

## Ergänzung zur Kapselintegrität

Erweiterte schwedische Zusammenfassung von TR-19-15 – Ergänzende Informationen zu Fragen in Bezug auf die Integrität der Kupferkapsel

Zum Antrag auf Zulassung nach dem Schwedischen Umweltgesetzbuch für Anlagen in einem zusammenhängendem Endlagersystem für verbrauchte Brennelemente und nuklearen Abfall, M2018-00217/Me und

Anträgen auf Genehmigung nach dem Schwedischen Kerntechnikgesetz für Zwischenlagerung und Endlagerung von verbrauchten Brennelementen und nuklearen Abfällen, M2018/00221/Ke

*This document is the German version of SKBdoc 1718509 - Komplettering om kapselintegritet (In Swedish). In the event of any discrepancy between the Swedish and German versions, the Swedish original will take precedence.*

## Inhalt

<b>1</b>	<b>Einleitung .....</b>	<b>3</b>
<b>2</b>	<b>Bedingungen am Endlagerstandort .....</b>	<b>4</b>
<b>3</b>	<b>Saunaeffekt .....</b>	<b>7</b>
<b>4</b>	<b>Korrosion durch Reaktion in sauerstofffreiem Wasser .....</b>	<b>10</b>
<b>5</b>	<b>Lochkorrosion durch Reaktion mit Sulfid, einschließlich der Wirkung des Saunaeffekts auf die Lochkorrosion .....</b>	<b>15</b>
<b>6</b>	<b>Spannungsrissskorrosion durch Reaktion mit Sulfid, einschließlich der Wirkung des Saunaeffekts auf die Spannungsrissskorrosion .....</b>	<b>19</b>
<b>7</b>	<b>Wasserstoffversprödung .....</b>	<b>23</b>
<b>8</b>	<b>Auswirkungen radioaktiver Strahlung auf Lochkorrosion, Spannungsrissskorrosion und Wasserstoffversprödung .....</b>	<b>28</b>
<b>9</b>	<b>Folgen für die Langzeitsicherheit .....</b>	<b>32</b>
<b>10</b>	<b>Zusammenfassung und Schlussfolgerungen .....</b>	<b>37</b>

# 1 Einleitung

In seiner Stellungnahme an die Regierung vom 23.01.2018 zur Zulässigkeit nach dem Umweltgesetzbuch für ein KBS-3-Endlager in Forsmark hat das Land- und Umweltgericht (Mark- och miljöödomstolen vid Nacka tingsrätt (MMD)) weitere Unterlagen zu den folgenden fünf Fragen zur Integrität der Kupferkapsel angefordert:

- a) Korrosion durch Reaktion in sauerstofffreiem Wasser
- b) Lochkorrosion durch Reaktion mit Sulfid, einschließlich der Wirkung des Saunaeffekts auf die Lochkorrosion
- c) Spannungsrisskorrosion durch Reaktion mit Sulfid, einschließlich der Auswirkung des Saunaeffekts auf die Spannungsrisskorrosion
- d) Wasserstoffversprödung
- e) Auswirkungen radioaktiver Strahlung auf Lochkorrosion, Spannungsrisskorrosion und Wasserstoffversprödung.

SKB hat all diese Phänomene in der Sicherheitsanalyse untersucht und berücksichtigt, die die Grundlage des Antrags im Jahr 2011 bildet, der sogenannten SR-Site-Analyse<sup>1</sup> Weitere Unterlagen wurden der Schwedischen Strahlensicherheitsbehörde (Strålsäkerhetsmyndigheten, SSM) vorgelegt, die die Prüfung des Antrags nach dem Schwedischen Kerntechnikgesetz (KTL) (1984:3) durch die Behörde ergänzen.

Dieses Dokument enthält Ergebnisse zum Verständnis der fünf Fragen und Schlussfolgerungen zur Bedeutung der Fragen für die Sicherheit nach dem Verschluss eines KBS-3-Endlagers in Forsmark. Das Dokument ist eine Zusammenfassung einer detaillierten technischen Darstellung der Fragen,<sup>2</sup> in englischer Sprache für in erster Linie Experten auf dem Gebiet geschrieben, ergänzt durch relevante Zitate aus der MMD-Stellungnahme zu den Kapselfragen. Der Schwerpunkt liegt auf neuem Material, das nach der Hauptverhandlung vor dem Land- und Umweltgericht im Herbst 2017 und nach der Bewertung der Sicherheitsanalyse SR-Site durch SSM mit Ergänzungen hinzugefügt wurde. Die technische Darstellung enthält vollständige Verweise auf alle früheren und neuen Studien, die zitiert wurden, insgesamt fast 200. Aus praktischen Gründen enthält dieses Dokument nur Hinweise auf die wichtigsten neuen Studien seit der Hauptverhandlung im MMD.

Bevor die fünf Kapselfragen behandelt werden, beschreibt Abschnitt 2 die Bedingungen am Endlagerstandort, und Abschnitt 3 befasst sich mit dem sogenannten Saunaeffekt. Die fünf Kapselfragen werden in den Abschnitten 4 bis 8 behandelt. In den Abschnitten 3 bis 8 werden die Beurteilungen von MMD für jeden Prozess als ungekürzte Zitate aus der Stellungnahme von MMD eingefügt (Seiten 323 bis 332 der Stellungnahme). Die Folgen für die Langzeitsicherheit werden in Abschnitt 9 analysiert und Schlussfolgerungen finden sich in Abschnitt 10.

Das Gesamtergebnis durchgeführter ergänzender Studien und Analysen ist, dass die Hauptschlussfolgerung der SR-Site-Sicherheitsanalyse unverändert bleibt: Ein nach der KBS-3-Methode in Forsmark errichtetes Endlager ist langfristig sicher und erfüllt die Anforderungen von SSM in Bezug auf Langzeitsicherheit

---

<sup>1</sup> Anhang SR-Site im Antrag auf Genehmigung nach dem Umweltgesetzbuch. Berücksichtigung der Langzeitsicherheit des Endlagers für verbrauchte Brennelemente. Hauptbericht vom Projekt SR-Site. Svensk Kärnbränslehantering AB, März 2011. [Verfügbar über: <http://www.skb.se/projekt-for-framtiden/karnbransleforvaret/vara-ansokningar/ansokningshandlingarna/ansokan-enligt-miljobalken/>]

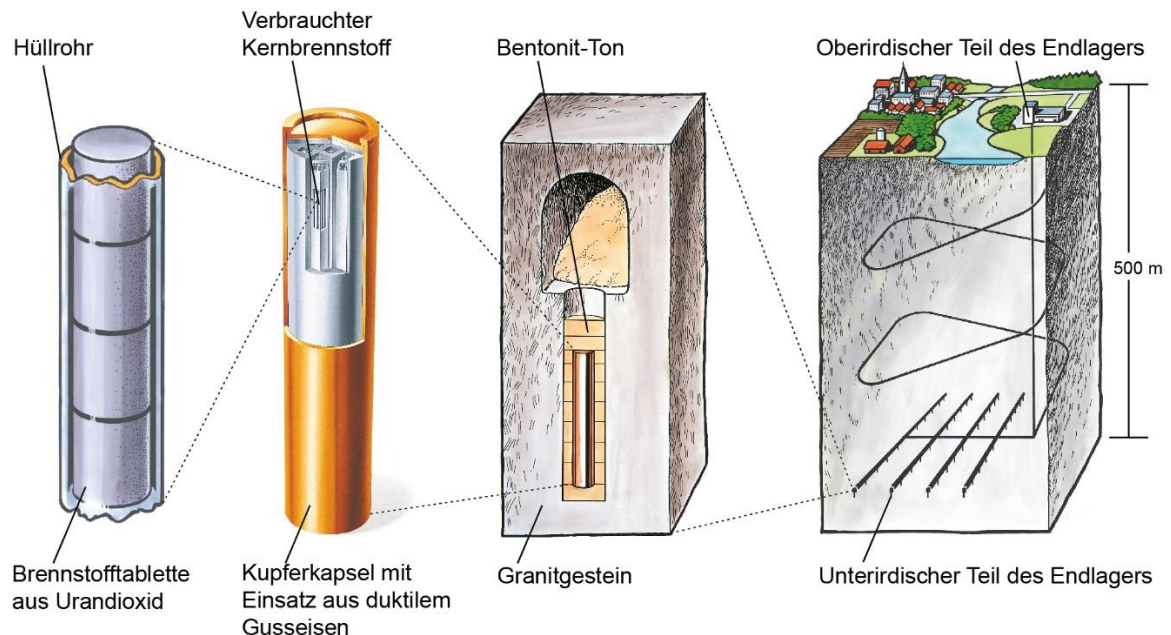
<sup>2</sup> **SKB, 2019.** Supplementary information on canister integrity issues, SKB TR-19-15. Svensk Kärnbränslehantering AB.

## 2 Bedingungen am Endlagerstandort

Um die Integrität der Kapsel zu bewerten, müssen die chemischen und anderen Bedingungen berücksichtigt werden, die am KBS-3-Endlagerstandort vorherrschen werden, deren Errichtung SKB in Forsmark beantragt hat. Diese Bedingungen können dann mit den Bedingungen in verschiedenen Laborexperimenten in Beziehung gestellt werden, in denen Kupfer untersucht wurde. Viele Experimente an Kupfermaterialien wurden unter Laborbedingungen durchgeführt, die deutlich aggressiver sind als unter Endlagerbedingungen. Dieser Abschnitt gibt daher einen kurzen Überblick darüber, wie die SKB die Bedingungen am Endlagerstandort im Antrag beschrieben hat, ergänzt durch die Ergebnisse einer Reihe neuer Studien.

### **KBS-3-Endlager in Forsmark**

Der Zweck des KBS-3-Endlagers ist es, nukleare Abfälle für sehr lange Zeiträume von Mensch und Umwelt zu isolieren. Die Endlagermethode verwendet Kupferkapseln mit einem Einsatz aus duktilem Gusseisen, um den verbrauchten Kernbrennstoff einzuschließen. Die Kapseln sind von einem Puffer aus Bentonit-Ton umgeben und werden in einer Tiefe von etwa 500 Metern in Grundwasser gesättigten Granitgestein eingelagert, siehe Abbildung 2-1.



**Abbildung 2-1.** KBS-3-Methode zur Endlagerung verbrauchter Brennelemente.

Der gewählte Endlagerstandort in Forsmark befindet sich im nördlichen Uppland in der Gemeinde Östhammar. Das Gebiet in Forsmark besteht aus kristallinem Grundgestein, das zum Fennoskandinavischen Schild gehört und vor etwa 1,9 Milliarden Jahren entstanden ist. Das Gelände wurde mit verschiedenen Methoden untersucht, einschließlich etwa zehn fast 1000 Meter tiefen Kernbohrungen. Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die Auswertung der Daten aus der Standortuntersuchung zeigt, dass die wichtigsten sicherheitsrelevanten Merkmale der Lagerstätte folgendes aufweisen:

- Eine geringe Häufigkeit von wasserführenden Rissen in Endlagertiefe.
- Für die Barrieren günstige und stabile oder nur sich langsam verändernde geochemische Bedingungen in Endlagertiefe.

Ergänzung zur Kapselintegrität

Darüber hinaus ermöglicht die relativ hohe Wärmeleitfähigkeit am Standort eine effiziente Nutzung des Gesteinsvolumens. Die bergmechanischen Verhältnisse und andere Eigenschaften, die für die sichere und effiziente Errichtung des Endlagers wichtig sind, sind ebenfalls gut. Diese Merkmale waren entscheidend für die Standortwahl.

### ***Bedingungen in Endlagertiefe und deren Veränderungen während der Entwicklung des Endlagers***

Die chemischen Bedingungen in Endlagertiefe sind günstig für die Integrität von Kupferkapseln. Langfristig kann nur die Schwefelverbindung Sulfid im Grundwasser zu Korrosion von Bedeutung führen. Die Sulfidwerte in Forsmark sind niedrig, aber in Bezug auf Korrosion auf äußerst lange Sicht nicht vernachlässigbar.

Das Vorhandensein und die Zufuhr von Sulfid in verschiedenen Stadien der Entwicklung des Endlagers wirkt sich unmittelbar auf die Bedingungen für Lochkorrosion aufgrund von Reaktion mit Sulfid und Spannungsrisskorrosion aufgrund der Reaktion mit Sulfid aus, zwei der Fragen, zu denen das Umweltgericht weitere Informationen angefordert hat. Die Bedeutung dieser Korrosionsbegriffe wird in den Abschnitten 5 bzw. 6 näher erläutert. Ein zentraler Teil der SR-Site-Sicherheitsanalyse ist unter anderem der Frage gewidmet, wie sich die chemischen Bedingungen in und um die Barrieren des Endlagers im Laufe der Zeit entwickeln und verändern. Um zu verstehen, wie sich die chemischen Bedingungen verändern, ist auch Wissen über die Temperaturentwicklung und die Grundwasserbewegungen erforderlich.

Die Restleistung des verbrauchten Kernbrennstoffs führt dazu, dass die Oberflächentemperatur der Kapsel etwa 10 Jahre nach der Einlagerung auf eine maximale Temperatur von ca. 95 °C ansteigt. Die Temperatur sinkt dann nach 1000 Jahren auf ca. 40 °C und nach 10.000 Jahren auf 20 °C. Nach 100.000 Jahren ist die Temperatur auf die des umliegenden Gesteins gesunken, etwa 11 °C beim heutigen gemäßigten Klima.

Wenn der Puffer aus Bentonit-Ton in einer der Einlagerungsöffnungen installiert wird, hat er aus praktischen Gründen einen begrenzten Feuchtigkeitsgehalt. Langfristig wird das Grundwasser den Puffer vollständig sättigen. Aufgrund der geringen Häufigkeit von wasserführenden Rissen auf Endlagertiefe in Forsmark variiert der Zeitraum dieser Wassersättigung zwischen den verschiedenen Einlagerungsöffnungen erheblich. In Öffnungen, die mit wasserführenden Risse verbunden sind, kann die Wassersättigung innerhalb weniger Jahrzehnte abgeschlossen werden, während es bei Positionen ohne wasserführende Risse 1000 Jahre oder länger dauern kann. Dies bedeutet, dass relativ lang ungesättigte Bedingungen an der Kapseloberfläche und im umgebenden Puffer herrschen können und dass gute Kenntnisse der Bedingungen während der ungesättigten Phase erforderlich sind, um die Sicherheit des Endlagers zu bewerten, wie weiter unten ausgeführt wird.

Ein weiterer wichtiger Aspekt der Entwicklung des Puffers betrifft die Puffererosion in Zeiträumen, in denen der Puffer einem Grundwasser mit sehr geringem Salzgehalt ausgesetzt sein kann. Auf der Grundlage umfangreicher Auswertungen in Abschnitt 12.2 der Sicherheitsanalyse SR-Site wurde der Schluss gezogen, dass dieses Phänomen in einem kleinen Teil der insgesamt 6000 Einlagerungsöffnungen in einem so großen Umfang auftreten kann, dass die Kapseloberfläche in direkten Kontakt mit dem Grundwasser kommt und somit anfälliger für Korrosion durch besonders Sulfid wird. Die Anzahl der betroffenen Einlagerungsöffnungen variiert zwischen einigen Dutzend und einigen hundert, je nachdem, wie pessimistisch die Analyse durchgeführt wird. Für diese Einlagerungsöffnungen wird es zehntausende bis hunderttausende Jahre dauern, bis eine solche Situation auftritt.

### ***Zusätzliche Studien zu den Bedingungen während der Sättigungsphase***

Grundsätzlich ist es positiv, dass die Kapseloberfläche relativ lange von ungesättigtem Bentonit-Ton umgeben sein kann, da im Grundwasser gelöstes Sulfid dann nicht in direktem Kontakt mit der Kapsel kommen kann. Es ist jedoch wichtig, die chemische Umgebung der Kapsel während der Sättigungsphase zu verstehen, um beispielsweise sicherzustellen, dass Sulfid die Kapsel nicht auf andere Weise erreicht, d. h. in Form von Gas. Daher wurden eine Reihe zusätzlicher Studien über ungesättigte Bedingungen durchgeführt.

Eine mögliche Quelle für Sulfid könnte die Umwandlung von Sulfat in Sulfid durch sulfatreduzierende Bakterien (SRB) sein. Sulfat findet sich sowohl im Grundwasser als auch im Bentonitmaterial. Diese Bakterien benötigen Zugang zu Wasser, aber wenn der Bentonit wassergesättigt ist, ist er zu dicht für diese Bakterien, um aktiv zu sein. Eine aktuelle Studie<sup>3</sup> hat untersucht, ob SRB in feuchtem, aber nicht wassergesättigtem Bentonit-Ton aktiv sein können, d. h. in einem Stadium, das der Ton auf dem Weg zur Wassersättigung im Endlager durchläuft. Die Ergebnisse der Studie stützen unter anderem die Sicherheitsanalyse SR-Site weiter, nämlich dass die mikrobiologische Umwandlung von Sulfat in Sulfid auftritt, wenn die Mikroben Zugang zu freiem (flüssigem) Wasser und Nährstoffen haben, die in viel höheren Konzentrationen zugesetzt wurden, als sie natürlicherweise in Bentonit und Grundwasser vorhanden sind. Es wurde keine Sulfidproduktion festgestellt, wenn die Mikroben auf eine relative Luftfeuchtigkeit von 75–100 % beschränkt waren, jedoch ohne freies Wasser. Eine weitere neue Studie<sup>4</sup> zeigt, dass der Sauerstoff, der zunächst sowohl in Experimenten als auch im Endlager auftritt, durch das Korrodieren der Kapsel verbraucht wird, was SKB auch in der Sicherheitsanalyse annimmt. Berechnungen in der Sicherheitsanalyse SR-Site zeigen, dass verbleibender Sauerstoff zu weniger als einem Millimeter Korrosion führt.

Eine weitere wichtige Frage ist, wie Sulfid durch den Puffer und die Tunnelrückfüllung transportiert werden kann, um schließlich die Kapsel zu erreichen. Bei wassergesättigtem Ton wurde dies ausgiebig untersucht, während ungesättigter Ton in den bisherigen Sicherheitsberichten der SKB mehr pessimistisch und überschlagsmäßig behandelt wurde. Daher wurden zusätzliche Studien für ungesättigten Ton durchgeführt.<sup>5</sup> Die Untersuchung zeigt, dass der Transport gasförmiger Stoffe (z. B. Sulfid) im ungesättigten Ton deutlich langsamer ist als in früheren Berichten der SKB pessimistisch angenommen.

### **Zusammenfassung der relevanten Endlagerbedingungen**

Das Gestein in Forsmark ist in Endlagertiefe arm an wasserführenden Rissen. Die meisten Einlagerungsöffnungen in einem Endlager in Forsmark haben keinen Kontakt zu wasserführenden Rissen.

Der Tonpuffer, der die Kapseln umgibt, und die Tunnelrückfüllung aus Ton sind zum Zeitpunkt der Einlagerung nur teilweise wassergesättigt. Es kann zwischen dutzenden und mehreren tausend Jahren dauern, bis die volle Wassersättigung des Bentonit-Tons in Puffer und Tunnelrückfüllung erreicht ist, je nachdem, ob eine Einlagerungsöffnung mit einem wasserführenden Riss in Verbindung steht oder nicht. Nach dieser Sättigungsphase herrschen wassergesättigte Bedingungen.

Bei bis zu 100 Einlagerungsöffnungen der 6000 kann der Puffer langfristig durch Erosion so weit verloren gehen, dass die Kapsel direkt mit dem Grundwasser in Berührung tritt.

<sup>3</sup> Svensson D, Kalinowski B E, Turner S, Dopson M, 2019. Activity of sulfate reducing bacteria in bentonite as a function of water availability. SKBdoc 1708461 ver 1.0, Svensk Kärnbränslehantering AB.

<sup>4</sup> Birgeresson M, Goudarzi R, 2018. Investigations of gas evolution in an unsaturated KBS-3 repository. SKB TR-18-11, Svensk Kärnbränslehantering AB.

<sup>5</sup> Eriksson P, Hedin A, 2019. Modelling of sulphide fluxes in unsaturated buffer and backfill for a KBS-3 repository. SKBdoc 1696975 ver 2.0, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Ergänzung zur Kapselintegrität

Sulfid ist im Allgemeinen der wichtigste korrosive Bestandteil des Grundwassers in Granitgestein in Schweden. In Forsmark sind, wie an vielen anderen Orten, die Sulfidwerte niedrig, aber in Bezug auf Korrosion auf lange Sicht nicht zu vernachlässigen.

