



Nuklidvandring från ett bergförvar för utbränt bränsle

Bertil Grundfelt

Kemakta konsult AB, Stockholm 1978-08-31



POSTADRESS: Kärnbränslesäkerhet, Fack. 102 40 Stockholm. Telefon 08-67 95 40

KEMAKTA Konsult AB Bertil Grundfelt

,

Errata i KBS Teknisk rapport 77. skall stå står sid rad komma 4 u kommer 6 t • ui L t · Ui 16 n 6 n_{max} << N n_{max}≤ N l n 10 visas 31 12 n har Radium-226 Radium-266 42 3 u $\alpha = 0$ $11 u \theta = 0$ 53 samma två två 55 9 u 14 n Utlakningstiden Om utlakningstiden 55 derivatan 7 u derivaten 60 dväljs lu väljs 67 löslighetsbegränsningar 8 u löslighetsberäk-71 ningar I tabell 3.2 har a₂-värdena för Ra och Th om-23 kastats. Skall vara: Ra $a_2 = 10$, Th $a_2 = 50$ I fig. 4-l står Pa-236. Skall vara: 37 Pa-231

NUKLIDVANDRING FRÅN ETT BERGFÖRVAR FÖR UTBRÄNT BRÄNSLE

Bertil Grundfelt Kemakta konsult AB, Stockholm 1978-08-31

Denna rapport utgör redovisning av ett arbete som utförts på uppdrag av KBS. Slutsatser och värderingar i rapporten är författarens och behöver inte nödvändigtvis sammanfalla med uppdragsgivarens.

I slutet av rapporten har bifogats en förteckning över av KBS hittills publicerade tekniska rapporter i denna serie. NUKLIDVANDRING FRÅN ETT BERGFÖRVAR FÖR UTBRÄNT BRÄNSLE

.

av

Bertil Grundfelt 1978-08-31

> KEMAKTA Konsult AB Linnégatan 52 114 54 STOCKHOLM Tel 08-67 99 45

,

SUMMARY

A study of the migration of radionuclides from a repository for spent, unprocessed fuel is presented. The study makes use of a unidimensional dispersion model developed at BNWL.

The results show that a number of nuclides decay significantly during the migration. The doses to future man was calculated in separate study performed at Studsvik. The dose calculations are based on the activity in-flows, presented in this report, and show that the predominant dose contribution comes from the nuclide radium-226. This nuclide is formed mainly by the decay of uranium-238 which means that the main part of the dose would arise even from a repository for non-irradiated fuel.

1.	Inledning ,	1
2.	Modellbeskrivning och applicerbarhet	3
2.1	Transportekvationen, en dimensionsbetraktelse	3
2.2	Grundvattnets transporttid och dispersionen	3
2.3	Jämförelse mellan dispersionen sådan den ter sig	
	i GETOUT och spårämnesförsök i sprucket berg	4
2.4	Fördröjningseffekterna	6
2.5	Utlakningsförloppet	8
2.6	Inverkan av en statistisk spridning av kapsel-	
	livslängden	10
2.6.1	Allmänt	10
2.6.2	Rektangelfördelad kapsellängd	10
2.6.3	Normalfördelad kapsellivslängd	13
2.6.4	Sammanfattning och slutsatser	16
3.	Fördröjningsfaktorer	18
3.1	Allmänt	18
3.2	Beräkning av fördröjningsfaktorerna	18
3.2.1	Allmänt	18
3.2.2	Omräkning från vikt- till ytbaserade jämvikts-	
	konstanter	19
3.2.3	Använda jämviktskonstanter och resulterande	
	fördröjningsfaktorer	20
3.2.4	Diskussion	25
3.3	Inverkan av indiffusion i berget	27
3.3.1	Kinetiken för sorptionen på berg	27
3.3.2	Fördröjningen vid indiffusion i berget från	
	sprickor	28
3.3.3	Nuklidtransporttider och strömning i berg utan	
	sprickor	31
4.	Tre beräkningsfall med olika fördröjningsfaktorer	34
5.	Parameterstudier av grundvattnets transporttid	40
6.	Inverkan av fördröjningsfaktorerna på radium-	
	226-inflödet	42

Sid

Innehållsförteckning forts

7.	Inverkan av utlakningstidens längd	45
8.	Inverkan av tidpunkten för kapselgenombrott	48
9.	Inverkan av avvikande betingelser	51
9.1	Allmänt	51
9.2	Inverkan av flerdimensionalitet	52
9.3	Inverkan av statistiskt fördelade sprickvidder	55
9.3.1	Allmänt	55
9.3.2	Effekten av tidigt inflöde	55
9.3.3	Sänkning av de maximala inflödena på grund av	
	toppbreddning	56.
9.4	Statistisk fördelning av kapslarnas livslängd	58
9.5	Buffertens inverkan på nuklidflödena	62
9.6	Nuklidtransport med organiska komplexbildare	63
10.	Modellering av lågsannolikhetshändelser	66
10.1	Initial kapselskada	66
10.2	Större bergrörelser	69
11.	Aktivitetsspridning från bränslets metalldelar	- 71
Referens	er	
Bilaga l	Källstyrka (Ci/ton U)i utbränt kärnbränsle	73

Sid

Bilaga 2 Beräkningslogik i sönderfallskedjorna

1. INLEDNING

I denna rapport presenteras beräkningar av transporten av radioaktiva nuklider från ett slutförvar för utbränt bränsle.

Transportberäkningarna har gjorts med en endimensionell modell som innefattar geokemisk fördröjning, kedjesönderfall och axiell dispersion. Modellen har utvecklats vid Batelle Pacific Northwest Laboratories, BNWL (4, 5) och finns i form av ett datorprogram, GETOUT. Programmet var ursprungligen skrivet i BASIC, men har inom ramen för KBS översatts till FOR-TRAN (6). Vid översättningen har logiken och input-/outputdelarna gjorts om medan beräkningssatserna i princip behållits oförändrade. Beräkningsresultatet erhålles i form av det årliga aktivitetsinflödet till en tänkt recipient som funktion av tiden efter uttaget ur reaktorn.

Programmets parametrar och indataorganisation beskrivs i (7). I kapitel 2 i denna rapport diskuteras modellens egenskaper och avvikelser mellan modellen och verkligheten. I bilaga 2 redovisas beräkningslogiken för aktinidernas sönderfallskedjor. Bilaga 2 överensstämmer med bilaga 3 i (7), men två tryckfel rörande sönderfallen av U-232 och Am-243 har korrigerats.

I den version av GETOUT som använts i denna studie har av numeriska skäl dispersionen behandlats ofullständigt. Sålunda ingår dispersionen bara för de nuklider som finns närvarande vid utlakningsstarten.

De dotternuklider i sönderfallskedjorna som bildas under själva transporten behandlas således som om plug-flow rådde. Denna approximation har ingen betydelse eftersom dispersionen är av underordnad betydelse vid de parametervärden som använts vid beräkningarna. Vid spårämnesförsök i sprucket berg (8) har emellertid betydande dispersion erhållits. Detta diskuteras i avsnitten 2.3 samt 9.2 och 9.3

Studien omfattar slutförvaring av en bränslemängd motsvarande

10.000 ton uran i det obestrålade bränslet. Denna bränslemängd är fördelad på 7.000 kapslar med 1,4 ton uran i varje (1). Kapslarna, som är av koppar och invändigt fyllda med bly, förvaras i borrhål i tunnlar på 500 meters djup. Kapslarna omges av ett lager tätkompakterad bentonit.

De använda källstyrkorna har beräknats (2) för en typisk tryckvattenreaktor med utbränningen 33 000 MWd per ton uran och effekttätheten 34,5 MW per ton uran. I ett särskilt kapitel diskuteras effekten av den inducerade aktiviteten i bränslets metalldelar. Källstyrkorna har här hämtats ur (3). I bilaga 1 redovisas de använda källstyrkorna för bränslet.

I kapitel 2 diskuteras modellens applicerbarhet och användning utgående från transportekvationen. De kemiskt betingade fördröjningsfaktorerna redovisas och diskuteras i kapitel 3. Kapitlen 4-8 upptar resultaten av ett antal beräkningsfall och parameterstudier. Avvikelserna mellan beräkningsförutsättningarna och rimliga scenarios diskuteras, i görligaste mån kvantitativt, i kapitel 9. Kapitel 10 visar konsekvenserna av händelser med låg sannolikhet och i kapitel 11 diskuteras aktivitetsspridningen från metalldelarna.

2. MODELLBESKRIVNING OCH APPLICERBARHET

2.1 Transportekvationen, en dimensionsbetraktelse

I GETOUT ingår analytiska lösningar av ett system av partiella differentialekvationer. För den i:te nukliden i en sönderfallskedja lyder den dimensionslösa differentialekvationen:

$$K_{i} \frac{\partial N_{i}}{\partial \Theta} + \frac{\partial N_{i}}{\partial \eta} = \frac{1}{Pe} \cdot \frac{\partial^{2} N_{i}}{\partial \eta^{2}} - K_{i} \cdot R_{i} \cdot N_{i} + K_{i-1} \cdot R_{i-1} \cdot N_{i-1}$$
(2-1)

där:

$$\begin{aligned} \Theta &= \text{dimensionslös tid} = \frac{t \cdot u}{L} \\ &t = tid (s) \\ &u = \text{grundvattenhastighet (m/s)} \\ &L = transportsträcka (m) \\ \eta &= \text{dimensionslös längd} = \frac{Z}{L} \\ &Z = längdkoordinat (m) \\ \text{K}_{i} &= \text{fördröjningsfaktor (grundvattenhastighet/ nuklidhastighet)} \\ \text{Pe} &= \text{Peclet's tal} = \frac{u \cdot L}{D} \\ &D = \text{dispersionskoefficient (m}^{2}/\text{s}) \\ \text{R}_{i} &= \text{sönderfallstal} = \frac{\lambda_{i} \cdot L}{u} \\ &\lambda_{i} &= \text{sönderfallskonstant (s}^{-1}) \\ \text{N}_{i} &= \text{flödet av nuklid igenom en tvärsnittsyta vid } \eta \\ &(atomer/s). \end{aligned}$$

Genom att differentialekvationen har gjorts dimensionslös har antalet oberoende variabler reducerats från sex (t, u, Z, K_i , D, λ_i) till fem (θ , η , K_i , Pe, R_i).

2.2 Grundvattnets transporttid och dispersionen

Av de fem dimensionslösa parametrarna i transportekvationen är det bara en, nämligen Peclet's tal, som är beroende av de faktiska värdena på grundvattenhastigheten och transportsträckan. I alla de övriga ingår kvoten mellan dessa storheter, dvs grundvattnets transporttid. I de beräkningar som presenteras längre fram i denna rapport anges grundvattnets transporttid som parameter istället för grundvattenhastighet och transportsträcka. En ökning av grundvattnets transporttid kan i princip åstadkommas på två sätt, nämligen genom minskning av hastigheten eller ökning av transportsträckan. I det första fallet minskar Peclet's tal, dvs dispersionens inverkan ökar. I det senare fallet minskar dispersionen, eftersom Peclet's tal ökar då transportsträckan

I denna studie har grundvattnets transporttid varierats genom att transportsträckan varierats. Denna betraktelse är konservativ, eftersom en ökad dispersion i allmänhet ger en sänkning av det maximala inflödet av en nuklid. För vissa nuklider, som avklingar signifikant under transporten, kan det maximala inflödet öka vid kraftig dispersion på grund av att en fraktion av nukliden vandrar snabbare än genomsnittet.

2.3 Jämförelse mellan dispersionen sådan den ter sigi GETOUT och spårämnesförsök i sprucket berg

I Studsvik har spårämnesförsök i ett sprickigt berg på 70 m djup gett en kraftig dispersion redan vid korta transporttider (8).

Neretnieks (9) har visat att data från spårämnesförsöken stämmer väl med en modell med strömningskanaler av olika vidd. I denna modell blir den relativa toppbreddningen konstant oberoende av transportsträckan. Dvs om man injicerar ett spårämne i ett borrhål och känner sprickviddsfördelningen, kan man alltid förutsäga att en viss fraktion av det injicerade spårämnet kommer fram till mätpunkten efter en given andel av medeltransporttiden oavsett avståndet mellan injiceringspunkten och mätpunkten.

Med den klassiska dispersionsmodellen som är inbyggd i GETOUT kommer den fraktion av spårämnet som når mätpunkten vid den givna andelen av medeltransporttiden att minska när avståndet till mätpunkten ökar.



Figur 2-1: Relativ koncentration vid slutet av transportsträckan som funktion av dimensionslös nuklidtid. A = koncentrationsprofil enligt spårämnesförsök i Studsvik, B = GETOUT:s profil med Pe = 2.25, C = GETOUT:s profil med Pe = 0.27, D = koncentrationsprofil vid beräkningarna (stort Pe).

Skillnaden mellan GETOUT och Neretnieks modell demonstreras i figur 2-1 för ett varaktigt utsläpp. Kurva A visar en uppehållstidsfördelning som motsvarar spårämnesförsöken i Studsvik. De båda punktstreckade kurvorna, B och C, visar GETOUT:s uppehållstidsfördelning vid två värden på Peclet's tal. I kurva B är Peclet's tal 2,25 och i kurva C 0,27. Diagrammet gäller för en nuklid vars fördröjningsfaktor är mycket större än 1.

Av figuren framgår att om man "pressar" den klassiska dispersionsmodellen till att överensstämma med sprickviddsmodellen vid korta tider (sker genom att välja ett lågt värde på Peclet´s tal), blir koncentrationsförloppet flackare än för sprickviddsmodellen vid längre tider, varigenom man riskerar att underskatta den maximala inflödesnivån. Vid de beräkningar med GETOUT som presenteras i denna rapport har Peclet´s tal satts till mellan 10⁵ och 10⁶. Koncentrationsförloppet vid dessa höga värden på Peclet's tal visas i kurva D i figur 2-l. Vissa nuklider kan på grund av att de avklingar signifikant med en uppehållstidsfördelning enligt kurva D, kommer att få ett högre inflöde till recipienten om man tar hänsyn till sprickviddsmodellens uppehållstidsfördelning. Denna situation analyseras i kapitel 9. För de övriga nukliderna kommer kurva D att vara den mest pessimistiska uppehållstidsfördelningen, eftersom den ger den minsta toppbreddningen och därmed ingen eller ytterst ringa sänkning av det maximala inflödet till recipientområdet.

2.4 Fördröjningseffekterna

Transportekvationen kan förenklas genom att man inför begreppet nuklidhastighet.

$$\frac{\partial N_{i}}{\partial \Theta_{i}} + \frac{\partial N_{i}}{\partial \eta} = \frac{1}{Pe} \frac{\partial^{2} N_{i}}{\partial \eta^{2}} - \Psi_{i} \cdot N_{i} + \Psi_{i-1} \cdot N_{i-1}$$
(2-2)

där:

 $\theta_{i} = \theta/K_{i} = \text{dimensionslös nuklid tid} = \frac{t \cdot U_{i}}{L}$ $u_{i} = u/K_{i} = \text{nuklidhastighet}$ $\Psi_{i} = K_{i} \cdot R_{i} = \text{sönderfallstal i nuklidtid}$

Denna matematiska övning har reducerat antalet oberoende parametrar från fem i ekvation 2-l till fyra i ekvation 2-2 (Θ_i , η , Pe, Ψ_i). Den enda parametern som är beroende av värdena på grundvattenhastighet och transportsträcka är som tidigare Peclet's tal. Om dispersionstermen försummas blir lösningarna till ekvationen oberoende av grundvattenhastigheten, transportsträckan och fördröjningsfaktorerna. De väsentliga parametrarna blir nuklidernas transporttider och sönderfallskonstanter.

Slutsatsen att nuklidernas transporttider är den väsentliga parametern är viktig, eftersom den minskar känsligheten för de antaganden om sprickgeometrier som måste göras vid beräkningen av fördröjningsfaktorerna.

I (7) redovisas följande samband för fördröjningsfaktorerna i sprickigt berg:

$$K_{i} = 1 + K_{a} \cdot a_{1}$$
(2-3)

$$K_{a} = \text{ytbaserad j\"amviktskonstant (m)} \\ a_{1} = \text{bergsprickornas specifika yta (} \frac{m^{2}\text{bergyta}}{m^{3}\text{sprickvolym}})$$

$$a_{1} = \frac{2}{0,01 \cdot (S \cdot K_{p})1/3}$$

$$S = \text{genomsnittligt sprickavst\"and (m)}$$

$$K_{p} = \text{permeabilitet (m/s)}$$

Ett alternativt sätt att skriva detta är:

$$K_{i} = 1 + k_{a} \cdot a \frac{(1-\varepsilon)}{\varepsilon}$$
(2-4)

a = bergets specifika yta ($\frac{m 2 - 2 + 2 - 2}{m^3 berg(inkl sprickor)}$) ε = bergets porositet

Vattenhastigheten i berget kan beräknas ur:

$$u = \frac{K_{p} \cdot i}{\varepsilon}$$
 (2-5)

 $K_{p} = \text{permeabiliteten (m/s)}$ i = hydrostatisk gradient (m/m) $\varepsilon = \text{porositeten (m^{3}/m^{3})}$

Ur (2-5) och (2-4) fås:

$$u_{i} = u/K_{i} = \frac{K_{p} \cdot i}{\varepsilon} \cdot \frac{\varepsilon}{\varepsilon + K_{a} \cdot a \cdot (1 - \varepsilon)}$$

I berget gäller $\varepsilon << 1$ och för de flesta av de intressanta nukliderna gäller K_a·a >> ε vilket ger:

$$u_{i} \approx \frac{K_{p} \cdot i}{K_{a} \cdot a}$$
(2-6)

Nuklidhastigheten är således oberoende porositeten. Den enda geometriska parametern som karaktäriserar berget i (2-6) är a (m² sprickyta per m³ bergvolym). För parallella sprickor med plana och parallella sprickväggar kan a beräknas ur:

$$a = \frac{2}{s} \tag{2-7}$$

Detta är den sprickmodell som ger det minsta värdet på a.

