



ES0100079

Programa de investigación
para estudiar los efectos
de la radiación gamma
en bentonitas cálcicas
españolas

32 / 18

enresa

publicación técnica 11/2000

**PLEASE BE AWARE THAT
ALL OF THE MISSING PAGES IN THIS DOCUMENT
WERE ORIGINALLY BLANK**

Programa de investigación para estudiar los efectos de la radiación gamma en bentonitas cálcicas españolas

Javier Dies, Fernando Tarrasa
*Departamento de Física e Ingeniería Nuclear
Escuela Técnica de Ingenieros Industriales de Barcelona
Universidad Politécnica de Catalunya*

Carles de las Cuevas, Lourdes Miralles, Juan J. Pueyo
*Departamento de Geoquímica, Petrología y Prospección Geológica
Facultad de Geología
Universidad de Barcelona*

enresa

ENRESA
Dirección de Ciencia y Tecnología
Emilio Vargas nº 7
28043 Madrid - España
Tfno.: 915 668 100
Fax: 915 668 169
www.enresa.es

Diseño y producción: TransEdit
Imprime: GRAFISTAFF, S.L.
ISSN: 1134-380X
D.L.: M-999-2001
Enero de 2001

Este trabajo ha sido realizado bajo contrato con ENRESA.
Las conclusiones y puntos de vista expresados en él corresponden
a sus autores y pueden no coincidir necesariamente con los de ENRESA

Índice

Índice

SUMMARY	1
RESUMEN	5
1. INTRODUCCIÓN	9
2. ANTECEDENTES	13
2.1 <i>Introducción</i>	15
2.2 <i>Radiólisis del sistema bentonita-agua</i>	15
2.3 <i>Alteración de las propiedades de la bentonita</i>	16
2.4 <i>Generación de defectos inducidos por radiación en bentonita</i>	17
2.5 <i>Corrosión en la interfase bentonita-acero bajo irradiación</i>	19
3. DISEÑO DE LOS EXPERIMENTOS DE IRRADIACIÓN CON FOTONES γ	21
3.1 <i>Introducción</i>	23
3.2 <i>Elección de los parámetros nominales de la experiencia BIC-2</i>	23
3.2.1 <i>Diseño de la experiencia de calentamiento (BIC-2A)</i>	24
3.2.2 <i>Diseño de la experiencia de irradiación y calentamiento (BIC-2B)</i>	26
3.3 <i>Elección de los parámetros nominales de la experiencia GABIC-2</i>	27
4. DISEÑO Y CONSTRUCCIÓN DEL SISTEMA DE IRRADIACIÓN DE MUESTRAS CON GRADIENTE DE TEMPERATURA	29
4.1 <i>Condicionantes del diseño del cabezal de irradiación</i>	31
4.2 <i>Descripción del cabezal de irradiación</i>	31
4.2.1 <i>Cápsulas portamuestras</i>	31
4.2.2 <i>Placas difusoras de calor</i>	33
4.2.3 <i>Puentes térmicos</i>	34
4.2.4 <i>Envoltura exterior</i>	34
4.2.5 <i>Soporte del cabezal</i>	35
4.3 <i>Sistema de control de temperatura del cabezal de irradiación</i>	35

4.4	Sistema de medida de la dosis	39
4.5	Sistema de medida de la tasa de dosis	39
4.6	Sistema de adquisición de datos	41
4.6.1	Tarjeta de adquisición de datos.	42
4.6.2	Programa de adquisición de datos	42
4.7	El irradiador industrial César	44
5.	EJECUCIÓN DE LOS EXPERIMENTOS DE IRRADIACIÓN Y CALENTAMIENTO	49
5.1	Materiales de partida	51
5.2	Experimento de calentamiento de las muestras de bentonita (BIC-2A).	53
5.3	Experimento de irradiación y calentamiento de las muestras de bentonita (BIC-2B).	55
5.3.1	Evolución de las temperaturas	55
5.3.2	Evolución de la tasa de dosis y determinación de la dosis absorbida.	58
5.4	Resumen de las características de los experimentos BIC-2	61
5.5	Experimentos de generación de gases (GABIC-2)	61
6.	MÉTODOS DE ANÁLISIS	63
6.1	Extracción de muestras	65
6.2	Análisis de bentonita	65
6.2.1	Composición mineralógica y química de la bentonita	66
a)	Análisis por Difracción de Rayos X	66
b)	Análisis químico de muestra total	67
6.2.2	Estudio del sistema bentonita-agua	67
a)	Termogravimetría	67
b)	Condiciones redox y de pH.	67
6.2.3	Estudio de las propiedades de la bentonita	67
a)	Determinación de la capacidad de cambio catiónico	67
b)	Determinación de las propiedades mecánicas	68
6.2.4	Generación de defectos cristalinos	69
a)	Análisis de Resonancia de Espín Electrónico	70
b)	Emisión Termoluminiscente	71
c)	Calorimetría	71
6.3	Análisis de las probetas de acero al carbono	75
6.3.1	Determinación de la rugosidad superficial	75
6.3.2	Gravimetría	76
6.4	Análisis de gases	78
7.	RESULTADOS OBTENIDOS	79
7.1	Composición mineralógica y química de la bentonita.	81

7.1.1	Composición mineralógica	81
7.1.2	Composición química	82
7.2	Sistema bentonita-agua.	88
7.2.1	Contenido en agua	88
7.2.2	Condiciones redox y de pH.	88
7.3	Propiedades de la bentonita	93
7.3.1	Capacidad de Cambio Catiónico	93
7.3.2	Propiedades mecánicas	94
7.4	Generación de defectos cristalinos en la bentonita	97
7.4.1	Determinación de los defectos cristalinos por ESR	97
7.4.2	Análisis de la respuesta termoluminiscente	99
7.4.3	Calorimetría.	104
7.5	Análisis de corrosión en probetas de acero al carbono.	105
7.5.1	Estado inicial de las probetas	105
7.5.2	Estudio de la interfase acero-bentonita.	105
7.5.3	Morfología del depósito arcilloso	108
7.5.4	Estado superficial de las probetas decapadas. Ensayo de rugosidad.	110
7.5.5	Resultados de la gravimetría	115
7.5.6	Mecanismo de corrosión	117
7.5.7	Influencia de la radiación γ y de la temperatura en la corrosión del acero.	118
7.6	Generación de gases	119
8.	CONCLUSIONES	121
9.	BIBLIOGRAFÍA	125
	APÉNDICE 1. CRONOGRAMAS	129
	APÉNDICE 2. PUBLICACIONES REALIZADAS	133

Summary

Summary

The engineering barrier of a radioactive waste underground disposal facility, placed in a granitic host rock, will consist of a backfill of compacted bentonite blocks. At first, this material will be subjected to a gamma radiation field, from the waste canister, and heat from the spent fuel inside the canister. Moreover, any groundwater that reaches the repository will saturate the bentonite. For these reasons the performance of the engineered barrier must be carefully assessed in laboratory experiments.

Here, two parallel series of irradiation experiments are described. The starting material for both series of experiments is calcic bentonite from the Serrata de Níjar deposit, (Almería; Spain). Cylindrical samples of a bulk density of 1.8 g/cm³ were obtained after compaction of a bentonitic granulate. The first, called BIC-2, was an irradiation and heating experiment performed on compacted cylindrical samples of water-saturated bentonite and carbon steel discs totally surrounded by water-saturated bentonite. The cylinders were placed in metallic containers, and after saturation with a granitic reference water, samples were allowed to expand inside the container, to reach a bulk density of 1.65 g/cm³. Six metallic containers were irradiated simultaneously, three for the analysis of the bentonite and three to study the corrosion of the carbon steel discs placed in bentonite. After two months, two of the six containers, (one with only bentonite, and the second with bentonite containing carbon steel discs), were extracted and exchanged with two equivalent containers. In this way eight containers, four irradiated for two months and the rest for four months, were obtained.

Thanks to the development and construction of an irradiation system, and to the use of an industrial irradiation facility, which uses ⁶⁰Co sources, the irradiation experiment was completely monitored on line. The maximum dose absorbed by the bentonite samples was 10.5 MGy, at a dose rate of 3.5 kGy/h. Simultaneously, the cylindrical samples were subjected to a thermal gradient between 130 °C and 90 °C. The experiment lasted for 120 days and it is the first of its kind to be carried out in Spain.

In the second experiment, called GABIC-2, bentonite was irradiated to 4 MGy at a dose rate of 1.4 kGy/h. The temperature of the irradiation cell was close to 40 °C. Cylindrical bentonite samples were placed in borosilicate glass containers which had a volumetric ratio sample/air close to 1/6.

The samples from the BIC-2 experiment were subjected to several mineralogical, chemical and physical analyses, including X-ray diffraction, Eh/pH

measurements, determination of Cation Exchange Capacity (CEC), Thermoluminescence response (TL), Electron Spin Resonance (ESR) and oedometric tests. Prior to these analyses, the bulk sample was divided into a fine fraction, (< 2 mm), and a coarse fraction, (>80 mm). The carbon steel discs were subjected to gravimetric and surface rugosity analyses to measure the corrosion under these conditions. In the GABIC-2 experiments a gas sample was extracted from the borosilicate glass container and its composition determined by gas chromatography.

No significant changes in the chemical or mineralogical composition of the bentonite as a result of irradiation and/or heating were observed. There were thermodiffusion phenomena, both in the heating and in the irradiation experiments. The water content was higher at the cold end, (90 °C; 30% weight H₂O), than at the hot end, (130 °C; 18% weight H₂O), of the bentonite. Furthermore, radiation had no effect on the thermodiffusion processes.

In contrast, radiolysis led to changes in the Eh and pH of the bentonite. The initial oxidic conditions, (Eh = 250 mV), tended to decrease on heating, (Eh = 200 mV), but were recovered with irradiation, (Eh = 250 mV). More oxidic and acidic conditions were found close to the contact between steel and bentonite in the presence of radiation, (Eh = 300 mV; pH = 3.5). For the bentonite that was further from the radiation source, the Eh and pH was close to that of the undisturbed sample. In addition, there was a correlation between the pH and the degree of saturation of the bentonite. A lower water content gave more acidic conditions in the bentonite.

Heating of the bentonite for four months decreased the Cation Exchange Capacity from 125 meq/100 g to 115 meq/100 g. This process was enhanced when bentonite was subjected to irradiation, (95 meq/100 g). CEC was not affected by the differential temperature or radiation dose levels, being its decrease only time dependent. Changes in the relation between exchangeable cations have also been detected in the experiments.

The swelling strain of bentonite decreased at temperatures above 120 °C, from 17% to 14%. This process was magnified in the presence of gamma radiation, decreasing to 12%. The higher temperatures also caused small increases in the hydraulic conductivity and the confined elasticity modulus.

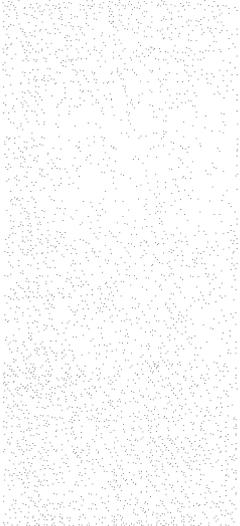
The concentration of the radiation-induced defects in the coarse fraction of the bentonite, (which is enriched in accessory minerals), was up to 100 times

higher than in the fine fraction, (containing only montmorillonite), of the same sample. Furthermore, there was an increase of one order of magnitude in samples irradiated to 10.5 MGy compared with their heated equivalents. For the same total dose, the concentration of defects in the bentonite was influenced by the dose rate and irradiation temperature. Higher temperatures decreased the concentration of defects both in the fine and in the coarse fractions. Stored energies associated to those defects were around 10 J/g.

Carbon steel discs surrounded by bentonite had a thin layer of hematite at the bentonite-steel interface, indicating corrosion in oxidic conditions. The type of corrosion, (general or pitting), depended on the type of contact between bentonite and steel.

Rather than by the effect of temperature, corrosion was enhanced by the content of water in the bentonite close to the steel. In these experiments there was an increase of 23 % in the corrosion of the irradiated steel discs compared with their heated equivalents. The average corrosion depth, after four month of heating and irradiation, was 18 mm.

Gas generation in bentonite is related to the formation of CO₂ and H₂. The formation of CO₂ is ascribed to a partial decomposition of carbonatic minerals present in the bentonite. The generation of H₂ arose from radiolysis, (136 ml H₂/kg bentonite). In contrast, very small amounts of H₂ were formed due to corrosion, (5 ml H₂/kg bentonite). The generation of H₂ was enhanced when bentonite was subjected to anoxic conditions, (218 ml H₂/kg bentonite).



Resumen



Resumen

En este trabajo se describe el experimento de irradiación y calentamiento (BIC-2) efectuado sobre probetas cilíndricas de bentonita, compactada a una densidad de 1.65 g/cm³, y saturada en agua granítica de referencia, así como sobre probetas metálicas de acero al carbono, totalmente englobadas dentro de dicha bentonita. Gracias al desarrollo y construcción de un sistema de irradiación y a la utilización de un irradiador industrial, que emplea fuentes de ⁶⁰Co, ha sido posible la realización de una experiencia de irradiación totalmente monitorizada en continuo. En la misma, se ha alcanzado una dosis máxima en la bentonita de 10 MGy, con una tasa de dosis máxima de 3.5 kGy/h; mientras las muestras saturadas eran sometidas a un gradiente térmico entre 130 °C y 90 °C en atmósfera de aire. La duración del experimento de irradiación ha sido de 124 días, siendo la primera de estas características que se realiza en España. Este experimento se ha completado con una irradiación a una temperatura cercana a 40 °C, para analizar la fase gaseosa, sobre probetas de bentonita encapsuladas en ampollas de vidrio borosilicatado.

Las muestras de bentonita se han sometido a diversos análisis mineralógicos, químicos y físicos, entre los que destacan la difracción de rayos X, medida del Eh/pH del sistema bentonita-agua, determinación de la capacidad de intercambio catiónico, respuesta termoluminiscente, resonancia de espín electrónico y ensayos edométricos. Por su parte, las probetas de acero al carbono se han sometido a análisis de rugosidad superficial y gravimetría para cuantificar la importancia de los procesos de corrosión que se dan bajo estas condiciones. Finalmente, la fase gaseosa se ha cuantificado por cromatografía de gases en las muestras extraídas de las ampollas de vidrio empleadas.

En el transcurso de los experimentos se ha detectado una ausencia de cambios significativos tanto en la composición mineralógica como en la composición química de las bentonitas. En cambio, la radiólisis favorece la existencia de condiciones más oxidantes y más ácidas, en la zona próxima al con-

tacto acero-bentonita. En los tramos intermedios del contenedor, los valores de Eh y pH son similares a los de las muestras de referencia. Estos están relacionados con el contenido en agua. Asimismo, la radiación es responsable de una notable disminución en la capacidad de intercambio catiónico de las muestras irradiadas y calentadas. Ésta es del orden de 125 meq/100 g en las muestras de referencia y del orden de 95 meq/100 g en las muestras irradiadas tras 4 meses. También existe un hinchamiento diferencial en las muestras irradiadas, mientras que la variabilidad de otros parámetros geomecánicos, (módulo edométrico y conductividad hidráulica), es menor.

