eller sorption i berg tillgodoräknas blir låg, om man undantar cesium-137.

4.3 Fall III

Samma förutsättningar som i fall II, men transporten av radionuklider i berget sker i löst form. Detta gör att nukliderna kan sorbera på bergytorna och diffundera in i bergmatrisen, dvs berget har sin förväntade funktion. Ingen hänsyn tas till transportmotstånd i kapsel och buffert. Detta gör att nuklider som sorberas starkt får sänkta maxdoser. Detta är särskilt tydligt för cesium-137 och americium-241 med relativt kort halveringstid, där utsläppet till biosfären försvinner helt respektive maxdosen går ner med en faktor 45 miljoner jämfört med fall II. Maxdoserna för plutonium-239 och teknetium-99 minskas också kraftigt. Effekten på jod-129 är mycket liten efter som den sorberar svagt och har lång halveringstid. Dosen domineras av jod-129 och kol-14. Slutsatsen är att transportegenskaperna i berget har mycket stor betydelse för sorberande nuklider med korta till medellånga halveringstider.

4.4 Fall IV

Bränslet omges med en buffert av högkompakterad bentonit, men i övrigt är förutsättningarna identiska med fall III. Detta har stor betydelse för nuklider med relativt korta halveringstider och stark sorbtion på buffermaterialet. Utsläppet av plutonium-239 minskar med en faktor hundratusen och americium-241 med fyra miljoner. Långlivade och svagt sorberande ämnen påverkas i mycket ringa omfattning. Dosen domineras därför fortfarande av kol-14 och jod-129. Intressant att notera är dock att maxdosen för jod-129 minskar med en faktor 26. Detta beror på att jodidjonen är negativt laddad och därför har svårt att ta sig igenom leran som har negativ ytladdning.

4.5 Fall V

Bränslet innesluts i en kopparkapsel med en initial skada. Det är samma förutsättningar som referensfallet i säkerhetsanalysen SKB 91, dvs väl fungerande berg, intakt buffert och ett hål i kapseln med 2,5 mm diameter. Hålet i kapseln ger ett stort transportmotstånd, särskilt för de nuklider som har låg löslighet. Utläckaget för samtliga nuklider minskar med en faktor ca 100-1 000 jämfört med fall IV, utom för jod-129 där minskningen är en faktor 10.

4.6 Fall VI

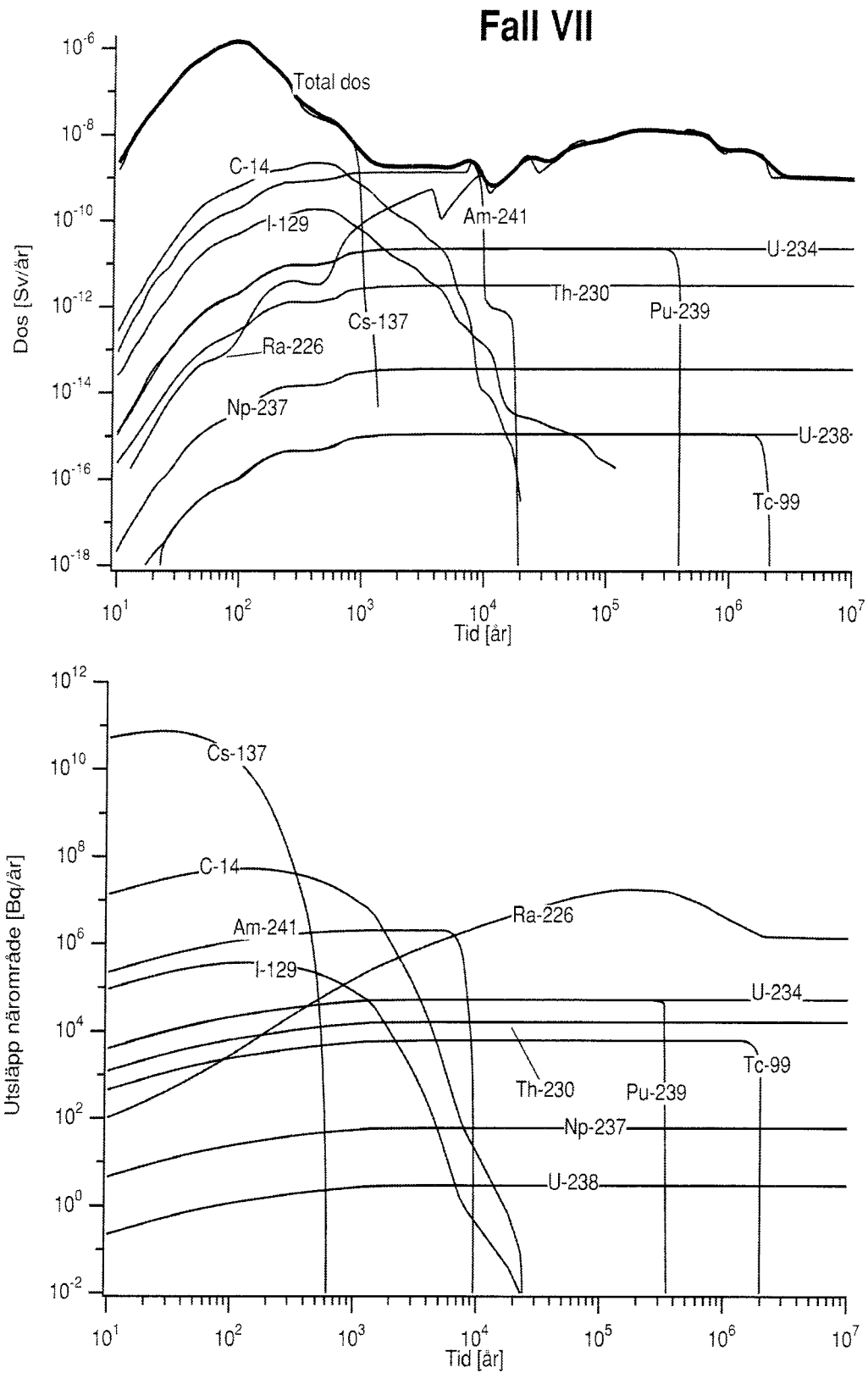
Samma förutsättningar som fall V, men hålets diameter minskas till 0,1 mm, vilket bedöms som en mer realistisk initial skada. Utläckaget av samtliga nuklider utom jod-129 minskas med en faktor runt 30.