Vid beräkningarna i denna studie har samma samband för grundvattenhastigheten och fördröjningsfaktorerna som redovisats i (7) använts, dvs:

$$u = 2.842 \cdot 10^9 \cdot (s \cdot K_p)^{2/3} \cdot i (m/ar)$$
 (2-8)

$$K_{i} = 1 + \frac{2 \cdot K_{a}}{1,05 \cdot 10^{2} (s \cdot K_{p})^{1/3}}$$
(2-9)

Ur dessa ekvationer fås om ettan i 2-9 försummas:

$$u_{i} = \frac{u}{K_{i}} \approx \frac{1.5 \cdot 10^{7} \cdot K_{p} \cdot s \cdot i}{K_{a}}$$
 (m/år) (2-10)

Ekvation (2-10) är analog med ekvation (2-6).

2.5 Utlakningsförloppet

Randvillkoren för lösningarna av transportekvationen (4) innebär att kapseln går sönder vid en definierad tidpunkt, kallad tidpunkten för kapselgenombrott T_o , och att aktivitetsinnehållet i bränslet därefter lakas ut med konstant hastighet under tiden T, kallad utlakningstiden.

I (7) diskuteras skillnaden mellan GETOUT:s utlakningsmodell och utlakningen från en cylindrisk kropp när upplösningskinetiken är hastighetsbestämmande. Detta gäller möjligen om man har fri tillgång på vatten för utlakningen. I det förslag till utformning av ett slutförvar för direktförvaring av utbränt bränsle som utformats av KBS (1) omges kapslarna av ett lager tätkompakterad bentonit med mycket

låg vattengenomsläpplighet (permeabilitet < 10⁻¹³ m/s), vilket innebär att utlakningshastigheten begränsas av nuklidernas löslighet. Utlakningshastigheten kommer i detta fall att vara konstant för nuklider med begränsad löslighet sedan stationära förhållanden byggts upp (10). Den stationära perioden överensstämmer således med GETOUT:s behandling av utlakningsförloppet.

För lättlösliga nuklider stegras koncentrationen på utsidan av bentonitlagret först till ett maxvärde för att sedan sjunka exponentiellt.

Storleken på utlakningstiden beror av materietransportmotståndet vid diffusion genom bentonitlagret och ut i det förbiströmmande vattnet och har beräknats av Neretnieks (10) för ett antal fall. Med pessimistiska antaganden beträffande uranlöslighet, vattenflöde, sprickvidd, sprickavstånd och porositet i det omgivande berget får Neretnieks en utlakningstid på 500 000 år för en kapsel av den typ som KBS föreslagit.

Med mer troliga förutsättningar för vattenflöde, sprickvidd, sprickavstånd och porositet men med samma uranlöslighet blir utlakningstiden längre. I ett "centralfall" är den 1,8 miljoner år.

De ovan angivna utlakningstiderna förutsätter att allt bränsle i kapseln är helt tillgängligt för utlakning vid tidpunkten för kapselgenombrott. I verkligheten kommer kapseln att vara endast delvis bortkorroderad, varigenom man får ett motstånd mot uttransporten ur kapseln som ytterligare sänker utlakningshastigheten (11).

2.6 Inverkan av en statistisk spridning av kapsellivslängden

2.6.1 Allmänt

Vid beräkningarna med GETOUT förutsättes att alla kapslar går sönder samtidigt och momentant vid tidpunkten för kapselgenombrott. En troligare situation är att kapslarnas livslängd är statistiskt fördelad kring något medelvärde.

Korrosionsinstitutets expertgrupp anser det vara realistiskt att räkna med att kopparkapslarnas livslängd i den aktuella miljön är "100 000-tals år" (12). I de flesta beräkningarna i denna rapport har tidpunkten för kapselgenombrott satts till 100 000 år. I detta avsnitt jämförs detta beräkningsscenario med två statistiska fördelningar för kapsellivslängden, nämligen en rektangelfördelning och en normalfördelning.

2.6.2 Rektangelfördelad kapsellivslängd

Rektangelfördelningen är den enklaste ansatsen för livslängdsfördelningen och innebär att kapslarna antages gå sönder med jämn frekvens under en definierad tidsperiod, dvs mellan tidpunkten för det första kapselgenombrottet, T_a, och tidpunkten för det sista kapselgenombrottet, T_b.

Kapselgenombrottsfrekvensen, f, kan för en rektangelfördelning beräknas ur:

$$f = \frac{N}{T_b - T_a}$$
 (kapslar per år) (2-11)

N = det totala antalet kapslar i förvaret

Det maximala antalet kapslar som lakas samtidigt fås ur:

$$n_{max} = f \cdot T$$
 (2-12a)

n_{max} << N

(2-12b)

där:

T = utlakningstiden (år)

Den maximala utlakningshastigheten, R_{max} (ton uran per år) ges slutligen av:

$$R_{\max} = \frac{m \cdot n_{\max}}{T} \quad (\text{ton uran/ar}) \tag{2-13}$$

där:

m = mängden uran per kapsel

Dvs:

$$R_{\max} = \frac{m \cdot N}{T_b - T_a}$$
(2-14a)

$$R_{\max} \leq m \cdot N/T$$
 (2-14b)

Med m·N = 10 000 ton och T = 500 000 år fås $R_{max} = 0,02$ ton uran per år förutsatt att $T_b - T_a \leq T$. Om spridningen av kapselgenombrotten är större än utlakningstiden blir den maximala utlakningshastigheten mindre än 0,02 ton U/år.

Utlakningstiden 500 000 år har använts för utlakningen av de svårlösliga nukliderna som är bundna till bränslets grundmassa. En fraktion av vissa nuklider som är flyktiga eller som bildas genom sönderfall av flyktiga nuklider har under bränslets bestrålning i reaktorn ansamlats i kutsarnas yttre delar och på insidan av zirkalloy-kapslingen. Detta gäller främst jod och cesium. För dessa ämnen går utlakningen betydligt snabbare än för bränslets grundmassa. Neretnieks beräkningar (11) visar att utlakningshastigheten minskar exponentiellt med tiden och har en halveringstid på mellan 500 och 30 000 år i de fall som belysts i (11). För centralfallet anges halveringstiden 2 000 år.

Om man antar att alla lättlösliga ämnen i bränslet finns lätt tillgängligt för omedelbar upplösning vid kapselgenombrottet samt att kapselgenombrotten är jämnt fördelade i tiden mellan 100 000 och 500 000 år efter deponeringen blir R_{max} enligt ekvation 2-14a 0,025 ton uran per år, dvs 25 % högre än den utlakningshastighet som ovan beräknats för grundmassan. Nivån på utlakningshastigheten för den lättlösliga aktiviteten är oberoende av utlakningstiden så länge tidsintervallet mellan första och sista kapselgenombrott är större än utlakningstiden. Den beräknade utlakningshastigheten förutsätter att all lättlöslig aktivitet är åtkomlig för grundvattnet. I bestrålat bränsle är bara enstaka procent av inventariet åtkomligt (13), vilket innebär att den totala utlakningshastigheten är mycket måttligt högre för de lättlösliga nukliderna än för bränslets grundmassa förutsatt att kapsellivslängden är rektangelfördelad.



Figur 2-2: Utlakningshastigheten som funktion av tiden. A = beräkningsscenario med momentant genombrott på samtliga kapslar 100 000 år efter uttag ur reaktorn, B = utlakningshastigheten för bränslets grundmassa vid jämnt fördelad kapsellivslängd mellan 100 000 och 500 000 år, C = utlakningshastigheten för lättlösliga nuklider med 10 % lättåtkomlig fraktion och kapsellivslängdsfördelning enligt B.

UTLAKNINGSHASTIGHET (TON U / ÅR)

I figur 2-2 visas upplösningshastigheten för samtidigt genombrott på alla kapslar vid 100 000 år efter deponeringen och utlakningstiden 500 000 år (kurva A), upplösningshastigheten för bränslets grundmassa vid jämnt fördelade kapselgenombrott mellan 100 000 och 500 000 år och utlakningstiden 500 000 år (kurva B) samt utlakningshastigheten för lättlösliga nuklider med jämnt fördelad kapsellivslängd mellan 100 000 och 500 000 år med utlakningstiden 1 000 år för den lätt åtkomliga fraktionen (10 %) och 500 000 år för den fraktion som är kvar i bränslets grundmassa (kurva C).

Den antagna fraktionen lättillgänglig aktivitet motsvarar jod i de bränslestavar som haft högst temperatur i reaktorn. Vid en lägre fraktion lättillgänglig aktivitet kommer kurva C att närmare ansluta till kurva B.

2.6.3 Normalfördelad kapsellivslängd

Vid analysen av fallet normalfördelad kapsellivslängd har medelvärdet för livslängden antagits vara densamma som för den ovan betraktade rektangelfördelningen, dvs 300 000 år.

I figur 2-3 visas en jämförelse av den totala utlakningshastigheten för bränslets grundmassa vid samtidigt genombrott på samtliga kapslar 100 000 år efter deponeringen (kurva A), rektangelfördelad kapsellivslängd med det första genombrottet 100 000 år efter deponeringen och det sista genombrottet 500 000 år efter deponeringen (kurva B) samt normalfördelad kapsellivslängd med sannolikheten 0,7 % för kapselgenombrott före 100 000 år efter deponeringen (i genomsnitt antages 50 kapslar ha penetrerats före 100 000 år). I samtliga fall i figuren har utlakningstiden satts till 500 000 år.

Som framgår av figur 2-3 sker ingen förändring av den maximala utlakningshastigheten för bränslets grundmassa vid normalfördelad kapsellivslängd. Frekvensen för kapselgenombrott är emellertid högre omkring medelvärdet för normalfördelningen än för rektangelfördelningen, vilket innebär att utlakningen av lättillgänglig aktivitet är högre. UTLAKNINGSHASTIGHET (TON U/ÅR)



-4: Jämförelse av utlakningshastigheterna för lättlosliga och lättillgängliga nuklider vid rektangelfördelad (kurva A) och normalfördelad (kurva B) kapsellivslängd. Den lättillgängliga fraktionen av lättlösliga nuklider antages vara 100 %. I kurva B är sannolikheten för kapselgenombrott före 100 000 år 0.7 %.



Figur 2-6: Utlakningshastigheten för lättlösliga nuklider som funktion av tiden vid två värden på den lättillgängliga fraktionen; A = 10 %, B = 1 %. Sannolikheten för kapselgenombrott före 100 000 år är 0.015 %.

7.105

9.105

1.106

TID EFTER DEPONERING (ÅR)

8.105

6·10⁵

1·10⁵

2.105

3.105

4.105

5.105

I figur 2-4 visas den totala utlakningshastigheten för lättlösliga nuklider med rektangelfördelad kapsellivslängd (kurva A) samt för normalfördelad kapsellivslängd med i genomsnitt 50 kapslar punkterade vid 100 000 år (kurva B). I figur 2-4 har all lättlöslig aktivitet antagits vara lätttillgänglig för utlakning. Under de för figuren givna förutsättningarna blir den maximala utlakningshastigheten dubbelt så stor vid normalfördelad kapsellivslängd som vid rektangelfördelad livslängd. Denna faktor varierar givetvis med standardavvikelsen för normalfördelningen.

I figur 2-5 visas förhållandet mellan den maximala utlakningshastigheten för lättlöslig aktivitet och den maximala utlakningshastigheten för bränslets grundmassa som funktion av sannolikheten för kapselgenombrott före 100 000 år. All lättlöslig aktivitet har antagits vara lättillgänglig. Det förhållande som anges i figuren är således pessimistiskt.

I figur 2-6 visas utlakningshastigheten som funktion av tiden efter deponering för lättlösliga nuklider för två olika värden på den lättillgängliga fraktionen, nämligen 10 % (kurva A) och 1 % (kurva B). Sannolikheten för kapselgenombrott före 100 000 år har satts till 0,015 %, vilket innebär att i genomsnitt 1 kapsel går sönder före 100 000 år. Kurva B ansluter nära till kurva C i figur 2-3 som visar utlakningshastigheten för bränslets grundmassa vid en vidare normalfördelning. Den snäva normalfördelningen i figur 2-6 är ett ogynnsammare fall än den vidare fördelningen i figur 2-3.

2.6.4 Sammanfattning och slutsatser

Inverkan av kapsellivslängdsfördelningen på utlakningshastigheten har givits en förhållandevis ingående behandling, främst på grund av den uppdelning av nukliderna i bränslet i en "lättlöslig" och en "svårlöslig" fraktion som är nödvändig på grund av att fraktionerna har vitt skilda utlakningshastigheter.

Ovan har visats att man måste göra ganska extrema antaganden

beträffande de lättlösliga nuklidernas tillgänglighet för att dessas utlakningshastigheter skall bli signifikant högre än utlakningshastigheten för nukliderna i bränslets grundmassa. Även om all lättlöslig aktivitet, framför allt cesium och jod, vore tillgänglig för omedelbar upplösning vid vatteninträngning i kapseln och kapsellivslängden är fördelad efter en förhållandevis snäv normalfördelning, blir den maximala utlakningshastigheten för lättlösliga nuklider bara ca 5 ggr högre än utlakningshastigheten för grundmassan. Om man antar att bara en viss andel av de lättlösliga nukliderna är tillgängliga för omedelbar upplösning och att resten löser upp sig varefter de göres tillgängliga genom upplösningen av grundmassan, kan den maximala utlakningshastigheten i vissa fall bli lägre för de lättlösliga nukliderna än för grundmassan. Vid GETOUT-beräkningarna har alla nuklider antagits lakas ut med samma hastighet som bränslets grundmassa.

Den ovan presenterade analysen är givetvis approximativ, eftersom den förutsätter att utlakningshastigheten är konstant även för de lättlösliga ämnena, medan den i själva verket avklingar exponentiellt. 3. FÖRDRÖJNINGSFAKTORER

3.l Allmänt

Tre uppsättningar av fördröjningsfaktorer har använts vid GETOUT-beräkningarna. Dessa faktorer kan sägas gälla i tre olika miljöer, nämligen.

- a) Oxiderande miljö
- b) Reducerande miljö med försiktiga ansatser beträffande grundvattensammansättning och nuklidhalt samt kort kontakttid

c) Reducerande miljö med långsamt grundvattenflöde

Fördröjningsfaktorerna redovisas i tabellerna 3.1-3.3 tillsammans med de kemiska grunddata som använts vid beräkningen av fördröjningsfaktorerna.

I alla tre uppsättningarna har fördröjningen antagits bero på reversibla reaktioner av jonbytes- eller adsorptionstyp. Detta antagande ger kortare transporttider än vad som fås med andra mekanismer (7).

Vidare har jonbytesreaktionerna antagits ske på ytan av sprickväggar i ett i övrigt massivt berg. Som visas i avsnitt 3.2.4 finns det experimentella indikationer på att en stor del av avfallsnukliderna kan diffundera in från sprickorna i de täta bergpartierna, varigenom den tillgängliga mängden sorberande material kan öka med flera tiopotenser.

Transporttiderna för de nuklider som diffunderar in i bergmassan är alltså avsevärt längre än de som beräknats i denna studie. De försök som krävs för att verifiera detta tar emellertid längre tid än vad som varit tillgänglig inom KBS.

3.2 Beräkning av fördröjningsfaktorerna

3.2.1 Allmänt

Beräkningen av fördröjningsfaktorerna diskuteras i avsnitt

2.4. Där visas att en fördröjd nuklids transporttid är oberoende av bergets porositet och endast beror av permeabiliteten, K_p (m/s), hydrostatiska gradienten, i (m/m), en jämviktskonstant för jonbytesjämvikterna, K_a (m) och den tillgängliga sprickytan per volymsenhet berg, a (m² sprickyta/ m³ berg). I avsnitt 2.4 visas även de samband som används i GETOUT för beräkningen av grundvattenhastigheten (ekv 2-8) och fördröjningsfaktorerna (ekv 2-9) utgående från värden på permeabilitet, hydrostatisk gradient, genomsnittligt sprickavstånd och den ytbaserade jämviktskonstanten K_a. Vidare visas att den modell med raka, parallella och jämvida sprickor som använts vid beräkningarna är den modell som ger den minsta sorptionsytan per volymsenhet berg, dvs de kortaste transporttiderna för nukliderna.

I detta avsnitt visas beräkningen av den ytbaserade jämviktskonstanten och fördröjningsfaktorerna utgående från experimentella data.

3.2.2 <u>Omräkning från vikt- till ytbaserade jämvikts-</u> konstanter

Inom KBS har ett stort antal mätningar av fördelningsjämvikten mellan avfallsnuklider och fasta material av typen leror och berg gjorts (13, 14). Här behandlas i huvudsak mätningarna på berg.

Mätningarna har gjorts för 14 grundämnen i två grundvattensammansättningar (höghaltsvatten med en total salthalt på 1 105 mg/l och normalvatten med salthalten 293 mg/l) samt med två nuklidhalter $(10^{-5} \text{ och } 10^{-2} \text{ mM})$. Vid de flesta mätningarna har en viktbaserad jämviktskonstant, K_d (m³/kg), bestämts. För att dessa konstanter ska kunna användas till beräkningar av fördröjningsfaktorer måste de räknas om till ytbaserade jämviktskonstanter, K_a (m³/m²), vilket sker enligt ekvation 3-1 nedan:

$$K_{a} = \frac{K_{d}}{a_{2}}$$
(3-1)

där: $K_a = ytbaserad jämviktskonstant (\frac{Ci/m^2}{Ci/m^3})$ $K_d = viktbaserad jämviktskonstant (\frac{Ci/kg}{Ci/m^3})$ $a_2 = provets specifika yta (m^2/kg)$

Vid beräkningen av K_a -värdena och fördröjningsfaktorerna för oxiderande miljö har a₂ uppskattats från partikelstorleken på de bergkrossprover som använts vid mätningarna (63-105 µm), vilket ger 30 m²/kg. Mätningar av sorptionen av Sr, Cs och Am på naturliga sprickytor har senare givit anledning att modifiera a₂-värdet något.

Således gav mätningar på en åldrad, naturlig sprickyta med 24 h kontakttid a₂ < 5 m²/kg för Cs, a₂ < 10 m²/kg för Sr och a₂ < 50 m²/kg för Am (13). Vid beräkningen av uppsättning b) av K_a-värden och fördröjningsfaktorer ("Reducerande miljö med försiktiga ansatser beträffande grundvattensammansättningen och nuklidhalt samt kort kontakttid") har a₂-värdet för grundämnen som i likhet med Am har en tendens att bilda svårlösliga hydroxidkomplex, dvs aktiniderna, lantaniderna och zirkonium, satts till 50 m²/kg. För cesium har a₂-värdet satts till 5 m²/kg, medan värdet 10 m²/kg har använts för de alkaliska jordartsmetallerna, dvs Sr och Ra.