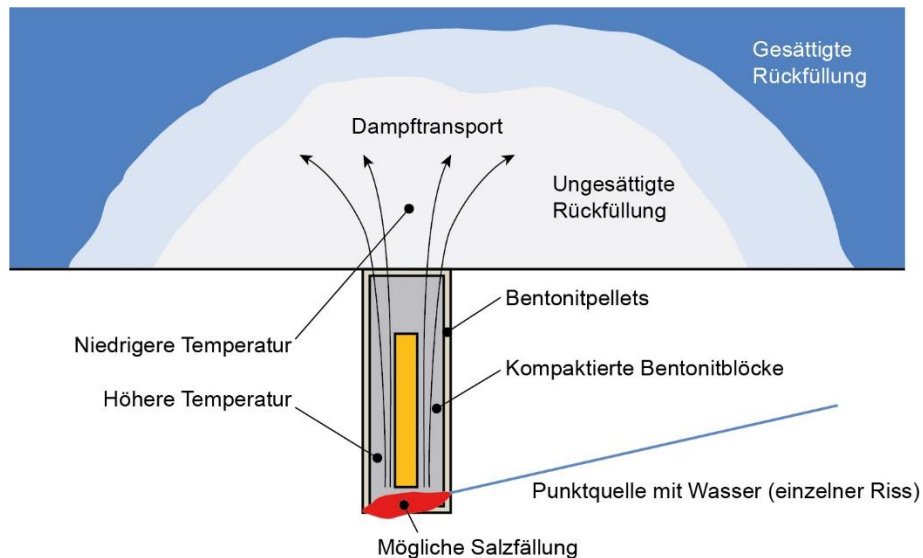
Während der Sättigungsphase könnte Sulfid grundsätzlich durch mikrobielle Aktivität in Puffer und Tunnelrückfüllung gebildet werden. Neue Studien bestätigen, dass dies erst geschehen kann, wenn der Puffer eine sehr hohe Sättigungsrate erreicht hat. Darüber hinaus ist die geringe Verfügbarkeit von Nährstoffen für Mikroben ein stark einschränkender Faktor für ihre Aktivität in ungesättigtem Ton. Wassergesättigter Ton ist jedoch zu dicht, als dass Mikroben aktiv sein können.

Jüngste Studien zeigen, dass der Transport gasförmiger Stoffe wie Sulfid in ungesättigtem Ton deutlich langsamer ist als bisher im Sicherheitsbericht SR-Site angenommen.

### 3 Saunaeffekt

#### *Worum geht es bei der Frage?*

Der Begriff Saunaeffekt bezeichnet eine Situation in der Salzwasser an einer warmen Stelle in einem System verdunstet und sich dort Salzablagerungen bilden. Im Endlager könnte die Kapsel ein solcher Verdampfungspunkt sein und die Stoffe, einschließlich Sulfid, die sich ansammeln würden, könnten zur Korrosion beitragen, siehe Abbildung 3-1. Ein mögliches Auftreten dieses Effekts wurde bei der Prüfung des Antrags der SKB angesprochen, wobei SKB Ergänzungen in erster Linie an die SSM übermittelte. Diese Frage wurde auch in der Hauptverhandlung des Land- und Umweltgerichts angesprochen.



**Abbildung 3-1.** Schematische Darstellung des Saunaeffekts“.

Eine umfangreiche Salzanreicherung ist möglich, wenn ein großer Teil des Wassers, das in eine Einlagerungsöffnung eindringt, verdampfen und den Puffer als Dampf verlassen kann. Wenn der Dampf im Bentonit in der Einlagerungsöffnung kondensiert, wird nur ein begrenzter Teil als Dampf entweichen und die mögliche Salzanreicherung ist somit begrenzt. Kondensation bewirkt außerdem, dass der Puffer über der Kapsel wassergesättigt wird. Die Fähigkeit von Dampf, sich durch den Bentonit zu bewegen, nimmt mit der Wassersättigung des Bentonits ab und endet bei voller Wassersättigung vollständig. Der Dampfstrom wird also aufhören und die mögliche Salzanreicherung wird auch aus diesem Grund begrenzt sein.

SKB hat das Thema in den letzten Jahren sowohl experimentell in einer Laborumgebung als auch mit Modellrechnungen untersucht. Es ist auch möglich, Schlussfolgerungen aus Feldversuchen zu ziehen, obwohl diese nicht speziell dazu bestimmt waren, den Saunaeffekt zu untersuchen. Eine aktuelle Studie vertieft das detaillierte Wissen darüber, wie Wasserdampf von ungesättigtem Ton absorbiert wird und wo er kondensiert.

### **Beurteilung der Frage durch MMD**

*Die Schlussfolgerung von SKB ist, dass das nach dem Eindringen in die Einlagerungsöffnung verdampfende Wasser im Bentonit in der Nähe der warmen Kapsel kondensiert, sodass der Bentonit anschwillt und einen weiteren Dampftransport in den Einlagerungstunnel verhindert. Das Land- und Umweltgericht ist der Ansicht, dass diese Schlussfolgerung nicht uneingeschränkt unterstützt werden kann. SKB Berichte von Versuchen deuten darauf hin, dass es möglicherweise einen Dampftransport geben kann. Die Ergebnisse deuten darauf hin, dass Dampf nicht so leicht in trockenem Bentonit absorbiert wird, sondern lokal kondensiert und zu Rissen führt, was nicht vorteilhaft ist, um den Dampftransport zu verhindern. Auch die Schlussfolgerung von SKB, dass die zugesetzten Salzengen gering sind und nicht als Ablagerungen auf die Kapsel gelangen, scheint nicht hinreichend begründet zu sein. Dahingegen ist die Einschätzung von SKB gestützt, dass ein erhöhter Chloridgehalt aufgrund des Saunaeffekts kein Risiko von Lochkorrosion mit sich bringt, da wahrscheinlich kein passivierender Film entsteht. Das Land- und Umweltgericht hat oben bewertet, dass vieles darauf hindeutet, dass sich passivierende Oxidschichten unter oxidierenden Bedingungen nicht bilden werden. Darüber hinaus teilt das Gericht die Einschätzung der SSM, dass der Saunaeffekt entweder durch kurze Sättigungszeiten des Puffers oder durch niedrige Strömungen bei längeren Sättigungszeiten begrenzt ist. Insgesamt besteht ein geringes Risiko, dass der Saunaeffekt zu Lochkorrosion und daraus folgend, innerhalb von 1.000 Jahren zu Kapseldefekten führt. Diese Beurteilung beruht insbesondere auf dem Fehlen günstiger chemischer Bedingungen für die Passivierung. Wie die SSM jedoch angegeben hat, sind zusätzliche Daten über den Dampftransport im Puffer und die Integration der Analyse der chemischen Bedingungen mit der Analyse der thermischen und hydraulischen Entwicklung des Puffers und der Auffüllung erforderlich. Das Land- und Umweltgericht beurteilt, dass eine geringe Unsicherheit hinsichtlich der Auswirkungen des Saunaeffekts auf Lochkorrosion und Spannungsrisskorrosion vorliegt.*

### **Laborversuche**

Eine erste Reihe von Tests, deren Ergebnisse 2013 berichtet wurden, zeigten, dass eine erhebliche Menge Dampf durch ein Bett mit relativ trockenen Bentonitpellets strömen kann, ohne absorbiert zu werden. Andererseits wird der Dampftransport verhindert, wenn der Dampf kondensiert. Im Jahr 2017 wurden weitere Tests durchgeführt, bei denen eine interne Kupferheizung von Bentonitblöcken (Ringeln) umgeben und dann von einem massiven Bentonitblock bedeckt wurde, siehe Abbildung 3-2. Die Versuchsanordnung spiegelt den Aufbau des Endlagers so wider, dass sie die wichtigsten Komponenten in Bezug auf den Saunaeffekt enthält. Die allgemeine Schlussfolgerung aus diesen Tests ist, dass die Kondensation in den Blöcken sowie in den Pellets nach kurzer Zeit erfolgen wird. Daher wird nicht erwartet, dass Wasserdampf in der Nähe der Kapsel aus der Einlagerungsöffnung entweicht.





**Abbildung 3-2.** Fotografien von dem Versuchsaufbau, bei dem eine Kupferheizung von vier Bentonitringen eingeschlossen und dann von einem massiven Bentonitblock bedeckt wird.

Ende 2018 wurden weitere Experimente<sup>6</sup> mit Dampftransport in Bentonit durchgeführt, um ein besseres Verständnis der Prozesse zu erlangen, die die Feuchtigkeitsverteilung in teilweise gesättigten Bentonitblöcken und Pellets steuern. Die Ergebnisse der Studie haben das Verständnis für diesen Transport verbessert und widersprechen nicht den früheren Schlussfolgerungen der SKB zum Saunaeffekt.

### **Modellrechnungen**

Neben den Experimenten wurden auch verschiedene Modellrechnungen durchgeführt. Unter anderem wurde ein Fall analysiert, in dem ein wasserführender Riss eine Einlagerungsöffnung schneidet. Wenn die Temperatur in dem Bereich, in dem Wasser eindringt, erhöht ist, kann das Wasser verdunsten, was wiederum zur Anreicherung von Salz führen kann. Die Verdunstung selbst führt jedoch nicht dazu, dass sich Salz in großem Umfang anreichert. Damit sich Salz in nennenswertem Maße anreichert, ist es notwendig, dass der Großteil des einfallenden Wassers verdunstet und dann abtransportiert wird, ohne den Bentonit mit Wasser zu sättigen. Die Berechnungen zeigen, dass mögliche Verdampfungseffekte am längsten in den ersten Jahren nach dem Verschluss aktiv sein können, was zu einer vernachlässigbaren Salzanreicherung führt.

### **Feldversuche**

SKB hat auch die Ergebnisse verschiedener Feldversuche untersucht, die ursprünglich nicht durchgeführt wurden, um den Saunaeffekt zu untersuchen, in denen aber Bentonit seit mehreren Jahren mit elektrischen Heizungen erhitzt wird. Dies gilt für das Prototypenendlager und die LOT-Versuche im Äspö-Labor der SKB und das FEBEX-Experiment, das im unterirdischen Felslabor in Grimsel, Schweiz, durchgeführt wird. Als die Experimente dann beendet und analysiert wurden, wurde auch untersucht, ob es Hinweise auf eine Salzanreicherung gibt. Keiner dieser Versuche zeigt Hinweise auf einen Saunaeffekt.

<sup>6</sup> Åkesson M, Börgesson L, Sandén T, Goudarzi R, 2019. Vapor transport in bentonite. Laboratory investigations and theoretical study. SKBdoc 1712120 ver 1.0 Svensk Kärnbränslehantering AB.

## **Schlussfolgerungen**

Die Abgeschlossenen Arbeiten zeigen, dass die Salzanreicherung durch eintretendes Wasser in eine Einlagerungsöffnung in einem KBS-3-Endlager vernachlässigbar ist. Dafür gibt es mehrere Gründe:

- Damit sich erhebliche Mengen Salz anreichern können, muss der größte Teil des zugeführten Wassers in Dampf umgewandelt werden, anstatt weiterhin in flüssiger Form zu strömen. So, wie das KBS-3-Endlager entworfen wurde, kann dies nur für sehr kurze Zeiträume geschehen, was durch Modellberechnungen verifiziert wird.
- Experimentelle Ergebnisse zeigen, dass die begrenzte Menge an entstehendem Dampf durch Kondensation absorbiert wird, wodurch das System versiegelt und ein weiterer Dampftransport verhindert wird.
- In Feldversuchen wurden keine relevanten Anzeichen einer Salzanreicherung beobachtet.

Daraus wird die Schlussfolgerung gezogen, dass der Saunaeffekt in einem KBS-3-Endlager in Forsmark vernachlässigbar sein wird. Daher werden die Folgen dieses Prozesses in den weiteren Analysen in diesem Bericht nicht berücksichtigt.

## **4 Korrosion durch Reaktion in sauerstofffreiem Wasser**

### ***Worum geht es bei der Frage?***

Wasser, das mit der Atmosphäre in Verbindung steht, enthält gelösten Sauerstoff. Wenn Kupfer in solches Wasser gelegt wird, wird es von den Sauerstoffmolekülen angegriffen – das Kupfer korrodiert. Das Grundwasser in der Tiefe des Endlagers ist hingegen sauerstofffrei, und in diesem Fall sagen seit langem etablierte wissenschaftliche Kenntnisse, dass die durch die Wassermoleküle selbst verursachte Korrosion extrem gering und wahrscheinlich nicht einmal messbar ist. Dies ist ein wichtiger Grund für die Wahl von Kupfer als Kapselmaterial in der KBS-3-Methode.

Seit 2007 hat eine Gruppe von Forschern an der KTH eine andere Sicht auf das Ausmaß der Kupferkorrosion in reinem, sauerstofffreiem Wasser geäußert. Diesen Forschern zufolge beträgt das Ausmaß etwa das Millionenfache des von der etablierten Wissenschaft angenommenen Wertes. Zur Untermauerung dessen werden eigene Experimente angeführt, die zeigen sollten, dass Kupfer in reinem, sauerstofffreiem Wasser zur Entwicklung von Wasserstoff führt. Dies würde durch eine Reaktion zwischen Kupfer- und Wassermolekülen (die ja aus Sauerstoffatomen und Wasserstoffatomen bestehen) freigesetzt, die der Wissenschaft bisher unbekannt war. Eine bisher unbekannt Verbindung aus Kupfer, Wasserstoff und Sauerstoff sollte sich bei der Reaktion bilden.

Die Frage geht eigentlich auf die 1980er Jahre zurück, als einer dieser KTH-Forscher, basierend auf einem anderen Experiment, etwas Ähnliches über Kupferkorrosion in reinem, sauerstofffreiem Wasser behauptete. Dem Experiment wurde einige Jahre später durch Experimente anderer Forscher an der KTH und in der Schweiz widersprochen, sodass die Frage allgemein als abgeschlossen galt.

Die Frage wurde also Ende der 2000er Jahre erneut aufgeworfen, und die SKB leitete dann eine Reihe von Maßnahmen ein, um die Frage weiter zu untersuchen.

Ergänzung zur Kapselintegrität

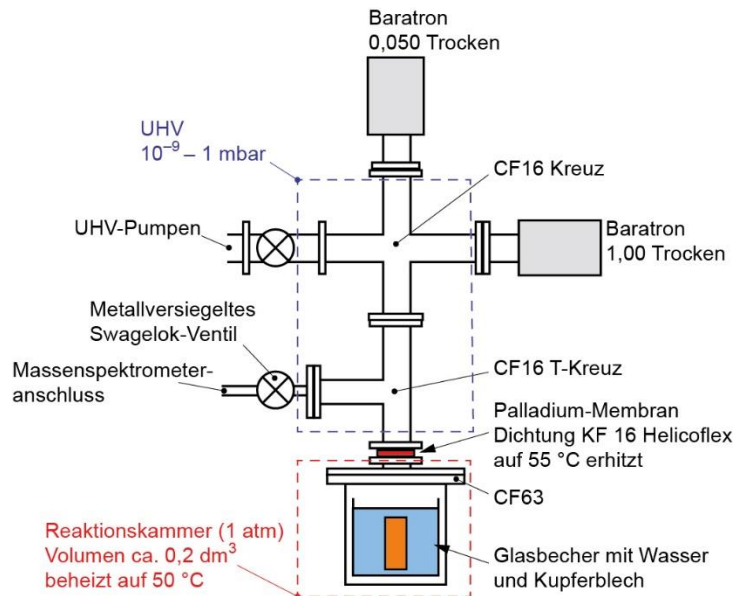
### **Beurteilung des Problems durch MMD**

*Das Thema Kupferkorrosion in sauerstofffreiem Wasser ist eine der am meisten diskutierten Fragen in diesem Fall. SKB hat mehrere Versuche durchgeführt. Experimente wurden unter anderem auch von Forschern der KTH und der Universität Uppsala durchgeführt. Die Parteien haben unterschiedliche Interpretationen der Versuche und unterschiedliche Einschätzungen vorgenommen, in wieweit diese Form der Korrosion zur Degradation der Kapsel beitragen kann. SKB, Peter Szakálos u. a. sind in den Beurteilungen, wie das Land- und Umweltgericht es auffasst, von Ergebnissen von Experimenten ausgegangen, die in wässriger Phase durchgeführt wurden, , d. h. unter Bedingungen, die nicht denen entsprechen, wenn der Puffer unter Endlagerbedingungen intakt ist. Das Gericht stellt fest, dass es Meinungsverschiedenheiten über wissenschaftliche Fragen gibt, die für die Risikobewertung nach dem Umweltrecht relevant sind. Das Gericht fällt keine Entscheidung, welche Theorie oder Auslegung am glaubwürdigsten ist. Bei der Risikobewertung kann jedoch nicht außer Acht gelassen werden, dass die Korrosionsrate erheblich höher sein kann, als von SKB beurteilt, was für die langfristige Schutzkapazität der Kapsel von entscheidender Bedeutung sein kann. SKB muss daher zusätzliche Unterlagen zu dieser Frage vorlegen. Insgesamt besteht erhebliche Unsicherheit hinsichtlich der allgemeinen Korrosion durch Reaktion in sauerstofffreiem Wasser.*

### **Versuche an der Universität Uppsala**

SKB hat zwei große experimentelle Studien in Auftrag gegeben, um das Problem der Kupferkorrosion in reinem, sauerstofffreiem Wasser zu untersuchen.

Eine davon ist im Grunde eine Wiederholung des Experiments der KTH-Forscher, aber unter stärker kontrollierten Bedingungen. Das Experiment wurde an der Universität Uppsala durchgeführt und Abbildung 4-1 zeigt die Testaufstellung, die verwendet wurde. In einfachen Worten besteht der Aufbau aus einer oberen Kammer und einer unteren Kammer, in der unteren Kammer wird Kupfer reinem, sauerstofffreiem Wasser ausgesetzt und in der oberen Kammer wird das Vorhandensein von Wasserstoff gemessen. Die Kammern sind durch eine dünne Membran aus Palladium getrennt, ein Metall, das wasserstoffdurchlässig ist, aber verhindert, dass alle anderen Gase zwischen den Kammern transportiert werden. Um mögliche Fehlerquellen im Experiment zu beseitigen, wurden unter anderem sehr hohe Anforderungen an die Kupferqualität, die Reinheit der Kupferoberfläche, die Wasserqualität und die Gasatmosphäre gestellt, in der das Experiment durchgeführt wurde. Darüber hinaus wurden genaue Messungen ohne Kupfer durchgeführt, um die Wasserstoffentwicklung zu bestimmen, die das Gerät selbst hervorruft. Das Ergebnis mit Kupfer zeigte, dass keine Wasserstoffentwicklung über die niedrigen Hintergrundwerte hinaus gemessen werden konnte, die durch das Gerät selbst verursacht wurden. Die Forschungsgruppe der Universität Uppsala hat auch sorgfältig nach Korrosionsprodukten gesucht, d. h. chemischen Kupferverbindungen, die sich gebildet hätten, wenn es eine Reaktion zwischen Kupfer und Wasser gäbe. Mit empfindlichen Methoden wurden die Oberfläche der Kupferprobe, das Wasser, dem das Kupfer ausgesetzt war, und die Oberflächen des Glasbehälters, der Kupfer und Wasser enthielt, untersucht. Nirgendwo wurden Kupfergehalte gefunden, die in der Nähe dessen lagen, was nach den Schlussfolgerungen der KTH-Forscher erwartet wurde.



**Abbildung 4-1.** Die Anordnung, die im Uppsala-Experiment verwendet wurde. Die oberen und unteren Kammern sind von gepunkteten Rechtecken eingerahmt.