La concentración de defectos cristalinos varía dependiendo de la fracción granulométrica, (montmorillonita o superior a 80 μm), en estudio. La fracción superior a 80 μm es un orden de magnitud más sensible a la radiación que la fracción montmorillonita. En la bentonita irradiada, (dosis de hasta 10.5 MGy), se produce un incremento de la concentración de defectos en un factor próximo a 50, respecto a muestras únicamente calentadas.

Respecto a las probetas de acero al carbono estudiadas, su tipo de corrosión, (generalizada o por picadura), está ligado al grado de deposición de la bentonita sobre las mismas y a su contenido en agua. El efecto diferencial de una dosis absorbida de 10.5 MGy, en cuatro meses, puede traducirse en un incremento de la corrosión generalizada de hasta un 23 %, respecto de las muestras solamente calentadas durante cuatro meses. La presencia de una pátina de hematites corrobora las condiciones oxidantes acaecidas durante el experimento.

Los resultados de los experimentos de desgasificación muestran que los carbonatos presentes en la bentonita se descomponen parcialmente por radiólisis liberando CO₂. La generación de H₂ es mínima en condiciones de no irradiación. En condiciones de irradiación, la contribución de la corrosión del acero a la producción de H₂ es baja. Asimismo, se detecta un aumento del contenido de H₂ cuando la bentonita se encuentra en condiciones anóxicas.

1. Introducción

1. Introducción

Este proyecto tiene como objetivo principal el desarrollo de un programa de irradiaciones para determinar el efecto de la radiación gamma en la bentonita cálcica española. El programa de irradiaciones ha sido diseñado a fin de alcanzar los valores de dosis totales esperables para un Almacenamiento Geológico Profundo.

La barrera de ingeniería de un Almacenamiento Geológico Profundo (AGP) de residuos radiactivos de alta actividad, emplazado en un macizo granítico o una formación arcillosa, constará, fundamentalmente, de un relleno realizado a base de bloques de bentonita compactada. Inicialmente, este material estará sometido a un campo de radiación gamma, procedente del contenedor de residuos, y a un campo de temperaturas, originado a causa de la potencia térmica desprendida por el combustible gastado en el contenedor. Un tercer elemento que debe considerarse es el acceso de agua subterránea al emplazamiento del repositorio.

La evaluación del comportamiento a largo plazo del relleno de bentonita es compleja ya que hay que considerar escalas temporales superiores a 1000 años y por tanto éste puede ser sólo parcialmente estudiado en experimentos de laboratorio. En cambio, experimentos de laboratorio de escala temporal limitada permiten controlar la mayor parte de parámetros que influyen en el material a estudiar.

En base a la recopilación de información disponible, se ha inferido que las radiaciones ionizantes generan una serie de alteraciones físico-químicas que pueden afectar al comportamiento a largo plazo de la bentonita. Asimismo la radiación es responsable de la generación de gases por radiólisis. Dicha generación puede conllevar la formación de una atmósfera corrosiva y/o explosiva, así como a un aumento de la presión en el Almacenamiento Geológico Profundo. Otro aspecto a tener en cuenta es que la velocidad y profundidad de la corrosión en el acero en contacto con la bentonita se ve incrementada por la presencia de radiación γ .

Por dichos motivos se ha optado por la realización de un experimento de irradiación que permita satisfacer las necesidades experimentales tanto en lo

que afecta al estudio de la variación de las propiedades de la bentonita como en la determinación de la generación de gas radiolítico y el incremento de la corrosión. Para la consecución de los fines propuestos ha sido necesario el diseño, la construcción y puesta a punto de un sistema de irradiación, así como la caracterización dosimétrica de la celda de irradiación empleada.

Para la determinación de las alteraciones en la bentonita se han realizado los experimentos BIC-2. En estos se ha optado por la utilización del sistema de irradiación desarrollado, que permite irradiar bentonitas saturadas con agua de referencia, con un gradiente térmico y de dosis. Dicho sistema permite la inclusión de muestras de acero destinadas a estudios posteriores de corrosión del mismo. Para la determinación de los gases radiolíticos se han realizado los experimentos GABIC-2, en el que se irradian en paralelo y a temperaturas y dosis constantes, cápsulas herméticas que contienen bentonitas secas o bentonitas saturadas en agua. Ambos sistemas pueden ser emplazados simultáneamente en el irradiador. Finalmente, para discernir cuales de los efectos que tienen lugar en la bentonita son atribuibles a la radiación y cuales a la temperatura, se ha procedido a la realización de experimentos de calentamiento utilizando las mismas condiciones de gradiente térmico y temperatura que los existentes en los experimentos de irradiación. La mayoría de los experimentos se han realizado en atmósfera de aire, lo que implica unas condiciones de medio oxidante.

Dado que en un experimento de laboratorio puede simularse la tasa de dosis o la dosis total esperable en un Almacenamiento Geológico Profundo, pero no ambos parámetros a la vez, se ha optado por la realización de una irradiación a una tasa de dosis mucho mayor que la prevista en un repositorio, (3.5 kGy/h), pero con la misma dosis total esperable en el mismo, (10 MGy). Esto ha implicado tiempos de experimentación del orden de 4 meses.

El programa de investigación que se plasma en este documento representa una aportación novedosa a nivel nacional, en cuanto a que estudia la alteración de las bentonitas y del sistema bentonita-agua-acero en presencia de un fuerte campo de radiación γ y sometidas a temperaturas elevadas.

2. Antecedentes

2. Antecedentes

2.1 Introducción

La radiación emitida por las cápsulas con elementos de combustible gastado procedentes de las centrales nucleares, emplazadas en un Almacenamiento Geológico Profundo, será absorbida por el material de relleno. Dicha radiación llegará, por tanto, muy amortiguada a la formación geológica hospedante. Únicamente las radiaciones γ y neutrónica podrán alcanzar el material de relleno atravesando el blindaje de las cápsulas, siendo las radiaciones β y α , totalmente absorbidas. Las radiaciones β y α solamente podrán afectar al material de relleno una vez la cápsula haya perdido su estanqueidad, por corrosión, y los radionúclidos sean lixiviados por el agua subterránea.

El efecto de la radiación γ ha sido extensamente estudiado en el caso de las rocas salinas, tanto en el campo de la Física del Estado Sólido como por la potencial utilización de las formaciones salinas para el almacenamiento de residuos radiactivos. Sin embargo, hay escasos estudios sobre los efectos de la radiación en rocas graníticas o arcillosas. En este apartado se realiza una recopilación de información no solamente de los procesos más relevantes inducidos por la radiación sobre rellenos de bentonitas, sino también sobre el efecto que ésta tiene sobre otros tipos de arcillas que pudieran presentar comportamiento análogo a aquellas.

Los ensayos realizados hasta la fecha se han centrado en las alteraciones causadas por radiación γ o α , no habiéndose encontrado información sobre los efectos de la radiación β o neutrónica. Entre los experimentos realizados en bentonita, el más completo es el de irradiación de la bentonita MX-80 (Pusch *et al.*, 1993). En dicho experimento se estudiaron los cambios mineralógicos y químicos, así como la alteración de las propiedades mecánicas e hidráulicas de la bentonita. Paralelamente se estudió el efecto en la corrosión del acero. Otros experimentos más puntuales en las bentonita fueron realizados para determinar la estabilidad de las propiedades de sorción de la bentonita frente a la radiación, (Spytyn *et al.*, 1982; Nikiforov *et al.*, 1991a y b) y la generación de H_2 en bentonitas saturadas, (Eriksen *et al.*, 1987). Asimismo, recientemente se han realizado estudios de generación de defectos cristalinos en las bentonitas FEBEX irradiadas (Dies *et al.*, 1999).

Entre los experimentos realizados en otro tipo de arcillas hay que destacar diversos estudios realizados sobre las arcillas Fo-Ca-7 (interestratificados

esmectita-caolinita), tanto desde el punto de vista de cambios mineralógicos y químicos por irradiación de la arcilla (Bruno *et al.*, 1992) como de la irradiación de suspensiones de la propia arcilla en agua (Fattahi *et al.*, 1993). Finalmente se han realizado estudios de generación de defectos cristalinos en caolinitas irradiadas (Muller *et al.*, 1992; Clozel *et al.*, 1994), así como de gases radiolíticos en la arcilla de Boom (illita-caolinita-esmectita), (De Cannière *et al.*, 1992).

De los estudios anteriormente citados, cabe esperar que las alteraciones físico-químicas más relevantes inducidas por la radiación en la bentonita serán:

- La radiólisis del sistema bentonita-agua.
- La alteración de las propiedades de la bentonita, (sorción, hinchamiento, resistencia mecánica).
- La generación de defectos en la propia bentonita.

Por otra parte, también resulta interesante el estudio de los efectos que la radiación pueda tener sobre los mecanismos de corrosión del acero en la interfase acero-bentonita, de cara a la evaluación del comportamiento de las cápsulas en un repositorio. Al igual que en el caso anterior, los estudios realizados sobre la corrosión del acero bajo irradiación son escasos, destacando el realizado bajo los auspicios del SKB empleando la bentonita MX-80, (Pusch *et al.*, 1993).

2.2 Radiólisis del sistema bentonita-agua

Las bentonitas, aún estando secas, contienen una cantidad de agua rellenando el espacio poroso que puede alcanzar el 14 % en peso. También contienen agua de composición que forma parte de su estructura laminar (alrededor de un 4 %). Asimismo hay que considerar que el relleno de bentonita también absorberá el agua que le llegue, procedente de la formación geológica hospedante.

El impacto radiolítico en los sistemas agua-arcilla sometidos a radiación se traduce en la generación de H_2 , así como en cambios en las propiedades redox de la fase acuosa. Ello puede implicar modificaciones en la solubilidad de la fase sólida, especialmente puestas de manifiesto por la lixiviación de Fe^{2+} y Fe^{3+} por la fase líquida.

Eriksen *et al.* (1987) estudian la producción de H_2 en bentonitas saturadas mediante radiación α a temperatura ambiente. Según estos autores, la generación de moléculas de H_2 por cada 100 eV, expresada en valores G, es de 1.2 para bentonitas saturadas en agua que presente concentraciones en Fe^{2+} inferiores a 10^{-7} M. Mayores concentraciones de Fe^{2+} en el agua (del orden de 10^{-6} M) inhiben la generación de H_2 , obteniendo menores valores de G que oscilan entre 0.6 y 0.9. Una primera extrapolación de los resultados del experimento anterior hace suponer que la producción de H_2 es dependiente de la composición del agua. Otros experimentos de irradiación realizados a temperatura de 25 °C, en agua extraída de la arcilla de Boom, dan valores de G de 1.57 para radiación α y de 0.48 para radiación γ , (De Cannière *et al.*, 1992). Para temperaturas de 90 °C y radiación γ , el valor de G es de 0.65 para dosis de 210 kGy, disminuyendo a 0.25 para dosis de 13.5 MGy. En este último caso se observa como, para una misma temperatura y tipo de radiación, el valor de G es dependiente de la dosis. Este valor es relativamente alto al inicio de la irradiación y decrece a medida de que la radiación progresa. Este fenómeno sugiere que además de la generación de productos radiolíticos, existen reacciones de recombinación entre los mismos.

En los procesos de radiólisis del agua se generan, además, especies oxidantes y reductoras (radicales OH , H_2 , O_2 , H_2O_2) que interactúan con los solutos. La irradiación γ de agua de referencia arcillosa (Fattahi *et al.*, 1993) en presencia de aire, produce H_2O_2 con un rendimiento de $2.4 \cdot 10^{-7}$ mol·J⁻¹, hasta que se alcanza una concentración de $1.4 \cdot 10^{-4}$ M. Dicha concentración representa un estado estacionario ya que, a mayores concentraciones, el H_2O_2 reacciona con los radicales OH . Para radiólisis α , la concentración de H_2O_2 generada en mezclas bentonita-agua oscila entre $8.9 \cdot 10^{-3}$ y $1.3 \cdot 10^{-4}$ M.

El efecto de la radiólisis sobre las condiciones redox del agua se ha podido verificar en el ensayo *in situ* CERBERUS. El agua de la arcilla de Boom presentaba un pH inicial de 7.3, que permaneció relativamente estable entre 7.4 y 7.2 a temperatura de 20 °C (De Cannière y Noynaert, 1994). A 80 °C el pH presentaba mayores oscilaciones (entre 8.0 y 6.7), si bien no se descarta que fuera por disfunciones instrumentales. El Eh inicial, que era de -268 mV, osciló durante el experimento entre -250 y -315 mV (temperatura de 20 °C). En las zonas sometidas a una temperatura de 80 °C el Eh aumentó, presentando valores entre -200 y -220 mV.

En el estudio realizado por Dies *et al.* (1997) se analizó mediante cromatografía de gases la generación de gases en bentonita irradiada a 585 kGy en presencia de aire, determinándose los valores de generación de CO_2 y H_2 . La generación de CO_2 fue de 4 y 12 ml/kg para bentonita no saturada y bentonita saturada respectivamente. Para el H_2 los valores obtenidos fueron de 78 y 96 ml/kg para la bentonita no saturada y la saturada, respectivamente.

2.3 Alteración de las propiedades de la bentonita

Los cambios estructurales en las bentonitas debidos a la irradiación pueden traducirse en la alteración de propiedades tales como la capacidad de retención, la capacidad de hinchamiento y la resistencia mecánica.

Entre las principales modificaciones producidas en la fase sólida se encuentra la pérdida del poder de tamponamiento de la arcilla, incluso cuando ésta es irradiada a dosis relativamente bajas (2 kGy). Las modificaciones de la estructura cristalina por irradiación contribuyen, además, a que aquélla se solubilice más fácilmente (Fattahi *et al.*, 1993). Dichos autores detectaron, en experimentos de lixiviación de mezclas caolinita/esmectita tras haber sido sometidas a radiación γ , que la concentración de Fe^{2+} en los lixiviados aumentaba al incrementarse la dosis absorbida.

La montmorillonita, debido a su alta superficie específica, ofrece una gran capacidad de sorción para especies catiónicas como el Cs^+ y Sr^{2+} . Cuando la montmorillonita es irradiada (Nikiforov *et al.*, 1991a), se origina una redistribución de moléculas de agua y cationes de intercambio en el espacio interlamilar, lo que se traduce en un estrechamiento del espaciado. La información existente sobre el efecto de la radiación en la capacidad de sorción de las bentonitas es contradictoria. Así Nikiforov *et al.* (1991a) observaron que la capacidad de intercambio catiónico (CEC) aumentaba en montmorillonita irradiada a temperatura ambiente a partir de dosis de 100 kGy.

Concretamente la capacidad de intercambio catiónico aumentó progresivamente desde 53.7 meqiv/100 g a 64.5 meqiv/100 g para montmorillonita irradiada a dosis de 300 MGy. En lo que respecta a la sorción de radionúclidos específicos (Nikiforov *et al.*, 1991b) observaron como la sorción de ^{137}Cs por bentonita no presentaba diferen-

cias significativas en muestras irradiadas a temperatura ambiente, en el rango de dosis de 100 a 1000 MGy. No obstante, en muestras irradiadas a temperaturas superiores a la ambiente, se observaba una disminución moderada de la capacidad de sorción para temperaturas de 200 °C, y drástica para temperaturas de 300 °C. Aparentemente, los efectos observados son mas bien atribuibles al efecto de la temperatura que al de la radiación. La disminución de la capacidad de sorción es debida según Nikiforov *et al.* (1991b) a una disminución de la accesibilidad de los adsorbatos a los espacios interlaminares, como consecuencia de la pérdida parcial de la capacidad de expansión de la estructura de la bentonita. Otros experimentos de sorción con montmorillonita y nontronita irradiadas hasta 10 MGy (Spitsyn *et al.*, 1982) detectaron un ligero aumento en la capacidad de sorción por parte de las muestras irradiadas. Bruno *et al.* (1992) en experimentos realizados utilizando mezclas de caolinita/esmectita, encontraron que el efecto de la radiación en las transformaciones de las arcillas es mínimo, siendo estas básicamente inducidas por la temperatura.