Senare mätningar (14) med kontakttider på upp till 7 dygn har gett följande a₂-värden: för Cs < 3 m²/kg, för Sr < 2 m²/kg och för Am < 10 m²/kg. Dessa värden har använts vid beräkning av uppsättning c) av K_a-värdena och fördröjningsfaktorerna ("Reducerande miljö med långsamt grundvattenflöde") på samma sätt som beskrivits för uppsättning b) ovan.

3.2.3 <u>Använda jämviktskonstanter och resulterande för</u><u>dröjningsfaktorer</u>

I tabell 3.1 redovisas K_d , a_2 , K_a och K_i - (fördröjningsfaktorer)-värden för oxiderande miljö. K_d -värdena har tagits ur ref 13, tabell 11 och 12, för låg nuklidhalt (10⁻⁵mM) och normal salthalt (293 mg/l). Kontakttiden mellan faserna är

7 dygn. Fördröjningsfaktorerna har beräknats ur ekvation (2-9) med det genomsnittliga sprickavståndet s = 1 m och permeabiliteten $K_p = 10^{-9}$ m/s.

I tabell 3.2 visas motsvarande värden för reducerande miljö med försiktiga ansatser beträffande grundvattensammansättning och nuklidhalt samt kort kontakttid. De använda $K_d^$ värdena är för flertalet grundämnen de lägsta erhållna vid försöken med 7 dygns kontakttid (tabell 11 och 12 i ref 13). Försöken gjordes emellertid i ett luftat system, vilket innebär att uran föreligger som sexvärt (UO_2^{2+}), neptunium som femvärt (NpO_2^+) och plutonium som fyr- och/eller sexvärt (Pu^{4+} , PuO_2^{2+}). Vid analyser av grundvattenprov och vid studium av mineralförekomster i bergssprickor (1) har det emellertid visat sig att naturliga grundvatten i svensk berggrund under det allra översta markskiktet är reducerande. K_d -värdena för U, Np och Pu i tabell 3.2 har därför baserats på en teoretisk analys av redox- och komplexjämvikterna i grundvattenmiljön (tabell 19, ref 13).

 K_d -värdet för uran har senare verifierats expermimentellt (14) genom mätning i ett luftfritt system med tillsats av Fe(II). Detta innebär att även neptunium med säkerhet reduceras och därigenom sorberas kraftigare än i oxiderande miljö, eftersom redoxpotentialen för övergången Np(V) \rightarrow Np(IV) är högre än potentialen för övergången U(VI) \rightarrow U(IV). Värdet för plutonium bygger på att plutonium bör vara trevärt i ett Fe(II)-haltigt vatten. Eftersom "säkerhetsmarginalen" i redoxpotentialen mellan övergångarna Fe(III) \rightarrow Fe(II) och Pu(IV) \rightarrow Pu(III) är liten har en senare, på försök i luftat system grundad, analys gett ett lägre K_d-värde för plutonium (14). (Se tabell 3.3.)

I tabell 3.3 redovisas K_d-, a₂- och K_a- och K_i-värden för "Reducerande miljö med långsamt grundvattenflöde". K_d-värdena motsvarar mätningar i ett luftat system med ca 6 månaders

Grundämne	K _d (m ³ /kg)	a ₂ (m ² /kg)	$K_a (m^3/m^2)$	ĸ	
Ć					
Sr	0.0079	30	0.00026		51
Zr	1.3	30	0.42	8	000
Тс	0	30	0		1
I	0	30	0		- Province
Cs	0.13	30	0.0042		800
Ce	13	30	0.42	80	000
Nd	4.0	30	0.13	25	000
Eu	7.9	30	0.26	50	000
Ra	0.1	30	0.0033		670
Th	0.79	30	0.026	5	100
Pa	800	693	ana		37 ¹)
U -	0.0063	30	0.00021		41
Np	0.04	30	0.0013		260
Pu	0.16	30	0.0053	1	100
Am	13	30	0.42	80	000
Cm	803	809	-	40	000 ²⁾

Tabell 3.1 Kemiska data och fördröjningsfaktorer för avfallsämnen i "Oxiderande miljö" (uppsättning a)

1) Har antagits vara "något lägre än för uran"

e

2) Har antagits vara hälften av värdet för americium.

Tabell 3.2 Kemiska data och fördröjningsfaktorer för avfallsämnen för "Reducerande miljö med försiktiga ansatser beträffande grundvattensammansättning och nuklidhalt samt kort kontakttid" (uppsättning b)

Grundämne	K _d (m ³ /kg)	a ₂ (m²∕kg)	$K_{a} (m^{3}/m^{2})$	к _i
С				1
Sr	0.0063	10	0.00063	120
Zr	1.3	50	0.025	4 800
Тс	0	500	0	1
I	0	-	0	1
Cs	0.032	5	0.0063	1 200
Се	5.0	50	0.10	19.000
Nd	1.0	50	0.02	3.800
Eu	7.9	50	0.16	30 000
Ra	0.063	50	0.0063	1 200
Th	0.50	10	0.01	1 900
Pa		-	-	37 ¹⁾
U	0.50	50	0.01	1 900
Np	0.50	50	0.01	1 900
Pu	0.72	50	0.014	2 800
Am	5.0	50	0.10	19 000 -
Cm	-		-	9 500 ²⁾

1) Samma värde som i tabell 3.1.

2) Se fotnot tabell 3.1

Grundämne	K _d (m ³ /kg)	a ₂ (m ² /kg)	$K_a (m^3/m^2)$	K,	
С				B ^{ring} Denord and a second and a second a	
Ni	0.32	10	0.032	6	100
Sr	0.016	2	0.008	1	500
Zr	3.2	10	0.32	61	000
Тс	0.05	10	0.005		950
Ι	0	899	0		of the second se
Cs	0.064	3	0.021	4	000
Ce	10	10	1.0	200	000
Nd	10	10	1.0	200	000
Eu	10	10	1.0	200	000
Ra	0.50	2	0.25	48	000
Th-	2.4	10	0.24	46	.000
Pa	253	200	6884	11	4001)
U	1.2	10	0.12	23	000
Np	1.2	10	0.12	23	000
Pu	0.30	10	0.03	5	700
Am	32	10	3.2	610	000
Cm	an	809	369	305	000 ²⁾

Tabell 3.3 Kemiska data och fördröjningsfaktorer för avfallsämnen i "Reducerande miljö med långsamt grundvattenflöde" (uppsättning c)

1) Beräknats ur ett K_d -värde för 5-värt neptunium med 6 månaders kontakttid (tabell 9, ref 13).

2) Se fotnot tabell 3.1.

kontakttid i normalvatten (salthalt 293 mg/l) och med låg nuklidhalt (10^{-5} mM) för grundämnena Sr, Zr, Tc, I, Ra, Pu och Am (tabell 9, ref 14). K_d-värdena för Cs är känsliga för nuklidkoncentrationen och eftersom Cs är både lätt-lösligt och åtminstone till någon procent lätttillgängligt för utlakning, har ett värde motsvarande normalvatten och hög nuklidhalt (10^{-2} mM) valts för Cs. För torium har ett värde som gäller vid förhöjd salthalt valts.

Eftersom sexmånadersmätningarna gjorts i ett luftat system kan de K_d-värden som fås för U och Np inte appliceras på ett reducerande system. Värdet i tabell 3.3 för uran bygger i stället på mätningar i ett luftfritt system med en tillsats av Fe(II) (tabell 6, ref 14) med en kontakttid på 4-5 dygn. Neptuniums kemi är mycket snarlik urans och värdena har därför satts lika.

Kontakttiden vid bestämningen av nickels K_d -värde var 24 h (14). Nickel påverkas inte av rimliga variationer i redoxpotential. Kontakttiden vid bestämningen av K_d -värdet för teknetium var 24 h (tabell 7, ref 14).

3.2.4 <u>Diskussion</u>

Vid en jämförelse mellan tabell 3.1 och tabell 3.2 ser man att vissa nuklider har lägre fördröjningsfaktorer i tabell 3.2 än i 3.1. Detta har ingenting med redoxbetingelserna att göra utan är en kombinationseffekt av att de lägsta uppmätta K_d -värdena med 7 dygns kontakttid har använts i tabell 3.2 i kombination med en specifik provarea på 50 m²/kg, medan värdena i tabell 3.1 genomgående bygger på provarean 30 m²/kg och K_d -värden som uppmätts för normalvatten och låg nuklidhalt.

Eftersom det bara är ett fåtal av grundämnena som påverkas av redoxpotentialen inom för grundvatten rimliga gränser och med hänsyn till vad som ovan sagts om skillnaderna mellan uppsättningarna a) och b) av fördröjningsfaktorer, kan benämningarna "oxiderande miljö" och "reducerande miljö" synas otillräckliga för att beskriva skillnaderna mellan de olika uppsättningarna. Dessa beskriver nämligen också den utvecklingsprocess som kunskaperna om grundvattenmiljön på deponeringsdjup och sorptionsprocesserna genomgått under KBS-projektets gång. Således användes uppsättning a) vid beräkningarna för glasalternativet (7), medan uppsättning c) får gälla som bästa ansats med dagens kunskap.

I uppsättning c) är kontakttiden för nickel, teknetium och uran (och därmed även för neptunium) mycket kortare än för de övriga grundämnena. Detta innebär att de angivna värdena bör vara en undre gräns. För torium, som kemiskt mycket liknar fyrvärt uran och neptunium, ökade K_d-värdena 2-13 gånger vid en förlängning av kontakttiden från 7 dygn till 6 månader. Det förefaller alltså troligt att K_d-värdena för nickel, teknetium, uran, neptunium och möjligen för plutonium i tabell 3.3 är underskattade med en faktor 2-5.

Mätningarna på naturliga sprickytor har av försökstekniska skäl inte kunnat göras med längre kontakttid än 7 dygn (14). För americium och cesium ökar sorptionen fortfarande vid 7 dygn, dvs jämvikt har ej nåtts. Detta innebär att a_2 -värdena i tabell 3.3 är överskattade för cesium och de ämnen som bildar svårlösliga hydroxider (de ämnen för vilka $a_2 = 10$ i tabell 3.3) och fördröjningsfaktorerna följaktligen underskattade. För strontium tycks däremot jämvikt vara i det närmaste uppnådd efter 7 dygn.

Mätningar på bergkross av varierande kornstorlek (13) av strontiums, cesiums och americiums sorption stämmer väl överens med mätningarna på bergytorna. Således uppvisar sorptionen av cesium och americium inget eller ytterst ringa kornstorleksberoende medan sorptionen av strontium per viktenhet bergkross minskar med ökande kornstorlek.

Det förefaller alltså som om cesium och americium kan tränga in i berget medan reaktionen är mer ytorienterad för strontium. Den långsamma sorptionskinetiken för americium kan delvis bero på en omvandling av svårlösliga hydroxider till

oxider. Försök att laka ut den aktivitet som sorberats på sprickytorna (13, 14) visar att en del av det cesium och americium som sorberats binds irreversibelt till berget. Detta kan mycket väl gälla även de fyrvärda aktiniderna torium, uran, neptunium och möjligen plutonium .

De a_2 -värden som anges i tabellerna 3.2 och 3.3 är per definition empiriska omräkningsfaktorer från K_d - till K_a -värden och inte en faktisk yta. Värdena på a_2 har bestämts genom att sorptionen per ytenhet sprickyta (K_a -värdet) bestämts varefter a_2 -värdet beräknats ur på bergkross mätta K_d -värden enligt:

$$a_2 = \frac{K_d}{K_a}$$
(3-2)

Den sprickyta som K_a-värdet baserar sig på har mätts som om ytan vore helt plan, dvs a₂-värdet som beräknats ur (3-2) är jämförbart med den modell av sprickorna som använts vid beräkningen av fördröjningsfaktorerna.

3.3 Inverkan av indiffusion i berget

3.3.1 Kinetiken för sorptionen på berg

Som påpekats i det föregående avsnittet tyder experimentella data på att en stor del av avfallsnukliderna kan diffundera in i berget från den spricka där transporten antages ske om de får tillräcklig tid på sig. Detta innebär att den tillgängliga mängden sorberande material kan vara flera tiopotenser större än vid en ytreaktion, vilket ger i motsvarande grad längre nuklidtransporttider.

Kinetiken för sorptionen framgår av mätningarna på en naturlig bergyta (figur 4, ref 14) och bergkross (tabell 13, ref 13). Ökningen av sorptionen mellan 6 h och 7 dygns kontakttid var vid mätningarna på sprickytan en faktor 3 för cesium och en faktor 7-20 för americium vid sprickmätningarna. Vid mätningarna på bergkross var motsvarande ökningar av K_d -värdena en faktor 1,5-2 för cesium och en faktor 2,5-5 för americium. Eftersom bergkrossproverna i detta fall kan antas ha en konstant specifik yta kan de relativa ökningarna av K_dvärdena jämföras med de relativa ökningarna av K_a-värdena.

Det kan finnas två förklaringar till att sorptionsökningen är större vid sprickviddsmätningarna än vid mätningarna på bergkross.

- a) Vid indiffusion i kornen är diffusionssträckorna små (< 0,1 mm), varigenom koncentrationsprofilen genom kornen relativt snabbt planar ut och diffusionshastigheten minskar.
 Denna utplaning fås ej vid indiffusion i ett större bergblock, varigenom diffusionshastigheten bibehålls på den högre nivån under en längre tid än i fallet med bergkross.
- b) Kinetiken för en mineralisering av de nämnda grundämnena är någon funktion av mängden berg per mängd lösning. Detta -skulle i så fall tyda på en irreversibel bindning av vissa avfallsnuklider till berget.

Det har inte inom ramen för KBS varit möjligt att fastställa vilken av förklaringarna a) och b) som är den riktiga. Försök att laka ut aktivitet som sorberats på bergytor har visat att en fraktion av cesium och americium tycks bindas irreversibelt (13, 14).

Vid de långa utlakningstider som på grund av löslighetsbegränsningar erhålles (10) kommer koncentrationen i en viss punkt i en viss spricka i princip att vara konstant under 100 000-tals år. Den tid som finns till förfogande för indiffusion är således mycket lång.

3.3.2 Fördröjningen vid indiffusion i berget från sprickor

Vid en ytreaktion kan fördröjningsfaktorn enligt avsnitt 2.4 beräknas ur:

$$K_{1}^{A} = 1 + K_{a} \cdot a \frac{(1-\varepsilon)}{\varepsilon} = 1 + \frac{K_{d} \cdot (1-\varepsilon) \cdot a}{a_{2} \cdot \varepsilon}$$
(3-3)

Vid en volymreaktion där hela bergmassan utnyttjas fås fördröjningsfaktorn i stället ur:

$$K_{1}^{V} = 1 + K_{d} \cdot \mathcal{P} \cdot \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon}$$
 (3-4)

För de nuklider vars fördröjningsfaktorer är mycket större än 1 blir fördröjningen R_{AV} ggr större vid volymreaktion än vid ytreaktion:

$$R_{AV} = \frac{K_{i}^{V}}{K_{i}^{A}} \approx \frac{f \cdot a_{2}}{a}$$
(3-5)

De fördröjningsfaktorer som fås vid volymreaktion redovisas i tabell 3.4. Dessa värden har beräknats utgående från fördröjningsfaktorerna i tabellerna 3.1-3.3 och R_{AV} enligt ekvation (3-5). För att faktorerna i tabell 3.4 skall ge rätt nuklidtransporttider måste alltså grundvattenhastigheten beräknas ur (2-8) med s = 1 m och $K_p = 10^{-9}$ m/s.

Fördröjningsfaktorerna i tabell 3.4 har inte använts i några beräkningar.
Grundämne	Uppsättning a)	Uppsättning b)	Uppsättning c)
Ni			8.2.107
Sr	4.1.10 ⁴	8.1.10 ⁵	4.1.10
Zr]]	1.3.10/
I]	1	
Cs	3.2.107	4.0°10 ⁶	8.1.10
Ce	3.2°10 ⁹	1.3.109	2.7.109
Nd	1.0.109	2.6.108	2.7.109
Eu	2.0.109	2.0.109	2.7.109
Ra	2.7.107	1.6.107	6.5.10
Th	2.1.10 ⁸	1.3.10 ⁸	6.2.108
Pa	1.5.10 ⁶ 1)	2.5.10 ⁶ ²)	1.5.108 3)
U -	1.7.10 ⁶	1.3.108	3.1.108
Np	1.1.107	1.3.108	3.1.108
Pu	4.5.107	1.9.108	7.7.10
Am	3.2.109	1.3.109	8.2.109
Cm	1.6°10 ⁹⁴⁾	6.4°10 ^{8 4)}	4.1.10 ^{9 4)}

Tabell	3.4	Fördröjnings	faktorer	5)	vid	volymreaktion	med	fullt	ut-
		nyttjande av	bergmass	san.	,				

Se fotnot tabell 3.1
 Se fotnot tabell 3.2
 Se fotnot tabell 3.3
 Se fotnot tabell 3.1

æ

5) Ger fördröjning i förhållande till vattenhastigheten i planparallella sprickor enligt ekv (2 - 8).

3.3.3 <u>Nuklidtransporttider och strömning i berg utan</u> sprickor

Spricksystemen i berget har ofta dålig hydraulisk kontakt (1). Detta innebär att nukliderna kortare sträckor måste transporteras i täta bergpartier mellan sprickorna.

Om porerna i dessa bergpartier är tillräckligt vida för att kunna släppa igenom avfallsnukliderna uppstår en situation som liknar mycket långsam strömning i en porös bädd med låg porositet.