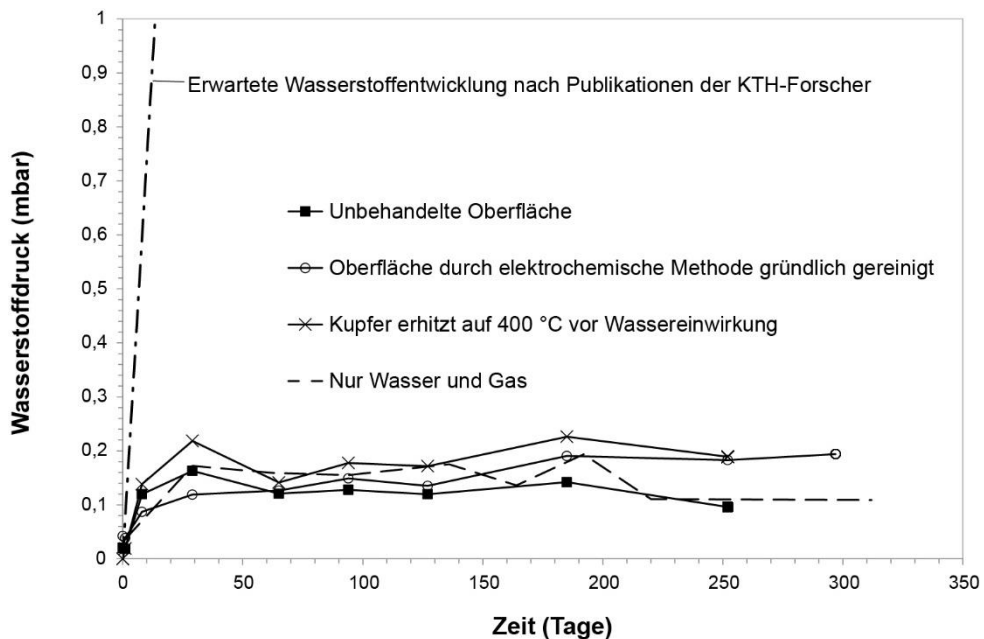
### Experiment bei Micans in Göteborg

Die zweite experimentelle Studie bestand darin, Paare von  $1 \times 10$  cm<sup>2</sup> Kupferproben in Form von entweder 2 Millimeter dicken Blechs oder 0,1 Millimeter dicken Folien in versiegelten Reagenzröhrchen reinem, sauerstofffreiem Wasser auszusetzen, siehe Abbildung 4-2. Über der Wasseroberfläche befindet sich eine Gastasche, die zunächst mit reinem Stickstoff gefüllt ist und in der die Gaszusammensetzung dann in regelmäßigen Abständen gemessen wird, um zu untersuchen, ob sich Wasserstoff gebildet hat. Dieses Experiment stellte ebenfalls hohe Anforderungen an die Reinheit und führte genaue Bestimmungen des Hintergrundniveaus von Wasserstoff durch. Die experimentelle Methode wurde bei Microbial Analytics Sweden AB (Micans) in Göteborg entwickelt und dort wurden auch die Messungen mit der entwickelten Methode durchgeführt.

Eines der Ergebnisse wird in Abbildung 4-3 dargestellt. Es zeigt den gemessenen Wasserstoffdruck im Zeitverlauf für drei 0,1 Millimeter Kupferfolien von genau der Kupferqualität und dem Lieferanten, den die KTH-Forscher in ihrem Langzeitexperiment verwendet haben. Die Proben unterscheiden sich in der Art und Weise, wie sie vor der Exposition gegenüber Wasser behandelt wurden – eine wurde sehr gründlich gereinigt, eine andere wurde auf 400 °C erhitzt und eine ist völlig unbehandelt. Wie in der Abbildung dargestellt, entsteht jeweils ein Wasserstoffdruck zwischen 0,1 und 0,2 Millibar. Die Abbildung zeigt auch eine gepunktete Druckkurve von einem Reagenzröhrchen, das nicht Kupfer, sondern nur Wasser und Stickstoff enthält und sich ähnlich wie die Proben mit Kupfer zu verhalten scheint. Daher wurde die Schlussfolgerung gezogen, dass keine Wasserstoffentwicklung über dem niedrigen Hintergrundniveau des Experiments auftrat, wenn Kupfer in den Reagenzgläsern vorhanden war. In der Abbildung findet sich auch eine gepunktete Linie, die schnell ansteigt. Sie zeigt den Druck, der nach den Schlussfolgerungen der KTH-Forscher zu erwarten wäre. Sie verwendeten also die gleiche Kupferqualität und ihre Proben waren ihren wissenschaftlichen Veröffentlichungen zufolge vor der Exposition gegenüber Wasser völlig unbehandelt.



**Abbildung 4-2.** Versiegelte Reagenzröhrchen mit Kupfer in reinem, sauerstofffreiem Wasser. Die 6 cm<sup>3</sup> große Gastasche oben in den Reagenzröhrchen wird regelmäßig beprobt. Zwei der Röhrchen enthalten nur Wasser und Gas. Das Bild wurde aufgenommen, als das Kupfer 27 Monate lang reinem, sauerstofffreiem Wasser bei 70 °C ausgesetzt worden war.



**Abbildung 4-3.** Wasserstoffentwicklung aus Kupferfolien mit unterschiedlichen Behandlungen vor der Exposition gegenüber reinem, sauerstofffreiem Wasser. Die gepunktete Linie, die rasch ansteigt, zeigt die erwartete Wasserstoffentwicklung nach den Veröffentlichungen der KTH-Forscher.

Von allen untersuchten Kupfersorten sorgte eine für Wasserstoffentwicklung: Als 2 Millimeter dicke Bleche des SKB-Kapselkupfers untersucht wurden, trat eine Wasserstoffentwicklung auf, die deutlich über dem Hintergrundwert lag. Diese Entwicklung kann jedoch unabhängig davon beobachtet werden, ob die Proben in Wasser getaucht sind oder ob sie sich in einem Reagenzröhrchen befinden, das nur Stickstoff enthält. Die offensichtliche Schlussfolgerung ist, dass in diesem Fall der Wasserstoff aus dem Kupfermaterial selbst stammt und nicht aus einer Reaktion zwischen Kupfer und Wasser. Etwa 0,05 Promille der Atome im Kapselmaterial sind

Ergänzung zur Kapselintegrität

Wasserstoff, und ein erheblicher Teil davon wird emittiert, wenn das Kupfer im Vakuum für eine Stunde auf etwa 400 °C erhitzt wird. Nach einer solchen Wärmebehandlung wird in den Reagenzröhrchentests keine Wasserstoffentwicklung beobachtet, unabhängig davon, ob das Kupfer Wasser ausgesetzt ist oder nicht. Es kann nicht ausgeschlossen werden, dass die anderen Kupfersorten in den Versuchen auch eine geringe Menge Wasserstoff emittierten. Diese Proben waren jedoch nur ein Zwanzigstel so dick wie das Kapselkupfer, was zu einer entsprechend geringeren Gesamtwasserstofffreisetzung bei gleichem Wasserstoffgehalt geführt hätte. Das ist zu wenig, um im Experiment messbar zu sein. SKB hat nun auch Berechnungen durchgeführt, wie Kapselkupfer Wasserstoff emittiert, was die Interpretation der Experimente mit SKB-Kapselkupfer weiter unterstützt.<sup>7</sup>

Kürzlich veröffentlichte<sup>8</sup> Studien in Finnland mit der von Micans entwickelten Methode bestätigen die obigen Ergebnisse.

### **Suche nach unbekanntem Kupferverbindungen**

SKB hat auch untersucht, ob es eine bisher unbekannte chemische Verbindung zwischen Kupfer, Sauerstoff und Wasserstoff mit Eigenschaften übereinstimmend mit der Interpretation der Experimente der KTH-Forscher geben könnte. Die Frage wurde sowohl experimentell als auch theoretisch von anderen Forschern an der KTH mehrere Jahre lang untersucht, mit dem Ergebnis, dass keine stabile, bisher unbekannte Verbindung gefunden wurde. Die Ergebnisse wurden in der wissenschaftlichen Literatur veröffentlicht.

### **Sonstiges**

SKB hat sowohl in der wissenschaftlichen Literatur als auch in direkten Kontakten auf Mängel in den Veröffentlichungen der KTH-Forscher hingewiesen. Diese Hinweise wurden in der Regel nur kurz und allgemein beantwortet, sodass es noch einige Unklarheiten darüber gibt, wie die Experimente tatsächlich durchgeführt wurden.

SKB hat vor kurzem einen zusammenfassenden wissenschaftlichen Artikel<sup>9</sup> über Kupferkorrosion in reinem, sauerstofffreiem Wasser veröffentlicht, mit der Forschungsgruppe der Universität Uppsala als Mitverfasser, da einige ihrer Ergebnisse zum ersten Mal in dem Artikel veröffentlicht werden. Der Artikel beschreibt die Versuche der Uppsala-Gruppe, die Ergebnisse der KTH-Forscher zu wiederholen, die Reagenzröhrchenversuche bei Micans und die Suche nach unbekanntem Kupferverbindungen. Darin werden auch die Mängel und Unklarheiten in den Veröffentlichungen der KTH-Forscher erörtert. Auch weitere Experimente auf diesem Gebiet werden diskutiert, darunter ein kurzer Versuch, die Experimente der KTH-Forscher in Studsvik nachzuahmen.

Abschließend hat die SKB Berechnungen veröffentlicht, die zeigen, dass selbst wenn die KTH-Forscher mit ihren Behauptungen Recht hätten, der Umfang des zitierten Korrosionsprozesses, basierend auf den eigenen Daten der KTH-Forscher, bei den Temperaturen, die unter Endlagerbedingungen herrschen werden, nur etwa einen Millimeter in einer Million Jahren betragen würde. Eine Million Jahre ist der Zeitraum, den die Sicherheitsanalyse für ein Endlager gemäß den SSM-Vorschriften abdecken muss.

<sup>7</sup> Hedin A, 2019. Scoping calculations of hydrogen degassing from Cu-OFP. SKBdoc 1716281 ver 1.0, Svensk Kärnbränslehantering AB.

<sup>8</sup> Ollila K. Copper corrosion experiments in pure water under anoxic conditions, Posiva WR 2018-19.

<sup>9</sup> Hedin A, Johansson A J, Lilja C, Boman M, Berastegui P, Berger R, Ottosson M, 2018. Corrosion of copper in pure O<sub>2</sub>-free water? Corrosion Science 137, 1–12.

Ergänzung zur Kapselintegrität

## **Schlussfolgerungen**

Die Experimente, die von einer Forschungsgruppe an der KTH verwendet wurden, um zu argumentieren, dass Kupfer in reinem Wasser deutlich mehr korrodiert, als etablierte Wissenschaft vorhersagt, wurde unter stärker kontrollierten Bedingungen wiederholt. Dabei wurde weder das von den Forschern als Kupferkorrosion interpretierte Signal (Wasserstoffentwicklung) noch Kupferverbindungen beobachtet, die sich gebildet hätten, wenn Korrosion aufgetreten wäre. Alternative Methoden zur Untersuchung des angeblichen Korrosionsphänomens haben ebenfalls keine Ergebnisse erbracht, die als Korrosion interpretiert werden können.

Die Suche nach hypothetischen, bisher unbekanntem Verbindungen zwischen Kupfer, Sauerstoff und Wasserstoff (die ein bisher unbekanntes Korrosionsphänomen erklären könnten) hat sowohl experimentell als auch theoretisch nicht zu einem solchen Befund geführt.

Selbst wenn die KTH-Forscher Recht hätten, würde das Ausmaß im Endlager nur eine Korrosionstiefe von etwa einem Millimeter in einer Million Jahren betragen, was das Einschlussvermögen der Kapsel oder die langfristige Sicherheit nicht beeinträchtigen würde.

Alle diese Ergebnisse wurden nun in der wissenschaftlichen Literatur veröffentlicht. Auch Mängel bei den Versuchen, Ergebnisse zu erzielen, die im Widerspruch zur etablierten Wissenschaft stehen, werden in den wissenschaftlichen Veröffentlichungen behandelt.

Es ist die klare Schlussfolgerung der SKB, dass wissenschaftlich nicht gestützt wird, dass Kupfer in reinem, sauerstofffreiem Wasser auf andere Weise korrodiert, als in der etablierten Wissenschaft festgestellt, was unermesslich gering ist.

## **5 Lochkorrosion durch Reaktion mit Sulfid, einschließlich der Wirkung des Saunaeffekts auf die Lochkorrosion**

### ***Worum geht es bei der Frage?***

Lochkorrosion ist eine Form der lokalen Korrosion, die bedeutet, dass Korrosion an bestimmten Stellen auftritt und daher einen tieferen Befall erzeugt, als wenn sie gleichmäßiger über einer größeren Oberfläche auftritt. Im Allgemeinen muss die bei Korrosion gebildete Stoffschicht (Korrosionsprodukte) eine schützende (passivierende) Wirkung auf die anhaltende Korrosion der Metalloberfläche haben, damit lokale Korrosion auftreten kann. An den Stellen auf der Oberfläche, an denen Defekte oder „Löcher“ in dieser Schutzschicht auftreten, löst sich das Metall auf und Löcher erscheinen in der Metalloberfläche. Lokale Korrosion kann in verschiedenen Formen auftreten, mit tiefen Löchern, aber auch flachen Löchern, die sich nicht in die Tiefe ausdehnen.

### ***Beurteilung des Problems durch MMD***

*Die Untersuchung der SKB zeigt, dass das Risiko von Lochkorrosion durch Reaktion mit Sulfid im Allgemeinen gering ist, wenn es sich um Sulfid- und Chloridgehalte handelt, die unter Endlagerbedingungen auftreten können. SSM hat jedoch zwei Fälle identifiziert, in denen die Sulfidkonzentration so hoch sein könnte, dass sich passivierende Sulfidfilme bilden und ein Risiko von Lochkorrosion darstellen können. Ein Fall ist erhöhte Konzentrationen aufgrund der mikrobiellen Sulfatreduktion, bevor sich der volle Schwellendruck entwickelt hat. Der zweite Fall ist die Diffusion von gasförmigem Sulfid, das in der Rückfüllung gebildet wird, zu ungesättigten Einlagerungsöffnungen. Auch Peter Szakálos u. a. haben auf diese Risiken hingewiesen. Die Untersuchung zeigt, dass die Gefahr von Lochkorrosion besteht. Das Land- und Umweltgericht schließt sich der Einschätzung der SSM an, dass zusätzliche Unterlagen in Bezug auf die Variabilität und Unsicherheit der Sulfid- und Chloridgehalte in den beiden oben genannten Fällen*

Ergänzung zur Kapselintegrität

*und die Folgen der Bildung von passivierendem Sulfidfilm erforderlich sind. Das Gericht beurteilt im Folgenden, dass erhebliche Unsicherheiten darüber bestehen, wie sich Spannungsrisskorrosion auf die Schutzkapazität der Kapsel auswirken kann. Die Bedingungen für Lochkorrosion und Spannungsrisskorrosion unter Endlagerbedingungen sind hinsichtlich der chemischen Bedingungen und des Risikos der Bildung passivierender Schichten ähnlich. Lochkorrosion ist außerdem ein Prozess, der, sobald er auftritt, sich unter Endlagerbedingungen eine lange Zeit fortsetzen kann. Er kann auch relativ schnell voranschreiten. Insgesamt besteht eine erhebliche Unsicherheit hinsichtlich der Lochkorrosion durch Reaktion mit Sulfid. Bei dieser Bewertung wird berücksichtigt, dass die Zeit vor der Entwicklung des vollen Schwelldrucks relativ begrenzt ist, d. h. die Zeit, in der ein erhöhtes Risiko für mikrobielle Sulfatreduktion und Diffusion von gasförmigem Sulfid besteht.*

In der Stellungnahme von MMD wurde außerdem angeführt, dass zusätzliche Unterlagen über die Auswirkungen des Saunaeffekts auf die Lochkorrosion erforderlich sind.

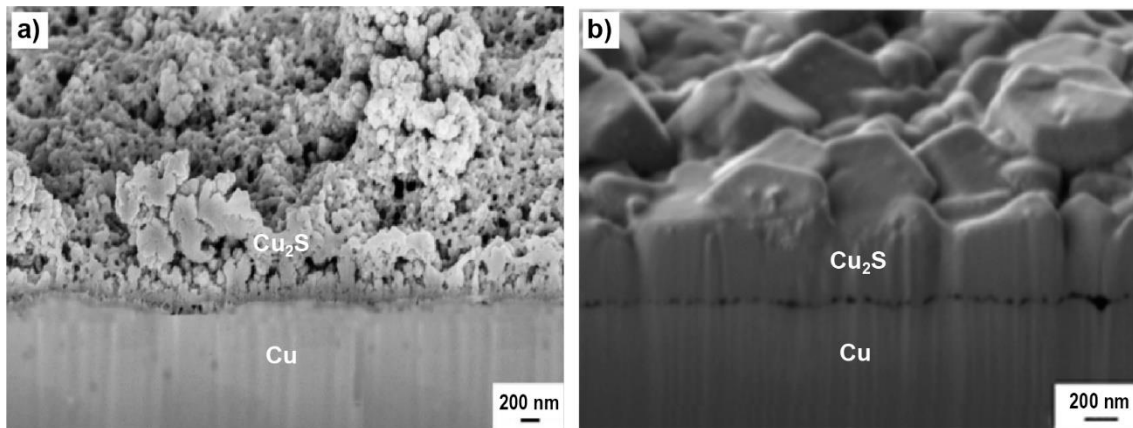
### **Frühere und neue Studien**

Zunächst wird darauf hingewiesen, dass in Abschnitt 3 der Saunaeffekt in einem KBS-3-Endlager in Forsmark als vernachlässigbar gilt. Die Auswirkungen des Saunaeffekts auf die Lochkorrosion werden daher hier nicht weiter diskutiert.

Die Korrosion von Kupfer in Sulfidlösung wird von SKB seit vielen Jahren untersucht, hauptsächlich durch Arbeiten an der University of Western Ontario in Kanada. Kapselkupfer wurde Sulfidlösungen unterschiedlicher Konzentrationen ausgesetzt. Durch die Untersuchung der Eigenschaften von Korrosionsprodukten und deren Wachstum kann man die Korrosionsmechanismen verstehen und was die chemischen Reaktionen steuert. Es hat sich gezeigt, dass der Sulfidfluss zur Kupferoberfläche entscheidend ist. Wenn die Sulfidkonzentration niedrig ist, ist der Sulfidfluss gering und es wird ein poröser Film aus Korrosionsprodukten (Kupfersulfid,  $\text{Cu}_2\text{S}$ ) gebildet, siehe Abbildung 5-1.a. Wenn die Sulfidkonzentration hoch ist, ist der Sulfidfluss höher und es kann ein kompakterer Film gebildet werden, siehe Abbildung 5.1.b.

Damit Lochkorrosion im herkömmlichen Sinne auftritt, muss der Film aus Korrosionsprodukten Passivität aufweisen, d. h. dass der gebildete Film eine fortgesetzte Korrosion verhindert. Der Film muss kompakt sein, aber auch besondere elektrische Eigenschaften besitzen. Solche Filme hat man in Experimenten herstellen können, bei denen die Kupferprobe einer elektrischen Spannung ausgesetzt wird und der Sulfidfluss durch Rotieren der Probe künstlich erhöht wird, jedoch nicht bei normaler Kupferexposition ohne angelegte Spannung. Es gibt andere veröffentlichte Studien, die behaupten, dass Passivität beobachtet wurde, aber diese Schlussfolgerungen können in Frage gestellt werden. Dies liegt daran, dass die elektrischen Eigenschaften des Films nicht sorgfältig genug untersucht wurden, und in mehreren Fällen werden die Schlussfolgerungen gezogen, nachdem die Ergebnisse mit einem Modell (dem sogenannten Punktfehlermodell, Point Defect Model) interpretiert wurden, das nur für passive Filme gilt, was also eine Form von Zirkelschluss impliziert.





**Abbildung 5-1.** Querschnitt einer Kupferoberfläche, die Sulfidlösung ausgesetzt ist, a) poröser Film nach 4000 Stunden bei Sulfidkonzentration  $5 \times 10^{-5}$  mol/l gebildet, b) kompakter Film nach 1691 Stunden bei Sulfidkonzentration  $5 \times 10^{-4}$  mol/l gebildet. Die Bilder wurden mit einem Rasterelektronenmikroskop aufgenommen.