La variación del coeficiente de distribución para el ^{90}Sr y el ^{137}Cs en bentonita en función de la dosis recibida se analiza en el estudio realizado por Zlobenko *et al.* (1995), con valores de dosis máxima de 100 MGy. Los análisis revelaron que en el caso del ^{90}Sr el coeficiente disminuye al aumentar la dosis mientras que para el ^{137}Cs ocurre lo contrario.

La única información disponible sobre la influencia de la irradiación en las propiedades mecánicas e hídricas de la bentonita procede del experimento realizado en la arcilla MX-80 (Pusch *et al.*, 1993). En dicho experimento se observó que la conductividad hidráulica era del mismo orden de magnitud en las muestras irradiadas a 32 MGy que en las no irradiadas. La capacidad de hinchamiento de la bentonita tampoco variaba significativamente entre ambos grupos de muestras.

Sin embargo, la influencia de la irradiación se observaba en una mayor resistencia a la cizalla en muestras que habían recibido dosis más elevadas, y que habían estado sometidas a temperaturas superiores a 120 °C. El aumento en la resistencia a la cizalla fue atribuido a fenómenos de cementación ligados a disolución y precipitación de sílice. Las muestras irradiadas a dosis inferiores, y sometidas a temperaturas mas bajas, no presentaban cambios significativos respecto a las muestras no irradiadas.

2.4 Generación de defectos inducidos por radiación en bentonita

Los minerales aluminosilicados en general, y los minerales de la arcilla en particular, son susceptibles de almacenar defectos puntuales creados por efecto de la radiación (Nikiforov *et al.*, 1991a; Kotzer y Kieser, 1991). La radiación afecta a los enlaces Al-O y Si-O, desplazando los átomos de oxígeno de su posición en la red y dejando un hueco. Según Nikiforov *et al.* (1991a) la estabilidad de los aluminosilicatos frente a la radiación depende de la perfección de su estructura cristalina. Esta perfección disminuye en la siguiente secuencia mineral: cuarzo-microclina-oligoclasa-caolinita-montmorillonita-nontronita.

Antes de entrar en el tema de los defectos generados en los minerales de la arcilla conviene recordar de modo somero su estructura cristalina. Los minerales de la arcilla pertenecen a la subclase de los filossilicatos, y están constituidos estructuralmente por láminas formadas por el apilamiento de capas tetraédricas (formadas por tetraedros de SiO_4^{4-}) y octaédricas (formadas por octaedros de AlO_6^{9-}). En las capas tetraédricas, los tetraedros están unidos entre si por átomos de oxígeno compartidos O_2^- , mientras que los grupos octaédricos están unidos entre si por átomos de oxígeno compartidos O^- . Las Fig. 2.1 y 2.2 muestran, respectivamente, las estructuras de la caolinita y de la montmorillonita.

Existe poca información sobre la generación de defectos puntuales en la montmorillonita. No obstante, el comportamiento de la caolinita, mineral análogo a la anterior, ha sido extensamente estudiado por Angel *et al.* (1974); Jones *et al.* (1974); Muller *et al.* (1992); Clozel *et al.* (1994). Estos autores han observado, en caolinitas irradiadas mediante radiación X, la formación de diversos tipos de defectos:

- Centros A: Consisten en la presencia de un electrón desapareado en la posición estructural del átomo de oxígeno apical (O_2^-) localizado entre dos átomos de silicio.
- Centros A': Según Clozel *et al.*, (1994), un centro A' podría corresponder a un centro A en presencia de OH, o de un átomo intersticial de oxígeno. Se ha observado como la aniquilación de centros A', por incremento térmico, genera una mayor concentración de centros A.

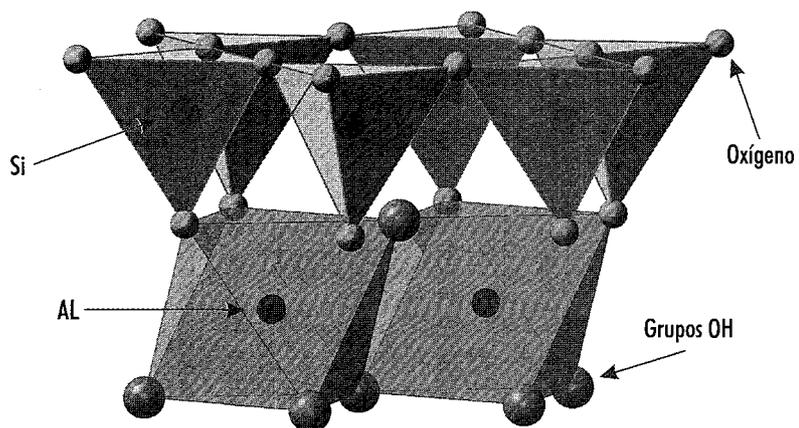


Figura 2.1. Estructura de la caolinita.

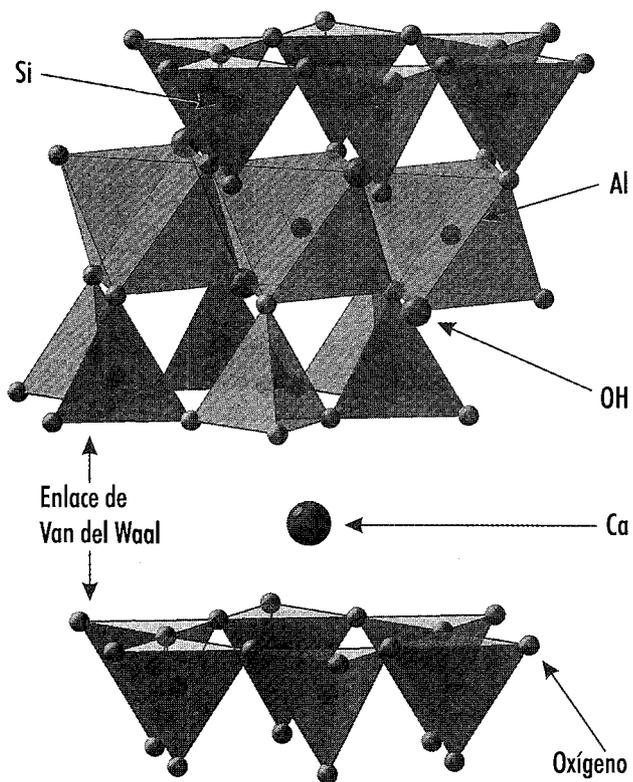


Figura 2.2. Estructura de la montmorillonita (con calcio como catión interlamilar).

- Centros B: Consisten en un electrón desapareado en la posición estructural del átomo de oxígeno, en posición octaédrica, localizado entre dos átomos de aluminio.

El reconocimiento de estos defectos en la caolinita ha sido realizado mediante análisis de ESR (Resonancia de Spín Electrónico) dado su carácter paramagnético. La montmorillonita presenta espectros de ESR análogos a los de la caolinita (Pusch *et al.*, 1993). No obstante, los mencionados autores no profundizan sobre el tipo ni la concentración de los defectos generados por radiación. *A priori* su presencia lleva asociada una energía acumulada y se desconoce la magnitud de dicha energía, desconociéndose también la estabilidad de los defectos.

Las consecuencias que la generación de defectos inducidos por radiación en la bentonita pueda tener en la integridad de un Almacenamiento Geológico Profundo es desconocida. Si se asume que los defectos en la bentonita se comportan análogamente a los presentes en las rocas salinas, (van Opbroek y den Hartog, 1985), su recombinación sería exotérmica. Por dicho motivo, si en el relleno de bentonita se verificase una hipotética recombinación, para todos los defectos presentes y en un corto lapso de tiempo, se podría producir un aumento de la temperatura del Almacenamiento Geológico Profundo. Existen básicamente dos procesos que conducirían a la reordenación total de la red cristalina: un proceso activado térmicamente y una retroreacción espontánea entre los diferentes tipos de defectos.

En el primer caso, el incremento térmico podría ser causado por una intrusión volcánica en el área del almacenamiento. Si bien es desconocido el umbral de temperatura a partir del cual se recombinan los defectos en la bentonita, en el caso de la caolinita (Clozel *et al.*, 1994), es de 300 °C para los centros B, 400 °C para los centros A' y 450 °C para los centros A.

En el caso de la retroreacción espontánea, ésta puede tener lugar cuando la concentración de defectos excede el umbral de percolación. Este umbral representa la concentración mínima de defectos, necesaria para que exista una conexión infinita de éstos en la red cristalina. En este último caso, la recombinación puntual de algún defecto puede entonces conducir a una reacción en cadena en la que se recombinen todos los defectos. Según Isichenko (1992), el umbral de percolación, para la estructura de los filosilicatos, estaría en torno a una concentración de defectos del 15 %.

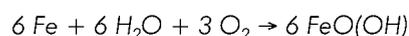
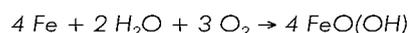
En el estudio realizado por Dies *et al.*, (1997, 1999) se ha detectado experimentalmente la generación de defectos inducidos por radiación y en bentonitas cálcicas españolas. En este estudio se irradiaron muestras de bentonita con tasas de dosis de 13.3 y 21.4 kGy/h, alcanzando dosis absorbidas de hasta 920 kGy. El experimento incluía muestras de bentonita seca, (granulada y compactada), y muestras de bentonita saturada en agua granítica. La irradiación se realizó a temperatura ambiente, (entre 40 °C y 50 °C), o a 95 °C, dependiendo del tipo de muestra.

Los defectos, según se muestra en Dies *et al* (1997, 1999), fueron analizados mediante técnicas de termoluminiscencia y de resonancia de espín electrónico (ESR). Con ambas técnicas se puede observar un comportamiento diferencial de la fracción fina, (tamaño de grano inferior a 2 µm), rica en montmorillonita, frente a la fracción gruesa, (tamaño de grano superior a 80 µm). Esta última fracción es la que presenta una mayor sensibilidad a los defectos, medida mediante termoluminiscencia y ESR.

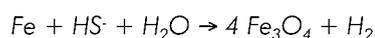
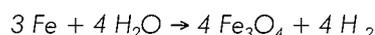
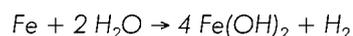
2.5 Corrosión en la interfase bentonita-acero bajo irradiación

En un Almacenamiento Geológico Profundo, la principal causa de fallo de las cápsulas, fabricadas de acero al carbono, será la corrosión.

Durante el periodo inicial tras la clausura del repositorio, prevalecerán condiciones aeróbicas debido al aire presente en los huecos y poros del almacenamiento, produciéndose las siguientes reacciones:



Tras el consumo del oxígeno residual, la corrosión pasa a ser anaeróbica, produciéndose las siguientes reacciones:



Según ENRESA, (Enresa, 1997) se asume que se producirá una corrosión uniforme en la cual se puede definir una velocidad de corrosión generalizada que será función de parámetros como la temperatura, la química local o el pH.

Poca atención se ha prestado al efecto que la radiación γ proveniente de los elementos de combustible gastado pueda tener tanto sobre el mecanismo de corrosión (generalizada o localizada en picaduras, etc.) como sobre la velocidad de corrosión en la interfase bentonita-acero. En el estudio llevado a cabo por Pusch *et al.*, (1993) para la SKB en el que se midió la profundidad de corrosión en un disco de acero (XC10) en contacto con bentonita durante 1 año. En dicho estudio se realizaron dos experien-

cias, una con radiación γ proveniente de una fuente de ^{60}Co y otra sin radiación; en ambas la temperatura en la interfase bentonita-acero fue de 130 °C. La muestra irradiada, que recibió una dosis de 32.7 MGy, presentaba una profundidad de corrosión media más de cuatro veces mayor que la no irradiada, (80 μm frente a 16 μm). Por otra parte, la profundidad máxima de corrosión se vio incrementada por la radiación en un factor de 3, (480 μm frente a 160 μm).



**3. Diseño
de los experimentos
de irradiación
con fotones γ**



3. Diseño de los experimentos de irradiación con fotones γ

3.1 Introducción

Con objeto de mejorar el conocimiento sobre los efectos que la radiación, presente en un repositorio de residuos radiactivos, pueda tener en el campo próximo, se ha realizado la experiencia denominada *BIC-2*, (Bentonitas Irradiadas y Calentadas-2), en la que se simulan unas condiciones de gradiente térmico y de dosis similares a las presentes en un hipotético *AGP*. Por una parte, esta experiencia proporciona información sobre la posible alteración de las bentonitas cálcicas, compactadas y saturadas en agua, cuando se someten a estas condiciones. Por otra parte, también permite estudiar la corrosión en discos metálicos que están totalmente englobados en una matriz de bentonita compactada y saturada en agua. Una segunda experiencia, denominada *GABIC-2*, (GAses de Bentonitas Irradiadas y Calentadas-2), se centra en el estudio de la generación de gases en el sistema bentonita-agua o bentonita-agua-acero cuando se someten a radiación γ . En ambas experiencias, la tasa de dosis empleada ha sido superior a la esperada en un *AGP*, ya que sólo así puede alcanzarse un nivel de dosis razonable en un período de tiempo no excesivamente largo.

La experiencia *BIC-2* se subdivide en dos experimentos. En el experimento denominado *BIC-2A* unos cilindros de bentonita se someten únicamente a un gradiente térmico establecido entre unas placas difusoras de calor, sin presencia de radiación γ . En el experimento *BIC-2B* se reproducen las condiciones de *BIC-2A* añadiendo la presencia de radiación γ . De este modo, al comparar las propiedades finales de ambos tipos de muestras, irradiadas y calentadas o solamente calentadas, puede determinarse con más facilidad qué alteraciones son atribuibles únicamente al calentamiento y cuales lo son a la radiación γ . Esta estrategia ha implicado duplicar el tiempo de experimentación ya que sólo se dispone de un cabezal de irradiación para el calentamiento o la irradiación y calentamiento de las muestras.

Como se ha indicado, los experimentos *BIC-2A* y *BIC-2B* también se utilizan para estudiar la corrosión de discos metálicos. Éstos se fabrican empleando el tipo de acero previsto para la construcción de las cápsulas de almacenamiento de residuos, y se sitúan totalmente inmersos en el interior de los cilindros de bentonita compactada que se emplean. En un *AGP*, las cápsulas de residuos estarán en contacto con la bentonita compactada, que constituye el material de relleno de las galerías, a una temperatura relativamente elevada y sometida

a la radiación que atraviese el contenedor, (principalmente fotones γ). Cuando el agua llegue a saturar la bentonita, las condiciones a las que estarán sometidas las paredes de la cápsula serán muy similares a las establecidas en el interior de las cápsulas portamuestras. Así pues, puede observarse como este estudio adicional también guarda muchos paralelismos con las condiciones reales que se presentarán en un *AGP* de residuos radiactivos de alta actividad. No obstante, debe comentarse el hecho de que tanto el experimento *BIC-2A* como el experimento *BIC-2B* se desarrollan en condiciones oxidantes y esta situación representa sólo la fase inicial de las condiciones reales de un *AGP*.