Nuklidhastigheten vid strömning i tätt berg kan för nuklider vars fördröjningsfaktorer är mycket större än 1 och om porositeten är mycket mindre än 1 beräknas ur:

$$u_{i} = \frac{K_{p} \cdot i}{K_{d} \cdot f}$$
(3-6)

Permeabilitetsmätningar har visat att berget mellan sprickorna har en permeabilitet mellan $2 \cdot 10^{-12} - 10^{-9}$ m/s (1). Båda värdena representerar mätgränser för den använda apparaturen. I tabell 3.6 har transporttiderna per meter berg sammanställts för de olika grundämnena för permeabiliteterna $2 \cdot 10^{-12}$ och 10^{-9} m/s. Den hydrauliska gradienten har givits det relativt höga värdet 0,01 m/m och K_d-värdena har tagits ur tabell 3.3.

I tabell 3.5 har även den tid det tar för avfallsämnena att diffundera 1 m i sprickfritt berg förutsatt att diffusiviteten är densamma som för metalljoner i kompakterad bentonit (10), dvs $4 \cdot 10^{-11}$ m²/s. Den tid som anges är den tid det tar för koncentrationen att växa till 5 % av sitt maximivärde. Denna tid kan beräknas ur (10):

$$t = \frac{Z^2 \cdot K_i \cdot 0, 1}{D \cdot 3, 1536 \cdot 107}$$
 (år) (3-7)

Grundämne	$K_{\rm p} = 2.10^{-12} {\rm m/s}$	$K_{\rm p} = 10^{-9} {\rm m/s}$	diffusion
Ni	1.3.109	2.7.10 ⁶	6.8.104
Sr	6.8.107	1.4.10 ⁵	3.4·10 ³
Zr	1.4.1010	2.7.107	6.8°10 ⁵
Тс	2.1.10 ⁸	4.3.10 ⁵	1.1.104
I	4.3.10 ⁶ 1)	8.6.10 ³ 1)	2.1.105
Cs	2.7.10 ⁸	5.5°10 ⁵	1.4.104
Ce	4.3.10 ¹⁰	8.6°10 ⁷	2.1.106
Nd	4.3.10 ¹⁰	8.6°10 ⁷	2.1.10
Eu	4.3.10 ¹⁰	8.6.107	2.1.10
Ra	2.1.109	4.3°10 ⁶	1.1 [.] 10 ⁵
Th	1.0.10 ¹⁰	2.1.107	5.1.10 ⁵
Pa -	2.7.10 ^{8 2)}	5.4°10 ^{5 2})	1.4.10 ^{4 2)}
U	5.1.10 ⁹	1.0.10 ⁷	2.6°10 ⁵
Np	5.1.109	1.0.107	2.6.10 ⁵
Pu	1.3.10 ⁹	2.6.10 ⁶	6.4.104
Am	1.4.1011	2.7.108	6.8.10 ⁶
Cm	6.8°10 ^{10 3)}	1.4·10 ^{8 3})	3.4°10 ^{6 3)}

Tabell 3.5 Transporttider (år) per meter sprickfritt berg för avfallsämnen genom strömning och genom diffusion.

1) Porositeten har antagits vara 0.1 %.

2) $\rm K_d\mathchar`-värde$ enligt tabell 9, ref 14 för femvärt neptunium.

3) K_d -värde har satts till hälften värdet för Am.

Diffusiviteten kan vara kraftigt överskattad, eftersom porositeten i sprickfritt berg är i storleksordningen 1/100 – 1/1000 av porositeten i kompakterad bentonit och den för diffusion tillgängliga ytan därmed bör vara i motsvarande grad mindre.

TRE BERÄKNINGSFALL MED OLIKA FÖRDRÖJNINGSFAKTORER

4.

34

I detta kapitel presenteras tre beräkningsfall med olika fördröjningsfaktorer men med i övrigt samma parametervärden.

Tidpunkten för kapselgenombrott har satts till 100 000 år efter uttaget ur reaktorn, utlakningstiden till 500 000 år och grundvattnets transporttid från förvaret till kontaktytan med biosfären (recipientområdet) har satts till 3 000 år. Beräkningarna gäller bränsle motsvarande 10 000 ton uran. Fördröjningsfaktorerna för de tre fallen har redovisats i tabellerna 3.1-3.3.

Resultatet av beräkningarna visas i tabell 4.1 i form av de olika nuklidernas maximala inflöden till recipientområdet och tidpunkterna för maxima samt i form av inflödeskromatogram i figur 4-1--4-3.Inflödeskromatogrammen visar inflödena till recipientområdet som funktion av tiden efter uttaget ur reaktorn. Observera att skalorna är logaritmiska och att de skenbarligen mycket smala topparna i figur 4-3 är ca 500 000 år breda.

Av läsbarhetsskäl har endast de radiologiskt mest signifikanta nukliderna medtagits i figur 4-1--4-3.

Som framgår av tabell 4.1 är de maximala inflödena högre med uppsättning b) av fördröjningsfaktorerna än med uppsättning a) för flera av dotterprodukterna i sönderfallskedjorna. Detta beror på att transporttiden för modernukliderna är längre i uppsättning b) än i uppsättning a) och att därför dotterprodukterna hinner byggas upp i större utsträckning under transporten.

Om bränslet lades direkt i recipienten vid den tidpunkt då toppen dyker upp i beräkningarna och löstes upp under 500 000 år skulle den maximala frigörelsehastigheten för Ra-226 vara 6,3·10⁻³ Ci/år (motsvarar jämvikt med U-238). Av tabell 4.1 framgår att inflödet av Ra-226 är 60 % högre än jämviktsvärdet med fördröjningsfaktorer enligt uppsättning b). Detta beror på en effekt som kan uppstå vid kromatografi där de separerade ämnena står i mor-dotter-förhållande till varandra och dotterprodukten vandrar snabbare än modersubstansen. Effekten har kallats "Reconcentration phenomenon" (15). Det bör påpekas att effekten är teoretisk så tillvida att den förutsätter att nuklidfördröjningarna beror på reversibla reaktioner eller, om modernukliden reagerar irreversibelt med berget, att en utfällning av modernukliden sker så nära kontaktytan med biosfären att dotterprodukten inte avklingar. Det senare förefaller osannolikt, eftersom risken för syresättning av grundvattnet och därmed oxiderande förhållanden bör vara större nära markytan.

I de följande kapitlet redovisas resultaten av variationer av de olika ingångsparametrarna i GETOUT. Tyngdpunkten av redovisningen läggs där vid uppsättningarna b) och c) av fördröjningsfaktorerna som med hänsyn till dagens kunskap representerar ett pessimistiskt respektive ett mer realistiskt basfall.

Nuklid	K _i = uppsätt	tning a ¹⁾	K _i = uppsät	tning b ²⁾	K, = uppsätt	tning c ³⁾
	C _{max} (Ci/år)	T _{max} (år)	C _{max} (Ci/år)	T _{max} (år)	C _{max} (Ci/år)	T _{max} (år)
C-14	8.7.10-8	1.0.105	8.7.10-8	1.0.105	8.7.10-8	1.0.10 ⁵
Zr-93	5.2.10-7	2.4.107	4.7.10 ⁻⁵	1.4.107	Len	8-5 8 4
Tc-99	2.0.10-1	1.0.10 ⁵	2.0.10-1	1.0.10 ⁵	1.7.10-5	3.0.10 ⁶
I-129	7.5.10-4	1.0.10 ⁵	7.5.10-4	1.0.105	7.5.10-4	1.0.10 ⁵
Cs-135	2.8.10-3	2.5.106	2.1.10-3	3.7.10 ⁶	3.0.10-4	1.2.107
Ra-226	1.1.10 ⁻³	4.4.10 ⁵	1.0.10-2	5.9.106	3.0.10-3	6.9.107
Th-229	3.1.10-4	7.4.10 ⁵	2.8.10-3	6.1.10 ⁶	1.3.10-11	6.9.107
Th-230	1.1.10-4	4.3.10 ⁵	5.7.10 ⁻³	5.9.106	3.1.10-3	6.9.107
Th-232	6.9'10 ⁻⁸	1.6.107	1.9.10-6	6.4.10 ⁶	1.9.10-7	1.4.108
Pa-231	5.7.10-4	4.4 [.] 10 ⁵	5.3.10-3	5.7.10 ⁶	9.7.10-4	6.9.107
U-233	3.9·10 ⁻²	7.3.10 ⁵	3.0.10-3	6.2.106	3.9.10-12	6.9.107
U-234	2.1.10-2	2.3 [.] 10 ⁵	6.3·10 ⁻³	5.9.10 ⁶	6.2.10-3	6.9.107
U-235	5.2.10-4	2.8·10 ⁵	5.2.10-4	5.9°10 ⁶	4.7.10-4	6.9.107
U-236	8.1.10-3	2.3.10 ⁵	6.9 [.] 10 ⁻³	5.9.10 ⁶	9.9.10-4	6.9.107
U-238	6.3 [.] 10 ⁻³	2.3.10 ⁵	6.3·10 ⁻³	5.9.10 ⁶	6.2.10-3	6.9.107
Np-237	1.5.10-2	8.8'10 ⁵	2.7.10-3	6.2.10 ⁶	3.3.10-12	6.9.107
Pu-242	7.9'10 ⁻⁵	3.3·10 ⁶	3.7.10-9	8.7.10 ⁶	1.6.10-15	1.7.107
Pu-244	1.9.10-11	3.3.10 ⁶	1.8.10-11	8.7.10 ⁶	1.6.10-11	1.7.10 ⁷
1) Se tabe	1131		1 BL (1)	1 4 4 7 7	2 2 5 6 6 4 4	13 12 5 A

Tabell 4.1 Maximala inflöden och tidpunkter för maxima för ett basscenario med tre olika uppsättningar fördröjningsfaktorer.

3.1

2) Se tabell 3.2

3) Se tabell 3.3









5. PARAMETERSTUDIER AV GRUNDVATTNETS TRANSPORTTID

Den tid det tar för grundvatten som varit i kontakt med avfallet att nå recipientområdet har varierats med fördröjningsfaktorer enligt uppsättningarna a, b och c. Tidpunkten för kapselgenombrott har satts till 100 000 år efter uttaget ur reaktorn och utlakningstiden har satts till 500 000 år. Räknebasen är bränsle motsvarande 10 000 ton uran.

Resultatet av beräkningarna visas i figurerna 5-1--5-3 där de olika nuklidernas maximala inflöden till recipientområdet ges som funktion av grundvattnets transporttid.

Lutningen på linjerna i figurerna 5-1--5-3 är lika med kvoten mellan fördröjningsfaktorn och halveringstiden för den styrande modernukliden multiplicerad med tiologaritmen av 2 (~0,3). Om inflödet till recipientområdet av en viss nuklid består av bidrag av samma storleksordning från flera modernuklider visar detta sig genom att denna nuklids linje är krökt. Detta syns tydligast i figur 5-1 där linjerna för U-233, Th-229, Th-230 och Ra-226 är krökta.



Figur 5-1: Maximala nuklidinflöden som funktion av grundvattnets transporttid med fördröjningsfaktoruppsättning a.



Figur 5-2: Maximala nuklidinflöden som funktion av grundvattnets transporttid med fördröjningsfaktoruppsättning b.



Figur 5-3: Maximala nuklidinflöden som funktion av grundvattnets transporttid med fördröjningsfaktoruppsättning c.

6. INVERKAN AV FÖRDRÖJNINGSFAKTORERNA PÅ RADIUM-226-INFLÖDET

Radium-266, som är en dotterprodukt till bl a uran-238, har vid beräkningarna visat sig vara den nuklid som gett de högsta doserna (20). Det är därför av intresse att specialstudera hur dess inflöde till recipientområdet varierar med de fördröjningsfaktorer som ingår i sönderfallskedjan.

I figurerna 6-1 och 6-2 visas det maximala inflödet av radium-226 som funktion av urans, toriums och radiums fördröjningsfaktorer för två av de basfall som redovisas i kapitel 4, nämligen de med fördröjningsfaktoruppsättningarna b resp c. På abskissorna har det värde av den varierade fördröjningsfaktorn som ingår i respektive basfall markerats med en pil.





MAXIMALT 220 Ra - INFLODE





7. INVERKAN AV UTLAKNINGSTIDENS LÄNGD

Den utlakningstid på 500 000 år som använts i de hittills presenterade beräkningarna motsvarar ett pessimistiskt fall. I vad Neretnieks kallar ett centralfall fås 1,8 miljoner års utlakningstid (10). Båda dessa värden bygger på den maximala lösligheten för sexvärt uran i grundvatten med förhållandevis hög karbonathalt. I ett reducerande system i en tjeckoslovakisk gruva var den högsta påträffade uranhalten en faktor 2 000 lägre än den som använts vid beräkningen av utlakningstiden (19). Utlakningstiden är omvänt proportionell mot koncentrationen, varför utlakningstiden med den lägre lösligheten skulle vara 3 600 miljoner år i centralfallet.

Utlakningstidens inverkan på nuklidinflödena har studerats för tre beräkningsfall. Indata till beräkningsfallen sammanfattas i tabell 7.1. I tabellerna 7.2-7.4 redovisas de maximala inflödena.

Som framgår av tabellerna är inflödena omvänt proportionella mot utlakningstiden för alla väsentliga nuklider i fallen B och C. I fall A är inflödena av de typiska dotterprodukterna inte riktigt proportionella. Anledningen till detta är att kedjesönderfallet pågår i bränslet under hela utlakningsperioden, dvs nuklider som vid korta utlakningstider bildas under transporten hinner byggas upp redan i bränslet. I det första fallet blir dotterprodukterna, på grund av den stora skillnaden mellan fördröjningsfaktorerna för uran och torium, utspridda över en stor del av transportsträckan medan de i det andra fallet vandrar som ett relativt koncentrerat band i slutet av utlakningsperioden. I fallen B och C blir denna effekt inte lika märkbar, eftersom dels fler bidrag hinner avklinga (varigenom mor-dotter-förhållanden renodlas) och dels skillnaderna mellan olika nukliders fördröjningsfaktorer är mindre.

	Paramete	ervärden	
Parameter	Fall A	Fall B	Fall C
Tidpunkt för kapselgenombrott (år)	10 000	100 000	100 000
Transporttid för grundvattnet (år)	400	400	1 000
Fördröjningsfaktorer Utlakningstid (år)	Tabell 3.1 10 ⁴ -10 ⁶	Tabell 3.2 5·10 ⁵ -10 ⁷	Tabell 3.3 5·10 ⁵ -10 ⁷

Tabell 7.1 Indata för parameterstudie av utlakningstidens inverkan på nuklidinflödena

Tabell 7.2 Maximala nuklidinflöden (Ci/år) vid olika utlakningstider. Indata enligt fall A i tabell 7.1

	Utlaknings	tid	
Nuklid	10 000 år	100 000 år	l milj år
Zr-93	2.2.10 ⁻¹	4.2.10 ⁻²	4.1.10 ⁻³
Tc-99	1.4·10 ¹	1.4.10	1.4.10
I-129	3.8·10 ⁻²	3.8.10-3	3.8.10-4
Cs-135	2.3·10 ⁻¹	2.3.10 ⁻²	2.3.10-3
Ra-226	1.0.10 ⁻²	4.9·10 ⁻³	5.9.10-4
Th-229	8.6.10-4	7.4.10-4	1.0.10-4
Th-230	$1.1 \cdot 10^{-3}$	6.7.10-4	8.3.10-5
Th-232	2.6.10-8	9.5.10 ⁻⁸	1.5.10-7
Pa-231	1.1.10 ⁻²	$1.7 \cdot 10^{-3}$	2.1.10-4
U-233	1.2.10-1	8.8.10-2	1.3.10-2
U-234	1.7·10 ⁰	1.6.10-1	1.6.10-2
U-235	2.1.10 ⁻²	$2.7 \cdot 10^{-3}$	$2.7 \cdot 10^{-4}$
U-236	4.1.10 ⁻¹	4.2.10 ⁻²	$4.2 \cdot 10^{-3}$
U-238	3.2.10 ⁻¹	3.2·10 ⁻²	3.2.10-3
Np-237	1.1.10	1.1.10-1	1.1.10 ⁻²
Pu-239	$1.5 \cdot 10^{-3}$	1,5.10-4	1.5.10-3
Pu-242	5.6.10-1	$6.8 \cdot 10^{-2}$	6.8.10-3
Pu-244	8.9.10-11	8.9.10-12	8.9.10-13

,

		Utlakningstid	
Nuklid	500 000 år	l milj år	10 milj år
Zr-93	1.5.10-2	7.2.10-3	7.2.10-4
Tc-99	2.1.10-1	1.0.10-1	$1.0.10^{-2}$
I-129	7.5.10-4	3.7.10-4	3.7·10 ⁻⁵
Cs-135	$4.4 \cdot 10^{-3}$	$2.2 \cdot 10^{-3}$	2.2.10-4
Ra-226	1.6.10-2	8.1.10-3	8.1.10-4
Th-229	1.5.10-2	7.4 [.] 10 ⁻³	7.4.10-4
Th-230	8.5·10 ⁻³	4.2 ^{10⁻³}	4.2.10-4
Th-232	5.0'10 ⁻⁷	3.4·10 ⁻⁷	1.8.10 ⁻⁷
Pa-231	5.1·10 ⁻³	3.8°10 ⁻³	3.8.10-4
U - 233	1.6°10 ⁻²	8.1.10 ⁻³	8.1.10-4
U-234	8.7·10 ⁻³	4.3 ^{10⁻³}	4.3.10-4
U-235	5.2.10-4	2.6.10-4	2.6.10-5
U-236	8.0°10 ⁻³	4.0°10 ⁻³	4.0.10-4
U-238	6.3°10 ⁻³	3.2.10 ⁻³	3.2.10-4
Np-237	1.5.10 ⁻²	7.3 [.] 10 ⁻³	7.3 [.] 10 ⁻⁴
Pu-239	2.1.10 ⁻¹⁵	1.1 [.] 10 ⁻¹⁵	-
Pu-242	3.0.10 ⁻³	1.5.10 ⁻³	$1.5 \cdot 10^{-3}$.

Tabell 7.3 <u>Maximala nuklidinflöden (Ci/år) vid olika utlakningstider</u>. Indata enligt fall B i tabell 7.1.

Tabell 7.4 Maximala nuklidflöden vid olika utlakningstider. Indata enligt fall C i tabell 7.1.