4.7 Fall VII

Det tar 200 år att mätta bufferten och den defekta kapseln med vatten. I övrigt är förutsättningarna desamma som i fall VI. Denna "karenstid" har endast betydelse för kortlivade nuklider, typ cesium-137.

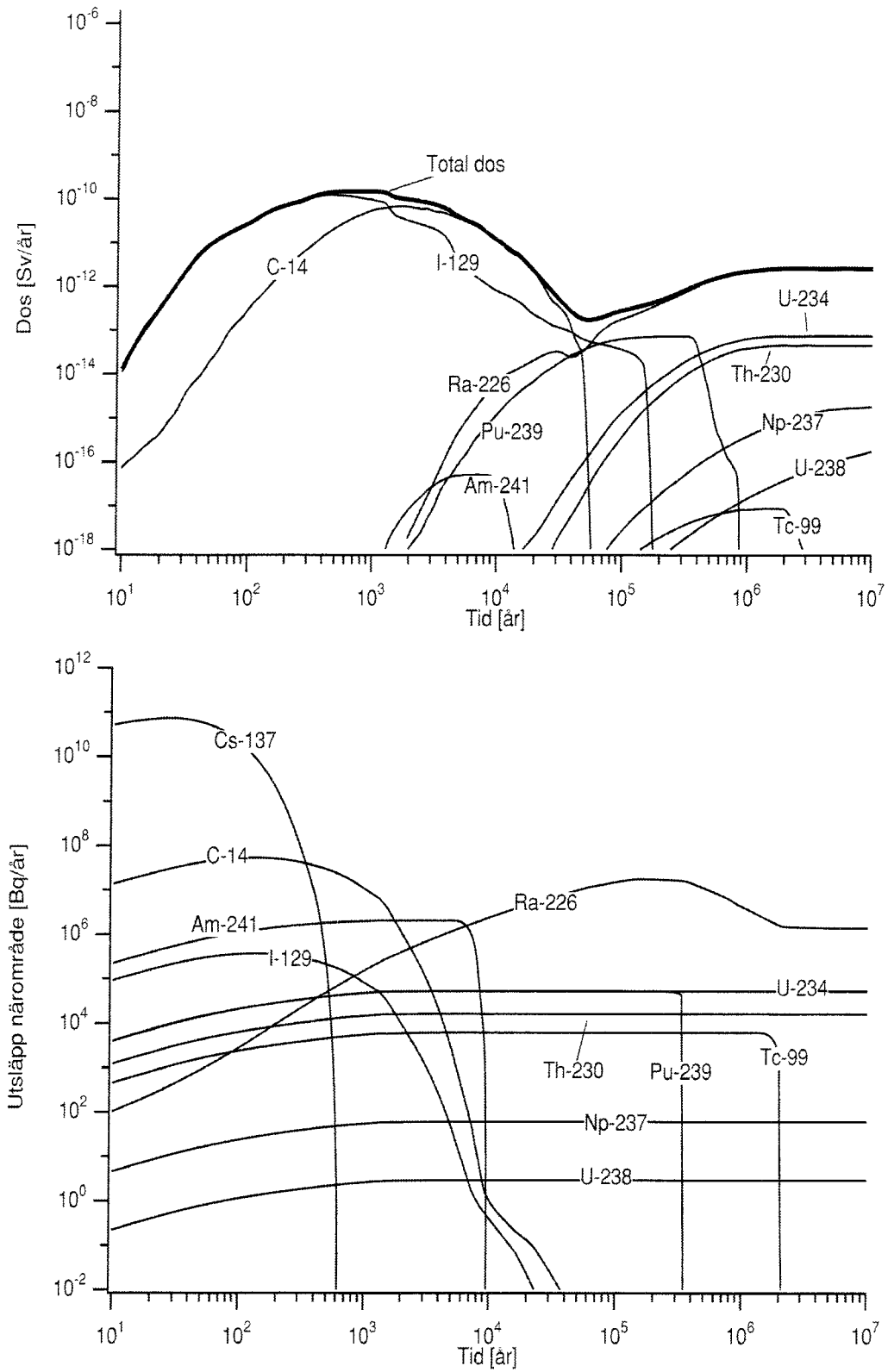
4.8 Fall VIII

Kapseln är tät. Detta innebär att inga radionuklider kan ta sig ut i omgivningen.



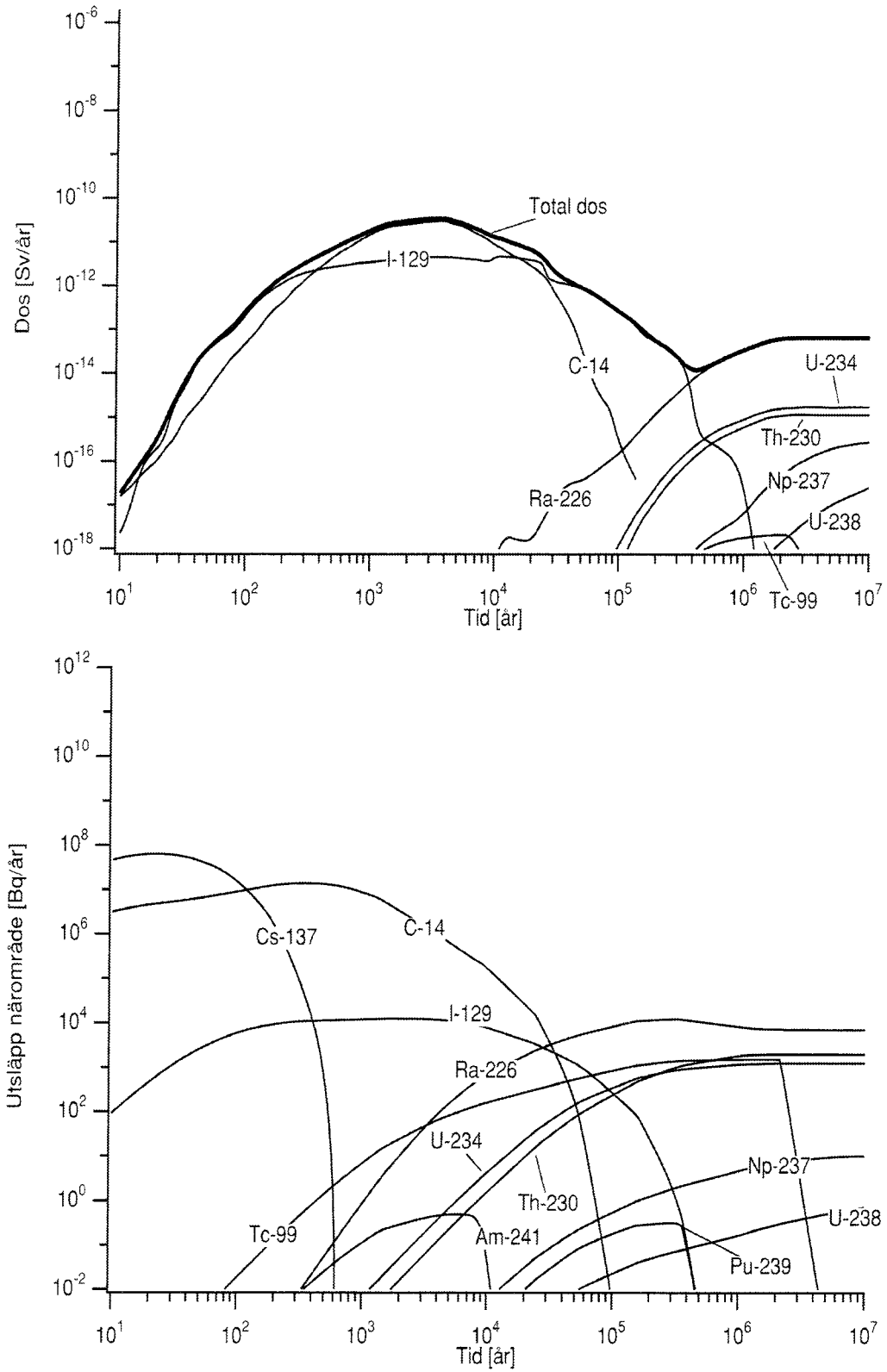
Figur 4. Utsläpp av radionuklider i fall VII