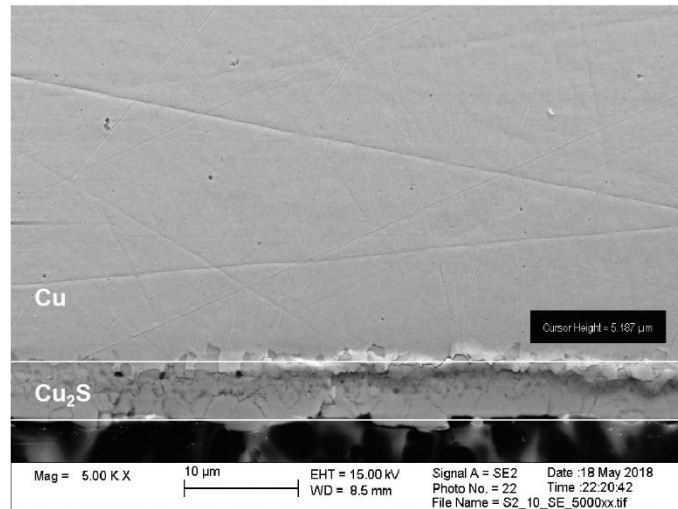
Um besser zu verstehen, ob Löcher bei Korrosion von Kupfer in Sulfidlösung auftreten, hat SKB drei neue Studien durchgeführt, in denen Kupfer Sulfidlösung,<sup>10</sup> sowie Sulfidgas und einer Lösung mit sulfatreduzierenden Bakterien (SRB) ausgesetzt wurde.<sup>11</sup> In einem ersten Schritt wurden auch verschiedene Methoden untersucht, um die Korrosionsprodukte zu entfernen, ohne die Oberfläche zu beschädigen oder neue Löcher zu schaffen.

Bei ausreichend hohen Sulfidkonzentrationen wurden Löcher beobachtet, die als mikrogalvanische Korrosion interpretiert werden könnten, was eine milde Form der lokalen Korrosion ist und wahrscheinlich aufgrund unterschiedlicher Dicke des Films auftrat. Die dafür erforderliche Sulfidkonzentration war etwas höher als die allerhöchsten die im Grundwasser in Forsmark erwartet werden. Die tiefsten Löcher waren etwa 0,006 Millimeter, was fast 20 Mal tiefer war als die durchschnittliche Oberflächenkorrosion.

Kupfer, das gasförmigem Sulfid in einer hohen und einer niedrigen Konzentration ausgesetzt war, zeigte nur eine ungleichmäßig korrodierte Oberfläche, siehe Abbildung 5-2, und wie erwartet trat mehr Korrosion bei höherer Sulfidkonzentration und längerer Expositionszeit auf.

<sup>10</sup> **Chen J, Guo M, Martino T, Ramamurthy S, Noël J J, Shoesmith D, Lilja C, Johansson A J, 2019.** The distribution of corrosion damage to copper surfaces exposed to aqueous sulphide solutions. SKBdoc 1706406, ver 1.0, Svensk Kärnbränslehantering AB.

<sup>11</sup> **Gordon A, Johansson J, Pahverk H, Börjesson E, Sjögren L, 2018.** Corrosion morphology of copper in anoxic sulphide environments. SKB TR-18-14, Svensk Kärnbränslehantering AB.



**Abbildung 5-2.** Querschnitt einer Kupferoberfläche nach 30 Tagen Exposition in 1 % Sulfidgas (die höhere Konzentration) bei 75 % relativer Luftfeuchtigkeit und 85 °C Temperatur.

In den Experimenten mit sulfatreduzierenden Bakterien wurde Kupfer einer Lösung ausgesetzt, die solche Bakterien enthielt und bei der die Lösung entweder nährstoffreich (größere Mengen Sulfat und organischem Kohlenstoff) oder nährstoffarm war (Sulfat- und organische Kohlenstoffwerte, die im Grundwasser in Endlagertiefe auftreten). Referenzproben mit Nährlösung, aber ohne Bakterien, sowie mit zugesetztem Sulfid wurden ebenfalls aufgenommen. Die Ergebnisse zeigten, dass es bei den Kupferproben, die der nährstoffhaltigen Lösung ausgesetzt waren, Löcher gab, die lokale Korrosion anzeigten. Dieses Ergebnis steht auch im Einklang mit einigen anderen wissenschaftlichen Studien, die Aktivität von Bakterien und die Bildung eines Biofilms auf der Kupferoberfläche aufgewiesen haben. Gemeinsam ist für alle Versuche, bei denen Biofilm und/oder lokale Korrosion durch bakterielle Aktivität beobachtet wurde, dass die Sulfidkonzentration in der Lösung höher war als die höchste im Grundwasser in Forsmark gemessene. Die Proben in nährstoffarmen Lösungen (ähnlich dem Grundwasser) hatten solche Löcher nicht. Alle Proben wiesen jedoch Löcher und Kratzer auf, die wahrscheinlich bei der Herstellung der Probe entstanden, d. h. sie ähnelten völlig unexponierten Referenzproben, die ebenfalls untersucht wurden.

### **Lokale Korrosion unter Endlagerbedingungen**

Insbesondere konnte anhand der Untersuchungen zur Bildung von Korrosionsfilmen ermittelt werden, welche Sulfidflüsse zur Kapseloberfläche hin benötigt werden, damit verschiedene Arten von Korrosionsmechanismen auftreten können. Niedrigere Sulfidkonzentrationen in der Lösung erzeugen niedrigere Sulfidflüsse zur Kapseloberfläche, und höhere Konzentrationen erzeugen höhere Flüsse. Der Bentonit um die Kapsel im Endlager wird den Fluss von sulfidhaltigem Grundwasser begrenzen und somit Korrosionsprozesse verhindern, die einen hohen Sulfidfluss erfordern. Darüber hinaus zeigen neue Modellberechnungen der Fähigkeit des ungesättigten Puffers, Sulfid in gasförmiger Form zu transportieren, dass dieser viel kleiner ist als bisher pessimistisch von SKB angenommen.<sup>5</sup>

Damit Lochkorrosion des traditionellen Typs auftreten kann, ist ein kompakter Film aus Korrosionsprodukten erforderlich, der ausserdem die Kupferoberfläche passiviert. Passivierung ist nie als spontaner Korrosionsmechanismus für Kupfer in Sulfidlösung beobachtet worden. Darüber hinaus erfordert der kompakte Film aus Korrosionsprodukten, der erforderlich wäre, einen Sulfidfluss, der mindestens hundertmal höher ist als der, der mit einem intakten Bentonitpuffer im Endlager auftritt, ob ungesättigt oder vollständig wassergesättigt. Der Sulfidfluss ist ebenfalls zu niedrig, als dass mikrogalvanische Korrosion auftreten könnte, wenn der Puffer intakt ist.

Ergänzung zur Kapselintegrität

Bei Laborexperimenten wurde beobachtet, dass Kupfer in Sulfidlösung in einer Weise reagierte, die als mikrogalvanische Korrosion interpretiert werden könnte. Es ist nicht völlig ausgeschlossen, dass mikrogalvanische Korrosion bei den höchsten Inzidenzen von Sulfidflüssen (Kombinationen von maximaler Sulfidkonzentration und maximalem Grundwasserfluss) auftreten kann, die für das Endlager berechnet wurden. Dies gilt für den geringen Anteil von Einlagerungsöffnungen, bei denen der Puffer infolge der Erosion des Puffermaterials verloren gehen könnte (siehe Abschnitt 2). Da während der Untersuchung nicht vollständig ausgeschlossen werden konnte, dass mikrogalvanische Korrosion unter Endlagerbedingungen auftreten kann, wurden die Folgen der Einbeziehung dieser in die Risikoberechnung mit pessimistischen Annahmen untersucht, siehe weiter Abschnitt 9.

Angehend lokaler Korrosion durch einen aktiven Biofilm mit sulfatreduzierenden Bakterien auf einer direkt dem Grundwasser exponierten Kapseloberfläche, wird dies nicht als im Endlager vorkommend beurteilt. Weder ein Biofilm noch lokale Korrosion in Gegenwart dieser Bakterien wurden unter Bedingungen beobachtet, die denen im Endlager entsprechen.

### **Schlussfolgerungen**

Aus sowohl früheren als auch neuen Studien über die Korrosion von Kupfer in Sulfidlösung ohne sulfatreduzierende Bakterien ist es möglich festzustellen, welche Sulfidflüsse für das Auftreten verschiedener Korrosionsformen erforderlich sind. Durch den Vergleich mit den im Endlager möglichen Sulfidflüssen werden folgende Schlussfolgerungen zur Lochkorrosion gezogen:

- Sowohl frühere als auch aktuelle Studien zeigen, dass ein passivierender Sulfidfilm unter Endlagerbedingungen nicht entstehen kann. Die Entstehung passiver Filme wurde nur unter künstlichen elektrischen Bedingungen im Labor beobachtet. Es wird daher angesehen, dass die übliche Form der Lochkorrosion nicht unter den Bedingungen im Endlager auftreten kann.
- Wenn der Bentonit intakt ist und unabhängig davon, ob er ungesättigt (wie zunächst zu Beginn) oder wassergesättigt ist, ist der Sulfidfluss so gering, dass auch mikrogalvanische Korrosion, eine milde Form der lokalen Korrosion, nicht auftreten kann.
- Bei den wenigen Einlagerungsöffnungen, bei denen der Puffer durch Erosion des Puffermaterials nach typischerweise 100 000 Jahren verloren gehen könnte, konnte nicht ausgeschlossen werden, dass bei den höchsten Sulfidflüssen mikrogalvanische Korrosion auftreten kann. Dieser Prozess wurde daher in die Risikoberechnung einbezogen, siehe Abschnitt 9.

Eine neue Studie zur mikrobiellen Sulfidbildung bestätigt, dass dies nicht unter ungesättigten Bedingungen geschieht. Unter gesättigten Bedingungen sind sowohl die Sulfatkonzentration als auch die Verfügbarkeit von Nährstoffen zu gering, als dass sich ein Biofilm, der zu lokaler Korrosion führen könnte, auf der Kupferoberfläche bilden kann.

## **6 Spannungsrisskorrosion durch Reaktion mit Sulfid, einschließlich der Wirkung des Saunaeffekts auf die Spannungsrisskorrosion**

### ***Worum geht es bei der Frage?***

Spannungsrisskorrosion ist ein Phänomen, das nicht nur eine korrosive Umgebung erfordert, sondern auch Zugspannungen im Material, d. h. mechanische Kräfte, die das Material auseinanderziehen wollen. Bei Kupfer kann diese Form der Korrosion unter oxidierenden

Ergänzung zur Kapselintegrität

Bedingungen (mit vorhandenem Sauerstoff) beispielsweise in Lösungen mit Ammoniak auftreten, dies wurde in den Unterlagen zur Sicherheitsanalyse SR-Site behandelt. Für Kupfer in Sulfidlösung wurden einige Studien vorgestellt, bei denen die Beobachtungen als Spannungsrissskorrosion interpretiert wurden. Traditionell wird Spannungsrissskorrosion mit sogenannten langsamen Zugprüfungen mit einer Art Prüfstab in einer bestimmten chemischen Umgebung untersucht, um zu sehen, wie die mechanischen Eigenschaften möglicherweise beeinflusst werden. Oft zieht man dabei am Prüfstab, bis es zum Bruch kommt.

Auch die Mikrostruktur des Kupfers ist bei dieser Frage von Bedeutung. Das Kapselkupfer besteht aus Kristallkörnern mit einer Größe von typischerweise 100 Mikrometer ( $\mu\text{m}$ ), d. h. 0,1 Millimeter. Spannungsrissskorrosion kann sowohl als Risse zwischen Körnern als auch durch Körner auftreten. Eine andere Form der Korrosion ist die Korngrenzkorrosion, was bedeutet, dass Korrosion nur entlang der Korngrenzen und ohne Verbindung zu mechanischen Spannungen auftritt.

### **Beurteilung der Frage durch MMD**

*Das Land- und Umweltgericht ist der Auffassung, dass das Risiko von Spannungsrissskorrosion gering ist, wenn die Zufuhr von Sulfiden diffusionskontrolliert ist, d. h. langsam, wie es bei gesättigten Einlagerungsöffnungen der Fall ist. Dennoch hat SSM beurteilt, dass das Risiko von Spannungsrissskorrosion in einer Sulfidumgebung die größte Unsicherheit darstellt. Das Gericht stimmt der Einschätzung der SSM zu, dass die Gefahr von Spannungsrissskorrosion besteht. Dies gilt u.a. für den Aaltonen-Mechanismus und die Variabilität der chemischen Bedingungen. SKB hat keine Unterlagen und Argumente vorgelegt, die das Risiko von Spannungsrissskorrosion in einer Sulfidumgebung ausschließen. Die Interpretation der MiniCan-Experimente durch Peter Szakálos u. a. kann nicht außer Acht gelassen werden, d. h. dass Mikroskopbilder aus den Experimenten darauf hindeuten, dass Spannungsrisse aufgetreten sind. Es ist ungewiss, ob die Ergebnisse der MiniCan-Studien als Beweis dafür angesehen werden können, dass Spannungsrissskorrosion ausgeschlossen ist. Das Gericht ist der Auffassung, dass aufgrund der chemischen Bedingungen im Endlager die Gefahr von Spannungsrissskorrosion besteht, die das Auftreten passivierender Schichten ermöglichen. Spannungsrissskorrosion, wie Lochkorrosion, ist ein Prozess, der, sobald er auftritt, für eine lange Zeit fortschreiten kann. Er kann auch relativ schnell voranschreiten. Insgesamt besteht eine erhebliche Unsicherheit hinsichtlich der Spannungsrissskorrosion durch Reaktion mit Sulfid. Es kann nicht ausgeschlossen werden, dass eine erhebliche Anzahl von Kapseln innerhalb von 100.000 Jahren ausfallen wird. Zusätzliche Dokumentation ist erforderlich, um die Annahme von SKB zu belegen, dass Spannungsrissskorrosion unter reduzierenden Bedingungen die Integrität der Kapseln nicht gefährdet.*

In der Stellungnahme des Land- und Umweltgerichts heißt es auch, dass die Auswirkungen des Saunaeffekts auf die Spannungsrissskorrosion ausgewertet werden müssen.

### **Frühere und neue Studien**

Zunächst wird darauf hingewiesen, dass:

- In Abschnitt 3 wird beurteilt, dass der Saunaeffekt in einem KBS-3-Endlager in Forsmark vernachlässigbar ist und die Auswirkungen des Saunaeffekts auf die Spannungsrissskorrosion werden hier daher nicht weiter diskutiert.
- Nach den Schlussfolgerungen in Abschnitt 5 zeigen sowohl frühere als auch neuere Studien, dass ein passivierender Sulfidfilm unter den Endlagerbedingungen nicht entstehen kann.

In den letzten 10 Jahren haben fünf verschiedene Forschungsgruppen Laborexperimente durchgeführt, um zu untersuchen, ob Spannungsrisskorrosion in Kupfer auftreten kann, das in Sulfidlösung exponiert ist. Die Ergebnisse waren jedoch nicht kohärent. Eine japanische Studie von 2007–2008 stellte kleine oberflächliche Risse fest, aber mehrere andere Beobachtungen deuten darauf hin, dass es sich um Angriffe in den Korngrenzen und nicht um traditionelle Spannungsrisskorrosion gehandelt haben könnte. SKB beauftragte ein Team an der University of Toronto in Kanada, die japanischen Studien zwischen 2012 und 2013 zu wiederholen, aber trotz aggressiver Bedingungen und der Variation vieler unterschiedlicher Faktoren wurden keine Risse gefunden. Eine Gruppe am VTT Forschungsinstitut in Finnland versuchte ebenfalls, die japanischen Studien in den Jahren 2011–2014 zu wiederholen. Zunächst wurden Ergebnisse veröffentlicht, die zeigten, dass Sulfid schnell in das Material eindringen würde, aber die Autoren konnten in einer späteren Veröffentlichung schlussfolgern, dass dies auf eine unangemessene Probenvorbereitungsmethode zurückzuführen war.

Bei Studsvik AB hat SSM weitere Tests in Auftrag gegeben und Materialien von den exponierten Prüfstäben wurden auch an der Aalto Universität in Finnland untersucht. Hier wurden eine andere Art von Prüfstab mit konischer Form und unterschiedliche Sulfidkonzentrationen verwendet. Im Gegensatz zu den vorherigen Studien wurde ein Phosphatpuffer verwendet, um den pH-Wert (Säuregrad) in der Sulfidlösung rund um den Prüfstab stabil zu halten. Bei einer Sulfidkonzentration von  $10^{-3}$  mol/l wurden einige kleine Risse mit einer maximalen Tiefe von 0,05 Millimetern festgestellt. ( $10^{-3}$  mol/l ist zehnmal höher als die maximalen Konzentrationen, die im Endlager in Forsmark erwartet werden.) Bei einer zehnmal niedrigeren Sulfidkonzentration ( $10^{-4}$  mol/l) wurden einige kleinere Defekte in der Prüfstaboberfläche festgestellt, aber da diese auch weiter innen im Material gefunden wurden, kamen die Autoren zu dem Schluss, dass diese eine andere Ursache (z. B. die Herstellung der Prüfstäbe) hatten. Darüber hinaus wurden die Ergebnisse so interpretiert, dass zwischen diesen Sulfidkonzentrationen eine Art Schwelle für die Entstehung der oberflächlichen Risse bestand. An der Aalto Universität wurde der Wasserstoffgehalt in verschiedenen Proben untersucht, und die Autoren meinten, nach der Exposition in Sulfidlösung höhere Wasserstoffgehalte im Kupfer zu sehen. Die Ergebnisse können jedoch in Frage gestellt werden, da selbst nicht exponierte Teile der Prüfstäbe den gleichen Wasserstoffgehalt wie exponierte Teile hatten und Wasserstoff sich im Material nicht so schnell bewegen kann, wie es für Wasserstoff erforderlich wäre, der im exponierten Teil des Prüfstabs aufgenommen wird, um zum nicht exponierten Teil zu diffundieren (wandern).

In den letzten drei Jahren hat SKB Swerea KIMAB (jetzt RISE KIMAB) beauftragt, sowohl die japanischen Studien als auch die Studie in Studsvik zu wiederholen.<sup>12 13</sup> Die Untersuchungen wurden mit runden und flachen Prüfstäben durchgeführt, mit unterschiedlicher Bearbeitung des Kupfermetalls, bei unterschiedlichen Temperaturen, mit unterschiedlichen Sulfidkonzentrationen und sowohl mit als auch ohne Phosphatpuffer zur pH-Regelung. Die Prüfstäbe wurden mit einem lichtoptischen Mikroskop und einem Rasterelektronenmikroskop untersucht. Wenn die Prüfstäbe bis zum Brechen gezogen wurden, waren die Brüche zäh (duktil) und nicht spröde, wie es normalerweise der Fall ist, wenn die auftretenden Risse eine schwächende Wirkung auf das Material haben. Es gab Anzeichen von Befall in den Korngrenzen, siehe Abbildung 6-1, was dem gleicht, was andere Gruppen als Spannungsrisskorrosion interpretiert haben. In den Phosphatpufferstudien wurden oberflächliche Defekte bei hohem Sulfidgehalt ( $10^{-3}$  mol/l oder höher), aber nicht bei niedrigem Sulfidgehalt ( $2 \times 10^{-5}$  mol/l) gefunden, siehe Abbildung 6-2.

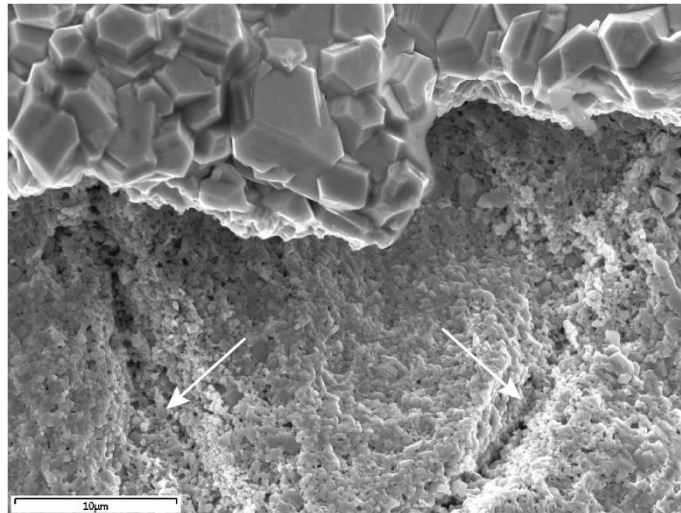
Die scheinbar widersprüchlichen Ergebnisse der verschiedenen Studien lassen sich weitgehend durch eine mechanistische Beschreibung der Korrosion erklären, bei der der Transport von Sulfid

<sup>12</sup> Taxén, C, Flyg J, Bergqvist H, 2018. Stress corrosion testing of copper in sulfide solutions. SKB TR-17-16, Svensk Kärnbränslehantering AB.