		Utlakningstid	
Nuklid	500 000 år	l milj år	10 milj år
Tc-99	1.7.10 ⁻⁵	8.6.10 ⁻⁶	8.6.10-7
I-129	7.5·10 ⁻⁴	3.7·10 ⁻⁴	3.7·10 ⁻⁴
Cs-135	3.0·10 ⁻⁴	1.5.10-4	1.5.10 ⁻⁵
Ra-226	3.0·10 ⁻³	$1.5 \cdot 10^{-3}$	1.5.10-4
Th-230	3.1·10 ⁻³	$1.6 \cdot 10^{-3}$	1.6.10-4
Th-232	$1.9 \cdot 10^{-7}$	1.8·10 ⁻⁷	1.7·10 ⁻⁷
Pa-231	9.7·10 ⁻⁴	4.9·10 ⁻⁴	4.9·10 ⁻⁵
U-234	6.2·10 ⁻³	$3.1 \cdot 10^{-3}$	$3.1 \cdot 10^{-4}$
U-235	$4.7 \cdot 10^{-4}$	2.4.10-4	2.4·10 ⁻⁵
U-236	9.9·10 ⁻⁴	5.4.10-4	5.4·10 ⁻⁵
U-238	6.2·10 ⁻³	$3.1 \cdot 10^{-3}$	3.1.10 ⁻⁴

8. INVERKAN AV TIDPUNKTEN FÖR KAPSELGENOMBROTT

Tidpunkten för kapselgenombrott har varierats för två spridningsscenarios. Utlakningstiden är 500 000 år i båda fallen. I det ena fallet har fördröjningsfaktorerna i uppsättning b (se tabell 3.2) kombinerats med grundvattentransporttiden 400 år och i det andra kombineras fördröjningsfaktorerna i uppsättning c (se tabell 3.3) med grundvattentransporttiden 3 000 år. De maximala inflödena redovisas i tabellerna 8.1 respektive 8.2.

Som framgår av tabellerna är inte inflödesnivåerna speciellt känsliga för tidpunkten för kapselgenombrott utom för ett fåtal nuklider med relativt korta halveringstider. Den nuklid vars inflöde är känsligast för tidpunkten är C-14 med halveringstiden 5 730 år.

Det finns en väsentlig skillnad mellan de två fallen vad beträffar Ra-226. I tabell 8.1 härrör Ra-226-inflödet från inventarierna av både U-234 och U-238, medan inflödet i tabell 8.2 bara kommer från U-238 eftersom transporttiden är så lång att U-234 med dotterprodukten hinner avklinga helt. Detta innebär att inflödet av Ra-226 blir detsamma vid kapselgenombrott efter 3 000 år (ej medtaget i tabell 8.2) som vid 100 000 år. Detta konstaterande är väsentligt eftersom Ra-226 är en radiologisk viktig nuklid.

	T	idpunkt för kapselge	enombrott
Nuklid	3 000 år	100 000 år	500 000 år
C-14	1.9.10-2	1.2.10 ⁻⁷	-
Zr-93	1.5·10 ⁻²	1.5·10 ⁻²	1.2.10 ⁻²
Tc-99	2.8·10 ⁻¹	2.1·10 ⁻¹	5.5·10 ⁻²
I-129	7.6.10-4	7.5.10-4	7.3·10 ⁻⁴
Cs-135	• 4.5·10 ⁻³	$4.4 \cdot 10^{-3}$	4.0·10 ⁻³
Ra-226	1.9·10 ⁻²	1.6.10 ⁻²	1.3·10 ⁻²
Th-229	1.7·10 ⁻²	1.5.10 ⁻²	$1.4 \cdot 10^{-2}$
Th-230	9.4·10 ⁻³	8.5·10 ⁻³	6.6·10 ⁻³
Th-232	4.2·10 ⁻⁷	5.0·10 ⁻⁷	6.5·10 ⁻⁷
Pa-231	6.0.10 ⁻³	$5.1 \cdot 10^{-3}$	$5.1 \cdot 10^{-3}$
U-233	1.9·10 ⁻²	1.6.10 ⁻²	$1.5 \cdot 10^{-2}$
U-234	9.6·10 ⁻³	8.7·10 ⁻³	7.1.10 ⁻³
U-235	5.4.10-4	5.2.10-4	5.2.10 ⁻⁴
U-236	8.2·10 ⁻³	8.0·10 ⁻³	7.9·10 ⁻³
U-238	6.3·10 ⁻³	6.3·10 ⁻³	6.3·10 ⁻³
Np-237	1.7·10 ⁻²	1.5·10 ⁻²	1.3·10 ⁻²
Pu-239	3.3.10-14	2.1·10 ⁻¹⁵	-
Pu-242	3.6·10 ⁻³	3.0·10 ⁻³	1.5·10 ⁻³

Tabell 8.1 Maximala inflöden (Ci/år) vid några olika tidpunkter för kapselgenombrott samt med grundvattentransporttiden 400 år och fördröjningsfaktorer enligt uppsättning b.

Tabell	8.2	Maximala inflöden (Ci/år) vid några olika tidpunkter för	n
		kapselgenombrott samt med grundvattentransporttiden	
		3 000 år och fördröjningsfaktorer enligt uppsättning c.	

	Tidpunkt för	r kapselgenombrott	
Nuklid	100 000 år	500 000 år	
C-14	8.7.10 ⁻⁸		
Tc-99	1.7.10 ⁻⁵	4.7.10-6	
I-129	7.5.10-4	7.3.10-4	
Cs-135	3.0.10-4	2.8.10-4	
Ra-226	3.0·10 ⁻³	3.0.10 ⁻³	
Th-229	1.3.10-11	1.1.10 ⁻¹¹	
Th-230	3.1·10 ⁻³	9.7.10-4	
Th-232	$1.9 \cdot 10^{-7}$	2.5.10-4	
Pa-231	9.7·10 ⁻⁴	9.7.10-4	
U-233	3.9.10-12	3.3.10 ⁻¹²	
U-234	6.2·10 ⁻³	6.2·10 ⁻³	
U-235	4.7.10-4	4.5.10-4	
U-236	9.9·10 ⁻⁴	9.6.10 ⁻⁴	
U-238	6.2.10-3	6.2.10 ⁻³	
Np-237	3.3.10-12	3.0.10-12	

e

9. INVERKAN AV AVVIKANDE BETINGELSER

9.1 Allmänt

I kapitlen 4-8 redovisas beräkningsfall och parametervariationer för spridningen av avfallsnuklider genom bergtäcket. De scenarios som använts vid beräkningarna är mycket renodlade och med avseende på de flesta parametrarna pessimistiska. Det finns emellertid ett par faktorer som kan ge högre inflöden för vissa nuklider än de som ges av beräkningarna.

I detta kapitel redovisas en analys av avvikelser mellan GET-OUT-modellen och rimliga antaganden om de verkliga förhållandena. I kapitlen 2 och 3 diskuteras dessa antaganden ingående, varför endast en punktvis sammanfattning ges nedan.

- GETOUT är en endimensionell modell vilket innebär att man tänker sig allt avfall samlat i en punkt och att alla nuklider enbart rör sig i riktning mot recipientområdet.
- 2. Den dispersionskoefficient som använts vid beräkningarna gäller för laminär strömning i jämnvida kanaler. Om kanalerna har olika vidd, har olika längd eller går i olika riktningar relativt den hydrostatiska gradienten, fås en mycket bredare fördelning av uppehållstiderna för enskilda volymelement av grundvattnet.
- Alla kapslar har antagits gå sönder samtidigt och allt uran i kapslarna har antagits vara blottat för utlakning direkt efter kapselgenombrottet.
- En fraktion av nukliderna kan teoretiskt transporteras snabbare än huvuddelen som organiska komplex eller som kolloider.
- 5. Fördröjningsfaktorerna har beräknats som om alla reaktioner mellan avfallsnukliderna och berget vore reversibla, dvs alla nuklider kommer förr eller senare ut till biosfären om de är tillräckligt långlivade för att överleva transporttiden.

9.2 Inverkan av flerdimensionalitet

I ett poröst medium av typen sand eller lera strömmar grundvattnet i huvudsak i den riktning i vilken den hydrostatiska gradienten har sitt maximala värde. Strömningstiden kan för detta fall beräknas direkt ur Darcy's lag:

$$\overline{t} = \frac{L}{u} = \frac{L \cdot \varepsilon}{K_{p} \cdot i}$$
(9-1)

Spridningen i radiell led (vinkelrätt mot strömlinjerna) sker i huvudsak genom diffusion och genom lokala hastighetsfluktationer. Den radiella dispersionen torde vara betydligt lägre än den axiella (4) vid strömning genom jordar, vilket i så fall skulle innebära att en endimensionell modell kan vara adekvat för detta fall.

I berg strömmar grundvattnet i huvudsak i sprickor där vattengenomsläppligheten (permeabiliteten) normalt är flera tiopotenser högre än i det omgivande berget. Sprickorna kan löpa i olika riktningar i förhållande till den hydrostatiska gradientens huvudriktning. Detta innebär att grundvattenhastigheten i sprickor med olika riktningar kan vara mycket olika.

I ett idealiserat fall där alla sprickor antages vara raka i hela sin sträckning och saknar hydrodynamisk kontakt och där sprickorna dessutom antages ha plana och parallella väggar fås grundvattenhastigheten i en individuell spricka ur:

$$u = \frac{g}{12v} \cdot (2b)^2 \cdot i \cdot \cos \alpha \qquad (9-3)$$

där:

grundvattenhastigheten i en individuell spricka (m/s)
 ν = kinematisk viskositet (m²/s)
 2b = sprickvidd
 i = den hydrostatiska gradientens maximala värde (m/m)
 α = den individuella sprickans vinkel i förhållande till
 den riktning där den hydrostatiska gradienten har sitt
 högsta värde (radianer).

Om man känner riktningsfördelningen för sprickorna kan man ur 9-2 beräkna en uppehållstidsfördelning för grundvattnet. I en idealiserad modell kan man anta att alla sprickriktningar har samma sannolikhet. Denna modell ger följande hastighetsfördelning:

$$P = 1 - \frac{2}{\pi} \arccos\left(\frac{u}{u_{max}}\right)$$
(9-3)

där:

- P = sannolikheten för att hastigheten för ett volymelement skall vara mindre än eller lika med u
- u_{max} = den maximala grundvattenhastigheten som den fås ur 9-2 med θ = 0.

På samma sätt fås uppehållstidsfördelningen ur:

$$P = 1 - \frac{2}{\pi} \arccos \left(\frac{1}{T/T_{min}}\right)$$
 (9-4)

där:

P = sannolikheten för att uppehållstiden för ett volymelement skall vara längre än T T_{min} = den minimala uppehållstiden = $\frac{L \cdot 12 \cdot v}{q \cdot (2b)^2 \cdot i}$

Uppehållstidsfördelningen enligt ekvation 9-4 visas i figur 9-1. Av figuren framgår att 35 % av grundvattnet enligt modellen har en uppehållstid som är mer än 2 ggr så lång som den minimala uppehållstiden. Sannolikheten för uppehållstider som är mindre än den minimala är per definition noll.

I det ovanstående exemplet har en tvådimensionell strömningssituation antagits.

Sprickorna har antagits vara vertikala, raka spalter och den vertikala hastighetskomposanten har antagits vara oberoende av sprickornas riktning. Sec. 15



<u>Figur 9-1</u>: Fraktion av volymselementen som har längre uppehållstid än T som funktion av T/T_{min} vid samma sannolikhet för alla sprickriktningar.

Ċ

Den använda modellen är således mycket förenklad och resultatet tjänar endast som en demonstration av att en flerdimensionell analys ger en bredare uppehållstidsfördelning än den endimensionella. Vid den breddning av uppehållstidsfördelningen som en flerdimensionell analys ger blir den fraktion av avfallet som når recipientområdet per tidsenhet alltid lägre än vid en endimensionell analys med i övrigt samma förutsättningar förutsatt att T_{min} beräknas för en spricka i den hydrostatiska gradientens huvudriktning. Detta bör noga skiljas från den effekt som diskuterats i avsnitt 2.3, nämligén axiell dispersion på grund av att sprickornas vidd är statistiskt fördelad och som innebär att inflödet höjs vid korta tider.

Den form av flerdimensionell dispersion som analyserats ovan är inte den enda fördröjande effekten som fås vid en flerdimensionell analys. Indiffusion i slutna kaviteter är ytterligare ett exempel på effekter som kan bredda uppehållstidsfördelningen avsevärt. En annan faktor är att transporttiden från olika kapslar är olika p g a förvarets utbredning i rummet.

9.3 Inverkan av statistiskt fördelade sprickvidder

9.3.1 Allmänt

Om bergsprickorna inte har samma vidd kommer grundvattnet och de i grundvattnet lösta nukliderna att vandra olika fort i olika sprickor. I avsnitt 2 diskuteras den effekt detta har på uppehållstidsfördelningen. En uppehållstidsfördelning som anpassats till spårämnesförsök i ett uppsprucket ytberg visas i figur 2-1. I detta avsnitt redovisas vilken effekt denna uppehållstidsfördelning har på inflödena för samma två beräkningsfall, ett fall med 400 års grundvattentransporttid och fördröjningsfaktoruppsättning b samt ett fall med 3 000 års grundvattentransporttid och fördröjningsfaktoruppsättning c (för fördröjningsfaktorerna se tabell 3.2 resp 3.3). I båda fallen är utlakningstiden 500 000 år och tidpunkten för kapselgenombrottet 100 000 år. En kraftig axiell dispersion inverkar på inflödena på två sätt:

- Nuklider som avklingar kraftigt under transporten får vid kraftig dispersion ett förhöjt inflöde, eftersom transporttiden minskar för en fraktion av nukliden.
- Utlakningstiden är kort i förhållande till en nuklids transporttid och om samtidigt nukliden är tillräckligt långlivad för att överleva transporttiden vid måttlig dispersion blir det maximala inflödet lägre på grund av toppbreddning.

9.3.2 Effekten av tidigt inflöde

I fallet med 400 års transporttid för grundvattnet och fördröjningsfaktoruppsättning b är transporttiderna korta i förhållande till halveringstiderna för de flesta nukliderna som således inte påverkas enligt den första punkten ovan. Pu-239 utgör ett undantag och kan med den uppehållstidsfördelning som visas i kurva A i figur 2-1 få ett maximalt inflöde på $5 \cdot 10^{-5}$ Ci/år som skall jämföras med de 2,1 $\cdot 10^{-15}$ Ci/år i tabell 8.1. Maximumet inträffar ca 220 000 år efter kapselgenombrottet. Utan sprickviddsdispersion är plutoniums transporttid 1,1 milj år med givna data.

För fallet med 3 000 års grundvattentransporttid och uppsättning c av fördröjningsfaktorer har en analys gjorts med hjälp av uppehållstidsfördelningen enligt kurva A i figur 2-1 och den parameterstudie av grundvattentransporttidens inverkan på inflödet som redovisas i figur 5-3. Resultatet av denna analys redovisas i tabell 9.1. I tabellen tas bara de nuklider vars maximala inflöde påverkas av att en fraktion når recipienten snabbare än på medeluppehållstiden.

Tabell 9.1 Maximala inflöden (Ci/år) med och utan sprickviddsdispersion

Nuklid	Med sprickvidds- dispersion	Utan sprickvidds- dispersion
Zr-93	3·10 ⁻⁷	
Tc-99	3.10 ⁻³	1.7.10 ⁻⁵
Cs-135	7.10-4	3.0.10-4
Th-229	2·10 ⁻⁵	1.3.10-11
U-233	2·10 ⁻⁵	3.9.10 ⁻¹²
Np-237	3.10 ⁻⁵	$3.3 \cdot 10^{-12}$
Pu-242	$1 \cdot 10^{-5}$	-

9.3.3 <u>Sänkning av de maximala inflödena på grund av</u> toppbreddning

Om utlakningsprocessen pågår tillräckligt länge kommer koncentrationen av en nuklid vid transportsträckans slut att närma sig koncentrationen vid kapselväggen. Detta enligt uppehållstidsfördelningen i figur 2-1 vars randvillkor vid kapselväggen är en stegfunktion.

Om däremot upplösningstiden är begränsad kommer den maximala koncentrationen vid transportsträckans slut att vara lägre än koncentrationen vid kapselväggen. Om uppehållstidsfördelningen betecknas C, utlakningstiden med T, grundvattnets medeluppehållstid med \bar{t} och fördröjningsfaktorn med K, kan koncentrationskurvan beskrivas enligt:

$$C = C(\theta), \quad \theta < \frac{T}{\overline{t} \cdot K}$$
 (9-5a)

$$C = C(\theta) - C(\theta - \frac{T}{t \cdot K}), \quad \theta \ge \frac{T}{t \cdot K}$$
(9-5b)

där:

$$\theta = \frac{t}{\overline{t} \cdot F}$$

I figur 9-2 har det maximala värdet av C avsatts mot fördröjningsfaktorn K för utlakningstiden 500 000 år samt grundvattentransporttiden 400 år och 3 000 år (kurva A respektive kurva B).

I beräkningsfallet med 3 000 års grundvattentransporttid och fördröjningsfaktoruppsättning c blir toppsänkningen högst signifikant. För de flesta av de radiologiskt signifikanta nukliderna är den styrande modernuklidens fördröjningsfaktor omkring 20 000 (uran), vilket enligt kurva B i figur 9-2 ger en toppsänkning till mellan 2 och 3 % av de värden som beräknats med GETOUT. För cesium är fördröjningsfaktorn 4 000 i uppsättning c, vilket ger en sänkning till 7-8 % av beräknad nivå.

I fallet med 400 års grundvattentransporttid och fördröjningsfaktorerna i uppsättning b, är effekten inte fullt så stor. Uran har här fördröjningsfaktorn 1.900, vilket enligt kurva A i figur 9-2 ger maxnivån 65-70 %. För cesium, med fördröjningsfaktorn 1 200 i uppsättning b, blir nivån 80-85 % av den med GETOUT beräknade.

Vid kortare utlakningstider än 500 000 år blir toppsänkningen kraftigare än den som anges i figur 9-2, medan effekten blir mindre markant vid långa utlakningstider.





Tyvärr saknas fältdata beträffande uppehållstidsfördelningen på större djup. Man bör därför se den ovanstående analysen mest som indikation på att dispersionseffekterna i ett sprickförande medium kan vara av stor betydelse. Analysen visar också att det ligger ett stort mått av konservatism i det sätt att beräkna inflödena som använts i KBS.