La experiencia *GABIC-2* para el análisis de la generación de gases también se subdivide, a su vez, en dos experimentos. En el experimento *GABIC-2A*, se mantiene unas muestras de bentonita en diferentes condiciones de saturación en agua, tipo de atmósfera y presencia/ausencias de discos de acero al carbono, a una temperatura constante. Por su parte, en el experimento *GABIC-2B* se superpone la presencia de radiación γ y a fin de valorar la influencia de esta radiación en la generación de gases.

3.2 Elección de los parámetros nominales de la experiencia *BIC-2*

Se ha empleado un sistema de irradiación con gradiente térmico en el que las temperaturas máxima y mínima de las muestras corresponden a 130 °C y 90 °C respectivamente, (ver capítulo cuatro). Esta temperatura cubre, sobradamente, todo el rango de temperaturas que puede darse en un *AGP*. Según el escenario de referencia, tal y como está definido por *ENRESA*, (Enresa, 1995), la temperatura máxima en un *AGP* será de 100 °C; con el gradiente térmico indicado, se estudian unas condiciones que, a priori, son ligeramente más exigentes y, por lo tanto, estamos, teóricamente, ante un criterio conservador desde el punto de vista de la evaluación del comportamiento de la barrera de ingeniería.

La dosis absorbida por el material de relleno de un *AGP*, en contacto con la cápsula de residuos, será del orden de las decenas de MGy (Enresa, 1996). Para la experiencia de irradiación se fija una dosis máxima nominal de 10 MGy. En este caso, dado que, por razones de diseño, se establece un gradiente de tasa de dosis a lo largo de los cilindros de bentonita, la dosis absorbida es inferior a medida

que nos alejamos de la fuente radiactiva empleada y la máxima dosis corresponde al punto de temperatura más elevada.

Con el fin de llegar a un compromiso entre aproximación a las condiciones reales de un AGP y operatividad de la experiencia, se ha escogido una tasa de dosis nominal máxima de 3.5 kGy/h. Si se pretende alcanzar alrededor de 10 MGy, el tiempo de irradiación será de 120 días, aproximadamente.

3.2.1 Diseño de la experiencia de calentamiento (BIC-2A)

El experimento BIC-2A contempla el someter las cápsulas portamuestras, conteniendo unos cilindros de bentonita, a un gradiente térmico entre 130 °C y 90 °C, durante 120 días. Dichos cilindros tienen una longitud de 200 mm y se constituyen apilando cuatro probetas cilíndricas de 50 mm de diámetro. Los cilindros destinados al estudio de las propiedades de la bentonita están formados por probetas de bentonita denominadas de Tipo 0. Los cilindros destinados a los análisis de corrosión están formados por el apilamiento de probetas de Tipo 1 y pro-

betas de Tipo 2. Las primeras incorporan un disco de acero al carbono insertado en el interior del primer centímetro de bentonita. En las segundas se dispone el disco de acero completamente centrado en la probeta. La Fig. 3.1. muestra los diferentes tipos de probetas; la obtención de las mismas se detalla en el capítulo cinco.

El cabezal de irradiación dispone de alojamientos para seis cápsulas. De éstas, tres se destinan a cilindros de bentonita compactada, (probetas Tipo 0), mientras que las tres restantes se destinan a muestras de bentonita con discos de acero insertados, (probetas Tipo 1 y 2). Para llenar estas últimas se emplean dos probetas Tipo 1 y dos probetas Tipo 2 en una secuencia, (de arriba a abajo), Tipo 1 - Tipo 2 - Tipo 2 - Tipo 1 invertida. (Fig. 3.2.).

Al cabo de 60 días de haberse iniciado la experiencia, se extraen del cabezal dos cápsulas, una de cada clase, siendo reemplazadas por otras homólogas. Así, el número de cápsulas tratadas es de ocho, cuatro de ellas calentadas durante 60 días, y cuatro adicionales calentadas durante 120 días. Desde el punto de vista de los análisis posteriores, los cilindros de bentonita se dividen, longitudinal-

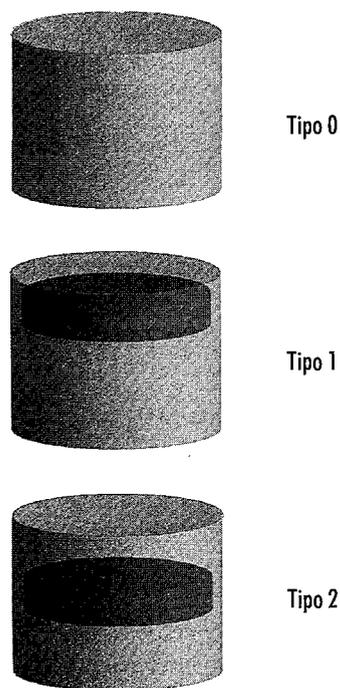


Figura 3.1. Diferentes tipos de probetas de bentonita.

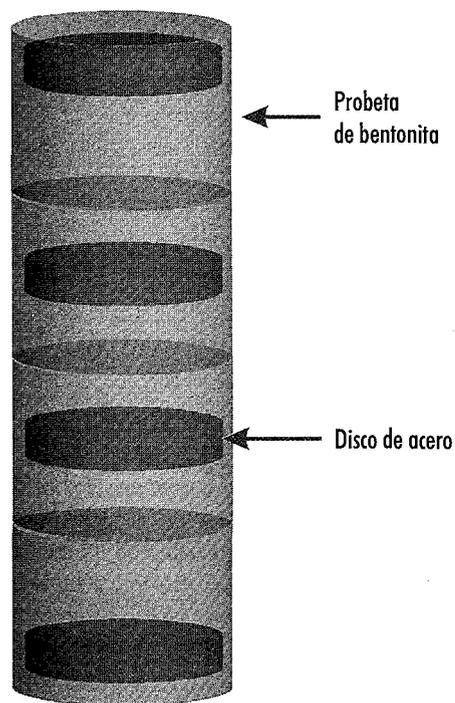


Figura 3.2. Representación de la disposición de las probetas con discos de acero en el interior de las cápsulas (longitud total 200 mm).

mente, en cuatro partes iguales de 5 cm de longitud que corresponden a las probetas iniciales.

Las Tablas 3.1. y 3.2. muestran las matrices de submuestras a obtener de este experimento. Éstas se codifican mediante dos letras y un número. La primera letra es una C, derivada de calentamiento. La segunda letra puede ser A, B, C o D, si se trata de un calentamiento durante 60 días, o bien, E, F, G o H, si se trata de un calentamiento durante 120 días. El número final indica si la muestra pertenece al intervalo 0 - 5 cm, 5 - 10 cm, 10 - 15 cm o 15 - 20 cm. La temperatura indicada es la calculada teóricamente suponiendo un gradiente de temperatura lineal.

Con la estrategia de sustitución de cilindros descrita se obtienen 16 submuestras de bentonita, (series CA, CB, CE y CF con submuestras de 1 a 4), 8 calentadas durante dos meses y 8 adicionales calentadas durante cuatro meses. Desde el punto de vista de los análisis posteriores, las submuestras de las series CB y CF se consideran "en reserva" para la posible repetición de algunos de los análisis más significativos. Asimismo se obtienen 16 probetas metálicas de corrosión, (series CC, CD, CG y CH con probetas de 1 a 4), 8 calentadas durante dos meses y 8 adicionales calentadas durante cuatro meses. No está previsto analizar la bentonita contenida en las cápsulas 1, 2, 3 y 7, sino solamente las probetas de acero.

Tabla 3.1
Muestras calentadas. Distribución de submuestras de bentonita.

Dist. (cm)	Temp. (°C)	Cápsula 5	Cápsula 8	Cápsula 4	Cápsula 6
		60 días	60 días	120 días	120 días
0.0-5.0	125	CA-1	CB-1	CE-1	CF-1
5.0-10.0	115	CA-2	CB-2	CE-2	CF-2
10.0-15.0	105	CA-3	CB-3	CE-3	CF-3
15.0-20.0	95	CA-4	CB-4	CE-4	CF-4

Tabla 3.2
Probetas de acero calentadas. Distribución de probetas metálicas para análisis de corrosión.

Dist. (cm)	Temp. (°C)	Cápsula 2	Cápsula 7	Cápsula 1	Cápsula 3
		60 días	60 días	120 días	120 días
0.0-1.0	129	CC-1	CD-1	CG-1	CH-1
1.0-5.0	124	Bentonita	Bentonita	Bentonita	Bentonita
5.0-7.0	118	Bentonita	Bentonita	Bentonita	Bentonita
7.0-8.0	115	CC-2	CD-2	CG-2	CH-2
8.0-10.0	112	Bentonita	Bentonita	Bentonita	Bentonita
10.0-12.0	108	Bentonita	Bentonita	Bentonita	Bentonita
12.0-13.0	105	CC-3	CD-3	CG-3	CH-3
13.0-15.0	102	Bentonita	Bentonita	Bentonita	Bentonita
15.0-19.0	96	Bentonita	Bentonita	Bentonita	Bentonita
19.0-20.0	91	CC-4	CD-4	CG-4	CH-4

3.2.2 Diseño de la experiencia de irradiación y calentamiento (BIC-2B)

El diseño del experimento BIC-2B es equivalente al del BIC-2A, empleándose el mismo gradiente térmico, (de 130 °C a 90 °C); sin embargo, en el mismo se someten las muestras de bentonita o acero a una dosis absorbida máxima de radiación gamma de 10 MGy. La duración del experimento también es de 120 días. La tasa de dosis nominal, en la parte más expuesta, es de 3.5 kGy/h. Se sigue exactamente la misma estrategia de sustitución de cilindros que la empleada en BIC-2A. Se emplean tres cilindros con muestras de bentonita compactada,

(probetas Tipo 0), y los tres restantes con cilindros de bentonita que contienen discos de acero insertados, (probetas Tipo 1 y 2). Éstas cápsulas se llenan en una secuencia, (de arriba a abajo), Tipo 1-Tipo 2-Tipo 2-Tipo 1 invertida. Al cabo de 60 días de haberse iniciado la experiencia, se extraen del cabezal dos cápsulas, una de cada clase, siendo reemplazadas por otras homólogas.

En las Tablas 3.3 y 3.4 se muestran las matrices de submuestras a obtener de este experimento. Se codifican de la misma forma que las anteriores, sustituyendo la C de calentamiento por la I de irradiación. Se indica la temperatura teórica suponiendo un gradiente lineal, la tasa de dosis teórica nominal en cada intervalo considerado, así como una estima-

Tabla 3.3
Muestras irradiadas. Distribución de submuestras de bentonita.

Dist. (cm)	Tasa (kGy/h)	Temp. (°C)	Dosis (MGy)	Cápsula 5	Cápsula 8	Dosis (MGy)	Cápsula 4	Cápsula 6
				60 días	60 días		120 días	120 días
0.0-5.0	3.1	125	4.4	IA-1	IB-1	8.9	IE-1	IF-1
5.0-10.0	2.4	115	3.5	IA-2	IB-2	7.0	IE-2	IF-2
10.0-15.0	1.9	105	2.7	IA-3	IB-3	5.4	IE-3	IF-3
15.0-20.0	1.4	95	2.0	IA-4	IB-4	4.1	IE-4	IF-3

Tabla 3.4
Probetas de acero irradiadas. Distribución de probetas metálicas para análisis de corrosión.

Dist. (cm)	Tasa (kGy/h)	Temp. (°C)	Dosis (MGy)	Cápsula 2	Cápsula 7	Dosis (MGy)	Cápsula 1	Cápsula 3
				60 días	60 días		120 días	120 días
0.0-1.0	3.4	129	4.9	IC-1	ID-1	9.8	IG-1	IH-1
1.0-5.0	3.0	124	4.3	Bentonita	Bentonita	8.7	Bentonita	Bentonita
5.0-7.0	2.6	118	3.8	Bentonita	Bentonita	7.5	Bentonita	Bentonita
7.0-8.0	2.4	115	3.5	IC-2	ID-2	7.0	IG-2	IH-2
8.0-10.0	2.3	112	3.2	Bentonita	Bentonita	6.5	Bentonita	Bentonita
10.0-12.0	2.0	108	2.9	Bentonita	Bentonita	5.8	Bentonita	Bentonita
12.0-13.0	1.9	105	2.7	IC-3	ID-3	5.4	IG-3	IH-3
13.0-15.0	1.7	102	2.5	Bentonita	Bentonita	5.0	Bentonita	Bentonita
15.0-19.0	1.5	96	2.1	Bentonita	Bentonita	4.2	Bentonita	Bentonita
19.0-20.0	1.3	91	1.8	IC-4	ID-4	3.6	IG-4	IH-4

ción de la dosis absorbida. Todos los valores consignados se refieren al punto medio de cada intervalo.

Al igual que sucede con el experimento *BIC-2A*, se obtienen 16 submuestras de bentonita, (series IA, IB, IE e IF con submuestras de 1 a 4), 8 irradiadas y calentadas durante dos meses, y 8 adicionales irradiadas y calentadas durante cuatro meses. En este caso no hay submuestras de bentonita "en reserva". También se obtienen 16 probetas metálicas de corrosión, (series IC, ID, IG e IH con probetas de 1 a 4), 8 irradiadas y calentadas durante dos meses, y 8 adicionales irradiadas y calentadas durante cuatro meses. Tampoco se prevé analizar la bentonita contenida en las cápsulas 1, 2, 3 y 7, sino solamente las probetas de acero al carbono. Un resumen del número total de submuestras de bentonita y de probetas de acero implicadas en los experimentos *BIC-2A* y *BIC-2B* se muestra en la Tabla 3.5.

3.3 Elección de los parámetros nominales de la experiencia GABIC-2

Se ha empleado un sistema de irradiación en el que la temperatura viene impuesta por las condiciones en la celda de irradiación, (en torno a 40 °C). Por lo tanto, en estos experimentos, se estudian unas condiciones que son menos exigentes desde el punto de vista de la evaluación del comportamiento de la barrera de ingeniería que las esperables en condiciones reales de AGP.

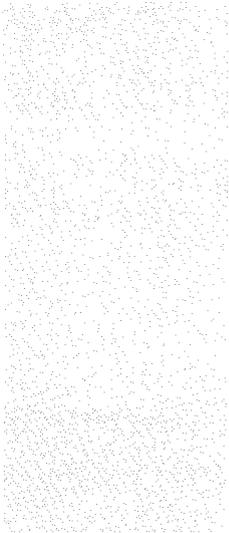
Para la experiencia de irradiación *GABIC-2B* se fija una dosis mínima nominal de 4 MGy. Con el fin de llegar a un compromiso entre aproximación a las condiciones reales de un AGP y operatividad de la experiencia, se escoge una tasa de dosis nominal máxima de 1.5 kGy/h, siendo el tiempo de irradiación de 120 días, aproximadamente. En la experiencia de calentamiento *GABIC-2A* las muestras se mantienen en una estufa a la temperatura constante de 40 °C durante el mismo tiempo.