Fall VI



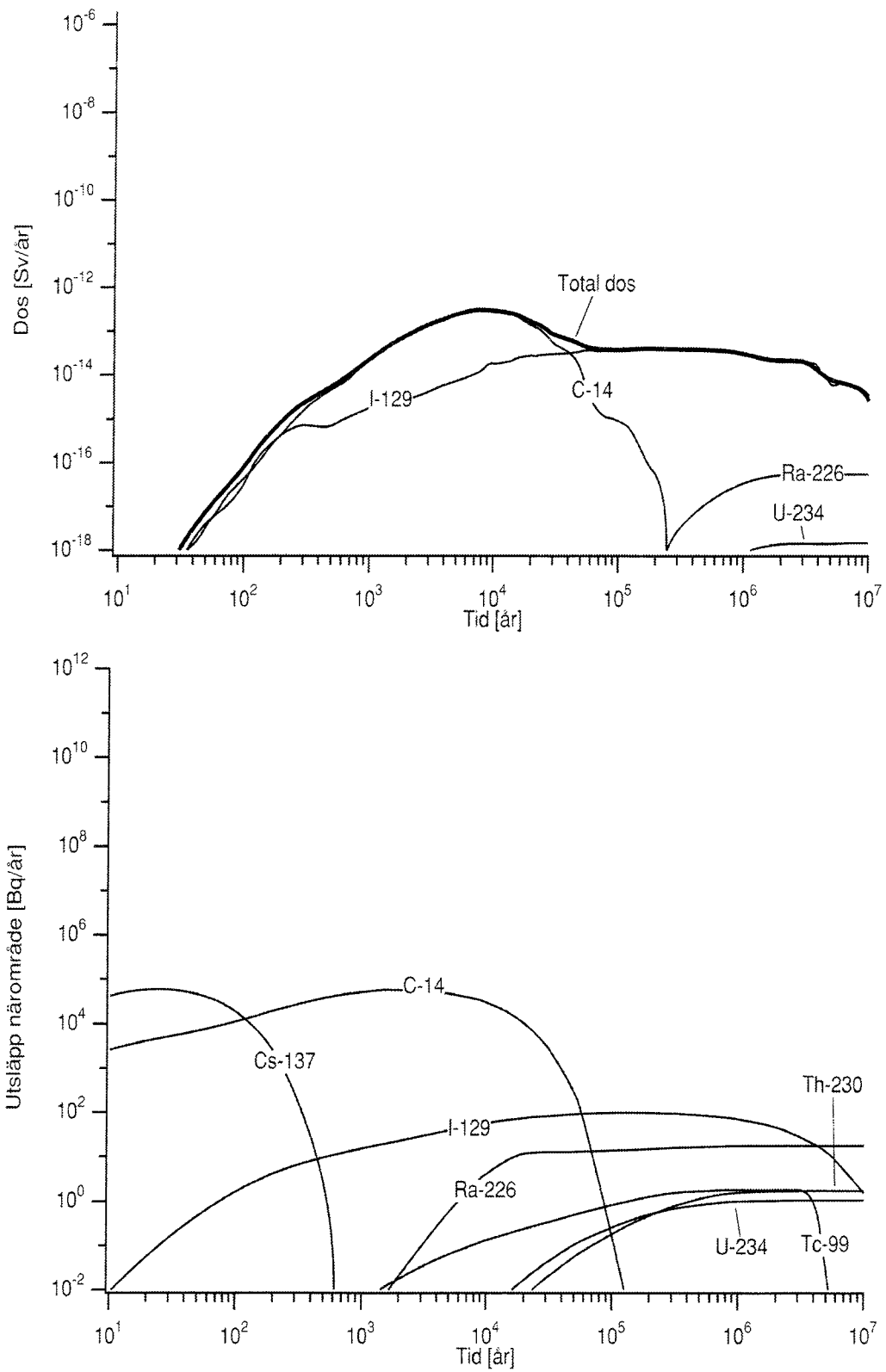
Figur 5. Utsläpp av radionuklider i fall VI