9.4 Statistisk fördelning av kapslarnas livslängd

Vid beräkningarna har alla kapslar antagits gå sönder samtidigt. I avsnitt 2.6 diskuteras inverkan av en statistiskt fördelad kapsellivslängd på utlakningshastigheten. I detta avsnitt visas vilken effekt som kan förväntas på nuklidinflödena.

I kapitel 8 redovisas inverkan av tidpunkten för kapselgenombrott för två beräkningsfall. I båda fallen är utlakningstiden 500 000 år. I det ena fallet, som nedan benämns huvud-

fallet, är grundvattnets transporttid 3 000 år och fördröjningsfaktorerna i enlighet med tabell 3.3 (uppsättning c). I det andra fallet, det pessimistiska fallet, är grundvattnets transporttid 400 år och fördröjningsfaktorerna i enlighet med tabell 3.2 (uppsättning b).

Det maximala inflödet till recipientområdet är för en viss nuklid i princip direkt proportionell mot utlakningshastigheten för den styrande modernukliden om utlakningshastigheten är tillräckligt låg.

Som visas i kapitel 7 råder proportionalitet vid de långa utlakningstider som är aktuella och med de höga värden på Peclet's tal som använts vid beräkningarna.

Om kapslarnas livslängd är statistiskt fördelad blir den maximala utlakningshastigheten för bränslets grundmassa enligt avsnitt 2.6 ungefär densamma som om alla kapslarna antas gå sönder samtidigt. Maximat uppträder emellertid senare vid statistiskt fördelade kapselgenombrott (se figur 2-3).

I det följande diskuteras i huvudsak konsekvenserna av en rektangelfördelad livslängd för kapslarna. Kapslarna antages därvid gå sönder i jämn takt i intervallet 100 000 år-500 000 år efter uttaget ur reaktorn (den fördelning som visas i figur 2-3). Det bör påpekas att om tiden mellan det första och det sista kapselgenombrottet är längre än utlakningstiden (500 000 år) blir den maximala utlakningshastigheten lägre eftersom utlakningen från de kapslar som går sönder först hinner avslutas innan de sista kapslarna penetrerats.

Källstyrkorna för de flesta av de väsentliga nukliderna (eller deras styrande modernuklider) är relativt konstanta i intervallet 100 000-500 000 år, vilket, som visas i kapitel 8, innebär att en förändring av tidpunkten inte ger några dramatiska förändringar av inflödena.

Utlakningshastigheten uttryckt i curie per år kan för en nuklid med enkelt sönderfall och med den antagna kapsellivslängdsfördelningen skrivas:

$$r = (5 \cdot 10^{-8} \cdot t - 5 \cdot 10^{-3}) \cdot e^{-\lambda t} \cdot Q_0$$
 (9-6)

där:

r = utlakningshastighet (Ci/år) t = tid, 100 000 \leq t \leq 500 000 (år) λ = sönderfallskonstant Q_0 = inventarium vid t=0

Genom att derivera 9-6 och sätta derivaten till noll kan tidpunkten för maximal utlakningshastighet, t_{max} beräknas:

$$t_{max} = \frac{1}{\lambda} + 100.000 \text{ år}$$
 (9-7)

 $t_{max} \leqslant 500.000 \text{ år}$

I tabell 9.2 har tidpunkten för maximal utlakningshastighet sammanställts. I tabellen tas bara fissionsprodukterna och de väsentligaste modernukliderna med.

För de nuklider för vilka t_{max} = 500 000 år i tabellen blir det maximala inflödet detsamma som om alla kapslar går sönder vid 500 000 år (se tabell 8.1 och 8.2). Detta gäller även dessa nukliders dotterprodukter, dvs U-233, Pa-231, alla toriumisotoper och Ra-226.

De maximala inflödena för nuklider med t_{max} < 500 000 år redovisas i tabell 9.3.

Om i stället en normalfördelning enligt figur 2-3 antages för kapsellivslängden, blir de maximala inflödena lägre än i tabell 9.2 för C-l4 och Pu-239 och något högre för Tc-99.

Med rimliga ansatser beträffande den lättlösliga aktivitetens tillgänglighet för omedelbar upplösning får man ingen signifikant höjning av de maximala inflödena oavsett om en rektangel- eller en normalfördelning antages för kapsellivslängden. I fallet normalfördelad kapsellivslängd blir i själva verket inflödena något lägre än om de lättlösliga nukliderna

Nuklid	Halveri	ngstid (år)	t _{ma}	_x (år)
C-14	5.730		108	000
Tc-99	212.000		406	000
I-129	17	milj	500	000
Cs-135	3	milj	500	000
U-234	247.000		500	000 ¹⁾
U-235	710	milj	500	000
U-236	24	milj	500	000
U-238	4.510	milj	500	000
Np-237	214	milj	500	000
Pu-239	24.400		135	000
Pu-242	379.000		500	000

Tabell 9.2 Tidpunkter för maximala utlakningshastigheter vid rektangelfördelad kapsellivslängd mellan 100 000 år och 500 000 år.

1) $t_{max} = 456\ 000\ enligt\ ekv\ 9-6$, men U-234 har på grund av bildning genom U-238 sönderfall högre aktivitet vid 500 000 år

Tabell 9.3 Maximala inflöden vid rektangelfördelad kapsellivslängd

Nuklid	Pessimistiskt spridningsfall	Huvudfall	
C-14	9.1.10 ⁻¹⁰	6.6.10 ⁻¹⁰	
Tc-99	$5.9 \cdot 10^{-2}$	4.8·10 ⁻⁶	
Pu-239	1.1.10 ⁻¹⁵	-	

,

skulle lakas ut med samma hastighet som nukliderna i bränslets grundmassa (jfr figur 2-6 och 2-2). Om däremot all lättlöslig aktivitet vore tillgänglig för omedelbar upplösning vid kapselgenombrottet blir inflödena ca 25 % högre vid rektangelfördelad kapsellivslängd än vad som erhållits vid beräkningarna och vid rimliga normalfördelningar blir inflödet 2-5 ggr högre än beräkningsresultaten visar. De sistnämnda fallen är att betrakta som hypotetiska, eftersom endast i storleksordningen enstaka procent av jod och en ännu mindre fraktion av cesium är lättillgängliga för utlakning (16).

9.5 Buffertens inverkan på nuklidflödena

Den buffertzon av högkompakterad bentonit som omger avfallskapslarna har inte medtagits i beräkningarna annat än indirekt genom att diffusionsmotståndet i bufferten ingår i beräkningarna av utlakningstiden (10). Bufferten har mycket låg permeabilitet, varför den dominerande transportmekanismen är diffusion. Neretnieks (10) har visat att Sr-90, Cs-137 och Am-241 stoppas redan i bufferten på grund av fördröjningen. Det bör påpekas att dessa nuklider inte finns kvar i bränslet om kapselgenombrottet, som antagits i beräkningarna, sker vid 100 000 år.

Genom att materietransporten genom bufferten styrs av diffusion kommer koncentrationen på buffertens utsida att stiga successivt. Detta ger upphov till en "dispersionseffekt" genom att den ursprungliga branta koncentrationsprofilen i upplösningsbandets början planas ut. Om den tid det tar för en viss nuklids koncentration att växa till sitt fulla värde är längre än upplösningstiden fås en toppsänkning. Koncentrationens stigtid kan approximeras med den tid det tar för koncentrationen att växa från 5 % till 95 % av sitt fulla värde (= koncentrationen vid kapselväggen). Stigtiden beräknas då ur (10):

$$\frac{D \cdot t}{K \cdot X^2} = 0,9$$

(9-8)

där:

- D = diffusiviteten (m²/år)
 K = fördröjningsfaktorn
- X = diffusionssträckan (m)
- t = stigtiden (år)

Med D = $6 \cdot 10^{-11}$ m²/s (=1.9 $\cdot 10^{-3}$ m²/år) och X = 0,35 m fås t = 58·K år. Om upplösningstiden är 500 000 år behövs således en fördröjningsfaktor på minst 8 000-9 000 för att den maximala koncentrationen på utsidan av bufferten skall bli lägre än koncentrationen vid kapselväggen. Det finns för närvarande ingenting som tyder på att någon av de väsentliga nukliderna skulle fördröjas så kraftigt i bufferten.

Buffertens funktion ur transportsynpunkt är således främst att begränsa utlakningshastigheten och att utgöra en extra spärr mot spridning av kortlivade nuklider. För de mer långlivade nukliderna fås huvudsakligen en fördröjning av inflödet till recipientområdet med några tusen år.

9.6 Nuklidtransport med organiska komplexbildare

Två mekanismer för snabbare nuklidtransport är den som ges av grundvattentransporttiden gånger fördröjningsfaktorn har identifierats, nämligen som kolloidala partiklar i grundvattnet och som organiska komplex. Kolloidmekanismen har behandlats av Neretnieks (17). Nedan diskuteras effekten av de fulvosyror som hittats i grundvattenprover från KBS:s provborrningsområde vid Finnsjön.

Den högsta påträffade halten av fulvosyror är 0,5 mekv per liter (18). Den troligaste situationen är att en stor del av fulvosyrorna binds till naturliga joner i grundvattnet, t ex järn(II) (14). I det följande förutsättes emellertid att fulvosyrornas hela transportkapacitet finns tillgängligt för aktiniderna.

De flesta aktiniderna är fyrvärda i reducerande miljö, vilket ger dem en ekvivalentvikt på ca 60 gram per ekvivalent. Halten av organokomplex av aktiniderna skulle alltså vara ca 30 mg per liter i grundvattnet om inga andra ligander än fulvosyrorna tas i anspråk. Denna halt motsvarar knappt 3 % av den halt som använts vid beräkningarna av utlakningstiden, dvs 1 070 mg per liter (10). Utlakningstiden är omvänt proportionell mot halten och kan således minska med ca 3 % i det skisserade scenariot.

Det mest pessimistiska antagandet som kan göras är att en ekvivalent fulvosyra kan binda en mol aktinider i lösning. Detta skulle med den ovan givna halten fulvosyror innebära en förkortning av utlakningstiden med omkring ll %. Fulvosyrornas inverkan på utlakningsförloppet är alltså mycket måttlig.

Komplexbildning av avfallsnukliderna kan, på grund av att jonernas positiva laddningar som antas ge jonbytesreaktioner med berget neutraliseras, minska fördröjningsfaktorerna för en fraktion av nukliderna. I extremfallet kan fördröjningsfaktorerna slås ut helt för den komplexbundna fraktionen som i så fall vandrar med grundvattnets hastighet.

Om det vattenflöde som kan mätas upp med organiska komplex av aktinider är 1 liter per kapsel och år och om inventariet i förvaret lakas ut på 500 000 år, räcker den tillgängliga mängden fulvosyra till att binda och neutralisera 6 % av de utlakade aktiniderna om en ekvivalent räcker för att neutralisera en mol aktinid. I tabell 9.4 redovisas de maximala inflöden som erhålles om 6 % av aktiniderna vandrar med grundvattenhastigheten. Dessa flöden kommer vid samma tidpunkt som inflödet av I-129.

I tabellen tas endast de nuklider vars maximala inflöde höjs på grund av komplexbildarna med. Värdena förutsätter dessutom att torium, uran, neptunium och plutonium bildar jämnstarka fulvosyrakomplex.

Nuklid	Kapselgenombrott vid 100 000 år	Jämnt fördelad kapsellivslängd mellan 100 000 och 500 000 år
Th-299	1.7.10 ⁻⁷	3.5.10 ⁻⁴
Th-230	$1.1 \cdot 10^{-3}$	$1.4 \cdot 10^{-3}$
U-233	4.8.10-4	1.0·10 ⁻³
U-234	1.7·10 ⁻³	8.2·10 ⁻⁴
Np-237	1.2·10 ⁻³	1.0·10 ⁻³
Pu-239	2.2.10 ⁻²	1.5.10 ⁻⁵
Pu-240	$4.1 \cdot 10^{-5}$	6.9·10 ⁻⁹
Pu-242	$1.6 \cdot 10^{-3}$	7.5.10-4

Tabell 9.4 Maximala inflöden (Ci/år) av komplexbunden tungmetall till recipientområdet med utlakningstiden 500 000 år

.

,
10, MODELLERING AV LÅGSANNOLIKHETSHÄNDELSER

10.1 Initial kapselskada

På grund av kontrollåtgärder har sannolikheten bedömts vara liten för att kapslarna skall vara penetrerade redan från början (1). Av denna anledning har konsekvenserna av utlakningen från en enstaka kapsel analyserats för två fall.

Utlakningen har i båda fallen antagits starta 100 år efter uttaget ur reaktorn. Denna tidpunkt för kapselgenombrott innebär att viss hänsyn har tagits till att förvaret under deponeringsfasen har länshållits och att grundvattenströmningen därför är riktad in mot förvaret under den första tiden efter tillslutningen.

Utlakningstiden för bränslets grundmassa har satts till 500 000 år, vilket motsvarar Neretnieks värde med pessimistiska antaganden beträffande strömningssituationen i förvaret (10). Denna utlakningstid har även använts i de beräkningsfall som presenterats tidigare i denna rapport. Utlakningstiden för lättlösliga och för grundvattnet lättillgängliga nuklider, dvs de som anrikats i gapet mellan urandioxidkutsarna och zirkalloy-kapseln, har satts till 1 000 år i det ena beräkningsfallet, fall A, och till 10 år i det andra fallet, fall B.

Dessa utlakningstider innebär att all lättillgänglig och lättlöslig aktivitet löses ut under 1 000 år respektive 10 år. Neretnieks (10) anger att halveringstiden för utflödet av lättlösliga nuklider från kapseln med pessimistiska data är 500 år. Detta innebär att det tar 3 300 år att laka ut 99 % av den lättlösliga nukliden.

Den lättillgängliga fraktionen av nukliderna har satts till 10 % för jod, 1 % för cesium och 0,1 % för de övriga nukliderna. I fall A har grundvattentransporttiden 3 000 år och fördröjningsfaktoruppsättningen c använts. I fall B har grundvattnets transporttid satts till 400 år och fördröjningsfaktorerna till de värden som väljs i uppsättning b.

Indata till de båda beräkningsfallen sammanfattas i tabell 10.1. I tabellerna 10.2 och 10.3 har resultatet av de båda beräkningsfallen sammanställts.

Tabell 10.1 Indata till "initial" kapselskada

	Värde					
Parameter	Fall A	Fall B				
Tidpunkt för kapselgenombrott (år efter uttaget ur reaktorn)	100	100				
Utlakningstid för grundmassan (år)	500 000	500.000				
Utlakningstid för spaltaktivitet (år) ¹)	1 000	10				
Grundvattentransporttid (år)	3 000	400				
Fördröjningsfaktorer	tabell 3.3	tabell 3.2				
Bränslemängd (ton U)	1.4	1.4				

Spaltaktiviteten utgöres av: 10 % av jod-, 1 % av cesium- och
 0,1 % av övriga nukliders inventarier.

and a submitted	Spaltaktiv	/itet	Grundmassa	3	Totalt	and we we set as whether the first set of the
Nuklid	C _{max}	T _{max}	C _{max}	Tmax	C _{max}	T _{max}
C-14	9.9.10 ⁻⁷	3.1.10 ³	2.8·10 ⁻⁶	3.2·10 ³	3.7.10 ⁻⁶	3.2·10 ³
Tc-99	1.3.10-10	2.9.10 ⁶	3.3·10 ⁻⁹	2.9.10 ⁶	3.4·10 ^{~9}	2.4.10 ⁶
I-129	3.8·10 ⁻⁶	3.2.10 ³	9.5.10 ⁻⁸	3.2-10 ³	$3.8 \cdot 10^{-6}$	3.2°10 ³
Cs-135	4.0.10~9	1.2.107	4,4·10 ⁻⁸	1.2.107	4.8.10 ⁻⁸	1.2.107
Ra-226	1.9.10 ⁻⁹	6.9.10 ⁷	4.2·10 ⁻⁷	6.9.107	$4.2 \cdot 10^{-7}$	6.9 [.] 10 ⁷
Th-230	2.0°10 ⁻⁹	6.9.107	$4.4 \cdot 10^{-7}$	6.9°10 ⁷	4.4·10 ⁻⁷	6.9 [.] 10 ⁷
Th-232	1.3-10-14	1.4·10 ⁸	1.9.10-11	1.4.10 ⁸	1.9.10-11	1.4.108
Pa-231	1.1.10 ⁻⁹	6.9·10 ⁷	$1.4 \cdot 10^{-7}$	6.9.107	$1.4 \cdot 10^{-7}$	6.9·10 ⁷
U-234	1.4·10 ⁻⁹	6.9·10 ⁷	8.7.10 ⁻⁷	6.9.107	8.7.10-7	6.9·10 ⁷
U-235	1.6.10-10	6.9°10 ⁷	6,8°10 ⁻⁸	6.9.10 ⁷	6.8.10 ⁻⁸	6.9.10 ⁷
U-238	1.7.10-10	6.9.10 ⁷	8.7.10 ⁻⁷	6.9.107	8.7.10 ⁻⁷	6.9°10 ⁷

,

Tabell 10.2 Maximala nuklidinflöden (Ci/år) och tidpunkter för maxima (år) vid initial kapselskada, fall A

	Spaltakti	vitet	Grundmass	a	Totalt	
Nuklid	C _{max}	T _{max}	C _{max}	T _{max}	C _{max}	T _{max}
C-14	1.4.10-4	5.1.10 ²	3.8·10 ⁻⁶	5.2·10 ²	1.4.10-4	5.1.10 ²
Zr-93	4.6.10 ⁻⁸	1.9·10 ⁶	2.1·10 ⁻⁶	1.9.10 ⁶	2.1·10 ⁻⁶	1.9·10 ⁶
Tc-99	1.4·10 ⁻³	5.1·10 ²	4.0.10 ⁻⁵	5.2·10 ²	$1.4 \cdot 10^{-3}$	5.1·10 ²
I-129	3.8·10 ⁻⁴	5.1.10 ²	1.1.10 ⁻⁷	5.2·10 ²	3.8·10 ⁻⁴	5.2.10 ²
Cs-135	5.4·10 ⁻⁷	4.8·10 ⁵	6.3·10 ⁻⁷	4.9.10 ⁵	8.7·10 ⁻⁷	4.8.10 ⁵
Ra-226	6.2.10 ⁻⁸	7.6·10 ⁵	2.5·10 ⁻⁶	8.2.10 ⁵	2.5·10 ⁻⁶	8.2·10 ⁵
Th-229	2.5·10 ⁻⁸	8.0.10 ⁵	2.4·10 ⁻⁶	8.1.10 ⁵	2.4·10 ⁻⁶	8.1·10 ⁵
Th-230	9.9.10 ⁻⁷	7.6·10 ⁵	1.3·10 ⁻⁶	8.2·10 ⁵	1.3·10 ⁻⁶	8.2·10 ⁵
Th-232	5.0.10-13	8.4·10 ⁵	5.7.10-11	1.3.10 ⁶	5.7.10-11	1.3·10 ⁶
Pa-231	5.0.10 ⁻⁹	7.6·10 ⁵	8.4·10 ⁻⁷	7.8.10 ⁵	8.4·10 ⁻⁷	7.8.10 ⁵
U-233	8.9·10 ⁻⁷	8.1·10 ⁵	2.7·10 ⁻⁶	8.2·10 ⁵	2.8·10 ⁻⁷	8.2·10 ⁵
U-234	4.9·10 ⁻⁷	7.7.10 ⁵	1.3·10 ⁻⁶	7.8·10 ⁵	1.7·10 ⁻⁶	7.8.10 ⁵
U-235	3.5·10 ⁻⁹	7.6.10 ⁵	7.6.10 ⁻⁸	8.1.10 ⁵	7.9.10 ⁻⁹	8.1.10 ⁵
U-236	9.6.10 ⁻⁸	7.7·10 ⁵	1.2·10 ⁻⁶	7.8.10 ⁵	1.3.10 ⁻⁶	7.8.10 ⁵
U-238	4.7·10 ⁻⁸	7.6.10 ⁵	8.8·10 ⁻⁷	7.8.10 ⁵	8.8·10 ⁻⁷	7.8·10 ⁵
Np-237	1.6·10 ⁻⁶	8.0·10 ⁵	2.4·10 ⁻⁶	8.3·10 ⁵	3.0·10 ⁻⁶	8.3·10 ⁵
Pu-242	1.9·10 ⁻⁸	1.1·10 ⁶	5.1·10 ⁻⁷	1.2·10 ⁶	5.1·10 ⁻⁷	1.1-10 ⁶

Tabell 10.3 Maximala nuklidinflöden (Ci/år) och tidpunkter för maxima (år) vid initial kapselskada, fall B.