En los experimentos *GABIC-2A* y *GABIC-2B* se utilizan las mismas probetas de bentonita cilíndricas, con o sin acero en su interior, que en los experimentos *BIC-2*. Se van a explorar distintas configuraciones de hidratación, atmósfera y presencia/ausencia de acero. Las distintas configuraciones experimentadas son las siguientes:

- *GABIC-2A*
 - ⇒ Bentonita saturada en atmósfera de aire
 - ⇒ Bentonita parcialmente saturada, (60% de saturación), más acero en atmósfera de aire
 - ⇒ Bentonita saturada más acero en atmósfera de aire
- *GABIC-2B*
 - ⇒ Bentonita saturada en atmósfera de aire
 - ⇒ Bentonita parcialmente saturada, (60% de saturación), más acero en atmósfera de aire
 - ⇒ Bentonita saturada más acero en atmósfera de aire
 - ⇒ Bentonita saturada más acero en atmósfera anóxica

Tabla 3.5
Submuestras disponibles tras los experimentos *BIC-2A* y *BIC-2B*.

Experimento	Tiempo (días)	Dosis máx. (MGy)	Submuestras Bentonita	Probetas Corrosión	Submuestras Reserva
<i>BIC-2A</i>	60	—	4	8	4 Bentonita 0 Corrosión
<i>BIC-2A</i>	120	—	4	8	4 Bentonita 0 Corrosión
<i>BIC-2B</i>	60	5	8	8	0 Bentonita 0 Corrosión
<i>BIC-2B</i>	120	10	8	8	0 Bentonita 0 Corrosión
TOTALES			24	32	8 Bentonita



4. Diseño y construcción
del sistema
de irradiación de
muestras con gradiente
de temperatura



4. Diseño y construcción del sistema de irradiación de muestras con gradiente de temperatura

En este capítulo se exponen las bases del diseño de un sistema, denominado cabezal de irradiación, para la irradiación de muestras de bentonita compactada, saturada en agua y sometida a un gradiente térmico. Este experimento resulta un buen análogo de las condiciones que reinarán en la barrera de ingeniería bentonítica de un AGP. En este capítulo también se describe el funcionamiento del irradiador industrial utilizado para los experimentos.

4.1 Condicionantes del diseño del cabezal de irradiación

Los condicionantes vendrán impuestos por el tamaño y número de muestras a estudiar, las temperaturas de trabajo, la tasa de dosis máxima, la generación de gases radiolíticos, la posibilidad de corrosión de los materiales, las presiones internas involucradas y el grado de humedad de las muestras.

Las muestras de bentonita tienen una densidad final, una vez hidratadas, de 1.65 g/cm^3 y adoptan una geometría cilíndrica, con un diámetro de 50 mm y una longitud de 200 mm. Para simular los efectos térmicos del combustible gastado, estos cilindros se someten a un gradiente térmico entre $130 \text{ }^\circ\text{C}$ y $90 \text{ }^\circ\text{C}$. Los fotones γ que simulan la emisión de radiación por parte de las cápsulas de residuos provienen de un irradiador industrial descrito en el punto 4.7. Se establece una tasa de dosis máxima de diseño de 30 kGy/h teniendo en cuenta las limitaciones del citado irradiador. Dado que va existir un gradiente axial de tasa de dosis a lo largo de la probeta cilíndrica, la zona más caliente de las muestras de bentonita estará sometida a una tasa de dosis mayor. Además, el sistema debe ser capaz de monitorizar y almacenar, en continuo, los valores de las temperaturas máxima y mínima, y de la tasa de dosis a que se exponen las muestras. Por otra parte, los cilindros de bentonita están en estado de saturación y dadas las características de expansión de este material, puede generarse en el interior de la cápsula portamuestras una presión de hinchamiento de hasta 55 bar, que ésta debe ser capaz de soportar. Por último, el número de muestras cilíndricas a irradiar simultáneamente se fija en seis.

Con todas estas limitaciones, se ha optado por situar las seis cápsulas portamuestras, en distribución polar, entre dos platos de cobre cuyas temperaturas se controlan mediante una resistencia eléctrica y un adecuado sistema de regulación. En el centro de la distribución polar se ubica un detector de radiación

para monitorizar en continuo la tasa de dosis; este sistema está respaldado por el uso de dosímetros pasivos de distintas características. Un adecuado sistema informático se encarga de almacenar todas las variables de interés.

4.2 Descripción del cabezal de irradiación

4.2.1 Cápsulas portamuestras

Las cápsulas portamuestras albergan a las probetas de bentonita compactada en estado de saturación. La Fig 4.1. muestra el diseño de una de estas cápsulas, la cual está mecanizada en acero inoxidable *AISI-316L* por sus buenas propiedades mecánicas y sus excelentes propiedades frente a la corrosión. El cuerpo de la cápsula, (4), tiene un espesor de pared de 4 mm en la parte central y de 12 mm en la parte superior e inferior. El diámetro interior es de 50 mm, pudiendo alojar una probeta de 200 mm de longitud, (2). El conjunto se cierra mediante dos tapas, (1 y 6), de 8 mm de espesor en su parte central, atornilladas al cuerpo de la cápsula con 8 tornillos de métrica 5. La estanqueidad se asegura mediante dos juntas planas de cobre (Fig 4.2.), (3). Se ha adoptado una presión de diseño de 61.7 kp/cm^2 , superior en un 10 % a la presión de hinchamiento de la bentonita. En el cálculo estructural de las cápsulas, por otra parte, se ha aplicado un coeficiente de seguridad final de 2.1 sobre los valores de diseño

En la tapa inferior, (6), puede observarse una serie de ranuras radiales. Esto deja abierta la posibilidad de realizar futuras irradiaciones con inyección continua de agua mediante una bomba de cromatografía líquido-líquido. Esta bomba impulsaría el agua a través de tuberías metálicas de reducido diámetro, a una presión de 11 bar, realizándose las conexiones entre los distintos elementos mediante un contacto metal-metal. Siguiendo este diseño, se dispondría de un rácor roscado para la inyección de agua en el centro de la tapa inferior, repartiéndose el agua a lo largo de los canales mecanizados en la tapa. Inmediatamente después de la tapa inferior, y antes de la bentonita, se interpondría un disco de acero inoxidable sinterizado poroso, (5), para uniformizar el flujo de agua hacia la bentonita. Para las presentes irradiaciones se optó por una saturación estática de las muestras, realizada previamente a la irradiación.

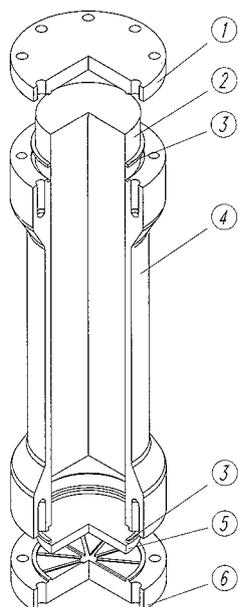


Figura 4.1. Vista de una de las cápsulas portamuestras.

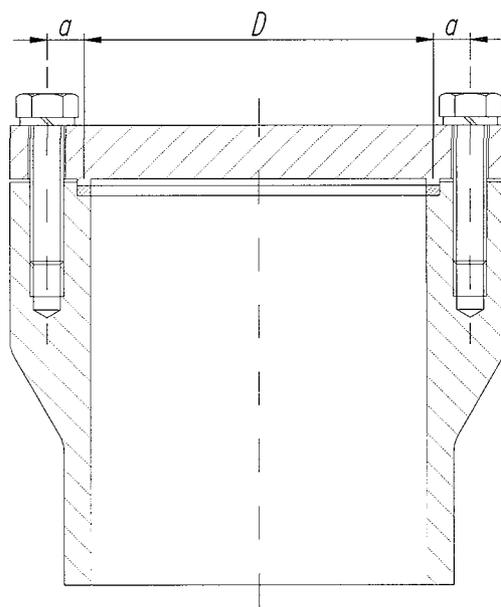


Figura 4.2. Detalle de la sujeción de la tapa de las cápsulas, en la que se aprecia la junta de estanqueidad de cobre.

4.2.2 Placas difusoras de calor

A fin de uniformizar la temperatura de las seis cápsulas y de simplificar el sistema de control de temperatura, las cápsulas se alojan, parcialmente, en cavidades realizadas en dos placas difusoras de calor, (Fig 4.3. y 4.4.), una en la parte superior y otra en la parte inferior de las mismas. Estas placas consisten en discos de cobre de 25 mm de espesor que, además de transmitir el calor a las cápsulas y uniformizar la temperatura de las mismas, dan rigidez a todo el conjunto.

Alrededor de la placa superior, (Fig 4.3.), se monta una resistencia eléctrica que calienta a las seis cápsulas. Ésta se ubica en un alojamiento especialmente diseñado para este fin, que mejora la transmisión

de calor. La temperatura de referencia a controlar es la de la placa superior y se mantiene a 130 °C. De este modo se establece un gradiente térmico natural entre dicha placa superior y la placa inferior, lo que conlleva un gradiente a lo largo de la bentonita.

El adecuado diseño de dichas placas, descrito más adelante, garantiza que la temperatura inferior esté muy próxima a 90 °C. La placa superior también dispone de un alojamiento roscado para la conexión de una sonda de temperatura Pt-100 que forma parte del sistema de regulación de temperatura. La placa inferior (Fig 4.4.) dispone de un alojamiento similar para otra sonda de temperatura y, además, dispone de una cavidad para el posicionamiento de la cámara de ionización destinada a la

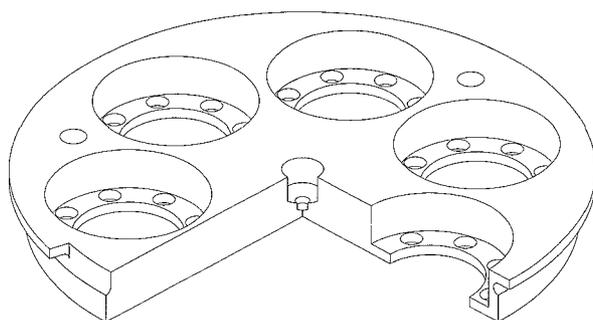


Figura 4.3. Vista de la placa difusora de calor superior.

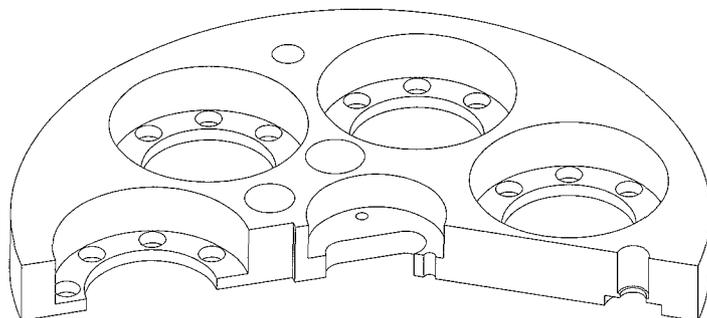


Figura 4.4. Vista de la placa difusora inferior.

medida de la tasa de dosis en continuo. Esta placa también cuenta con un orificio para la salida de cables de instrumentación.

En la Fig 4.3. pueden verse otros orificios dispuestos a 120° entre si. Dichos orificios son los enclavamientos de los puentes térmicos que se comentarán en el siguiente apartado. Las cavidades de ambas placas disponen de "ventanas" circulares. La misión de las ventanas superiores es minimizar la atenuación de la radiación que llega a las cápsulas, mientras que las inferiores se han dispuesto en previsión de un cambio en el sistema de saturación de las muestras.

Si en experimentos futuros se implanta un sistema de saturación activo, estas ventanas serán necesarias para facilitar el montaje y desmontaje de los radores posteriores en las cápsulas portamuestras.

4.2.3 Puentes térmicos

Estos elementos surgen a partir del diseño térmico del cabezal, (apartado 4.3.), y se justifican por la necesidad de aumentar la transferencia de calor desde la placa superior, donde se encuentra la

sistencia térmica que calienta el cabezal, hasta la placa inferior.

Los puentes térmicos consisten en tres varillas de cobre de 10 mm de diámetro y 231 mm de longitud (Fig 4.5.), que se enclavan en unos alojamientos mecanizados en las placas difusoras de calor superior e inferior. Para aumentar la superficie de transferencia de calor, el diámetro en la zona de enclavamiento se aumenta hasta 12 mm. Con estos elementos, la temperatura de la placa inferior, cuando la superior es de 130°C , está muy cerca de los 90°C . Por otra parte, estos elementos contribuyen a aumentar la rigidez del cabezal.

4.2.4 Envoltura exterior

El conjunto descrito, (Fig 4.7.), se aloja en el interior de una envoltura cilíndrica de 3 mm de espesor, (Fig 4.6.), mecanizada en acero. Entre la parte interna de la envoltura y los elementos interiores del cabezal de irradiación se interponen 5 mm de material aislante para minimizar las pérdidas de calor y reducir las posibles oscilaciones térmicas del conjunto. También se dispone de mantas aislantes internas en la parte superior e inferior de la envoltura.



Figura 4.5. Vista de un puente térmico.

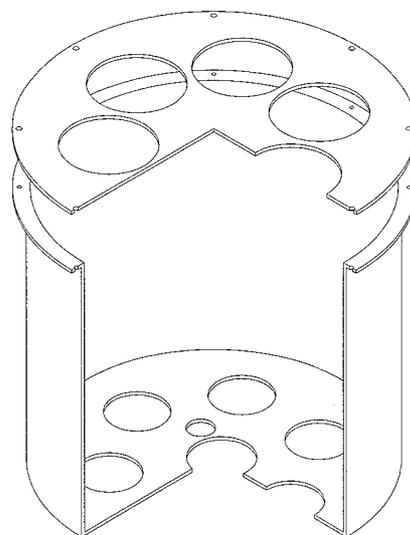


Figura 4.6. Vista de la envoltura exterior.

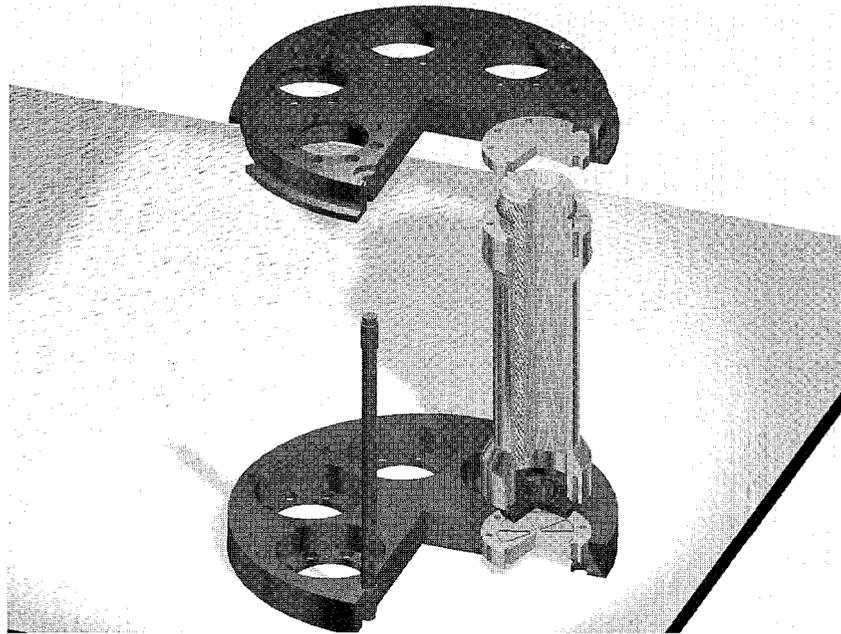


Figura 4.7. Vista del cabezal de irradiación con una de las seis cápsulas que aloja durante el experimento.