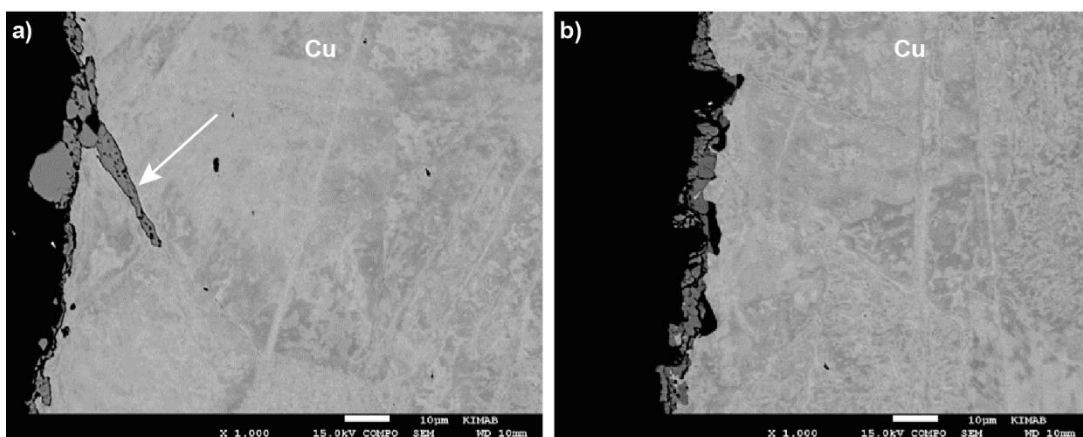
<sup>13</sup> Taxén C, Flyg J, Bergqvist H, 2019. Stress corrosion testing of copper in near neutral sulfide solutions. SKB TR-19-13, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Ergänzung zur Kapselintegrität

in den Riss eine zentrale Rolle spielt. Wenn der Transport schnell genug ist, d. h. wenn der Sulfidfluss in den Riss hoch genug ist, kann zunächst ein gewisses Maß an Korngrenzkorrosion auftreten. Der Sulfidfluss zum Boden des Risses wird dann gedämpft, sowohl durch die gebildeten Korrosionsprodukte als auch durch die Vertiefung des Risses, was schließlich dazu führt, dass das Phänomen beendet wird.



**Abbildung 6-1.** Oberflächliche Spuren am Kupferprüfstab nach langsamer Zugprüfung in einer Lösung mit  $10^{-2}$  mol/l Sulfid bei 80 °C. Die Pfeile weisen auf oberflächliche Angriffe in Korngrenzen hin.



**Abbildung 6-2.** Querschnitt entlang des Prüfstabs nach Prüfung in a) Lösung mit  $10^{-3}$  mol/l Sulfid, b)  $2 \times 10^{-5}$  mol/l Sulfid. Beide Proben wurden 90 °C ausgesetzt. Der Pfeil in a) markiert einen Riss.

Es kann nicht völlig ausgeschlossen werden, dass die Kapsel Zugspannungen ausgesetzt ist, die durch die gesamte Materialdicke im Endlager gehen. Der maximale Sulfidfluss, der auch bei erodiertem Puffer ( $10^{-9}$  mol/(m<sup>2</sup> s)) auftreten kann, ist jedoch mindestens 1000 Mal niedriger als die Flüsse, die in Laborexperimenten vorhanden sind, bei denen von kleinen Rissen berichtet wurden.

Ergänzung zur Kapselintegrität

Bereits im Jahr 2011 wurde in den Unterlagen für den Antrag von SKB diskutiert, ob der sogenannte Aaltonen-Mechanismus ein Spannungsrisskorrosionsmechanismus sein könnte. Der Mechanismus beinhaltet das Wachstum von Rissen als Folge der Bewegung eines Überschusses an Leerständen, d. h. atomaren „Löchern“, zum Riss. SKB hat es den Experten von VTT ermöglicht, die veröffentlichten Studien erneut zu überprüfen<sup>14</sup>. Damals wurde festgestellt, dass die Labortests, bei denen die Auswirkungen von Leerständen untersucht wurden, unter Bedingungen durchgeführt wurden, die im Endlager niemals vorkommen können.

Hinsichtlich der kleineren Risse, die in einigen Proben in den MiniCan-Versuchen im Äspö-Labor beobachtet wurden, hat SKB zuvor berichtet, dass diese nicht als korrosionsbedingt gelten, sondern wahrscheinlich während der Probenproduktion entstanden sind.

### **Schlussfolgerungen**

Obwohl es einige Studien gibt, die von oberflächlichen Rissen auf Kupfer berichten, das Zugspannungen und einer hohen Sulfidkonzentration (und damit einem hohen Sulfidfluss) ausgesetzt wurden, gibt es keinen experimentellen Nachweis für das Auftreten von Spannungsrisskorrosion auf Kupfer in Sulfidlösung. Vor allem sind die mechanischen Frakturen, die bei Experimenten auftreten, nicht spröde, sondern zäh (duktil).

Es ist wesentlich einleuchtender und konsequenter, die experimentell festzustellenden Risse bei gleichzeitiger Sulfidexposition und Zugspannung als Korngrenzkorrosion zu interpretieren. Dieses Phänomen erfordert einen bestimmten Sulfidfluss, und die Flüsse sind unter Endlagerbedingungen viel geringer, als dass es auftreten könnte. Selbst in Experimenten, in denen der Fluss hoch genug ist, beschränkt sich das Phänomen auf oberflächliche Risse, da gebildete Korrosionsprodukte dann den Fluss in den Rissen dämpfen.

Zusammenfassend lauten die Schlussfolgerungen deswegen wie folgt:

- Die in einigen Versuchen beobachteten oberflächlichen Risse sind keine Spannungsrisskorrosion, sondern können als eine Form der Korngrenzkorrosion erklärt werden. Sie erfordern Sulfidflüsse, die mindestens 1000 Mal höher sind als das Maximum, das im Endlager auftreten kann.
- Selbst bei solch hohen experimentellen Flüssen kommt das Phänomen zum Stehen, weil Korrosionsprodukte einen anhaltenden Sulfidfluss in die entstandenen, relativ oberflächlichen, mikroskopischen Risse verhindern.
- Weder Spannungsriss- noch Korngrenzkorrosion stellen eine Bedrohung für die Integrität der Kapsel in einem KBS-3-Endlager in Forsmark dar.
- Ein neues Expertengutachten zeigt, dass sich die Studien, auf denen der sogenannte Aaltonen-Mechanismus basiert, auf Bedingungen beziehen, die im Endlager niemals vorkommen können.

## **7 Wasserstoffversprödung**

### ***Worum geht es bei der Frage?***

Wasserstoff kann in Kupfer als einzelne Wasserstoffatome, H, oder als Wasserstoffmoleküle, H<sub>2</sub>, auftreten. Wasserstoff kann, wenn er in ausreichenden Konzentrationen vorhanden ist, die

---

<sup>14</sup> **Huotilainen C, Saario T, Toivonen A, 2018.** Review of the Aaltonen-mechanism. SKB R-18-03, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Ergänzung zur Kapselintegrität

mechanischen Eigenschaften des Metalls beeinträchtigen. Dies ist ein bekanntes Phänomen, das für Metalle im Allgemeinen gilt. Atomarer Wasserstoff kann an verschiedene Arten von Defekten und Verunreinigungen im Kupfer gebunden werden. In mikroskopischen Poren im Metall kann sich auch molekularer, gasförmiger Wasserstoff bilden. Dies kann sich negativ auf die mechanischen Eigenschaften von Kupfer auswirken und wird gemeinhin als Wasserstoffversprödung bezeichnet. Kupfer gehört jedoch zu einer Gruppe von Metallen, die sehr abgeneigt sind, Wasserstoff zu absorbieren.

Wasserstoff, der mit Sauerstoff im Metall reagiert, kann molekulares Wasser (in Form von Wasserdampf) in Mikroporen bilden, was sich ebenfalls negativ auf die mechanischen Eigenschaften auswirken kann. Das Phänomen wird manchmal als Wasserstoffkrankheit bezeichnet.

Kupfer und viele andere Arten von Metallen und Legierungen mit ähnlicher atomarer Struktur, wie Aluminiumlegierungen, einige rostfreie Stähle und Nickel, sind von der Wasserstoffversprödung nicht betroffen, und Versprödung wird im Allgemeinen nicht als Problem für diese Arten von Materialien in industriellen Anwendungen angesehen. Dies gilt auch für Kupfer mit niedrigem Sauerstoffgehalt, dem sogenannten sauerstofffreien Kupfer.

Gemäß den Anforderungen für sauerstofffreies Kupfer, das für die Kapseln verwendet wird, dürfen maximal 0,6 Millionstel Gewichtsteile aus Wasserstoff bestehen. Die entsprechenden Anforderungen für Sauerstoff betragen 5 Millionstel Gewichtsteile. Diese Anforderungen dienen dazu, Wasserstoffversprödung und Wasserstoffkrankheit zu verhindern. Ähnliche Anforderungen an den Sauerstoffgehalt werden seit vielen Jahren für Kupfer in verschiedenen Anwendungen verwendet. Dies mit solchem Erfolg, dass die Wasserstoffversprödung nicht mehr als technisches Problem bei Kupfer angesehen wird, wie die Tatsache zeigt, dass die Kupferwasserstoffversprödung in den letzten 40 Jahren kaum wissenschaftliches Interesse geweckt hat.

Das Ausgangsmaterial für die Kupferkapseln ist rein genug, um zu verhindern, dass die Wasserstoffversprödung ein Problem darstellt. Es muss auch sichergestellt werden, dass das Material bei der Herstellung der Kapseln oder im Endlager nicht so beeinträchtigt wird, dass Wasserstoffversprödung auftreten und die Eigenschaften der Kapsel beeinträchtigen könnte.

### **Beurteilung der Frage durch MMD**

*Wie SSM ist auch das Land- und Umweltgericht der Auffassung, dass die Verwendung von sauerstoffarmem Kupfer bedeutet, dass die Gefahr von zusammenhängenden Kupferoxiden im Kupfermaterial, die Wasserstoffversprödung verursachen, sehr gering ist. Die Untersuchung zeigt jedoch, dass nach dem FSW-Schweißen in der Schweißverbindung Oxidschleifen aufgetreten sind, die zu Wasserstoffversprödung führen könnten. Es ist daher nicht klar, dass die Verwendung von Cu-OF das Risiko der Wasserstoffversprödung vollständig eliminiert. SKB hat nicht nachgewiesen, in welchem Ausmaß durch Korrosionsreaktionen mit Sulfid im Grundwasser auf der Oberfläche der Kapsel gebildeter Wasserstoff eindringen kann. Obwohl dieser Effekt wahrscheinlich weniger Auswirkungen auf die Festigkeit der Kapsel haben wird, ist es ein Mangel, dass SKB keine Berechnung dieser Art vorgelegt hat. SKB hat auch, wie SSM angegeben hat, nicht ausgewiesen, wie viel Wasserstoff in das Kupfermaterial eindringen muss, um seine Eigenschaften signifikant zu beeinflussen. Es ist auch wichtig, dass SKB, wie von SSM angegeben, eine bessere Grundlage für die Bewertung des Risikos der Rissausbreitung in Bereichen mit hoher Kriechdehnung bietet, wenn eine hohe Wasserstoffladung vorhanden ist. SKB hat außerdem nicht ausreichend berücksichtigt, welches Risiko eindringender atomarer Wasserstoff mit Auswirkungen auf die Eigenschaften des Kupfergehäuses in einer Tiefe von mehr als 50 µm darstellt. Das Land- und Umweltgericht geht davon aus, dass man sich einig ist, dass der Wasserstoff, der entsteht, wenn Kupfer in sauerstofffreiem Wasser korrodiert, in das Kupfer eindringen könnte. Es gibt jedoch Meinungsverschiedenheiten über das Ausmaß und die Bedeutung dieser*



Ergänzung zur Kapselintegrität

*Wasserstoffbildung und das Risiko des Eindringens. Es gibt keinen Grund, die Simulationen in Frage zu stellen, die Peter Szakálos u. a. durchgeführt haben, und die Mechanismen, die sie auf der Grundlage dieser Simulationen vorgeschlagen haben, werden als glaubwürdig angesehen. Das Gericht ist jedoch nicht der Auffassung, dass sie eine klare Antwort auf das Ausmaß des Eindringens dieses Wasserstoffs geben können. Insgesamt wird das Risiko eines Eindringens von Wasserstoff und die daraus entstehenden Auswirkungen nicht ausreichend untersucht. Es lässt sich daher nicht schlussfolgern, dass Wasserstoffversprödung nicht zu Kapselschäden beitragen kann. Die Ungewissheit hängt zum Teil mit der Ungewissheit zusammen, die hinsichtlich der Prozesse besteht, die zur Wasserstoffbildung an der Oberfläche führen können. Es wurde beurteilt, dass die größte Unsicherheit hinsichtlich der Reaktion von Kupfer auf sauerstofffreies Wasser herrscht. SKB muss zu diesem Teil zusätzliche Unterlagen bereitstellen. Die verbleibende Unsicherheit gilt als erheblich.*

### **Niedriger Sauerstoffgehalt im Kupfer**

SKB arbeitet seit langem mit der Anforderung, den Sauerstoffgehalt des Kapselkupfers auf einem niedrigen Niveau zu halten. Dies geschieht zum Teil einfach durch die Verwendung von Kupfer mit einem geringen Sauerstoffgehalt (maximal 5 Millionstel des Materialgewichts) und zum Teil durch die Entwicklung der Schweißtechnologie zum Verschluss der Kupferkapsel, so dass das Schweißen von Deckel und Boden der Kapsel nicht dazu führt, dass Sauerstoff in die Schweißverbindungen eingeführt wird.

Die Anforderung an das Kupfermaterial ist gut etabliert und es gibt Lieferanten, die Material nach den Anforderungen von SKB liefern. In den letzten Jahren hat SKB umfangreiche Arbeiten an der Entwicklung des Schweißverfahrens durchgeführt, sodass das Schweißen ausgeführt werden kann, ohne dass Sauerstoff in die Verbindung eingebracht wird. Es ist durchaus möglich, einen niedrigen Sauerstoffgehalt in den Schweißverbindungen der Kupferkapseln zu erreichen, indem man unter sogenanntem Gasschutz schweißt, d. h. in einer Atmosphäre, in der die Gaszusammensetzung überprüft und der Sauerstoffgasgehalt sehr gering gehalten wird. Dies ist ein Verfahren, das in vielen anderen Zusammenhängen industriell eingesetzt wird und somit auch beim Schweißen der Kupferkapseln anwendbar ist.

Ein neuer Bericht<sup>15</sup> zeigt, dass der Kupferoxidgehalt, der erreicht werden kann, niedrig genug ist, um Oxidstränge und damit das Risiko einer Wasserstoffversprödung zu vermeiden. Derselbe Bericht zeigt auch, dass, wenn der Oxidgehalt der Schweißverbindung niedrig genug ist, die mechanischen oder Korrosionseigenschaften des Materials nicht beeinträchtigt werden.

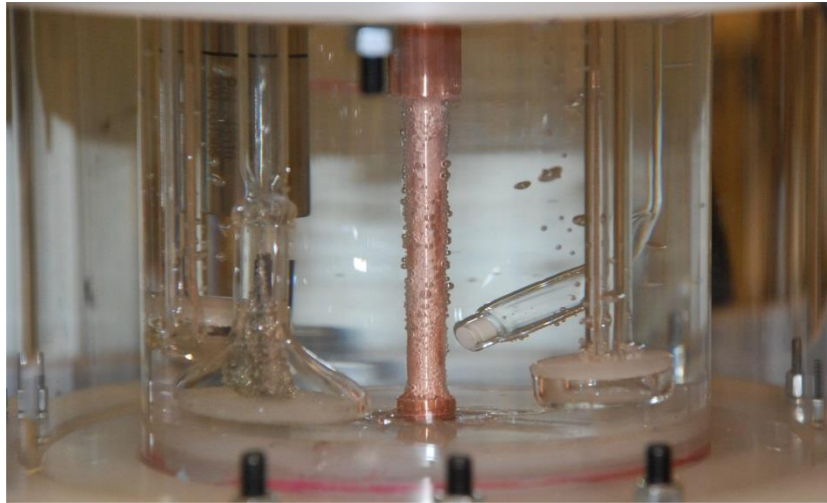
### **Eintrag von Wasserstoff in Laborexperimenten**

Es ist allgemein bekannt, dass Wasserstoff in Laborexperimenten in Kupfer eindringen kann und dass dies Auswirkungen auf das Material haben kann. Dies erfordert jedoch extreme Bedingungen, d. h. völlig andere Bedingungen als die, die unter Endlagerbedingungen in Forsmark gelten werden. Eine Methode besteht darin, dünne Kupferstücke auf mindestens 600 °C zu erhitzen und sie gleichzeitig dem zehnfachen Atmosphärenwasserstoffdruck auszusetzen. Eine andere und gebräuchlichere Methode ist das Beladen von Kupfer mit Wasserstoff mit elektrochemischen Mitteln. Hier befindet sich das Kupfer in einer wässrigen Lösung mit spezieller Zusammensetzung und es wird Strom durch das Kupfer und die Lösung geleitet. Die Lösung ist so zusammengesetzt, dass Wasserstoffatome dann an der Kupferoberfläche freigesetzt werden und in das Metall gelangen können. Die Wasserstoffatome an der Kupferoberfläche können auch zu gasförmigen Wasserstoffmolekülen verschmolzen werden, die dann aus der Flüssigkeit sprudeln, anstatt in das Kupfer einzudringen, siehe Abbildung 7-1. Um diesen Anteil zu reduzieren, werden der Lösung auch spezielle sogenannte Rekombinationsinhibitoren zugesetzt. Dennoch wurde festgestellt, dass

<sup>15</sup> Björck M, Taxén C, Vuoristo T, Elger R, Zavalis T, Wikström L, Sparr M, 2019. Embedded oxide particles in FSW. Posiva SKB Report 10, Posiva Oy, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Ergänzung zur Kapselintegrität

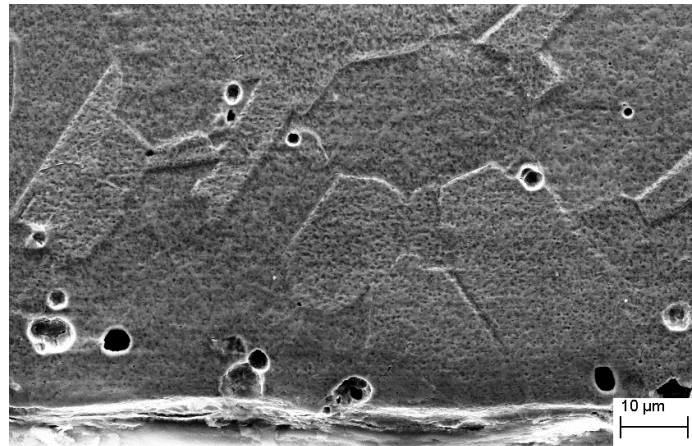
nur etwa ein Zehntel Promille des Wasserstoffs während dieser erzwungenen Versuche in das Kupfer gelangt.



**Abbildung 7-1.** Versuchsaufbau, bei dem unter anderem Kupfer mit Wasserstoff elektrochemisch beladen wird. Die Blasen auf dem Kupferstab in der Mitte sind Wasserstoff, der Wasserstoffgas bildete, anstatt in das Kupfer einzudringen. Schätzungsweise ein Zehntel Promille des an der Kupferoberfläche gebildeten Wasserstoffs gelangt in das Metall.