Fall V



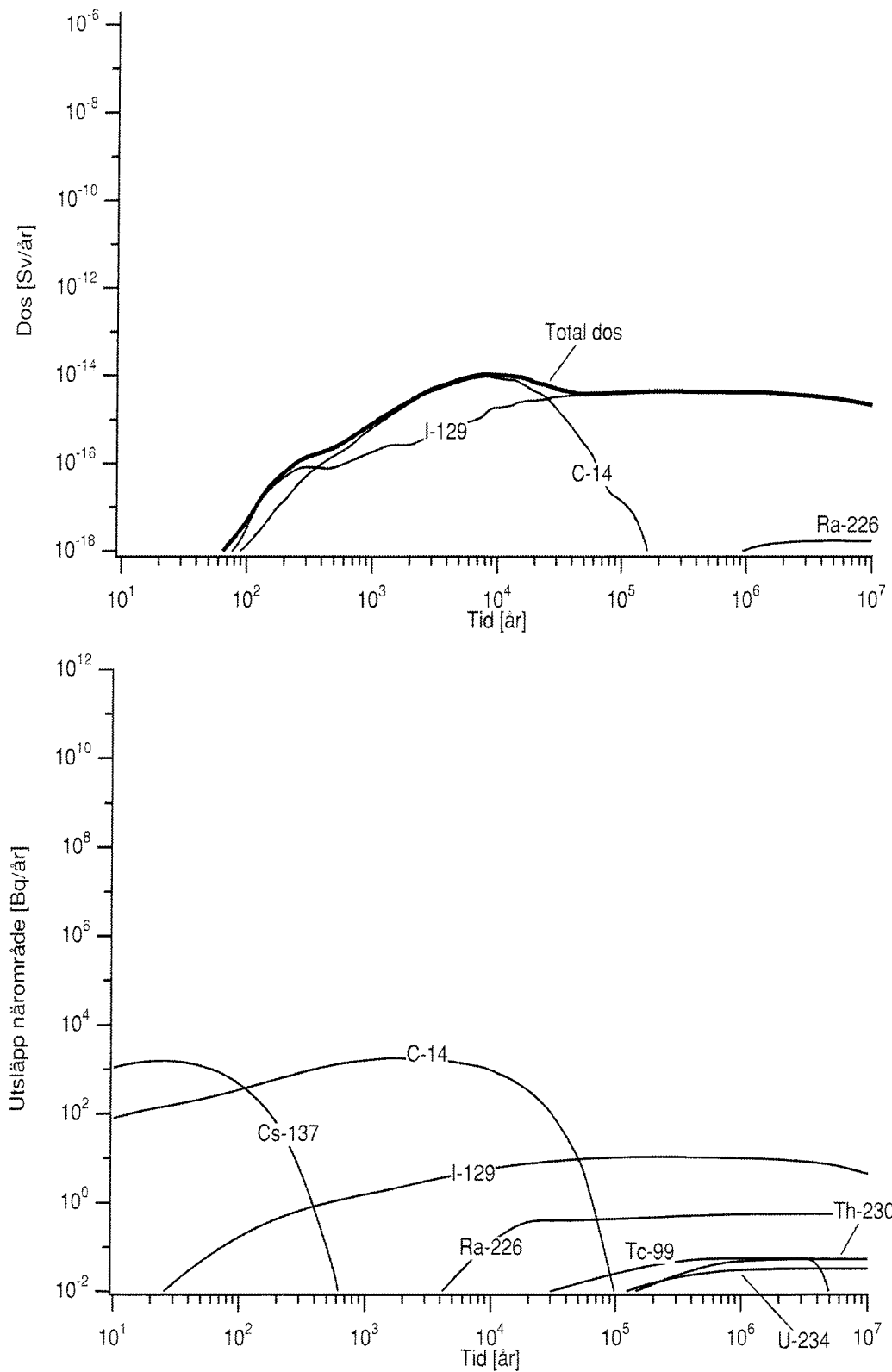
Figur 6. Utsläpp av radionuklider i fall V