El conjunto se cierra con una tapa atornillada al cuerpo de la envoltura mediante ocho tornillos de M4. Al igual que sucedía con las placas difusoras, el fondo de la envoltura y la tapa, así como los aislantes superior e inferior, disponen de ventanas circulares. Asimismo, la envoltura y las mantas aislantes disponen de penetraciones para el paso de los cables de instrumentación y alimentación eléctrica que correspondan.

4.2.5 Soporte del cabezal

Dado que la fuente de radiación es una placa plana vertical, la envoltura descrita debe mantenerse, durante la etapa experimental, en una posición horizontal a fin de inducir un gradiente de dosis en la bentonita. Por otro lado, la salida de cables por la parte posterior de la envoltura también obliga a una posición horizontal. Ésta se consigue mediante un soporte realizado en aluminio, (Fig 4.8.). Para evitar pérdidas adicionales de calor, se ha diseñado el soporte de modo que sólo toque a la envoltura en cuatro puntos. Dicho soporte se ha construido a base de placas de aluminio de 5 mm de espesor, lo que le confiere una rigidez más que suficiente para evitar el pandeo.

La Fig 4.9. muestra una imagen de todos los elementos que integran el cabezal de irradiación una vez contruidos. En el interior de la envoltura también puede observarse la resistencia eléctrica que calienta al conjunto.

4.3 Sistema de control de temperatura del cabezal de irradiación

Como ya se ha esbozado, la temperatura de las cápsulas se controla mediante las placas difusoras de calor, (Fig 4.3. y 4.4.). Alrededor de la placa superior se monta una resistencia eléctrica circular que calienta todo el conjunto. El gradiente térmico que se establece entre las dos placas es el gradiente a que se someten los cilindros de bentonita. La alimentación de esta resistencia se realiza a través de una unidad de potencia, controlada por un regulador PID industrial. El regulador obtiene la señal de regulación de una sonda Pt-100 roscada al plato superior. El sistema cuenta con una sonda Pt-100 adicional para la monitorización de la temperatura de la placa inferior.

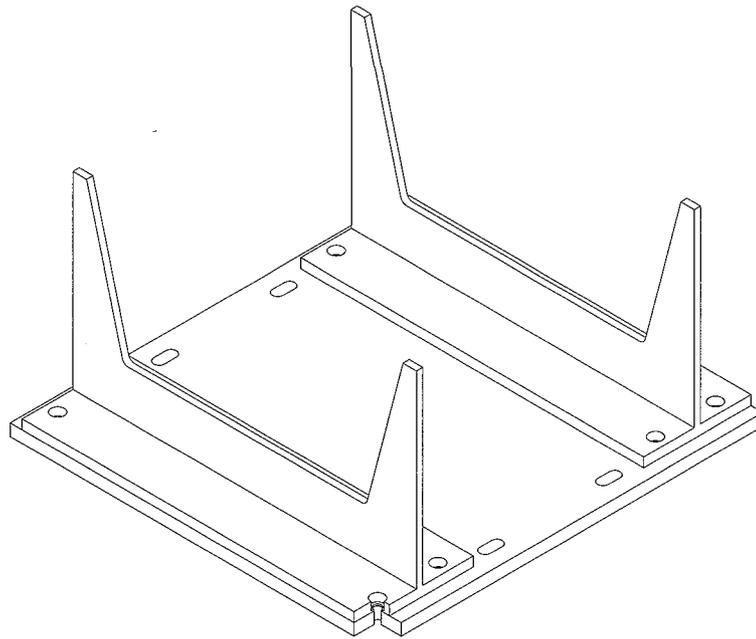


Figura 4.8. Vista del soporte del cabezal.

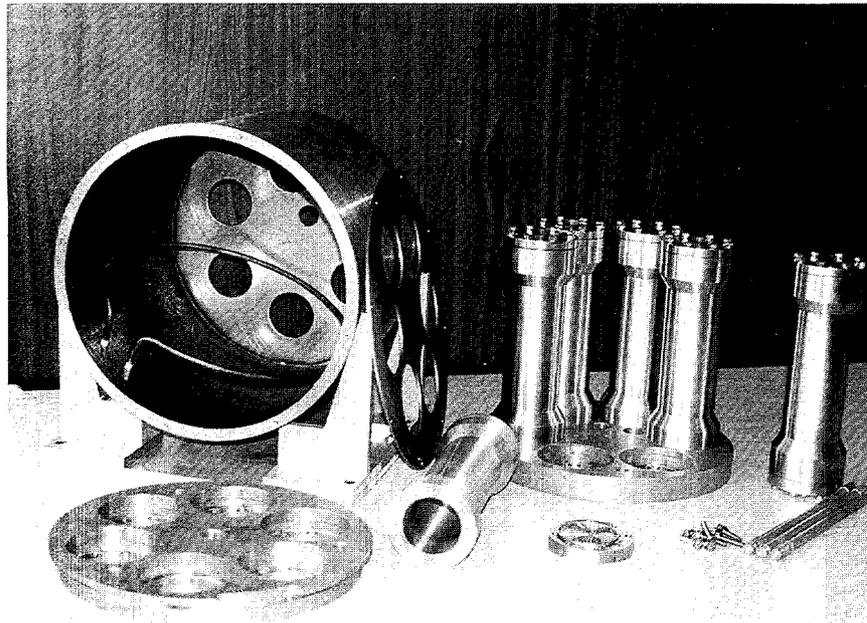


Figura 4.9. Elementos integrantes del cabezal de irradiación.

La resistencia eléctrica es de geometría toroidal, con un diámetro mayor del toro de 246 mm y un diámetro menor de 6 mm. La potencia de la misma es de 300 W. La alimentación de la resistencia no puede realizarse mediante cables de aislamiento orgánico, ya que las altas dosis de radiación que va a recibir el dispositivo lo deteriorarían rápidamente. Por ello se han empleado cables de aislamiento mineral. Estos cables, suministrados por Photonis, tienen un diámetro exterior de 3 mm, un aislamiento interno de MgO y una cubierta metálica de acero inoxidable. Se trata de cables de un solo conductor y por tanto cada terminal de la resistencia dispone de su propio cable de alimentación. Estos elementos son de difícil adquisición y resultan bastante costosos desde un punto de vista económico. Es éste el motivo básico por el que se ha decidido calentar sólo un extremo del cabezal de irradiación y diseñarlo de tal modo que la temperatura en el extremo frío sea muy próxima a 90 °C.

El regulador empleado es un regulador digital PID, (Desin Instruments PM-2830), que acepta una entrada de 4/20 mA. Dispone de una función de autoajuste, capaz de determinar los valores de los parámetros más adecuados para las acciones proporcional, integral y derivativa en función del proceso a controlar. Está programado para un rango de 0 °C a 200 °C. La unidad de potencia actúa en función de la señal que proviene del regulador digital, aportando energía eléctrica a la resistencia calefactora. Se trata de una unidad de potencia a triac, (Félix Mateo CDI-40/2), capaz de alimentar una carga de 40 A mediante un sistema de relés estáticos.

La retroalimentación al regulador digital se lleva a cabo mediante una sonda de temperatura Pt-100. Ésta presenta una longitud de terminal sensible de 10 mm y se presenta montada en un rácor roscado para su acoplamiento a la placa difusora de calor superior. Dado que este elemento estará sometido a la radiación gamma, su señal también se lleva al regulador digital mediante cables de aislamiento mineral proporcionados por Photonis. En este caso, se trata de cables de 2 mm de diámetro y cuatro conductores, con cubierta de acero inoxidable y aislamiento de MgO. Se dispone de otra sonda idéntica para la monitorización de la temperatura en la placa difusora de calor inferior.

Para determinar de forma teórica el gradiente térmico que se origina a lo largo del cilindro de bentonita, cuando su extremo superior está a 130 °C, se ha realizado un cálculo, por diferencias finitas, de la distribución de temperaturas en estado esta-

cionario originada por el calentamiento de la placa superior. Se ha procedido a discretizar el cabezal de irradiación en 51 dominios (Fig 4.10.), teniendo en cuenta todas las simetrías posibles, sobre cuyos nodos se ha aplicado la ecuación del balance de energía, (Bonals *et al*, 1994), :

$$\left(\frac{\partial Q}{\partial t}\right)_i = \sum_{j=1}^N \frac{T_j - T_i}{R_{ij}} + g_i V_i = \sum_{j=1}^N K_{ij} (T_j - T_i) + q_i \quad \text{Ec.(4.1.)}$$

donde:

- ($\delta Q/\delta t$)_i: Flujo de calor total en el nodo i [W]
- R_{ij}: Resistencia térmica entre el nodo i y el nodo j [Ω]
- T_i: Temperatura del nodo i [°C]
- T_j: Temperatura del nodo j [°C]
- g_i: Generación de calor volumétrica en el nodo i [W/m³]
- V_i: Volumen del nodo i [m³]
- N: Número de nodos en contacto con el nodo i
- K_{ij}: Conductancia entre el nodo i y el nodo j [Ω⁻¹]
- q_i: Generación de potencia en el nodo i [W]

Para determinar las distintas conductancias entre dominios con alguna frontera común, o su inverso, las resistencias térmicas, debe tenerse en cuenta las dimensiones de los dominios, su geometría y sus propiedades físicas.

Una vez determinados estos valores, la aplicación reiterada de la Ec. 4.1., mediante un programa informático, a todos los nodos hasta que se alcanza una situación de equilibrio, proporciona los valores de temperatura de los distintos nodos en estado estacionario. Los resultados obtenidos sobre el cabezal sin puentes térmicos indican una temperatura en la placa inferior de 74 °C, cuando la placa superior está a 130 °C. Es por este motivo que surge la idea de aumentar la transferencia de calor hacia la parte inferior del cabezal mediante varillas de cobre, los puentes térmicos. Disponiendo los tres puentes térmicos descritos en el punto 4.2.3 se obtiene una temperatura teórica inferior de equilibrio de 92 °C. Este sistema tiene la ventaja de que no complica en absoluto el dispositivo experimental; sin embargo, presenta incertidumbres en la temperatura final ya que el cálculo de la misma es teórico y, además,

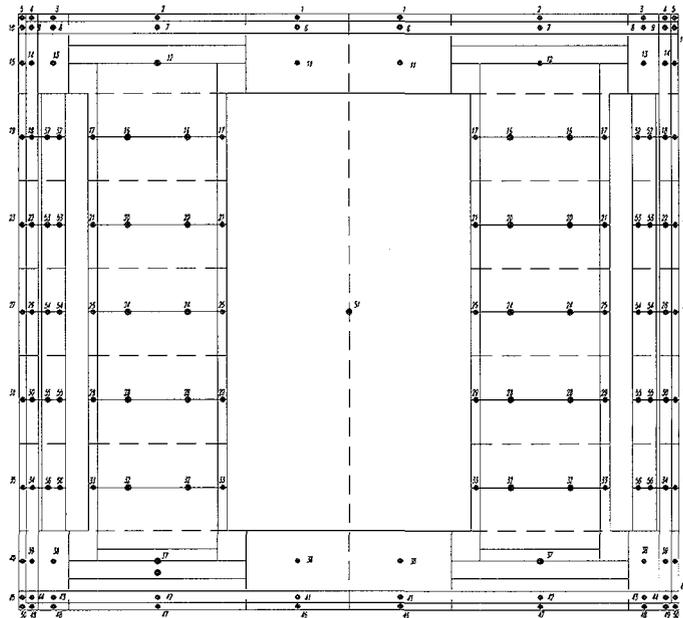


Figura 4.10. Discretización realizada al cabezal de irradiación.

conlleva una pequeña fluctuación de la temperatura inferior en función de la variación diaria de la temperatura ambiente.

Este cálculo también permite estimar la potencia que debe suministrarse al sistema para compensar las pérdidas de calor al ambiente. Este valor resulta ser de 122 W por lo que una aportación de 300 W es más que suficiente para calentar al conjunto y mantenerlo a la temperatura deseada.

Otro aspecto que puede determinarse teóricamente es el tiempo necesario para llegar al estado estacionario, (temperaturas finales de 130 °C y 92 °C en los extremos del cabezal). Se parte de la expresión que proporciona la variación de energía calorífica en el nodo i , (Bonals et al, 1994),

$$\left(\frac{dE}{dt}\right)_i = c_i \rho_i V_i \left(\frac{\partial T}{\partial t}\right)_i - c_i \rho_i V_i \frac{T_i^{n+1} - T_i^n}{\Delta t} = C_i (T_i^{n+1} - T_i^n) \quad \text{Ec. (4.2.)}$$

siendo:

c_i : Capacidad calorífica del nodo i [J/(kg·°C)]

ρ_i : Densidad del nodo i [kg/m³]

V_i : Volumen asociado al nodo i [m³]

T_i^{n+1} : Temperatura del nodo i en el instante $n+1$ [°C]

T_i^n : Temperatura del nodo i en el instante n [°C]

Δt : Intervalo de tiempo transcurrido entre los instantes n y $n+1$ [s]

Puede observarse como se linealiza la derivada parcial de la temperatura respecto del tiempo para facilitar la resolución analítica por recurrencia. La Ec. 4.2. puede combinarse con la Ec. 4.1. para obtener la Ec. 4.3.,

$$\left(\sum_{j=1}^N K_{ij}(T_j - T_i) + q_i\right)^\xi = (c_i \rho_i V_i)^\xi \frac{T_i^{n+1} - T_i^n}{\Delta t} = C_i^\xi (T_i^{n+1} - T_i^n) \quad \text{Ec (4.3.)}$$

con las propiedades calculadas en el instante ξ . Cuando este instante coincide con el instante n se tiene el sistema de cálculo explícito, en donde T_i^{n+1} , para cualquier nodo, puede calcularse a partir de los valores obtenidos en el instante anterior. Cuando ξ coincide con el instante $n+1$, se tiene el sistema de cálculo implícito, donde para calcular T_i^{n+1} es preciso conocer las propiedades en el instante $n+1$. Aplicando esta ecuación a todos los nodos, y fijando un incremento de tiempo, Δt , suficientemen-

te pequeño se ha obtenido un tiempo aproximado de 32000 segundos, (casi 9 horas), para llegar al estado estacionario. Dado que los experimentos planificados van a tener una duración del orden de meses, el diseño térmico del cabezal es completamente satisfactorio.

4.4 Sistema de medida de la dosis

Las medidas de dosis absorbida se han realizado utilizando las distintas técnicas, tanto activas como pasivas, que se detallan a continuación:

- Integración de la señal de tasa de dosis proveniente de una cámara de ionización, (ver apartado 4.5)
- Dosímetros de polimetacrilato de metilo rojo para altas dosis, también conocidos como "red Perspex", proporcionados por *National Physical Laboratory, Centre for Ionising Radiation Metrology, Reino Unido*
- Dosímetros de alanina para dosis muy altas proporcionados por *MessTechnik, Alemania*
- Dosímetros de cuarzo para dosis ultra altas proporcionados por *MessTechnik, Alemania*

Los dosímetros "red Perspex" se emplean de manera rutinaria en el irradiador industrial César para la dosimetría periódica que se realiza como parte del protocolo de funcionamiento normal de la instalación, (ver apartado 4.7). Son piezas rectangulares de plástico rojo, $((C_5H_8O_2)_n)$, cuya absorbancia a cierta longitud de onda varía de forma casi lineal con la dosis absorbida. Si el sistema lector está debidamente calibrado, una medida de la absorbancia da directamente la dosis absorbida. Los dosímetros empleados son válidos en el rango comprendido entre 5 kGy y 50 kGy, tienen una reproducibilidad superior al 1.5% y la incertidumbre media es menor del 3%. La temperatura máxima de trabajo es de 50 °C. Dadas las limitaciones que presentan en cuanto a dosis absorbida y temperatura, estos dosímetros se emplean para funciones de mapeado dosimétrico de la celda de irradiación y para la calibración de la cámara de ionización.