Unabhängig davon, ob man Kupfer mit Wasserstoff bei hohem Wasserstoffdruck und hohen Temperaturen oder elektrochemisch belädt, können höchstens Wasserstoffgehalte im Kupfer von einigen Millionstel des Gesamtgewichts der Probe erreicht werden, was immer noch deutlich mehr ist als ursprünglich im Material vorhanden. Bei diesen Gehalten neigen Wasserstoffatome dazu, ihren Weg zu mikroskopischen Poren im Kupfermetall zu finden und dort zu Wasserstoffmolekülen zu verschmelzen, sodass wasserstoffgefüllte Poren entstehen. Der Wasserstoffdruck in diesen kann so hoch sein, dass sich die Poren durch Verdrängung des Kupfers ausdehnen und man kann schließlich mikrometergroße Poren mit Wasserstoff gefüllt im Material erhalten, siehe Abbildung 7-2. Wenn man das Kupfer elektrochemisch an der Oberfläche des Metalls belädt, wird das Eindringen von Wasserstoff auf ein paar zehntel Millimeter begrenzt, auch wenn die Beladung sehr lange und unter aggressiven elektrochemischen Bedingungen erfolgt. Da sich der Wasserstoff in alle Richtungen innerhalb des Materials bewegt, wird nach einiger Zeit ein Gleichgewicht zwischen beladenem Wasserstoff und solchem, der in die Umgebung zurückkehrt, erreicht.

Einige Versuche haben auch einen moderaten Anstieg des Wasserstoffgehalts mit gleichzeitiger Sulfidkorrosion und mechanischer Belastung beobachtet, sowie wenn Kupfer der gesamten Strahlendosis ausgesetzt ist (siehe Abschnitt 8), der das Material im Endlager ausgesetzt ist. In diesen Versuchen wurden oberflächliche Korrosionseffekte, aber keine Porenbildungen beobachtet. Die gemessene Aufnahme von Wasserstoff, nachdem Kupfer der gesamten Gammastrahlendosis des Endlagers ausgesetzt wurde, ist geringer als der Wasserstoffgehalt von SKB-Kapselkupfer. Darüber hinaus wurde es in sehr dünnen Proben gemessen, was bedeutet, dass die Wirkung auf die Kupferkapsel noch weniger signifikant ist.



**Abbildung 7-2.** Wasserstoffgefüllte Poren in der Nähe der Oberfläche, wo der Wasserstoff während der elektrochemischen Beladung in Laborexperimenten eingedrungen ist. Die Oberfläche befindet sich am unteren Rand der Abbildung.

In einigen Experimenten wurden die mechanischen Eigenschaften auch nach der Wasserstoffbeladung gemessen und dabei eine Einwirkung beobachtet, die ungefähr der entspricht, die man erwarten würde, ausgehend davon, dass sich das Material tatsächlich in der Nähe der Oberfläche verändert hat. Bei einer erneuten Prüfung<sup>16</sup> der zuvor veröffentlichten Kupfertests wurde kein Mechanismus identifiziert, der während dem im Endlager relevanten Zeitraum zu Rissausbreitung in Kupfer führen kann.

### **Quantenchemische Berechnungen**

Es wurden neue umfangreiche quantenchemische Berechnungen durchgeführt,<sup>17</sup> wie Wasserstoff mit den Oberflächen des Kupfermetalls, seiner inneren Kristallstruktur und mit den Grenzbereichen zwischen den Kristallkörnern im Kupfer interagiert. Die Berechnungen zeigen unter anderem, dass selbst wenn die Kupferoberfläche unabhängig von der Herkunft des Wasserstoffes vollständig mit Wasserstoff beschichtet wäre, die Konzentration im Metall sehr gering bleibt. Das Ergebnis bestätigt einen wichtigen Grund dafür, dass die Wasserstoffversprödung für Kupfer kein Problem darstellt: Wasserstoff ist in Kupfer sehr schwer löslich.

### **Zufuhr von Wasserstoff im Endlager**

Wie aus Abschnitt 4 hervorgeht, ist es die klare Schlussfolgerung der SKB, dass das Ausmaß der Korrosion in reinem, sauerstofffreiem Wasser unermesslich gering ist. Somit verfällt die vom Gericht als am unsichersten beurteilte Quelle der Wasserstoffzufuhr.

Im Endlager sind die höchsten Wasserstoffdrücke und Temperaturen viel zu niedrig, um einen Wasserstoffeintrag in die Kupferkapseln zu verursachen. Die einzige bekannte und plausible Quelle von Wasserstoffeintrag ist Korrosion, und hierbei in erster Linie Korrosion, die durch Sulfid verursacht wird (Wasserstoff wird in der Reaktion von Kupfer mit Sulfid freigesetzt). Sulfidkorrosion erzeugt jedoch einen wesentlich langsameren Eintrag von Wasserstoff als in den oben genannten Versuchen aufgetreten. Einerseits wird die Wasserstoffzufuhr durch den geringen Zustrom von Sulfid begrenzt, zum anderen ist zu erwarten, dass nur ein geringer Prozentsatz des Wasserstoffs aus dem Sulfid in das Metall eindringt. Im Endlager gibt es außerdem keine

<sup>16</sup> Björkblad A, Faleskog J, 2019. Evaluation of Cu-OFP Creep Crack Growth and Theoretical Fracture Models for Cu-OFP, Posiva SKB Report 03, Posiva Oy, Svensk Kärnbränslehantering AB

<sup>17</sup> Lousada C M, Korzhavyi P A, 2019. Hydrogen sorption capacity of crystal lattice defects and low Miller index surfaces of copper. SKBdoc 1708457 ver 1.0, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Ergänzung zur Kapselintegrität

speziellen sogenannten Rekombinationsinhibitoren, die verhindern, dass der gebildete Wasserstoff als Wasserstoff entweicht, anstatt in das Metall einzudringen.

Wenn man trotzdem annimmt, dass Wasserstoff in einem solchen Ausmaß eingetragen wird, dass wasserstoffgefüllte Poren, wie sie in erzwungenen Experimenten beobachtet werden, gebildet werden, wird eine solche Einwirkung nur oberflächlich sein, weil ein Gleichgewicht zwischen dem oben erwähnten Zu- und Abfluss von Wasserstoff entstehen würde. Wenn stattdessen davon ausgegangen wird, dass sich diese Poren nicht bilden, wird erwartet, dass sich der Wasserstoff im Kupfer ausbreitet. Wenn man dann pessimistisch annimmt, dass kein Wasserstoff durch die äußere Oberfläche der Kapsel austreten kann, wo Korrosion auftritt, würde man schließlich einen Abfluss auf der Innenseite der Kupferkapsel, in den inneren Teil der Kapsel erhalten. Auch dies wäre sehr langsam und so begrenzt, dass schädliche Auswirkungen beispielsweise auf den Einsatz in der Kapsel mit großem Marginal vermieden werden. Auch der Wasserstoffgehalt im Kupfer würde auf niedrigerem Niveau gehalten.

### **Schlussfolgerungen**

Wasserstoffversprödung stellt keine Bedrohung für das Einschlussvermögen Eindämmungsfähigkeit von Kupferkapseln im KBS-3-Endlager in Forsmark dar. Dies entspricht der bisherigen Schlussfolgerung von SKB und wird nun auch durch folgende neue Materialien unterstützt:

- Es hat sich nun gezeigt, dass die Reduzierung des Oxidgehalts, das durch Schweißen der Kupferkapsel im Gasschutz erreicht werden kann, ausreicht, um Oxidstreifen und damit das Risiko einer Wasserstoffversprödung zu vermeiden.
- Das Risiko, dass Wasserstoff eindringt und die Eigenschaften des Kupfermaterials in der Tiefe beeinträchtigt, ist nun bewertet, sowohl für den Fall, dass sich Wasserstoffporen im Metall bilden, als auch für den Fall, in dem davon ausgegangen wird, dass dies nicht geschieht. Die Ergebnisse zeigen, dass das Ausmaß der Korrosion, die im Endlager auftreten kann, zu gering ist, als dass der freigesetzte Wasserstoff signifikante Auswirkungen auf die Kapseln haben könnte.
- Neue umfassende quantenchemische Berechnungen zeigen auch, dass selbst wenn die Kupferoberfläche unabhängig vom Ursprung vollständig mit Wasserstoff beschichtet wäre, die Konzentration von Wasserstoff im Metall sehr gering sein wird. Dies bestätigt einen wichtigen Grund dafür, dass die Wasserstoffversprödung für Kupfer kein Problem darstellt: Wasserstoff ist in Kupfer sehr schwer löslich.

Die deutliche Schlussfolgerung von SKB ist nach Abschnitt 4, dass die vom Umweltgericht als am unsichersten eingestufte Quelle der Wasserstoffzufuhr, die Kupferkorrosion in reinem, sauerstofffreiem Wasser, unermesslich klein ist.

## **8 Auswirkungen radioaktiver Strahlung auf Lochkorrosion, Spannungsrissskorrosion und Wasserstoffversprödung**

### ***Worum geht es bei der Frage?***

Die Kupferkapsel wird sowohl Gamma- als auch Neutronenstrahlung aus dem verkapselten verbrauchten Kernbrennstoff ausgesetzt. Ein Teil der Strahlung wird im Kupfermaterial absorbiert und ein Teil wird die Kapsel durchdringen und Korrosionsprozesse an der Außenseite der Kapsel beeinflussen. Wenn Strahlung absorbiert wird, treten Defekte innerhalb des Kupfermaterials auf,

Ergänzung zur Kapselintegrität

indem Atome auf unterschiedliche Weise ihre Position ändern. Dies kann grundsätzlich, je nachdem, in welchem Umfang es auftritt, zu beeinträchtigten Materialeigenschaften führen, z. B. die mechanische Festigkeit des Kupfergehäuses reduzieren. Die Strahlung, die die Kapsel durchdringt, zersetzt zum Teil Wassermoleküle auf der Außenseite der Kapsel. Einige der dabei gebildeten Molekülfragmente sind chemisch aggressiv und verursachen eine gewisse Korrosion. Das Ausmaß dieser Effekte hängt von mehreren Faktoren ab, von denen die wichtigsten die Intensität der Strahlung (Dosisrate), die Gesamtstrahlendosis sowie die Dicke und Temperatur des Kupfergehäuses sind.

Auf der Grundlage der Sicherheitsanalyse SR-Site, die die Grundlage für den Antrag der SKB bildete, wurden zwei Hauptschlussfolgerungen hinsichtlich der Auswirkungen der Strahlung gezogen:

1. Obwohl die Strahlung des eingekapselten Kernbrennstoffs zu einer gewissen Korrosion der Kupferkapsel beitragen wird, ist dieser Effekt im Vergleich zu anderen Korrosionsbeiträgen gering und hat keinen Einfluss auf das Einschlussvermögen der Kapsel während des Zeitraums von einer Million Jahren, für den der Langzeitsicherheitsnachweis geführt wird.
2. Die Strahlendosen, denen die Kapselmaterialien (Eisen und Kupfer) ausgesetzt werden, sind mindestens um den Faktor zehn zu niedrig, um messbare Effekte auf die mechanischen Eigenschaften der Kapsel zu erzielen.

### **Beurteilung der Frage durch MMD**

*Die Unterlagen von SKB zur Berechnung der strahlungsinduzierten Bildung von Salpetersäure an der Außenseite der Kapsel sind zuverlässig. Diese Wirkung der Gammastrahlung hat keinen signifikanten Einfluss auf die Integrität der Kapsel. Vorgelegte Experimente haben gezeigt, dass Strahlung in einer sauerstofffreien Umgebung zur Lochkorrosion auf Kupfer beitragen kann. Wie SSM ist auch das Land- und Umweltgericht der Auffassung, dass SKB keine Unterlagen vorgelegt hat, dass das Risiko von Lochkorrosion in der Endlagerumgebung ausgeschlossen werden kann. Darüber hinaus ist, wie Peter Szakálos u. a. erklärt haben, nicht ersichtlich, dass SKB das Risiko der Auswirkungen der Strahlung auf die Spannungsrisskorrosion untersucht hat. Das Gericht ist der Auffassung, dass die Berichte von SKB nur in Bezug auf die Auswirkungen der Strahlung auf die lokale Korrosion halten, da SKB bestimmte Experimente so interpretiert hat, dass Strahlungsfelder einen stärker passivierenden Oberflächenfilm erzeugen können. Nach Einschätzung des Gerichts deutet dies eher darauf hin, dass das Risiko, dass Strahlung Auswirkungen auf die Spannungsrisskorrosion hat, größer ist als von SKB angenommen. Darüber hinaus kann das Gericht nicht erkennen, dass SKB in der Lage war, die Ursache des Korrosionsanstiegs, der in den Experimenten von Åsa Björkbacka festgestellt wurde, angemessen zu erklären. SKB hat keine konkrete Untersuchung vorgelegt, die dem widerspricht, was Peter Szakálos u. a. erklärt haben, dass diese Experimente darauf hindeuten, dass es einen unbekanntem Wechselwirkungseffekt zwischen der Bestrahlung von Kupfer in reinem sauerstofffreiem Wasser und erhöhter Korrosion gibt. Was darauf hindeutet, dass eventuelle strahlungsinduzierte lokale Korrosion keinen wesentlichen Beitrag zur langfristigen Schutzfähigkeit der Kapsel leistet, ist, dass die Gammastrahlung in den ersten 300 Jahren abnimmt, d. h. die Strahlung tritt für eine relativ begrenzte Zeit auf. Es kann jedoch nicht ausgeschlossen werden, dass während dieser Zeit strahlungsinduzierte lokale Korrosion von Bedeutung auftreten kann oder dass die Korrosion sich auch nach dem Rückgang der Strahlung fortsetzen kann. Peter Szakálos u. a. haben auch die Auswirkungen radioaktiver Strahlung auf die Wasserstoffversprödung hervorgehoben. Das Land- und Umweltgericht kann nicht erkennen, dass die SKB Unterlagen und Argumente, die die Beurteilung stützen, dass dieser Effekt die langfristige Integrität der Kapsel nicht beeinträchtigen kann, angemessen vorgelegt hat. Weitere Auswirkungen radioaktiver Strahlung, die SKB nach Peter Szakálos u. a. nicht untersucht hat, sind die Auswirkungen auf die atmosphärische Korrosion, die Korrosion durch zunächst eingeschlossenen Sauerstoff sowie Korrosion durch*

Ergänzung zur Kapselintegrität

*Mikroben, Sulfat und Salzablagerungen. Der Land- und Umweltgericht ist jedoch der Auffassung, dass die Gefahr, dass sich diese Effekte auf die langfristige Integrität der Kapsel auswirken, gering ist. Insgesamt besteht erhebliche Unsicherheit hinsichtlich der Auswirkungen radioaktiver Strahlung auf Spannungsrisskorrosion und Wasserstoffversprödung.*

### **Strahlungsinduzierte Korrosion**

Schlussfolgerung 1) oben zu den Auswirkungen der Strahlung auf den Korrosionsprozess beruht zum einen auf früheren experimentellen Studien über die elektrochemischen Korrosionseigenschaften von Kupfer (das sogenannte Korrosionspotenzial) unter Gammabestrahlung und andererseits auf einer theoretischen Analyse der Auswirkungen ionisierender Strahlung auf die wässrige Lösung (Radiolyse) im Bereich der Kapseloberfläche, die von Studsvik AB durchgeführt wurde. Die experimentellen Studien zeigen, dass die Korrosionseigenschaften des Kupfers durch die sehr geringe Strahlungsintensität an der Kapseloberfläche im Endlager nicht signifikant beeinflusst werden. Die theoretische Analyse zeigt, dass durch Bestrahlung maximal 14 Mikrometer Korrosion entstehen können, die einerseits mit der Dicke von 5 Zentimetern, die das Kupfergehäuse zunächst aufweist, verglichen werden kann, und teilweise mit der millimetertiefen Korrosion, die bei den meisten Kapseln infolge anderer Korrosionsprozesse im Endlager, wie Sulfidkorrosion, auftreten wird.

Im Rahmen eines Forschungsprojekts, das seit 2010 an der KTH läuft, mit dem Ziel, das Wissen über die Auswirkungen von Strahlung auf Korrosion zu vertiefen, wurden wiederholte Experimente durchgeführt, bei denen Kupfer in wässriger Lösung einer Gammastrahlung ausgesetzt wurde, die der Dosis entspricht, die die Kupferkapsel im Endlager aus dem verkapselten Kernbrennstoff erhalten wird. Die Versuche an der KTH haben gezeigt, dass die Korrosionsprodukte, die während der Bestrahlung gebildet werden, die erwarteten Kupferoxide sind. Messungen von Korrosionsprodukten auf der Kupferoberfläche und in der wässrigen Lösung haben Korrosion entsprechend einigen zehntel Mikrometern ergeben, d. h. ein sehr geringer Effekt in diesem Zusammenhang und deutlich niedriger als die zuvor theoretisch berechneten 14 Mikrometer. Es wurden auch Korrosionslöcher mit Tiefen von bis zu einem Mikrometer gefunden, und auch dies ist eine vernachlässigbare Tiefe für die 5 Zentimeter dicken Kapseln. Diese Experimente haben somit den Pessimismus der theoretischen Analyse in SR-Site bestätigt, die maximal 14 Mikrometer (0,014 Millimeter) Korrosion durch Bestrahlung vorhersagte. Schlussfolgerung 1) von SR-Site hat somit Bestand.

### **Kombinationseffekte**

Der in den oben genannten Experimenten beobachtete lokale Korrosionsbefall deutet darauf hin, dass die Kupferoberfläche während der Bestrahlung passivierend geworden sein könnte. Die in den Experimenten verwendete Strahlungsintensität ist jedoch hundert- bis tausendmal höher als die, die an der Oberfläche der Kupferkapsel im Endlager vorherrschen wird, dies, um die gesamte Strahlendosis in einem für das Experiment angemessenen Zeitraum für das Experiment zu erhalten. Die geringe Strahlungsintensität, die im Endlager herrschen wird, hat nachweislich vernachlässigbare Auswirkungen sowohl auf die Mikrostruktur des Kupfermaterials als auch auf sein Korrosionspotential, was zusammen bedeutet, dass die Bedingungen für Spannungsrisskorrosion nicht vorliegen. Ältere experimentelle Studien von Kupfer unter Bestrahlung und gleichzeitiger Zugspannung belegen dies. Darüber hinaus besteht der bei der Bestrahlung gebildete Korrosionsfilm aus Kupferoxiden, die in der sulfidhaltigen Grundwasserumgebung nicht langfristig stabil sind, sondern in Kupfersulfide umgewandelt werden. So werden die Fragen der Auswirkungen von Strahlung auf Lochkorrosion und Spannungsrisskorrosion auf die Prozesse „Lochkorrosion durch Reaktion mit Sulfid“ und „Spannungsrisskorrosion durch Reaktion mit Sulfid“ zurückgeführt, die in den Abschnitten 5 und 6 behandelt wurden. Das Strahlungsfeld mit geringer Intensität auf der Oberfläche der Kupferkapsel trägt nicht zu einem erhöhten Risiko von Lochkorrosion oder Spannungsrisskorrosion bei.

Das Risiko der Wasserstoffversprödung, d. h. dass das Kupfermaterial durch Wasserstoffaufnahme versprödet, kann genauso analysiert werden wie bei der Wasserstoffaufnahme bei Sulfidkorrosion in Abschnitt 7. Dort war die Schlussfolgerung, dass die Aufnahme von Wasserstoff bei den Wasserstoffflüssen aus Sulfid, die an der Kapseloberfläche im Endlager auftreten können, zu gering ist, um Auswirkungen auf die Eigenschaften des Materials zu verursachen. Ebenso kann berechnet werden, dass der Zufluss von Wasserstoff aus Bestrahlung und Zersetzung von Wasser (Radiolyse) noch geringer sein wird und daher ebenfalls nicht in der Lage sein wird, zu einer signifikanten Aufnahme von Wasserstoff in das Kupfergehäuse zu führen. Die oberflächliche Aufnahme kleinerer Mengen Wasserstoff wurde experimentell nach der Bestrahlung in Kupfer beobachtet, aber die absorbierten Wasserstoffgehalte sind zu klein, um das Einschlussvermögen der Kupferkapsel zu beeinflussen.