Fall IV



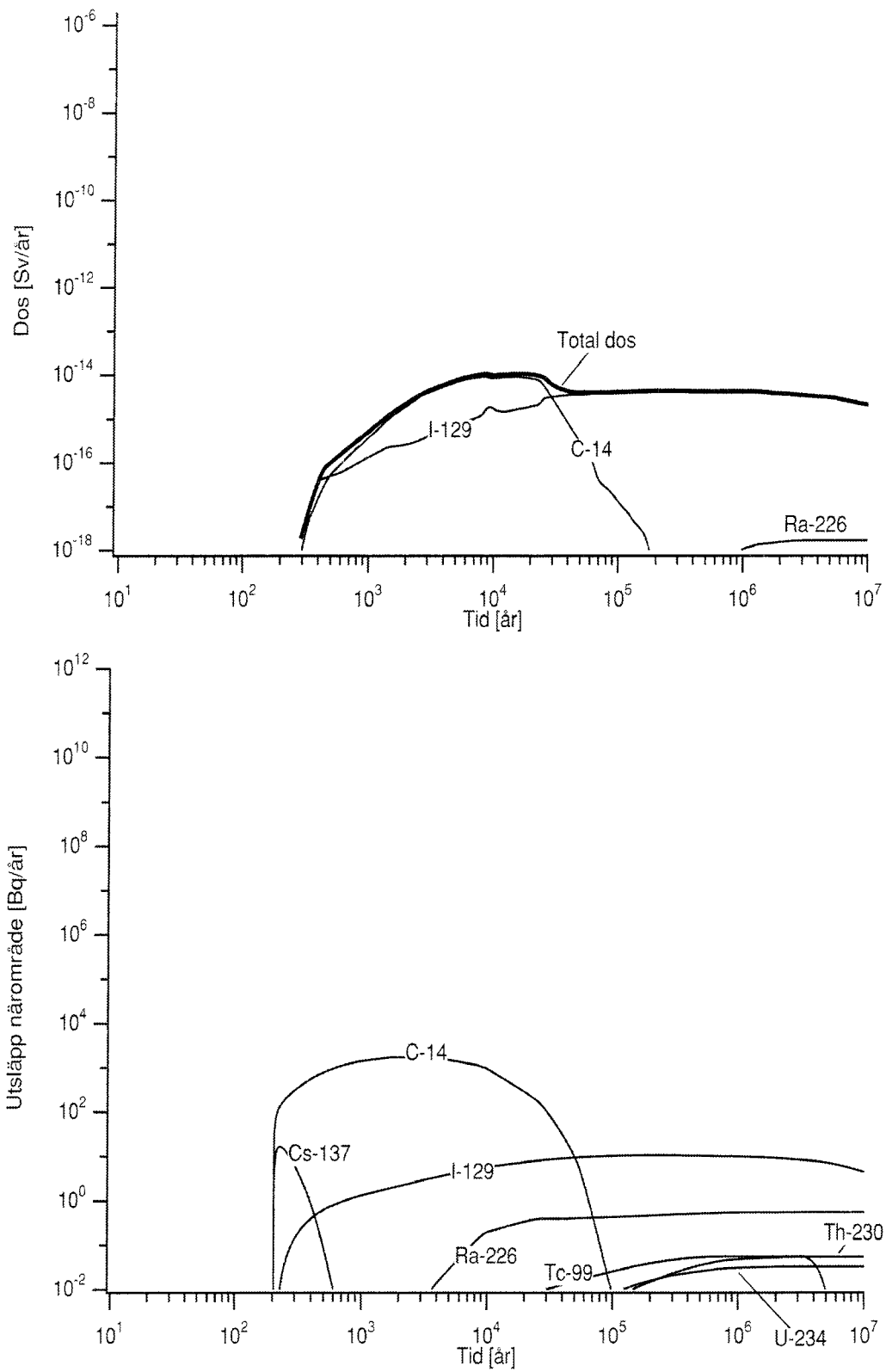
Figur 7. Utsläpp av radionuklider i fall VI