Los dosímetros de alanina para altas dosis, $(CH_3-CH-COOH-NH_2)$, se basan en la pérdida del grupo amina, (NH_2) , cuando este material se somete a radiación. Este defecto puede detectarse y cuantificarse mediante técnicas de Resonancia de Espín Electrónico, (ESR), (McLaughlin, 1993). Estos dosímetros pueden trabajar permanentemente a una tempera-

tura de 70 °C. Sin embargo, para períodos cortos, (alrededor de un 10% del tiempo total de exposición), ésta puede elevarse hasta 90 °C sin perder precisión en la medida de la dosis, (precisión superior al 5%). Para este tipo de dosímetros, la máxima dosis está en el entorno de los 200 kGy y las tasas de dosis elevadas no representan ningún inconveniente. Una incertidumbre en la medida de la temperatura de ± 10 °C, se traduce en un incremento del error en la medida del orden de un 3%. En general, la precisión de estos dosímetros, a este nivel de dosis, para una incertidumbre en la temperatura de irradiación de ± 10 °C, es mejor del 10%. Durante las experiencias de irradiación se han empleado varios paquetes de estos dosímetros para estimar la dosis absorbida por las muestras durante períodos de tiempo determinados. En estos dosímetros, el efecto de *fading* es inferior al 1% anual cuando son almacenados a temperatura ambiente.

La radiación es capaz de provocar en el cuarzo, (SiO_2) , una serie de defectos que pueden evaluarse mediante técnicas de ESR. En particular, el defecto conocido como E_1' es de gran interés para la dosimetría de dosis ultra altas, (Wieser *et al.*, 1990). Los dosímetros basados en el cuarzo aún están en un estado experimental; sin embargo, se utilizarán en los experimentos ya que serán los únicos capaces de permanecer en la celda de irradiación desde el inicio hasta el fin de la misma. No obstante, dado que la precisión de un sistema dosimétrico basado en el cuarzo es del orden del 25%, los valores obtenidos sólo serán orientativos y siempre se emplearán conjuntamente con dosímetros de alanina. La influencia de la temperatura de irradiación es tal que una incertidumbre en la temperatura de irradiación del orden de ± 10 °C, se traduce en una incertidumbre adicional en la medida de la dosis del orden del 7%. A temperatura ambiente, estos dosímetros presentan un efecto de *fading* despreciable.

4.5 Sistema de medida de la tasa de dosis

La monitorización de la tasa de dosis es un aspecto muy importante de la experiencia de irradiación, ya que va a permitir calcular la dosis total recibida por cada una de las muestras de manera mucho más precisa que utilizando los sistemas pasivos descritos en el apartado anterior. La monitorización se realiza en base a una cámara de ionización capaz de soportar como máximo una tasa de dosis de 30

kGy/h y dosis integradas superiores a 50 MGy. La sonda tiene un tamaño bastante reducido y se sitúa en el interior del cabezal de irradiación.

La unidad escogida para detectar la radiación es una cámara de ionización LND50356, (Fig 4.11.). Se trata de una modificación efectuada por el fabricante sobre el modelo LND52125X, (Fig 4.11.), consistente en ubicar el detector en un contenedor de acero inoxidable. El contenedor va provisto de dos conectores MHV hembras, (Micro High Voltage), de aislamiento cerámico, idóneos para trabajar en condiciones de altas dosis y altas tasas de dosis sin deteriorarse. Uno de los conectores es el destinado a la polarización de la sonda, mientras que el otro es el destinado a la colección de las cargas liberadas por la radiación en el interior del volumen de detección. El gas de llenado de la cámara es nitrógeno a una presión de 250 torr. El rango de tensiones de polarización es de 100 V a 3000 V, mientras que la tensión nominal de trabajo es de 500 V.

La altura de la cámara es de 38.1 mm, su diámetro 25.4 mm y el espesor de pared es 0.51 mm. Sin embargo, contando con el montaje de los electrodos, la altura de la cámara es de 69.9 mm. El volumen sensible de la misma es de 12.87 cm³. El contenedor metálico, donde se ubica el detector, tiene una altura de 134.87 mm, incrementada hasta los

162.56 mm por los conectores MHV. El espesor de la envoltura es de 0.889 mm. Estas reducidas dimensiones permiten situar al detector en el interior del cabezal de irradiación. En la Fig 4.4. puede observarse el alojamiento de la cámara y la ranura para la salida de sus terminales en la placa difusora de calor inferior.

Según el fabricante, la sensibilidad de la cámara, para los fotones γ de una fuente de ⁶⁰Co, es de $1 \cdot 10^{-12}$ A/(R/h), o bien $1.14 \cdot 10^{-10}$ A/(Gy/h). En el capítulo 3 se ha comentado que la tasa de dosis empleada en las irradiaciones es del orden de 3.5 kGy/h; esto permite realizar una primera estimación de la corriente que entregará la cámara de ionización. Ésta resulta ser de unos 400 nA y, por lo tanto, la instrumentación asociada a la cámara deberá ser capaz de medir una corriente tan débil como ésta, o incluso inferior a ésta.

Para completar el sistema de medida de la tasa de dosis se emplea un picoamperímetro. Éste tiene la doble función de polarizar la cámara y de recoger y medir la corriente generada por la misma. El picoamperímetro escogido es un Keithley 487, (Fig 4.12.), de 5½ dígitos. Integra una fuente de tensión de 500 V que se emplea para la polarización de la cámara de ionización. Esta unidad permite medir corrientes en el rango de 2 mA a 2 nA, mientras que la máxima resolución es de 10 fA. Dispone de una salida analógica de tensión de ± 2 V, proporcional a la medida, que se emplea para el registro y almacenamiento de la tasa de dosis, (ver apartado 4.6).

Dado que este sistema no mide directamente la tasa de dosis en el interior de las cápsulas, el sistema debe calibrarse mediante el uso de dosímetros de "red Perspex", de este modo puede conocerse la relación entre la dosis absorbida por las muestras de bentonita y la dosis medida por la cámara de ionización en el interior del cabezal de irradiación. Por otra parte, aunque las fuentes radiactivas del irradiador industrial César son de ⁶⁰Co, la radiación que llega al detector ha interactuado con un gran número de materiales y, por lo tanto, la calibración dada por el fabricante puede no ser válida para el cálculo de la tasa de dosis medida por la cámara de ionización. Para aclarar estos dos aspectos se ha llevado a cabo una irradiación de 4000 segundos, registrando la corriente entregada por el picoamperímetro. Al mismo tiempo, se han empleado varios dosímetros "red Perspex" a fin de conocer la dosis absorbida, tanto en el detector montado en el interior del cabezal, como en el interior de las cápsulas portamuestras.

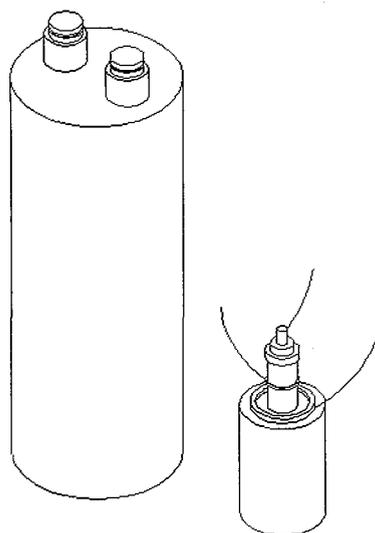


Figura 4.11. Esquema de la cámara de ionización LND50356 (izda.) y LND52125X (dcha.).

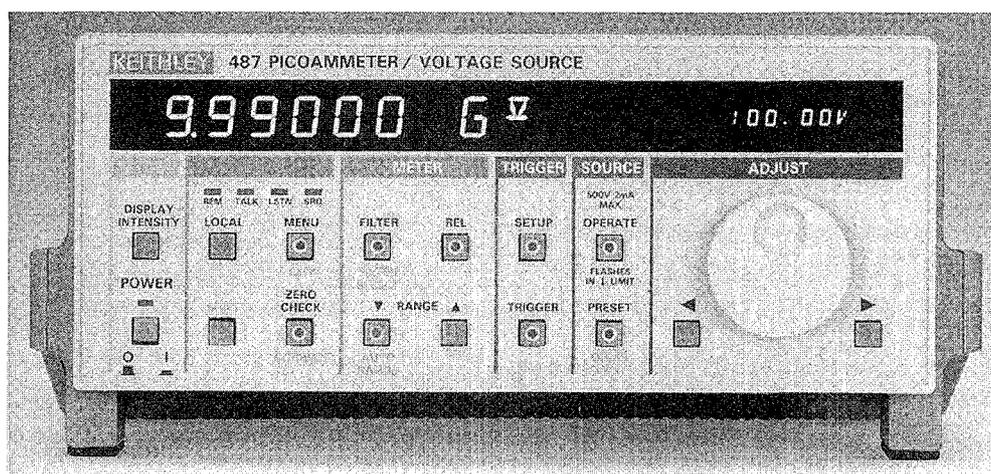


Figura 4.12. Picoamperímetro Keithley para la polarización de la cámara y medida de la corriente.

Los resultados indican que la corriente generada, para una tasa de dosis de 2.99 kGy/h, es de 120.7 nA. De este modo, la sensibilidad es de $4.038 \cdot 10^{-11}$ A/(Gy/h) o bien 40.38 nA/(kGy/h). Como se verá a continuación, este valor es coincidente con el deducido a partir de las características físicas de la cámara de ionización. Si el volumen útil de la cámara es de 12.87 cm³ y la presión, a 273 K, es de 250 torr, la masa de nitrógeno presente en el detector es de $5.29 \cdot 10^{-6}$ kg. Conocida la energía necesaria para crear un par iónico en el nitrógeno, (34.6 eV), la tasa de dosis asociada a una corriente de 1 A resulta ser de $23.5 \cdot 10^6$ kGy/h, esto implica una sensibilidad de 42.47 nA/(kGy/h). El otro dato de interés obtenido durante esta irradiación de 4000 segundos es la relación entre la tasa de dosis en la parte superior de las cápsulas y la tasa de dosis en el detector, que resulta ser igual a 2.69. Todos estos valores se incorporan al programa de control de la tarjeta de adquisición de datos, (ver apartado 4.6.2), para una correcta monitorización de la tasa de dosis en la bentonita más irradiada.

Al igual que sucede con los equipos integrantes del sistema de control de temperatura, la conexión entre la cámara de ionización y el picoamperímetro debe realizarse mediante cables de aislamiento mineral, (MgO), en nuestro caso también proporcionados por Photonis. El cable encargado de polarizar la fuente es de un sólo conductor y tiene 3 mm de diámetro. Incorpora un conector MHV macho

de aislamiento cerámico en el extremo de la cámara, y un conector BNC hembra en el extremo del picoamperímetro. El cable encargado de recoger la señal es igual al anterior, excepto por incorporar un conector BNC macho en el extremo del picoamperímetro.

4.6 Sistema de adquisición de datos

Durante la realización de las experiencias, que se llevan a cabo con el sistema de irradiación de muestras con gradiente térmico, se recogen datos relativos a la temperatura a la que se encuentra cada una de las placas difusoras de calor y a la tasa de dosis absorbida por el cabezal de irradiación. Simultáneamente, se monitorizan las variables estudiadas con la ayuda de un ordenador personal.

Un sistema automático, basado en un tarjeta de adquisición de datos, una aplicación de software específicamente desarrollada para esta tarea y un ordenador personal, recoge los datos de interés cada cierto intervalo de tiempo programado. Cada una de las tomas recogidas se consigna junta con la fecha completa en la que tiene lugar la operación de adquisición, y todo se almacena en ficheros diarios para su posterior análisis. Las variables de interés se registran empleando la instrumentación que se ha expuesto en los apartados anteriores. Las temperaturas de las placas difusoras de calor, se

adquieren empleando sendas sondas de temperatura Pt-100. Las señales de las sondas son convertidas a una señal de 4/20 mA, (en el rango de 0 °C a 200 °C), y posteriormente se transforman a tensión para su lectura por parte de la tarjeta de adquisición de datos. Por su parte, la tasa de dosis se registra utilizando la salida de tensión de ± 2 V proporcional a la lectura del picoamperímetro.

Un punto importante a la hora de planificar un sistema de recogida de datos, es el de la temporización que se va a asignar a la operación. Por lo que a la medida de temperaturas respecta, una vez alcanzado el estado estacionario, las oscilaciones no serán excesivas. El regulador PID es el encargado de controlar que la temperatura de la placa difusora de calor superior difiera lo menos posible de los 130 °C de referencia. Por su parte, la temperatura correspondiente a la placa difusora de calor inferior, no tiene regulación directa y está influida por la temperatura ambiental, por lo que aquí las variaciones serán mayores. El registro de la tasa de dosis es uno de los aspectos más delicados de la operación, ya que para efectuar el cálculo de la dosis integrada debe emplearse el valor de la tasa de dosis recibida por el conjunto a lo largo de todo el experimento. Las oscilaciones en el valor de esta variable serán mucho más perceptibles, en función del estado operativo del irradiador César. La celda de irradiación presentará períodos de funcionamiento y períodos en los que permanece parada. Ello se traducirá en una serie de picos y valles en el valor de la tasa de dosis. Además, cuando la instalación esté funcionando, los distintos materiales que se irradian introducirán variaciones en la tasa de dosis. Desde este punto de vista, conviene que el intervalo de tiempo entre dos medidas consecutivas no sea excesivamente largo. Así podrá obtenerse una gráfica de la evolución del valor de la tasa de dosis lo más próxima a la real. La integral respecto al tiempo de esta gráfica proporcionará la dosis total absorbida por la cámara de ionización, y a partir de los resultados obtenidos en la calibración del sistema de medida de radiación, se conocerá la dosis total absorbida por la bentonita. Con estas consideraciones, se ha optado por dotar a la aplicación informática diseñada de la capacidad de modificar el tiempo entre tomas de datos consecutivas. Inicialmente se programa un período de diez segundos entre adquisiciones consecutivas; no obstante, durante períodos estacionarios, un ritmo de adquisición como el planteado supone un volumen de datos considerable que no aporta información significativa acerca de la evolución de las magnitu-

des durante la experiencia. Por ello, la aplicación informática desecha automáticamente aquellos valores no significativamente distintos de los adquiridos con anterioridad.