### **Theoretisches Verständnis**

Eine Frage, die bis vor kurzem unbeantwortet geblieben ist, lautet, warum ein theoretisches Modell, das erfolgreich zur Beschreibung der Korrosion beispielsweise von Uran unter Bestrahlung verwendet wird, deutlich weniger Korrosion von Kupfer vorhersagte als das, das experimentell an der KTH beobachtet wurde. Diese Frage scheint nun eine Antwort erhalten zu haben, da neue Experimente und Analysen<sup>18</sup> der SKB an der KTH gezeigt haben, dass bestimmte oberflächenchemische Reaktionen im Modell für Kupfer anders beschrieben werden müssen als beispielsweise für Uran. Das überarbeitete Modell befindet sich noch in der Entwicklung, sagt nun aber die experimentell beobachtete Korrosion von Kupfer während der Gammabestrahlung mit relativ guter Präzision voraus. Somit besteht auch keine Notwendigkeit, einen unbekanntem Wechselwirkungseffekt zwischen Bestrahlung von Kupfer in reinem sauerstofffreiem Wasser und erhöhter Korrosion zu untersuchen.

### **Strahlungsschäden in Kupfer und Eisen**

Schlussfolgerung 2) oben über Strahlungseffekte im Kupfermaterial basiert hauptsächlich auf früheren Computerberechnungen von Strahlungsschäden durch Gamma- und Neutronenstrahlung. Da die Schlussfolgerung in Frage gestellt wurde, hat es SKB für angebracht befunden, die Berechnungen von Strahlungsschäden zu erneuern, indem sie eine Forschungsgruppe an der KTH das Problem untersuchen ließ. Die neuen Berechnungen der Strahlungsschäden wurden für Gamma- und Neutronenstrahlung für die Kapselmaterialien Kupfer und Eisen durchgeführt. Fast zwanzig Jahre sind seit den vorherigen Berechnungen vergangen, und sowohl Software als auch die Datengrundlage haben sich seitdem entwickelt und werden nun in neuen Berechnungen verwendet. Die neuen Berechnungen<sup>19</sup> sagen voraus, dass die Strahlungsschäden in den Materialien etwas geringer sein werden als bisher vorhergesagt.

In sowohl früheren als auch neuen Berechnungen von Strahlungsschäden wurde vernachlässigt, dass bei dem bestrahlten Material gleichzeitig mit entstehenden Strahlungsschäden eine „Selbstheilung“ auftritt. Der Mechanismus dahinter kann vereinfacht so beschrieben werden, dass Atome in einem Material eine gewisse Beweglichkeit bei den in den Kapselmaterialien herrschenden Temperaturen aufweisen und dass Atome, die durch Bestrahlung „falsch gelandet“ sind, somit eine gewisse Wahrscheinlichkeit haben, an ihren Ursprungsort „zurückzukehren“. Die Vernachlässigung dieses Mechanismus erfolgte bewusst und führt zu pessimistischen Ergebnissen, was das Ausmaß der Strahlungsschäden angeht. Schätzungen der Wirksamkeit der Selbstheilung<sup>20</sup>

<sup>18</sup> **Soroka I, Jonsson M, 2019.** Radiation induced corrosion of copper – an update on the mechanism. SKBdoc 1706535 ver 1.0, Svensk Kärnbränslehantering AB.

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

<sup>20</sup> **Padovani C, Pletzer D, Jurkschat K, Armstrong D, Dugdale S, Brunt D, Faulkner R, Was G, Johansson A J, 2019.** Assessment of microstructural changes in copper due to gamma radiation damage. SKB TR-19-12, Svensk Kärnbränslehantering AB.

Ergänzung zur Kapselintegrität

deuten darauf hin, dass das tatsächliche Ausmaß der Strahlenschäden mindestens um den Faktor 100 niedriger ausfällt als der bereits geringe Umfang, der von Computerberechnungen vorhergesagt wird.

Parallel zu den neuen Strahlenschadensberechnungen hat die SKB auch eine Forschungsgruppe in Großbritannien beauftragt, kleine Strahlungsschäden in Kupfer nach Gammabestrahlung mit einer Dosis, die für die Bedingungen im Endlager repräsentativ ist, experimentell zu überprüfen.<sup>20</sup> Schon im Vorfeld war klar, dass das geringe Ausmaß der durch Berechnungen vorhergesagten Strahlenschäden zu gering ist, um festgestellt zu werden, und das Ziel des Experiments war stattdessen, die Empfindlichkeit der experimentellen Methoden zu nutzen, um zu überprüfen, ob das Ausmaß des Schadens nicht über dem lag, was im Experiment nachgewiesen werden konnte, was auch gezeigt wurde.

### **Schlussfolgerungen**

SKB kommt weiterhin zu dem Schluss, dass das Ausmaß der durch Strahlung verursachten Kupferkorrosion für das Einschlussvermögen der Kapsel unerheblich ist und dass der geringe Grad der lokalen Korrosion, die möglicherweise durch die Bestrahlung verursacht wird, keine Auswirkungen auf den langfristigen Korrosionsprozess hat. Denn der bei der Bestrahlung entstehende Oxidfilm ist im sulfidhaltigen Grundwasser nicht stabil. Eine bestimmte Menge an strahlungsinduzierter lokaler Korrosion kann während der Bestrahlung nicht ausgeschlossen werden, wie dies in Experimenten beobachtet wurde. Das Ausmaß dieser lokalen Korrosion ist jedoch sehr gering und wurde in die Bewertungen der SKB einbezogen.

Spannungsrissskorrosion in Kupfer während der Bestrahlung wird nach wie vor als nicht möglich angesehen, da die Bestrahlungsbedingungen an der Kapseloberfläche im Endlager keine ausreichenden oxidierenden Bedingungen (oder ausreichende Auswirkungen auf das Kupferkorrosionspotenzial) bieten und die für den Prozess erforderlichen Ionen im Grundwasser fehlen.

SKB kommt weiterhin zu dem Schluss, dass die Aufnahme von Wasserstoff infolge strahlungsinduzierter Korrosion nicht in einem Ausmaß auftreten kann, das die mechanischen Eigenschaften oder das Einschlussvermögen der Kapsel beeinträchtigt.

Heute gibt es ein viel besseres mechanistisches und quantitatives Verständnis der leichten Korrosion, die in den Strahlungsexperimenten von Björkbacka beobachtet wurde, auf die sich das Gericht bezieht. Die zuvor angedeutete Diskrepanz zwischen dem theoretisch berechneten Korrosionsausmaß und der tatsächlich gemessenen Korrosion war letztlich auf ein unvollständiges Verständnis des Mechanismus und damit auf falsche Annahmen im vorherigen Berechnungsmodell zurückzuführen.

Die Ergebnisse neuer Berechnungen und experimenteller Versuche bestätigen die bisherige Schlussfolgerung der Sicherheitsanalyse SR-Site, dass die Strahlungsschäden im Inneren der Materialien zu klein sind, um messbare Auswirkungen auf die mechanischen Eigenschaften, die elektrische Leitfähigkeit und die chemische Zusammensetzung des Materials zu haben, und dies mit größerem Marginal als bisher nachgewiesen.

## **9 Folgen für die Langzeitsicherheit**

Aus den Analysen in den vorherigen Abschnitten der fünf Fragen zum Einschlussvermögen der Kapsel, die nach Ansicht des Land- und Umweltgerichts einer weiteren Untersuchung bedurften, geht hervor, dass vier der fünf Fragen der Beurteilung nach keine Auswirkungen auf die langfristige Integrität der Kapseln haben. Dies gilt für Kupferkorrosion in reinem, sauerstofffreiem



Ergänzung zur Kapselintegrität

Wasser, für Spannungsrisskorrosion in einer Sulfidumgebung, für Wasserstoffversprödung und für Strahlungseffekte bei Korrosionsphänomenen. Bei einigen dieser Phänomene können potenziell schädliche Effekte in relativ aggressiven Labortests beobachtet worden sein, während das Endlager Bedingungen aufweist, in der die Effekte nicht auftreten oder deutlich milder wären und nicht zu Kapselbruch führen könnte. Die Schlussfolgerungen der Analysen werden in Abschnitt 10 ausführlicher zusammengefasst.

Eines der Probleme, lokale Korrosion in Form von mikrogalvanischer Sulfidkorrosion, kann für die höchsten Sulfidflüsse, die im Endlager zu erwarten sind, nicht kategorisch ausgeschlossen werden. Daher wurde eine aktualisierte Berechnung radiologischer Konsequenzen auf der Grundlage einer pessimistischen Interpretation der verfügbaren Daten über die mikrogalvanische Lochbildung durchgeführt.

Obwohl nur einer der untersuchten Prozesse die Risikokurven beeinflussen könnte, kann es von Interesse sein, zu veranschaulichen, inwieweit das KBS-3-Endlager gegenüber Kapselschäden im Allgemeinen resistent ist. Daher wurden außerdem Grenzfälle, in denen alle Kapseln bereits bei der Einlagerung kleine, durchgängige Schäden am Kupfergehäuse haben, analysiert.

### ***Berechnung der radiologischen Konsequenzen für lokale Korrosion***

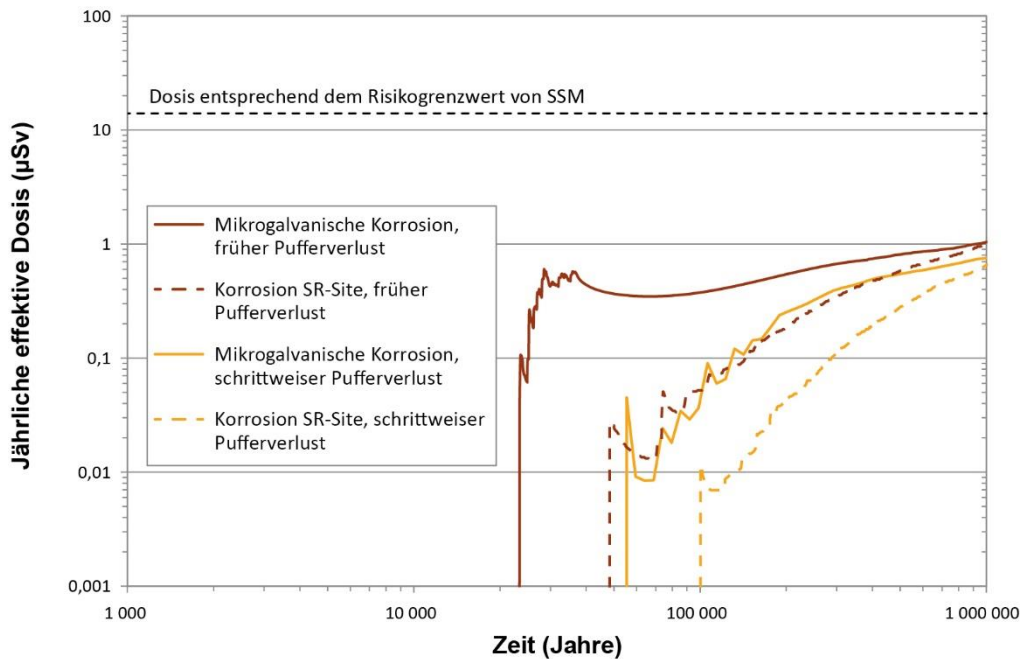
Wie in den vorherigen Abschnitten gezeigt, ist lokale Korrosion aufgrund mikrogalvanischer Effekte, die bei hohen Sulfidflüssen auftreten können, nicht vollständig ausgeschlossen. Das Phänomen könnte bei den höchsten Sulfidflüssen auftreten, die weit in der Zukunft auftreten können, wenn einige Einlagerungsöffnungen infolge der Erosion einen erheblichen Teil ihres Puffers verloren haben könnten. SKB hat daher berechnet, welche Folgen es hätte, wenn davon ausgegangen würde, dass mikrogalvanische Korrosion auftritt, wenn Sulfidflüsse die Grenzwerte überschreiten, für die die Wirksamkeit in Laborversuchen nicht ausgeschlossen werden konnte.

Bei den Einlagerungsöffnungen, in denen die Sulfidflüsse hoch genug geschätzt werden, wird lokale Korrosion angenommen. Pessimistisch wird angenommen, dass die lokale Korrosionstiefe 20 Mal größer ist als die allgemeine Korrosionstiefe, d. h. das, was bei gleichmäßiger Korrosion entsteht. Faktor 20 wird pessimistisch auf Grundlage der tiefsten Korrosionslöcher ausgewählt, die in den Experimenten beobachtet wurden. Darüber hinaus ist es pessimistisch anzunehmen, dass dieses Verhältnis, dass die Lochtiefe zwanzigmal größer als die durchschnittliche Tiefe ist, so lange anhält, bis die Kapsel durchkorrodiert ist. Es wäre plausibler anzunehmen, dass Löcher auch seitwärts wachsen, mit anderen Löchern zusammenwachsen und sich im Laufe der Zeit ausgleichen.

Die Risikoberechnung für die Sicherheitsanalyse SR-Site, Abschnitt 13.9, umfasste sechs Fälle von Kapselschäden durch Korrosion, drei für eine Situation, in der der Puffer über einen langen Zeitraum schrittweise in einigen Einlagerungsöffnungen verloren geht, und drei, in denen der Puffer pessimistisch in einem frühen Stadium für alle Einlagerungsöffnungen als verloren angenommen wird. Die radiologischen Konsequenzen (Dosis) wurden berechnet und mit der Dosis verglichen, die dem SSM-Risikogrenzwert entspricht. Die beiden Fälle, die in SR-Site die höchsten Konsequenzen für schrittweise beziehungsweise früh verlorene Puffer hatten, wurden so neu berechnet, dass auch die oben beschriebene lokale Korrosion einbezogen wurde. Abbildung 9-1 zeigt die beiden Fälle aus SR-Site (gestrichelten Kurven) und die beiden neuen Berechnungen (durchgezogene Kurven). Wie in der Abbildung dargestellt, liegen alle Kurven weit unter der Dosis, die dem SSM-Risikogrenzwert entspricht. Die neuen Fälle zeigen Konsequenzen früher als die alten, und dies ist zu erwarten, da die Korrosion ja schneller ist, sodass durchgängige Kapselschäden früher auftreten, wenn lokale Korrosion einbezogen wird. Nur die Kapseln, die den höchsten Sulfidflüssen ausgesetzt sind, erleiden bei der Berechnung lokale Korrosionen. Diese erlitten auch durchgängige Schäden, wenn lokale Korrosion nicht enthalten war, wenn auch nicht so früh. Die Gesamtzahl der beschädigten Kapseln ist somit in den beiden Berechnungen ähnlich,

Ergänzung zur Kapselintegrität

was dazu beiträgt, dass die höchsten Dosen beim Vergleich der alten und der neuen Kurven ähnlich sind.



**Abbildung 9-1.** Vergleich der radiologischen Konsequenzen (Dosis) mit und ohne einbezogene mikrogalvanische Korrosion. Die gestrichelten Kurven, die keine mikrogalvanische Korrosion enthalten, sind der Sicherheitsanalyse SR-Site entnommen. Die durchgezogenen Kurven sind neue Berechnungsergebnisse, die den Effekt der Einbeziehung mikrogalvanischer Korrosion zeigen.

### **Illustrative Berechnung mit initialen Schäden bei allen Kapseln**

Obwohl nur eines der untersuchten Verfahren die Risikokurven beeinflussen könnte, und zwar in begrenztem Umfang, d. h. nur Kapseln in Einlagerungsöffnungen mit den höchsten Sulfidflüssen und nach Puffererosion, kann es von Interesse sein, zu veranschaulichen, inwieweit das KBS-3-Endlager gegenüber Kapselschäden im Allgemeinen resistent ist. In diesem Abschnitt wird daher ein Grenzfall analysiert, bei dem alle Kapseln schon bei der Einlagerung kleine, durchgängige Schäden am Kupfergehäuse enthalten. In einer Variante wird außerdem davon ausgegangen, dass der Puffer durch Erosion schrittweise verloren geht. Keine der Varianten stimmt in irgendeiner Weise mit den Ergebnissen in den vorherigen Abschnitten überein, sondern soll die Frage der Kapselintegrität in eine allgemeine Sicherheitsperspektive stellen, bei der die Kapsel nur eine von mehreren Barrieren ist. Eine Reihe anderer ähnlicher Fälle wurde in Abschnitt 13.7.3 der SR-Site-Sicherheitsanalyse analysiert.

Ein natürlich vorkommender Schadensmechanismus der sofort zu einem schweren Schaden führen würde ist schwer vorstellbar. Auch würden beispielsweise die Schäden durch starke mechanische Einflüsse auf die Kapsel bei Erdbeben, die in SR-Site analysiert wurden, als Riss im Kupfergehäuse beginnen und sich allmählich zu einem größeren Schaden entwickeln. Daher wird davon ausgegangen, dass der anfängliche durchgängige Schaden klein ist. Der Aufbau des Falles, in Bezug auf die Art der ursprünglichen Kapselschäden, die Entwicklung der Schäden und die Funktionsweise des Endlagersystems im Allgemeinen, basiert auf ähnlichen Fällen, die in SR-Site analysiert wurden.

Es wurden zwei Fälle berechnet:

Ergänzung zur Kapselintegrität

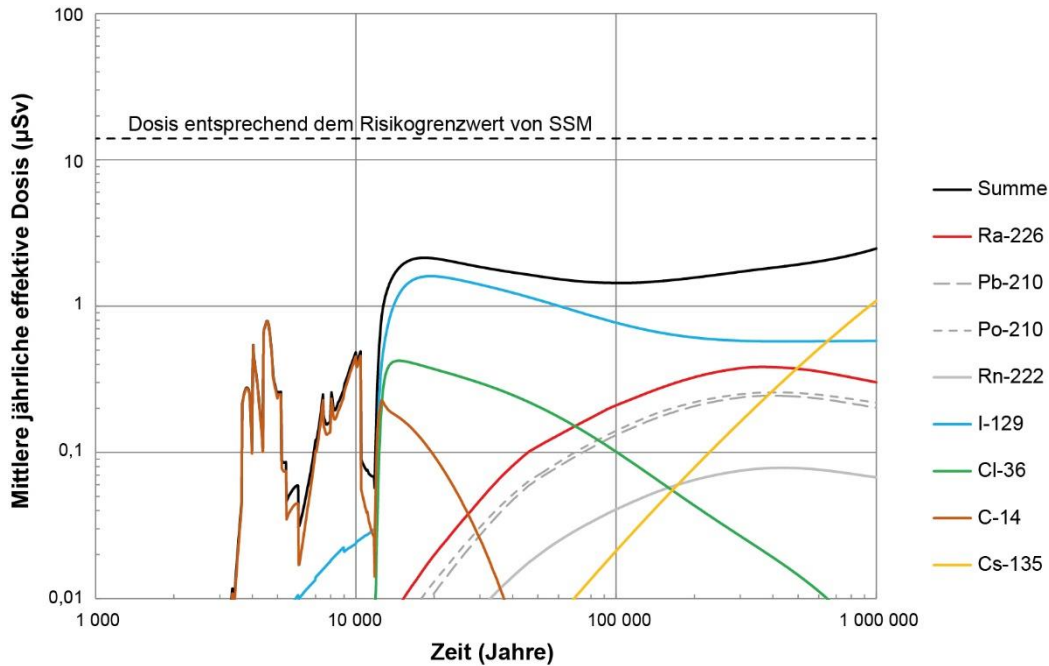
- A. Es wird angenommen, dass alle 6000 Kapseln bereits zum Zeitpunkt der Einlagerung einen kleinen durchgängigen Schaden in Form eines Lochs mit einem Durchmesser von 4 Millimetern haben. Die übrigen Teile des Endlagersystems gelten als intakt.
- B. Es wird angenommen, dass alle 6000 Kapseln bereits zum Zeitpunkt der Einlagerung einen kleinen durchgängigen Schaden in Form eines Lochs mit einem Durchmesser von 4 Millimetern haben. Der Puffer um die Kapseln erodiert entsprechend dem Puffererosionsmodell, das in der SR-Site-Sicherheitsanalyse verwendet wird. Dadurch geht der Puffer so weit verloren, dass er in einem kleinen Anteil der Einlagerungsöffnungen die Kapsel nicht mehr schützt, dies geschieht typischerweise nach hunderttausend Jahren.