10.2 Större bergrörelser

Bergrörelser av en sådan omfattning att kapslarna påverkas har en ytterst låg sannolikhet (l). Resultatet, om en bergrörelse trots allt sker kan vara att några kapslar punkteras samtidigt som vattenflödet lokalt kan öka. Ökningen av vattenflödet ger en snabbare utlakning, eftersom filmmotståndet vid utdiffusionen från det bentonitfyllda deponeringshålet till det förbiströmmande vattnet påverkas (10).

Med pessimistiska antaganden beträffande vattenflöde och sprickighet runt deponeringshålet har Neretnieks beräknat utlakningstiden till 500 000 år (10). Om filmmotståndet helt försvann skulle detta beräkningsfall istället ge 185 000 års utlakningstid. Sprickavstånd och porositet i den del av berget som närmast omger borrhålen med kapslarna kan vid bergrörelser förändras. Härigenom förändras geometrin för diffusionen genom bentoniten i borrhålen, vilket i sin tur innebär att diffusionsmotståndet i borrhålet kan minska.

I detta avsnitt presenteras ett beräkningsfall där 10 kapslar antagits skadas av en bergrörelse. Utlakningstiden har satts till 50 000 år, dvs en tiondel av den utlakningstid som använts i de övriga beräkningsfallen.

Tidpunkten för kapselgenombrott har satts till 1 000 år, grundvattnets transporttid till 100 år och fördröjningsfaktorerna har antagits motsvara uppsättning b (se tabell 3.2). Resultat redovisas i tabell 10.4.

Nuklid	C _{max}	T _{max}	999-999-9999-9999-9999-9999-9999-9999-9999
C-14	3.6.10-4	1.1.10 ³	an y Californi e gan e e gan e e gan e e gan e e de gan e e de gan e e de gan e de gan e e de gan e e de gan e
Zr-93	4.2.10-4	4.9.105	
Tc-99	4.0.10 ⁻³	1.1.10 ³	
I-129	1.1.10 ⁻⁵	1.1.10 ³	
Cs-135	6.7.10 ⁻⁵	1.2.10 ⁵	
Ra-226	5.7.10-4	2.1.10 ⁵	
Th-229	1.9.10-4	2.4.105	
Th-230	2.8.10-4	2.2.105	
Pa-231	1.4·10 ⁻⁵	1.9·10 ⁵	
U-233	2.0.10-4	2.4.105	
U-234	3.2.10-4	1.9.10 ⁵	
U-235	7.6.10 ⁻⁶	2.3.10 ⁵	
U-236	1.2.10-4	2.0.10 ⁵	
U-238	8.8.10 ⁻⁵	1.9.10 ⁵	
Np-237	3.0.10-4	2.0.10 ⁵	
Pu-239	2.3.10 ⁻⁵	2.9.10 ⁵	
Pu-242	2.5.10-4	2.9.10 ⁵	

Tabell 10.4 Maximala inflöden (Ci/år) och tidpunkter för maxima (år) vid modellering av bergrörelse. 70

11. AKTIVITETSSPRIDNING FRÅN BRÄNSLETS METALLDELAR

De metalldelar som ingår som konstruktionsdetaljer i bränsleelementen har under neutronbestrålningen i reaktorhärden aktiverats. Källstyrkorna har beräknats med ORIGEN (3).

De legeringar som ingår i bränsleelementen är zirkalloy, inconel och rostfritt stål. Dessa förvaras i betongkuber på 300 meters djup (1). Neretnieks (21) har visat upplösningstiden för inconel på grund av löslighetsberäkningar blir minst 2,5 miljoner år. Motsvarande beräkningar har inte gjorts för zirkalloy och rostfritt stål. Eftersom utlakning av calciumhydroxid m m från betongen ger ett högt pH-värde i förvaret och eftersom både zirkonium och järn har starkt begränsade lösligheter i alkalisk miljö, förefaller det rimligt att anta att det tar åtminstone 10 000 år att lösa upp all zirkalloy och rostfritt stål.

De nuklider som är tillräckligt långlivade för att kunna ge några utsläpp till recipientområdet är C-14, Ni-59 och Zr-93 (halveringstider 5 730 år, 80 000 år respektive 1,5 miljoner år). Av dessa förekommer C-14 och Zr-93 framför allt i zirkalloy och Ni-59 i inconel.

Förutom de nämnda nukliderna finns signifikanta mängder av Co-60 (halveringstid 5,25 år) och Ni-63 (halveringstid 92 år). Dessa är emellertid så kortlivade att de avklingar under transporten.

I tabell 10.5 har de maximala inflödena sammanställts. Tabellen tar även upp de ingångsdata som använts vid beräkningarna. Som en jämförelse visas även de inflöden som fås om transporttiden sätts till noll. Inflödena i tabell 10.5 har beräknats som om ren plug-flow rådde, dvs ingen hänsyn har tagits till dispersionen.

Nuklid	t inflöde utan av- kling- ning
C-14	0.3
Ni-59 Zr-93	¹² 0.01 ⁵ 0.1
Zr-93	⁵ 0

Tabell 10.5 Maximala inflöden (Ci/år) av väsentliga nuklider i bränslets metalldelar. Grundvattnets transporttid är 400 år.

1) Se tabell 3.3.

ę

72

Referenser

- Kärnbränslecykelns slutsteg. Använt bränsle.
 KBS II (1978).
- 2. KJELLBERG N: Källstyrkor i utbränt bränsle och högaktivt avfall från en PWR beräknade med ORIGEN. KBS teknisk rapport 1 (AB Atomenergi 77-04-05).
- 3. KJELLBERT N: Neutroninducerad aktivitet i bränsleelementdetaljer. Studsvik arbetsrapport SM-78/4, 1978-03-30.
- 4. LESTER D H, JANSEN G, BURKHOLDER H C: Migration of Radionuclide Chains Through an Adsorbing Medium. AICHE symposium series No 152, 71 (1975), 202.
- 5. BURKHOLDER H C, CLONINGER M O, BAKER D A, JANSEN G: Incentives for Partitioning High-Level Waste. BNWL-1972 (nov 1975).
- 6. GRUNDFELT B: Translation and Development of the BNWL-Geosphere Model. KBS teknisk rapport 10 (KEMAKTA Konsult AB 77-02-05).
- 7. GRUNDFELT B: Transport av radioaktiva ämnen med grundvattnet från ett bergförvar. KBS teknisk rapport 43 (KEMAKTA Konsult AB 77-12-13).
- 8. LANDSTRÖM O, KLOCKARS C-E, HOLMBERG K-E, WESTERBERG S: Fältförsök rörande spårämnens transport med grundvatten i sprickförande berggrund. SGU 77/3 (1977).
- 9. NERETNIEKS I: Retardation of Escaping Nuclides from a Final Depository. KBS teknisk rapport 30 (KTH 1977-09-14).

- 10. NERETNIEKS I: Transport of Oxidants and Radionuclides Through a Clay Barrier. KBS teknisk rapport 79 (KTH 1978-02-20).
- 11. ANDERSSON K, NERETNIEKS I: Utdiffusion av svårlösliga nuklider ur kapsel efter kapselgenombrott. KBS teknisk rapport 80 (KTH 1978-03-07).
- 12. Koppar som kapslingsmaterial för icke upparbetat kärnbränsleavfall. Bedömning ur korrosionssynpunkt. KBS teknisk rapport 90 (Korrosionsinstitutet 1978-03-31).
- 13. ALLARD B, KIPATSI H, RYDBERG I: Sorption av långlivade radionuklider i lera och berg. Del 1. KBS teknisk rapport 55 (CTH 1977-10-10).
- 14. ALLARD B, KIPATSI H, TORSTENFELT B: Sorption av långlivade radionuklider i lera och berg. Del 2. KBS teknisk rapport 98 (CTH 1978-04-20).
- 15. BURKHOLDER H C, CLONINGER M O: The Reconcentration Phenomenon of Radionuclide Chain Migration. BNWL-SA-5786 (1976).
- 16. DEVELL L, HESSBÖL R: Lakningsbar spaltaktivitet. KBS teknisk rapport 109 (AB Atomenergi).
- 17. NERETNIEKS I: Some Aspects on Colloids as a means for Transporting Radionuclides. KBS teknisk rapport 103 (KTH).

18. JACKS G:

Groundwater Chemistry at Depth in Granites and Gneisses. KBS teknisk rapport 88.

19. PACES T:

Chemical Equilibria and Zoning of Subsurface Water from Jachymov ore Deposit, Czeckoslovakia. Geochimica et cosmochimica Acta <u>33</u> (1969), 591.

- 20. BERGMAN R, BERGSTRÖM U, EVANS S: Dos och dosinteckning från grundvattenburna radioaktiva ämnen vid slutförvaring av använt kärnbränsle. KBS teknisk rapport 100 (AB Atomenergi).
- 21. NERETNIEKS I, ANDERSSON K: Utläckning av Ni-59 från ett bergförvar. KBS teknisk rapport 101 (KTH 1978-04-24).

-

KAL	LSTYRKA	(Ci	/ton	U)	I	UTBRANT	KARNBRANSLE
-----	---------	-----	------	----	---	---------	-------------

		Tid ef	ter utta	aget ur re	aktorn (år)
Nuklid	Halverings- tid (år)	0	3 000	100 000	500 000
C-14 Sr-90	5 730 28.1	$1.45 \cdot 10^{0}_{4}$ 7.62 · 10 ⁴	1.00.100	8.09.10-6	-
Zr-93	1.5 mili	$1.86 \cdot 10^{0}$	$1.86 \cdot 10^{0}$	$1.78 \cdot 10^{0}$	$1.47 \cdot 10^{0}$
Tc-99	212 000	$1.43 \cdot 10^{1}$	$1.42 \cdot 10^{1}$	$1.03 \cdot 10^{1}$	2.79.10 ⁰
I-129	17 mil.i	$3.75 \cdot 10^{-2}$	3.79.10 ⁻²	$3.64 \cdot 10^{-2}$	$3.67 \cdot 10^{-2}$
Cs-135	3 milj	2.51.10-1	2.52.10-1	2.46.10-1	2.24.10-1
Cs-137	30.2	1.09·10 ⁵	_	-	-
Ra-226	1 600	1.12·10 ⁻⁸	2.48·10 ⁻³	8.95·10 ⁻¹	7.93·10 ⁻¹
Th-229	7 340	2.80·10 ⁻⁸	$1.46 \cdot 10^{-3}$	3.78·10 ⁻¹	8.10·10 ⁻¹
Th-230	80 000	1.38·10 ⁻⁵	4.37·10 ⁻²	8.95·10 ⁻¹	7.90·10 ⁻¹
Th-232	14 100 milj	2.13·10 ⁻¹	4.29·10 ⁻⁸	2.02·10 ⁻⁶	9.90·10 ⁻²
Pa-231	32 500	1.97·10 ⁻⁵	9.62·10 ⁻⁴	2.10.10-2	2.59·10 ⁻²
U-232	73.6	5.41·10 ⁻³	5.98·10 ⁻¹⁵	-	-
U-233	162 000	4.16·10 ⁻⁵	1.24.10 ⁻²	3.78·10 ⁻¹	8.12·10 ⁻¹
U-234	247 000	$6.72 \cdot 10^{-1}$	1.74·10 ⁰	1.40·10 ⁰	6.57·10 ⁻¹
U-235	710 milj	$1.48 \cdot 10^{-2}$	1.57·10 ⁻²	2.55 [.] 10 ⁻²	2.59 [.] 10 ⁻²
U-236	23.9 milj	2.71.10-1	3.09·10 ⁻¹	4.11.10-1	4.02·10 ⁻¹
U-238	4 510 milj	3.15·10 ⁻¹	3.15.10-1	3.15.10-1	3.15 [.] 10 ⁻¹
Np-237	2.14 milj	3.28.10-1	$1.12 \cdot 10^{0}$	1.07.10 ⁰	8.72·10 ⁻¹
Pu-238	86.	2.78·10 ³	8.39·10 ⁻⁶	-	-
Pu-239	24 400	3.18·10 ²	2.99·10 ²	1.95.10	2.21.10-4
Pu-240	6 580	$4.90 \cdot 10^2$	3.66.102	$1.75 \cdot 10^{-2}$	3.56·10 ⁻⁹
Pu-241	13.2	1.10.105	3.36.10-1	9.85·10 ⁻⁵	-
Pu-242	379 000	$1.53 \cdot 10^{0}$	$1.52 \cdot 10^{0}$	$1.27 \cdot 10^{0}$	6.14.10
Pu-244	80 milj	2.21.10	2.70.10-11	8.20.10-10	3.61.10-9
Am-241	458	7.78.10	3.25.10	$1.04 \cdot 10^{-4}$	-
Am-242M	152	8.36.10	9.56.10	-	-
Am-243	7 370	2.10.10	1.61.10	2.44·10 ⁻³	-
Cm-242	0.447	3.45.104	7.84·10 ⁻⁶	-	-
Cm-243	32	3.96·10 ⁰	-	- 10	-
Cm-244	17.6	3.00.103	3.51.10-14	$1.07 \cdot 10^{-12}$	-
Cm-245	9 300	4.32.10-1	3.36.10	9.83·10 ⁻⁵	-
Cm-246	5 500	9.20.10-2	5.92.10-2	3.74·10 ⁻⁸	-

BERAKNINGSLOGIK I SUNDERFALLSKEDJORNA

Vid beräkningar av sönderfallskedjefragment med fler än tre nukliders längd har två approximationer tillgripits:

- RADIOAKTIV JAMVIKT: då en dotternuklid har avsevärt kortare halveringstid än modernukliden uppstår så småningom en jämviktssituation där dotternukliden sönderfaller lika fort som den bildas.
- 2) KORTLIVAD MODERNUKLID: då dotternukliden har avsevärt längre halveringstid än modernukliden och modernuklidens halveringstid är kort i förhållande till utlakningstiden kan man ansätta att modernukliden avklingar helt i avfallskapseln.

För Th-230 och Ra-226 har en speciallösning tillgripits vid beräkningen av bidragen från U-238. Inventariet av U-238 i avfallet har delats upp i två pseudo-inventarier av U-234 m h a sönderfallsekvationen för en tvånuklidkedja. På detta sätt har den formella kedjelängden kunnat förkortas med en nuklid, dvs Ra-226 från U-238 har kunnat beräknas som skillnaden mellan bidragen från två fiktiva trenuklidkedjor och Th-230 från U-238 som skillnaden mellan två fiktiva tvånuklidkedjor.

I bifogade figurer redovisas i detalj hur beräkningarna av sönderfallskedjorna har gått till. I figurerna benämnes kedjefragment med 1, 2 resp 3 nuklider med SINGLE, DOUBLE och TRIPLE efter de subrutiner i GETOUT där beräkningen sker. De använda speciallösningarna har benämnts APPROX 1 (radioaktiv jämvikt), APPROX 2 (kortlivad modernuklid) och PSEUDO (uppdelning av U-238 inventariet på två pseudo-inventarier av U-234).

Beräkningslogik för 4N-kedjan



<u>Cm-244</u>	från	Cm-244:	SINGLE		<u>Th-232</u>	från	Cm-244:	TRIPLE (Th-232
<u>Pu-240</u>	från	Cm-244:	DOUBLE					APPROX 2)
	från	Pu-244:	försummas av Pu-244 litet)	(inventariet är mycket		från	Pu-244:	försummas (se ovan)
Pu-244	från	Pu-244:	SINGLE			från	Pu-240:	TRIPLE
	från	Pu-240:	SINGLE			från	U-236:	DOUBLE
U-236	från	Cm-244:	TRIPLE			från	Th-232:	SINGLE
	från	Pu-244:	försummas		<u>U-232</u>	från	U-232:	SINGLE
			(se ovan)		<u>Th-228</u>			= Th-232 (hal-
	från	Pu-240:	DOUBLE					veringstiden för
	från	U-236:	SINGLE					mindre än för Th-232 och inven- tariet av U-232 är litet)

•

.