Fall III



Figur 8. Utsläpp av radionuklider i fall III

Fall II



Figur 9. Utsläpp av radionuklider i fall II

Tabell 5: Sänkningen av maxdosen för varje nuklid jämfört med föregående fall i de olika beräkningsfallen.

Adderad barriär / Nuklid	Berg utan sorbtion och matrisdiffusion	Berg med sorbtion och matrisdiffusion	Buffert	Kapsel med 2,5mm hål	Kapsel med 0,1 mm hål	Kapsel med 0,1 mm hål mättnad efter 200 år	Tät kapsel
Cs-137	1400	Total	-	-	-	-	-
Am-241	43	45 000 000	Total	-	-	-	-
Pu-239	41	315	121 000	Total	-	-	-
Np-237	40	20	6	Total	-	-	-
C-14	9,5	33	2,2	100	31	1,03	Total
I-129	47	1,5	26	10	9	1	Total
Tc-99	42	128	4	262	Total	-	-
Ra-226	257	4 375	36	1 267	32	1	Total

Olika barriärfunktioner är viktiga för olika nuklider, beroende på, framför allt, halveringstid, löslighet och sorptionsegenskaper. Kapseln har den generellt största betydelsen: ur en tät kapsel kommer inget ut, men även masstransportmotståndet hos en kapsel med en begränsad skada är mycket stort. Sorptionen i buffert och berg är betydelsefullt för relativt kortlivade nuklider, men har mindre betydelse för de mer långlivade.

5 Barriärernas förmåga att innesluta radionuklider

Förvarets viktigaste funktion är, som tidigare nämnts, att isolera avfallet och i andra hand att begränsa spridningen av radionuklider. För att illustrera hur förvaret begränsar spridningen används beräkningsfall V från det tidigare avsnittet.

Vi antar att en kapsel har ett hål med diametern 2,5 mm då den deponeras. Kapseln fylls omedelbart med vatten. Vattnet i kapseln antas hela tiden kunna lösa upp så mycket av de individuella radionukliderna att lösningen är mättad med radionukliden i fråga.

Nukliderna transporteras sedan genom hålet i kapselväggen, diffunderar genom bufferten fram till det strömmande grundvattnet vid deponeringshållets väggar. Det antas att det tar hundra år för grundvattnet att transporteras från förvaret, genom berget, till biosfären.

Beräkningen görs fram till en tidpunkt av 150 000 år efter förslutning av förvaret. Tabell 6 visar hur stor andel av *det totala inventariet* av varje radionuklid som når buffert, berg och biosfär. Figur 10 visar var de betraktade radionukliderna återfinns efter denna tidsperiod. Figuren visar, för varje barriär, hur stor andel av den mängd av nukliden *som kom in i barriären* som finns kvar (eller har sönderfallit) efter 150 000 år.

Trots mycket pessimistiska antaganden finns, i praktiken, hela inventariet av plutonium, americium, neptunium, teknetium och uran kvar i kapseln. Plutonium och americium har till största delen sönderfallit. Jod och kol har mycket hög löslighet och sorberar inte, men finns ändå, till största delen, kvar i kapseln på grund av det stora transportmotståndet mellan kapsel och buffert. Figuren visar också att, för ämnen som sorberar starkt på buffertmaterialet, kommer den största andelen av den lilla mängd som kommer till bufferten aldrig att komma ut till grundvattnet.

Tabell 6: Totala andelen av nukliderna som når de olika barriärerna och biosfären

Nuklid	Till Buffert %	Till Berg %	Till Biosfär %
Cs-137	0,02	0,000003	0
I-129	5	4,7	4
C-14	2,8	1,8	0,4
Tc-99	0,00006	0,000008	0
Pu-239	0,00003	0,00000000006	0
Am-241	0,000007	0,00000000001	0
Np-237	0,0002	0,0000002	0
U-238	0,000001	0,00000000007	0
Ra-226	3,8	0,002	0

Figur 10. Radionuklidernas förekomst efter 100 000 år.