Wenn eine Kapsel eine kleine, durchgängige Beschädigung des Kupfergehäuses hat, wird erwartet, dass Wasser durch die Beschädigung eindringt, langsam den Hohlraum zwischen dem Kupfergehäuse und dem Kapselinsert füllt, dann durch die Dichtung des Deckels im Kapselinsert eindringt und schließlich mit den Brennelementen in Kontakt kommt. Dieser Prozess wird voraussichtlich mindestens Hunderte von Jahren dauern und kann erst stattfinden, wenn der Puffer mit Wasser gesättigt ist. Ein kleiner Prozentsatz der Radionuklide in den Brennelementen kann im eindringenden Wasser gelöst werden, während der überwiegende Anteil in den Brennstofftabletten eingebettet ist und nur im Lauf der sehr langsamen Auflösung der Tabletten freigesetzt werden. Solange der Schaden im Kupfergehäuse klein ist, wird er den Transport von Radionukliden aus dem inneren Teil der Kapsel verlangsamen. Im Laufe der Zeit wird der Einsatz aus Eisen durch das eindringende Wasser korrodieren. Ein Effekt, der nicht ausgeschlossen werden kann, ist, dass die Korrosionsprodukte, die mehr Platz als das intakte Eisen einnehmen, im Laufe der Zeit das zunächst kleine Loch im Kupfergehäuse „aufhebeln“, sodass es deutlich größer wird, und damit das Hindernis entfernt, das das Kupfergehäuse selbst für den Transport von Nukliden nach außen dargestellt hat. In beiden Fällen wird daher, wie in SR-Site, davon ausgegangen, dass der kleine initiale Schaden nach 1000 Jahren zur Bildung eines zusammenhängenden Transportwegs für Radionuklide aus der Kapsel führt. Es wird angenommen, dass der kleine Schaden sich, wie auch in SR-Site, nach 10.000 Jahren zu einem großen Loch entwickelt hat. Die Radionuklide, die aus der Kapsel herausdringen, werden in Puffer und Gestein verzögert. Ein Teil kann schließlich die Biosphäre erreichen, ohne vorher in nicht-radioaktive Substanzen zu zerfallen.

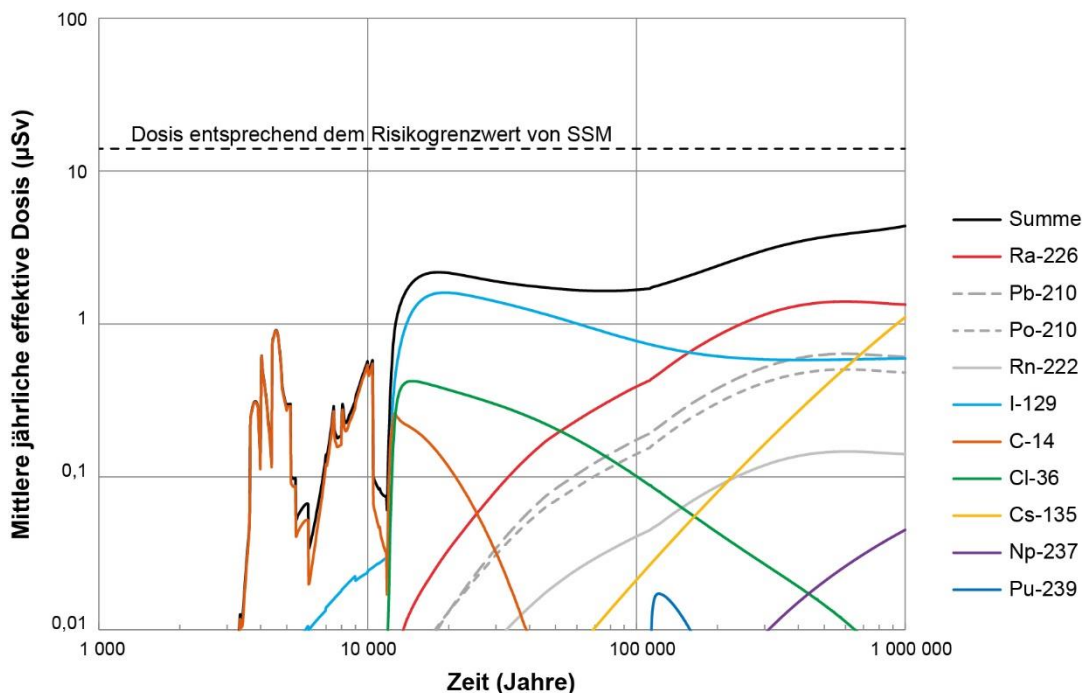
Die Analysen der radiologischen Konsequenzen wurden mit den gleichen Modellen wie in der SR-Site-Sicherheitsanalyse durchgeführt (Abschnitt 13.4 in SR-Site). Daten wurden ebenfalls aus der SR-Site-Sicherheitsanalyse entnommen, mit einer Ausnahme: Für die Biosphäre wurden für die neuen Berechnungen einige für Forsmark standortspezifische Daten benutzt anstatt der Daten aus der allgemeinen Literatur die in SR-Site herangezogen wurden. Dies betrifft Daten, die nach Abschluss von SR-Site durch Messungen vor Ort erhoben wurden. Dieselben standortspezifischen Daten wurden in der jüngsten Sicherheitsanalyse der SKB für das Endlager für kurzlebige schwach- und mittelaktive Abfälle in Forsmark (SFR) verwendet. In SR-Site wurden für die Biosphärenanalysen verschiedene Ansätze verwendet: Wenn nur eine oder wenige Kapseln geschädigt wurden, wurde unter anderem pessimistisch angenommen, dass die gesamte Emission den Punkt in der Biosphäre erreichte, an dem die Dosis maximal war. Wenn eine größere Anzahl von Kapseln beschädigt wurde, wurde angenommen, dass die Emissionen zu den verschiedenen Punkten der Biosphäre durch die verschiedenen Transportwege vom Endlager durch das Gestein gesteuert wurden, was zur Verteilung von Radionukliden über ein größeres Gebiet der Oberfläche führte. Bei den nun durchgeführten Analysen wurde letzterer Ansatz verwendet, da in den Fällen alle Kapseln beschädigt werden.

Die Ergebnisse der Berechnungen sind in Abbildung 9-2 bzw. Abbildung 9-3 dargestellt. In beiden Fällen liegen die Dosen immer unter der Dosis, die dem SSM-Risikogrenzwert entspricht.

Ergänzung zur Kapselintegrität



**Abbildung 9-2. Radiologische Konsequenzen (Dosis) des Falles A**, in dem alle Kapseln bereits bei der Einlagerung einen kleinen durchgängigen Schaden besitzen. Die relativ schnellen Variationen der Dosis Kohlenstoff-14 (C-14) sind auf die Entwicklung der Landschaft als Folge der Landhebung zurückzuführen, die einige tausend Jahre nach Verschluss des Endlagers andauert.



**Abbildung 9-3. Radiologische Konsequenzen (Dosis) des Falles B**, in dem alle Kapseln bereits bei der Einlagerung einen kleinen durchgängigen Schaden aufweisen und wo der Puffer schrittweise in den Einlagerungsöffnungen mit der höchsten Grundwasserströmung verloren geht. Die relativ schnellen Variationen der Dosis Kohlenstoff-14 (C-14) sind auf die Entwicklung der Landschaft als Folge der Landhebung zurückzuführen, die einige tausend Jahre nach Verschluss der Lagerstätte andauert.

Ergänzung zur Kapselintegrität

Die Fälle werden nicht in der gleichen rigorosen Weise analysiert wie Fälle, die dazu dienen zu zeigen, dass die durch das Endlager verursachten Dosen im strikten Sinn unter dem SSM-Risikogrenzwert liegen. Die Fälle geben jedoch einen klaren Hinweis darauf, dass selbst bei völlig unrealistischen Annahmen über Kapselschäden die Sicherheit des Endlagers mit dem Risikogrenzwert der SSM im Einklang steht. Es gibt auch mehrere pessimistische Annahmen hinter dem Biosphärenmodell, wie zum Beispiel, dass die Landschaftsobjekte, in denen die Emissionen erfolgen, von der lokalen Bevölkerung voll ausgeschöpft werden und somit maximale Dosen ergeben.

Zusammenfassend wird der Schluss gezogen, dass andere Teile als die Kapseln in einem KBS-3-Endlager in Forsmark ebenfalls erheblich zum Schutz gegen die Freisetzung von Radionukliden in die Biosphäre beitragen. Der schwer lösliche Brennstoff, Komponenten in der Kapsel, der Bentonitpuffer, das Gestein und die niedrigen Grundwasserflüsse in Forsmark sind Faktoren, die alle zu Beschränkungen der Dosis beitragen, selbst in den völlig unrealistischen Fällen, in denen angenommen wird, dass alle Kupferkapseln schon bei der Einlagerung beschädigt sind. Das KBS-3-Endlagerkonzept weist somit mehrere Barrieren und Verzögerungsfaktoren auf, wie auch die Sicherheitsanalyse SR-Site und alle vorherigen Analysen des Endlagerkonzepts durch die SKB zeigen.

## 10 Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

### *Schlussfolgerungen zu Fragen der Kapselintegrität*

Die fünf Fragen zur Integrität der Kapsel in der Stellungnahme des Land- und Umweltgerichts sind:

- a) Korrosion durch Reaktion in sauerstofffreiem Wasser
- b) Lochkorrosion durch Reaktion mit Sulfid, einschließlich der Wirkung des Saunaeffekts auf die Lochkorrosion
- c) Spannungsrisskorrosion durch Reaktion mit Sulfid, einschließlich der Auswirkung des Saunaeffekts auf die Spannungsrisskorrosion
- d) Wasserstoffversprödung
- e) Auswirkungen radioaktiver Strahlung auf Lochkorrosion, Spannungsrisskorrosion und Wasserstoffversprödung.

Diese wurden in den Abschnitten 4 bis 8 behandelt und die Schlussfolgerungen werden hier kurz wiedergegeben.

Um die Integrität der Kapsel zu bewerten, ist es notwendig, die chemischen Bedingungen und mechanischen Belastungen zu berücksichtigen, die im KBS-3-Endlager, deren Errichtung SKB in Forsmark beantragt hat, vorherrschen werden, und diese mit den Bedingungen in Beziehung zu setzen, die in verschiedenen Laborversuchen angewendet wurden, bei denen einer der oben genannten Prozesse a–e untersucht wurde. Viele Experimente an Kupfermaterialien wurden unter Laborbedingungen durchgeführt, die deutlich aggressiver sind als im Endlager. Abschnitt 2 gibt daher einen kurzen Überblick darüber, wie SKB die Bedingungen im Endlager im Antrag beschrieben hat, ergänzt durch die Ergebnisse einer Reihe neuerer Studien insbesondere zu den Bedingungen, bevor der Puffer wassergesättigt ist. Die Analysen zeigen, dass die Sulfidgehalte und/oder -flüsse sowohl vor als auch nach der Wassersättigung des Puffers begrenzt sind. Dies gilt auch für die wenigen Einlagerungsöffnungen, die langfristig einen erheblichen Teil des Puffers verlieren können, sodass die Kapseloberfläche direkt der Grundwasserströmung ausgesetzt ist.

In Abschnitt 3 wird die Schlussfolgerung gezogen, dass der Saunaeffekt in Form einer Salzanreicherung durch Verdunstung von zuströmendem Wasser in eine Einlagerungsöffnung in

Ergänzung zur Kapselintegrität

einem KBS-3-Endlager nicht aufrechterhalten werden kann. Die Schlussfolgerung basiert auf Laborexperimenten sowie Modellrechnungen und Beobachtungen in Feldversuchen. Daher ist die Schlussfolgerung, dass der Saunaeffekt in einem KBS-3-Endlager in Forsmark nicht wirksam ist und somit die im Endlager vorhandenen Korrosionsprozesse nicht beeinträchtigt.

In Abschnitt 4 wird die Schlussfolgerung gezogen, dass wissenschaftlich nicht gestützt wird, dass Kupfer in reinem, sauerstofffreiem Wasser auf andere Weise korrodiert, als die etablierte Wissenschaft vorhersagt. Mehrere früher berichtete Experimente unter sorgfältig kontrollierten Bedingungen stützen die Schlussfolgerung, und die Ergebnisse wurden kürzlich in einer wissenschaftlichen Fachzeitschrift veröffentlicht. Darüber hinaus hat die gründliche Suche, sowohl experimentell als auch theoretisch, nach bisher unbekanntem Verbindungen zwischen Kupfer, Sauerstoff und Wasserstoff, die eine unbekannte Reaktion zwischen Kupfer und Wasser hätten erklären können, nicht dazu geführt, dass eine solche gefunden wurde. Selbst wenn die Wissenschaftler, die behaupten, dass Kupfer in einer bisher für die Wissenschaft unbekanntem Weise korrodiert, recht hätten, würde das Ausmaß im Endlager nur eine Korrosionstiefe von etwa einem Millimeter in einer Million Jahren sein.

Es wurden mehrere neue Studien durchgeführt, um die lokale Korrosion und die Bedingungen dafür unter Endlagerbedingungen weiter zu untersuchen. In Abschnitt 5 wird die Schlussfolgerung gezogen, dass traditionelle Lochkorrosion als Folge von Sulfidkorrosion ausgeschlossen werden kann, da dies die Bildung eines passiven Films aus Kupfersulfid auf der Kupferoberfläche erfordern würde. Solche Filme wurden nie beobachtet, auch nicht bei Lösungen mit Sulfidkonzentrationen, die weit über denen liegen, die unter Endlagerbedingungen in Forsmark erwartet werden. Was andere Formen lokaler Korrosion anbelangt gibt es einige Beobachtungen aus Laborexperimenten mit Kupfer in Sulfidlösungen, die als sogenannte mikrogalvanische Korrosion interpretiert werden können. Wenn diese Laborbedingungen in Endlagerbedingungen übersetzt werden, kann nicht vollständig ausgeschlossen werden, dass mikrogalvanische Korrosion bei den höchsten Sulfidflüssen auftreten kann, die im Endlager zu erwarten sind. Dies gilt für die wenigen Einlagerungsöffnungen, die langfristig (100.000 Jahre) einen erheblichen Teil ihres Puffers verlieren können, und dies wurde in die Risikoberechnung einbezogen.

Lokale Korrosion unter einem Biofilm wird in Abschnitt 5 auch behandelt, und dort wird die Schlussfolgerung gezogen, dass dies nicht auftreten wird, zumal das Vorhandensein von Nährstoffen im Grundwasser in Endlagertiefe nicht ausreicht, um die Bedingungen für die Bildung eines Biofilms zu schaffen. Die Studien, die lokale Korrosion von Kupfer unter einem Biofilm zeigen, werden unter Bedingungen mit deutlich höheren Nährstoffkonzentrationen durchgeführt als unter Endlagerbedingungen.

In Abschnitt 6 wird die Schlussfolgerung gezogen, dass die Sulfidexposition in Kombination mit Zugspannungen nicht die Integrität der Kapsel unter Endlagerbedingungen gefährden dürfte. Zugspannung kann in Teilen der Kapsel während bestimmter Zeiträume nicht ausgeschlossen werden. In Laborexperimenten wurden mikroskopische Risse an der Oberfläche von Kupferproben beobachtet, die in Kombination mit hohen Sulfidkonzentrationen Zugspannungen ausgesetzt waren. Die Sulfidkonzentrationen und Sulfidflüsse sind jedoch solcher Art, dass sie nicht an den Kapseloberflächen im Endlager auftreten. Darüber werden die Beobachtungen nicht als Beispiele für herkömmliche Spannungsrisskorrosion bewertet, sondern eher als eine Form der sogenannten Korngrenzkorrosion, die nur bei sehr hohen Sulfidflüssen in Kombination mit Zugspannungen auftritt. Die Schlussfolgerungen in Abschnitt 6 basieren auf mehreren neuen Studien.

In Abschnitt 7 wird die Schlussfolgerung gezogen, dass Wasserstoffversprödung das Einschussvermögen der Kapsel in einem KBS-3-Endlager nicht gefährden wird. Die Schlussfolgerung basiert auf *i*) möglichen Zuflüssen von Wasserstoff zum Kupfer, wobei der Wasserstoff in Korrosionsprozessen im Endlager freigesetzt wurde, und *ii*) Bewertungen, die sowohl auf Experimenten als auch auf Modellrechnungen basieren, wie sich solche Zuflüsse auf

Ergänzung zur Kapselintegrität

das Metall auswirken würden. Die Bedingungen in den Laborexperimenten, bei denen Schäden relativ oberflächlich im Kupfermaterial aufgetreten sind, sind deutlich aggressiver als im Endlager. Es wird auch gezeigt, dass das Schweißen der Kapsel so durchgeführt werden kann, dass Oxidstreifen in der Schweißnaht vermieden werden, wodurch eine mögliche Ursache der Versprödung beseitigt wird.

In Abschnitt 8 wird die Schlussfolgerung gezogen, dass keine nennenswerten Schäden von der Strahlung des Brennstoffs in den Kapselmaterialien auftreten werden, d. h. weder im duktilen Gusseiseneinsatz noch im Kupfergehäuse. Die Schlussfolgerung stützt sich auf aktualisierte Berechnungen von Strahlenschäden und zum Teil auf neue Experimente. Es wurde auch gezeigt, dass bisher pessimistisch vernachlässigte Selbstheilungseffekte die Strahlenschäden deutlich reduzieren. Aus Experimenten mit strahlungsinduzierter Korrosion und theoretischen Erwägungen wird der Schluss gezogen, dass die Strahlung in der Endlagerstätte vernachlässigbare Auswirkungen auf lokale Korrosion, Spannungsrisskorrosion und Wasserstoffversprödung hat. Das theoretische Verständnis der strahlungsinduzierten Korrosion ist nun deutlich verbessert.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass vier der Fragen gemäß den Bewertungen in der Sicherheitsanalyse SR-Site und zusätzlichen Materialien für die SSM während der SR-Site-Überprüfung und jetzt mit der weiteren Unterstützung einer Reihe neuer Studien nicht die Integrität der Kapsel beeinträchtigen. Hinsichtlich einer der Fragen, lokale Korrosion durch mikrogalvanische Effekte bei sehr hohen Sulfidflüssen, kann aufgrund vorliegender Unterlagen nicht vollständig ausgeschlossen werden, dass es langfristig einen gewissen Einfluss auf das Einschussvermögen der Kapsel haben kann.

### ***Auswirkungen auf das Risiko – Folgen für die Langzeitsicherheit***

Für lokale Korrosion in Form von mikrogalvanischer Sulfidkorrosion kann nicht kategorisch ausgeschlossen werden, dass sie die Integrität der Kapsel für die höchsten Sulfidflüsse beeinträchtigen kann, die unter Endlagerbedingungen zu erwarten sind. Eine aktualisierte Berechnung der radiologischen Konsequenzen (Dosis) auf der Grundlage einer pessimistischen Interpretation der verfügbaren Daten zur mikrogalvanischen Lochbildung zeigt, dass das berechnete maximale Risiko im Vergleich zu den Ergebnissen der SR-Site-Sicherheitsanalyse nur marginal beeinflusst wird. Das maximale Risiko liegt während des gesamten Analysezeitraums von einer Million Jahren unter einem Zehntel des Risikogrenzwerts der SSM.

Das Endlagersystem ist resistent gegen Beschädigungen der Kapseln. Dies wird durch zwei hypothetische Berechnungsfälle belegt. Diese zeigen, dass, selbst wenn von allen Kapseln hypothetisch angenommen wird, dass sie in einem sehr frühen Stadium durchgängige Schäden haben, das geschätzte Risiko immer noch im Einklang mit dem SSM-Risikogrenzwert liegt.

Die Schlussfolgerungen der SKB-Ergänzung zur Kapselintegrität basieren auf bisher verfügbarem Material und auf rund 25 neuen Berichten, Memos und wissenschaftlichen Publikationen aus einer Reihe von Experimenten und theoretischen Analysen. Es war bereits etwa ein Jahr nach der Stellungnahme des Land- und Umweltgerichts möglich, das Material zusammenzustellen, da in allen Bereichen gearbeitet wurde und die Fragen lange vor der Hauptverhandlung vor dem Gericht bekannt waren und geprüft wurden. Infolge der Stellungnahme des Gerichts wurden die Bemühungen intensiviert.

Das Gesamtergebnis der abgeschlossenen ergänzenden Studien und Analysen ist, dass die Hauptschlussfolgerung der SR-Site-Sicherheitsanalyse unverändert bleibt: Ein nach der KBS-3-Methode in Forsmark errichtetes Endlager ist langfristig sicher und erfüllt die Langzeitsicherheitsanforderungen von SSM.