Cm-245
Pu-241
Am-241
Np-237
U-233
Ļ
Th-229

Berakningslogik for 4N + I-Kedja	för 4N + 1-kedj	r 4N		logi	ngsl	i	räkn	Be
----------------------------------	-----------------	------	--	------	------	---	------	----

<u>Cm-245</u> Pu-241	från från	Cm-245: Cm-245:	SINGLE försummas p g a kort halveringstid för Pu-241	<u>U-233</u> f	från (Cm-245:	TRIPLE (halve- ringstiderna för Pu-241 och Am-241 < <halverings- tiden för Cm-245)</halverings-
	från	Pu-241:	SINGLE	f	från l	Pu-241:	TRIPLE (U-233
<u>Am-241</u>	från	Cm-245:	DOUBLE (halverings- tiden för Pu-241				från Am-241 med APPROX 2)
			< <halveringstiden för Cm-245)</halveringstiden 	f	från <i>l</i>	Am-241:	TRIPLE
	ศักลิก	Dr. 241.		f	från l	Vp-237:	DOUBLE
	från	Δm-241.	SINGLE	f	från l	J-233:	SINGLE
Np-237	från	Cm-245:	DOUBLE (halverings- tiderna för Pu-241 och Am-241≪halve- ringstiden för Cm-245)	<u>Th-229</u>	från	Cm-245:	försummas (inven- tariet av Cm-245 <<än inventarier- na av Np-237 och Am-241)
	från	Pu-241:	försummas (inventariet av Pu-241 << inventariet för Am-241)	f c	från I och Ar	°u-241 n-241∶	TRIPLE (Th-229 från Np-237 med
	trăn	Am-241:	DOUBLE		~ 0 1		APPRUX 2)
				†	tran I	vp-23/:	IKIPLE
				f	från l	Jp233:	DOUBLE
				f	från ⁻	Th-229:	SINGLE

,



Am-242M	från	Am-242M:	SINGLE		från	Pu-242:	försummas (inven-
<u>Cm-242</u>	från	Am-242M:	försummas (både moder- och dotternuklid har korta halveringstider				tariet av Pu-242 Kinventariet av U-238)
			och höga fördröjnings-		från	U-238:	DOUBLE
	fria	Em- 212.	SINCLE		från	U-234:	SINGLE
D. 220	1100	LIII-242;		Th-230	från	Th-230:	SINGLE
10-130	tran	AVII-24211;	tiden för Cm-242		från	U-234:	DOUBLE
			≪halveringstiden		från	U-238:	DOUBLE (med PSEUDO)
	från	Cm-242:	försummas (inventariet		från	Pu-242:	DOUBLE (U-238 från Pu-242 med APPROX 1)
		_	av Cm-242 «inventarierna av Pu-238 och Am-242M)		från Cm-246	Cm-246:	fórsummas (se U-238 från Cm-246)
	från	Pu-238:	SINGLE		från	Pu-238:	TRIPLE
Cm-246	från	Cm-246:	SINGLE		från	Cm-242:	TRIPLE (Th-230 fran
Pu-242	från	Cm-246:	DOUBLE				Pu-238 med APPROX 2)
	från	Pu-242:	SINGLE		från	Am-242M:	TRIPLE (halve-
<u>U-238</u>	från Cm-246:	försummas (inventariet av Cm-246≪inventariet av U-238)				Cm-242 och Pu-238 <halveringstiden för Am-242M</halveringstiden 	
	från	Pu-242:	DOUBLE	Ra-226	från	Ra-226.	SINGLE
	från	U-238:	SINGLE		från	Th-230-	DOUBLE
<u>U-234</u>	från	Am-242M:	DOUBLE (halveringstider-		frin	11-234.	TRIPIE
			na för Cm-242 och Pu-238 < halveringstiden för		från	11-238.	TRIPLE (mod PSEUDA)
			Am-242M)		1101	Du-210.	DOURLE (11-228 fran
	från	Cm-242:	DOUBLE (U-234 från		11 011	10-242.	Pu-242 med APPROX 1)
1	från	Pu-238:	238: DOUBLE		från	Cm-246:	försunmas (se U-238 från Cm-246)
	från	rån Cm-246: försummas (se U-238 från Cm-246)		från Cm-24 Am-24	Pu-238, 2 och 2M:	TRIPLE (Ra-226 från U-234 med APPROX 2)	



<u>Am-243</u>	från	Am-243:	SINGLE
<u>Cm-243</u>	från	Cm-243:	SINGLE
<u>Pu-239</u>	från	Am-243:	DOUBLE
	från	Cm-243:	DOUBLE
	från	Pu-239:	SINGLE
<u>U-235</u>	från	Am-243:	TRIPLE

.

	från Cm-243:	försummas (inventa- riet av Cm-243 är litet i förhållande till inventariet av Am-243)
	från Pu-239:	DOUBLE
	från U-235:	SINGLE
<u>Pa-231</u>	från Am-243 och Cm-243:	TRIPLE (Pa-231 från Pu-239 med APPROX 2)
	från Pu-239:	TRIPLE
	från U-235:	DOUBLE
	från Pa-231:	SINGLE

01	Kallstyrkor i utbrant bränsle och högaktivt avfall från en PWR beräknade med ORIGEN Nils Kjellbert AB Atomenergi 77-04-05
02	PM angående värmeledningstal hos jordmaterial Sven Knutsson Roland Pusch Högskolan i Luleå 77-04-15
03	Deponering av högaktivt avfall i borrhål med buffertsubstans Arvid Jacobsson Roland Pusch Högskolan i Luleå 77-05-27
04	Deponering av högaktivt avfall i tunnlar med buffertsubstans Arvid Jacobsson Roland Pusch Högskolan i Luleå 77-06-01
05	Orienterande temperaturberäkningar för slutförvaring i berg av radioaktivt avfall, Rapport 1 Roland Blomqvist AB Atomenergi 77-03-17
06	Groundwater movements around a repository, Phase I, State of the art and detailed study plan Ulf Lindblom Hagconsult AB 77-02-28
07	Resteffekt studier för KBS Del 1 Litteraturgenomgång Del 2 Beräkningar Kim Ekberg Nils Kjellbert Göran Olsson AB Atomenergi 77-04-19
08	Utlakning av franskt, engelskt och kanadensiskt glas med

08 Utlakning av franskt, engelskt och kanadensiskt glas med högaktivt avfall Göran Blomqvist AB Atomenergi 77-05-20

- 09 Diffusion of soluble materials in a fluid filling a porous medium Hans Häggblom AB Atomenergi 77-03-24
- 10 Translation and development of the BNWL-Geosphere Model Bertil Grundfelt Kemakta Konsult AB 77-02-05
- 11 Utredning rörande titans lämplighet som korrosionshärdig kapsling för kärnbränsleavfall Sture Henriksson AB Atomenergi 77-04-18
- 12 Bedömning av egenskaper och funktion hos betong i samband med slutlig förvaring av kärnbränsleavfall i berg Sven G Bergström Göran Fagerlund Lars Rombén Cement- och Betonginstitutet 77-06-22
- 13 Urlakning av använt kärnbränsle (bestrålad uranoxid) vid direktdeponering Ragnar Gelin AB Atomenergi 77-06-08
- 14 Influence of cementation on the deformation properties of bentonite/quartz buffer substance Roland Pusch Högskolan i Luleå 77-06-20
- 15 Orienterande temperaturberäkningar för slutförvaring i berg av radioaktivt avfall Rapport 2 Roland Blomquist AB Atomenergi 77-05-17
- 16 Översikt av utländska riskanalyser samt planer och projekt rörande slutförvaring Åke Hultgren AB Atomenergi augusti 1977
- 17 The gravity field in Fennoscandia and postglacial crustal movements Arne Bjerhammar Stockholm augusti 1977
- 18 Rörelser och instabilitet i den svenska berggrunden Nils-Axel Mörner Stockholms Universitet augusti 1977
- 19 Studier av neotektonisk aktivitet i mellersta och norra Sverige, flygbildsgenomgång och geofysisk tolkning av recenta förkastningar Robert Lagerbäck Herbert Henkel Sveriges Geologiska Undersökning september 1977

	20	Tektonisk analys av södra Sverige, Vättern – Norra Skåne Kennert Röshoff Erik Lagerlund	
		Lunds Universitet och Högskolan Luleå september 1977	
•	21	Earthquakes of Sweden 1891 - 1957, 1963 - 1972 Ota Kulhánek Putror Vablatrizz	
		Uppsala Universitet september 1977	
	22	The influence of rock movement on the stress/strain situation in tunnels or bore holes with radioactive con- sisters embedded in a bentonite/quartz buffer mass Roland Pusch Högskolan i Luleå 1977-08-22	
	23	Water uptake in a bentonite buffer mass A model study Roland Pusch Högskolan i Luleå 1977-08-22	
	24	Beräkning av utlakning av vissa fissionsprodukter och akti- nider från en cylinder av franskt glas Göran Blomqvist AB Atomenergi 1977-07-27	
	25	Blekinge kustgnejs, Geologi och hydrogeologi Ingemar Larsson KTH Tom Lundgren SGI Ulf Wiklander SGU Stockholm, augusti 1977	
•	26	Bedömning av risken för fördröjt brott i titan Kjell Pettersson AB Atomenergi 1977-08-25	· · · · ·
. ·	27	A short review of the formation, stability and cementing properties of natural zeolites Arvid Jacobsson Högskolan i Luleå 1977-10-03	• .* .*
	28	Värmeledningsförsök på buffertsubstans av bentonit/pitesilt Sven Knutsson Högskolan i Luleå 1977-09-20	
	29	Deformationer i sprickigt berg Ove Stephansson Högskolan i Luleå 1977-09-28	
	30	Retardation of escaping nuclides from a final depository Ivars Neretnieks Kungliga Tekniska Högskolan Stockholm 1977–09–14	、
	31	Bedömning av korrosionsbeständigheten hos material avsedda för kapsling av kärnbränsleavfall. Lägesrapport 1977–09–27 samt kompletterande yttranden. Korrosionsinstitutet och dess referensgrupp	

`

. . .

- 32 Egenskaper hos bentonitbaserat buffertmaterial Arvid Jacobsson Roland Pusch Högskolan i Luleå 1978-06-10
- 33 Required physical and mechanical properties of buffer masses Roland Pusch Högskolan i Luleå 1977-10-19
- 34 Tillverkning av bly-titan kapsel Folke Sandelin AB VBB ASEA-Kabel Institutet för metallforskning Stockholm november 1977
- 35 Project for the handling and storage of vitrified highlevel waste Saint Gobain Techniques Nouvelles October, 1977

36 Sammansättning av grundvatten på större djup i granitisk berggrund Jan Rennerfelt Orrje & Co, Stockholm 1977-11-07

- 37 Hantering av buffertmaterial av bentonit och kvarts Hans Fagerström, VBB Björn Lundahl, Stabilator Stockholm oktober 1977
- 38 Utformning av bergrumsanläggningar Alf Engelbrektson, VBB Arne Finné, KBS Stockholm december 1977
- 39 Konstruktionsstudier, direktdeponering ASEA-ATOM Västerås
- 40 Ekologisk transport och stråldoser från grundvattenburna radioaktiva ämnen Ronny Bergman Ulla Bergström Sverker Evans AB Atomenergi 1977-12-20
- 41 Säkerhet och strålskydd inom kärnkraftområdet. Lagar, normer och bedömningsgrunder Christina Gyllander Siegfried F Johnson Stig Rolandson AB Atomenergi och ASEA-ATOM 1977-10-13

- 42 Säkerhet vid hantering, lagring och transport av använt kärnbränsle och förglasat högaktivt avfall Ann-Margret Ericsson Kemakta november 1977
- 43 Transport av radioaktiva ämnen med grundvatten från ett bergförvar Bertil Grundfelt Kemakta november 1977
- 44 Beständighet hos borsilikatglas
 Tibor Lakatos
 Glasteknisk Utveckling AB
- 45 Beräkning av temperaturer i ett envånings slutförvar i berg för förglasat radioaktivt avfall Rapport 3 Roland Blomquist AB Atomenergi 1977-10-19
- 46 Temperaturberäkningar för slutförvar för använt bränsle Taivo Tarandi
 Vattenbyggnadsbyrån Stockholm 1978
- 47 Teoretiska studier av grundvattenrörelser John Stokes Roger Thunvik Inst för kulturteknik KTH maj 1978
- 48 The mechanical properties of the rocks in Stripa, Kråkemåla,Finnsjön and Blekinge Graham Swan Högskolan i Luleå 1977-09-14
- Bergspänningsmätningar i Stripa gruva
 Hans Carlsson
 Högskolan i Luleå 1977-08-29
- 50 Lakningsförsök med högaktivt franskt glas i Studsvik Göran Blomqvist AB Atomenergi november 1977
- 51 Seismotechtonic risk modelling for nuclear waste disposal in the Swedish bedrock F Ringdal H Gjöystdal E S Husebye Royal Norwegian Council for scientific and industrial research
- 52 Calculations of nuclide migration in rock and porous media, penetrated by water H Häggblom AB Atomenergi 1977-09-14
- 53 Mätning av dissusionshastighet för silver i lera-sandblandning Bert Allard Heino Kipatsi Chalmers tekniska högskola 1977-10-15

54 Groundwater movements around a repository

- 54:01 Geological and geotechnical conditions Håkan Stille Anthony Burgess Ulf E Lindblom Hagconsult AB september 1977
- 54:02 Thermal analyses Part 1 Conduction heat transfer Part 2 Advective heat transfer Joe L Ratigan Hagconsult AB september 1977
- 54:03 Regional groundwater flow analyses Part 1 Initial conditions Part 2 Long term residual conditions Anthony Burgess Hagconsult AB oktober 1977
- 54:04 Rock mechanics analyses Joe L Ratigan Hagconsult AB september 1977
- 54:05 Repository domain groundwater flow analyses Part 1 Permeability perturbations Part 2 Inflow to repository Part 3 Thermally induced flow Joe L Ratigan Anthony S Burgess Edward L Skiba Robin Charlwood
- 54:06 Final report Ulf Lindblom et al Hagconsult AB oktober 1977
- 55 Sorption av långlivade radionuklider i lera och berg, Del 1 Bert Allard Heino Kipatsi Jan Rydberg Chalmers tekniska högskola 1977-10-10
- 56 Radiolys av utfyllnadsmaterial Bert Allard Heino Kipatsi Jan Rydberg Chalmers tekniska högskola 1977-10-15
- 57 Stråldoser vid haveri under sjötransport av kärnbränsle Anders Appelgren Ulla Bergström Lennart Devell AB Atomenergi 1978-01-09
- 58 Strålrisker och högsta tillåtliga stråldoser för människan Gunnar Walinder FOA 4 november 1977

	59	Tectonic Lineaments in the Baltic from Gävle to Simrishamn Tom Flodén Stockholms Universitet 1977-12-15
	60	Förarbeten för platsval, berggrundsundersökningar Sören Scherman
		Berggrundvattenförhållande i Finnsjöområdets nordöstra del Carl-Erik Klockars Ove Persson Sveriges Geologiska Undersökning januari 1978
	61	Permeabilitetsbestämningar Anders Hult Gunnar Gidlund Ulf Thoregren
		Geofysisk borrhålsmätning Kurt-Åke Magnusson Oscar Duran Sveriges Geologiska Undersökning januari 1978
	62	Analyser och åldersbestämningar av grundvatten på stora djup Gunnar Gidlund Sveriges Geologiska Undersökning 1978-02-14
•	63	Geologisk och hydrogeologisk grunddokumentation av Stripa försöksstation Andrei Olkiewicz Kenth Hansson Karl-Erik Almén Gunnar Gidlund Sveriges Geologiska Undersökning februari 1978
	64	Spänningsmätningar i Skandinavisk berggrund – förutsättningar resultat och tolkning Sten G A Bergman Stockholm november 1977
	65	Säkerhetsanalys av inka <mark>pslingsprocesser</mark> Göran Carleson AB Atomenergi 1978-01-27
· ·	66	Några synpunkter på mekanisk säkerhet hos kapsel för kärnbränsleavfall Fred Nilsson Kungl Tekniska Högskolan Stockholm februari 1978
	67	Mätning av galvanisk korrosion mellan titan och bly samt mätning av titans korrosionspotential under γ-bestrålning 3 st tekniska PM Sture Henrikson Stefan Poturaj Maths Åsberg Derek Lewis AB Atomenergi januari-februari 1978

•

.

- 68 Degraderingsmekanismer vid bassänglagring och hantering av utbränt kraftreaktorbränsle Gunnar Vesterlund Torsten Olsson ASEA-ATOM 1978-01-18
- 69 A three-dimensional method for calculating the hydraulic gradient in porous and cracked media Hans Häggblom AB Atomenergi 1978-01-26
- 70 Lakning av bestrålat UO₂-bränsle Ulla-Britt Eklund Roland Forsyth AB Atomenergi 1978-02-24
- 71 Bergspricktätning med bentonit Roland Pusch Högskolan i Luleå 1977-11-16
- 72 Värmeledningsförsök på buffertsubstans av kompakterad bentonit Sven Knutsson Högskolan i Luleå 1977-11-18
- 73 Self-injection of highly compacted bentonite into rock joints Roland Pusch Högskolan i Luleå 1978-02-25
- 74 Highly compacted Na bentonite as buffer substance Roland Pusch Högskolan i Luleå 1978-02-25
- 75 Small-scale bentonite injection test on rock Roland Pusch Högskolan i Luleå 1978-03-02
- 76 Experimental determination of the stress/strain situation in a sheared tunnel model with canister Roland Pusch Högskolan i Luleå 1978-03-02
- 77 Nuklidvandring från ett bergförvar för utbränt bränsle Bertil Grundfelt Kemakta konsult AB, Stockholm 1978-08-31
- 78 Bedömning av radiolys i grundvatten Hilbert Christenssen AB Atomenergi 1978-02-17
- 79 Transport of oxidants and radionuclides through a clay barrier Ivar Neretnieks Kungl Tekniska Högskolan Stockholm 1978-02-20