4.6.1 Tarjeta de adquisición de datos

La tarjeta de adquisición de datos empleada es una Advantech, PCL-711S. Esta unidad permite cuatro funciones básicas de Entrada/Salida (I/O), para sistemas basados en PC/AT compatibles: convertidor A/D, convertidor D/A, entrada digital, salida digital. La tarjeta posee ocho entradas analógicas de tensión, de 12 bits de resolución, accesibles mediante una placa de conexiones atornilladas, a la que se conectan los terminales portadores de las señales que se pretenden registrar. El tiempo de conversión de la señal es de 25 μ s, suficiente para las características de las magnitudes a procesar. Por otra parte, la impedancia de entrada es de 10 M Ω , un valor notablemente mayor que la correspondiente al resto del circuito, lo que asegura que no exista circulación de corriente hacia el interior de la placa de conexionado de terminales. Los rangos de entrada permitidos, programables mediante software, son: ± 5 V, ± 2.5 V, ± 1.25 V, ± 0.625 V y ± 0.3125 V. Para las señales provenientes de las sondas Pt-100, convenientemente adaptadas, se emplea un rango de ± 5 V. Para la señal proveniente del picoamperímetro, que es proporcional a la tasa de dosis, el rango de entrada es de ± 2.5 V. La tarjeta de adquisición de datos se complementa con un pequeño circuito de adaptación que transforma las señales de 4/20 mA, de las sondas de temperatura, a una señal entre 1 V y 5 V, que puede ser registrada por la tarjeta.

Para la calibración de la tarjeta de adquisición de datos en temperatura se ha empleado el propio regulador PID, que proporciona en su pantalla el valor de la temperatura. Empleando el regulador calibrado, se ha pasado de un rango de tensiones, comprendido entre 1 V y 5 V, a un rango de temperaturas, comprendido entre 0 °C y 200 °C. Las relaciones experimentales encontradas para la temperatura superior e inferior, son las siguientes:

$$T_{sup} (\text{°C}) = 50.4202 \cdot V_o - 50.2162 \quad y$$

$$T_{inf} (\text{°C}) = 50.437 \cdot V_i - 50.1745$$

4.6.2 Programa de adquisición de datos

Para la implementación del programa de adquisición de datos se ha empleado el lenguaje de pro-

gramación Visual Basic 3.0. Se ha dispuesto de una serie de librerías y controles, proporcionados por el fabricante de la tarjeta, no disponible en el grupo de herramientas estándar de Visual Basic. Cada uno de los controles proporcionados media entre el dispositivo de Entrada/Salida y la unidad de proceso de datos, permitiendo la creación de una aplicación encargada de la recogida de datos.

En la pantalla principal de la aplicación, (Fig 4.13.), es donde se gestiona la adquisición de datos mediante la interacción con diversos controles, y donde se puede variar el período entre dos muestreos consecutivos de los canales de entrada de la tarjeta. Las funciones a las que se puede acceder desde esta pantalla son:

- **Inicialización:** Se emplea para que el sistema reconozca la tarjeta y le asigne una dirección de memoria donde poder escribir las lecturas que la tarjeta adquiere periódicamente, antes de que estas sean copiadas al disco duro del ordenador. Por otro lado, asigna a cada una de las entradas de la tarjeta una ganancia determinada en función del rango de entrada deseado.

- **Inicio Adquisición:** Hace operativa la tarjeta y habilita la rutina que actúa adquiriendo las diferencias de potencial que existen en cada una de las entradas de la placa de conexiones, según la temporización programada.
- **Detener Adquisición:** Una vez se haya acabado el período en el que se deban adquirir los datos, la toma de medidas puede detenerse pulsando el botón Detener Adquisición, que actúa inhibiendo la rutina que temporiza la adquisición.
- **Cerrar:** Por último, resulta importante liberar la memoria que la aplicación reserva para escribir los datos que se adquieren y cerrar los canales de la tarjeta de adquisición.
- **Mostrar evolución y Mostrar conjunto:** Permiten acceder a las pantallas donde se monitoriza la evolución de la adquisición de datos.

Asimismo, la pantalla principal permite visualizar diferentes parámetros relativos a la adquisición, como son la última lectura de los tres canales considerados, (temperatura superior, temperatura inferior y tasa de dosis en la bentonita más irradiada), la frecuencia con la que el programa barre los tres

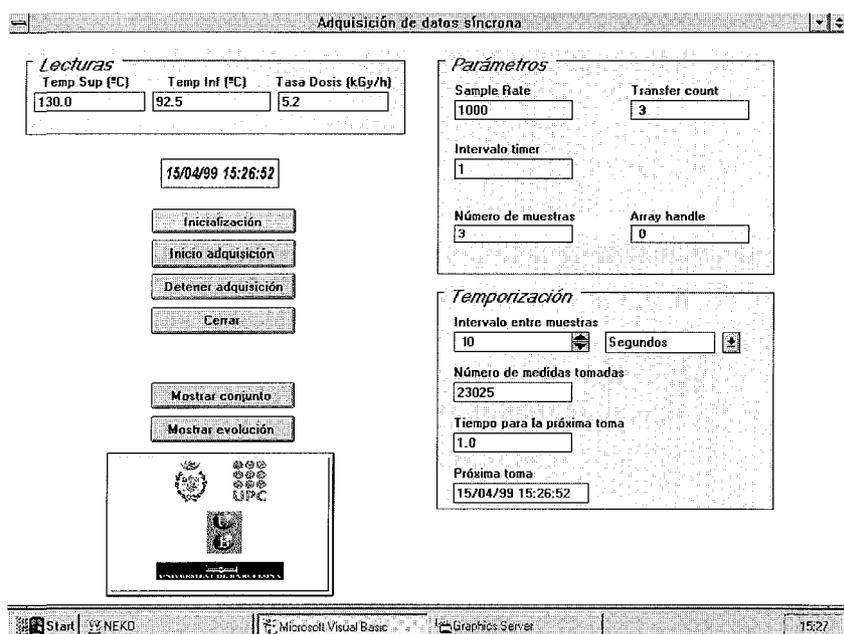


Figura 4.13. Pantalla principal de la aplicación desarrollada para el control de la adquisición de datos.

canales de entradas, la cantidad de muestras tomadas por lectura, el número de medidas adquiridas desde el arranque de la aplicación, la hora en que corresponde efectuar la siguiente toma de datos y el tiempo restante para la misma.

La monitorización de la adquisición se realiza con ayuda de dos pantallas adicionales, (Fig 4.14. y 4.15.), donde se visualiza la evolución temporal de las magnitudes registradas y el estado actual de las mismas en el cabezal de irradiación.

La aplicación, (Fig 4.14.), permite establecer períodos y rangos de representación diferentes para cada una de las variables de interés, (temperatura de la placa superior, temperatura de la placa inferior, y tasa de dosis en la bentonita).

La segunda pantalla destinada a monitorizar la evolución temporal de las magnitudes, (Fig 4.15.), muestra una imagen del cabezal de irradiación donde se visualizan los valores relativos a las temperaturas de las placas difusoras y a la tasa de dosis instantánea para la bentonita más irradiada.

Dado que los ficheros diarios generados por el sistema de adquisición de datos tienen un formato ANSI tabulado, pueden ser empleados por cualquier

paquete informático a fin de realizar los estudios, análisis y representaciones que más convengan.

La Fig 4.16. muestra al sistema de irradiación de muestras con gradiente térmico completo durante una de las pruebas preliminares de calentamiento a que se sometió, a fin de verificar el perfecto funcionamiento de todos los elementos implicados. La tapa del cabezal de irradiación se ha extraído a fin de poder observar la placa difusora de calor superior, las seis cápsulas portamuestras y el aislante térmico lateral. Las pruebas han mostrado que el sistema de irradiación es capaz de alcanzar 130 °C en la placa difusora de calor superior y que la temperatura de la placa inferior es, en estado estacionario, muy próxima a 90 °C, (entre 85 °C y 92 °C, en función del espesor de aislante empleado).

4.7 El irradiador industrial César

Las irradiaciones correspondientes a los experimentos BIC-2B y GABIC-2B se han llevado a cabo en el irradiador industrial César, propiedad de la empresa Aragogamma S. A. Esta empresa realiza servicios de esterilización mediante radiación gamma

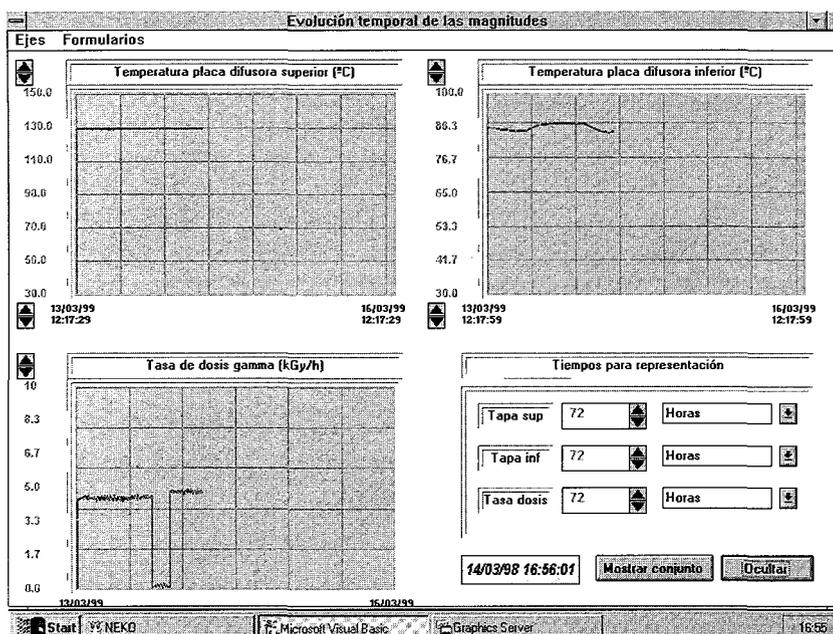


Figura 4.14. Pantalla de monitorización de la evolución temporal de las variables registradas.

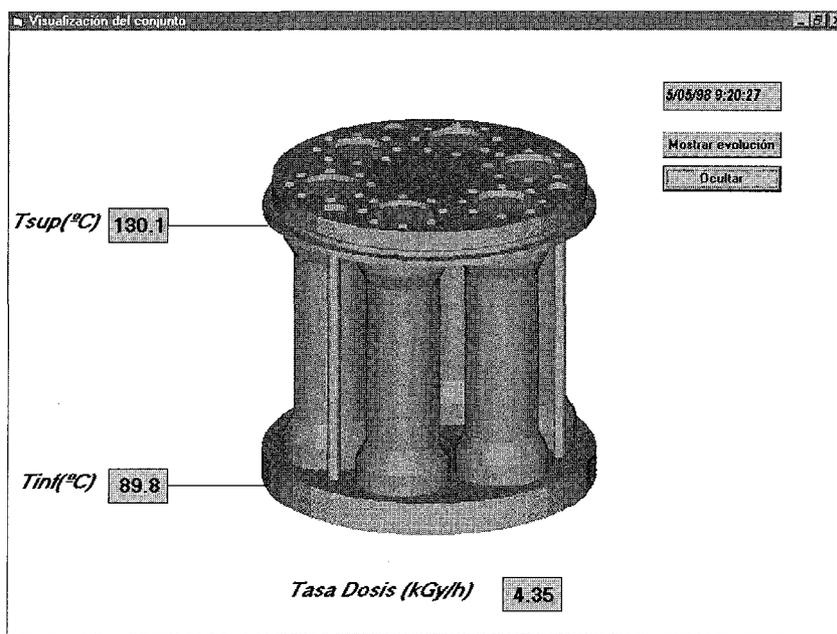


Figura 4.15. Pantalla de monitorización de las variables registradas.

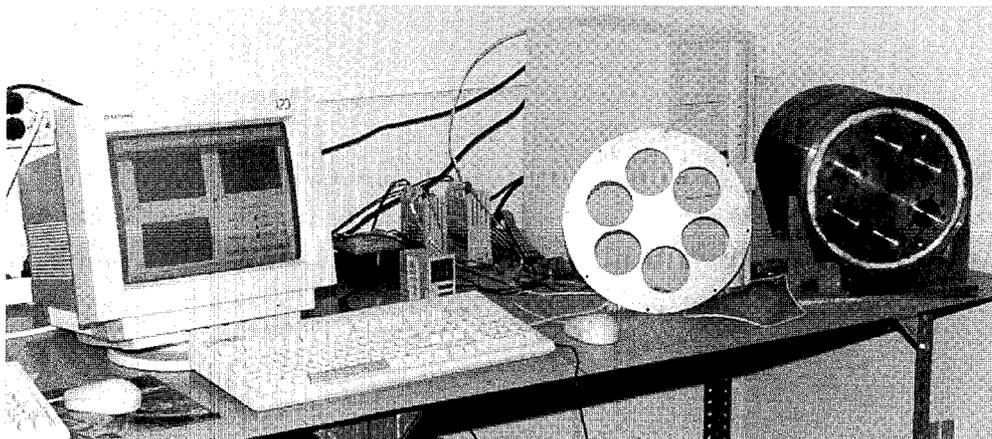


Figura 4.16. Sistemas de irradiación de muestras con gradiente de temperatura en período de prueba.

del ^{60}Co , siendo la única de su tipo existente en España, (Aragogamma, 1985). Los productos que se someten a este tipo de tratamiento suelen ser:

Productos farmacéuticos

Componentes para productos farmacéuticos y cosméticos

Materiales de implantación

- Materiales de control e investigación
- Materiales de cura y de un solo uso

Para comprender el funcionamiento de esta instalación será conveniente mostrar el esquema de la misma, (Fig 4.17). En él se muestra la sección transversal superior del irradiador César y se indican algunas de sus partes constituyentes. Se muestra la celda de irradiación, (A), con la puerta de acceso, (D), los laberintos de entrada y salida de material, (E y F), y los empujadores, (G), que hacen avanzar el material a irradiar por el carrusel, (C), alrededor de la fuente, (B).

La esterilización se consigue sometiendo a los materiales, en su envase final, a una irradiación de hasta una dosis de 25 kGy. Los materiales a esterilizar, independiente de su forma de presentación final en envases individuales o múltiples, se alojan en el interior de cajas metálicas de dimensiones normalizadas, (31 cm x 31 cm x 31 cm), a fin de facilitar su avance por el carrusel, (C). Las cajas acceden al irradiador por una cinta transportadora, a través del laberinto de entrada, (E). Una vez han llegado a la celda de irradiación, (A), realizan un recorrido por el carrusel, (C), en espiral descendente alrededor de la fuente de ^{60}Co , (B), que se sitúa en

el centro de la celda de irradiación. Este movimiento se consigue mediante el uso de empujadores hidráulicos, (G), que actúan a lo largo de las cuatro aristas del carrusel de una manera sincronizada. El recorrido por el interior de la celda es de una duración tal, que las cajas reciben la dosis de esterilización preestablecida de antemano. Posteriormente, las cajas salen al exterior a través de una cinta transportadora a través del laberinto de salida, (F). El funcionamiento es totalmente automático, lo que permite una operación continua; en el automatismo y control están incorporados todos los sistemas de seguridad y protección radiológica propios de una instalación radioactiva de primera categoría.

El material radioactivo, ^{60}Co , se encuentra encapsulado mediante una doble envoltura de acero inoxidable herméticamente soldada, formando cilindros con una actividad unitaria en origen de 30000 Ci, ($1.11 \cdot 10^{15}$ Bq), cada uno. Doce de dichos cilindros, modelo CKC-1800 LSA- ^{60}Co INx180 Capsule, fabricados por Amersham International PLC, se organizan en forma de persiana plana, constituyendo la fuente de ^{60}Co que se emplea en el irradiador. Cuando la unidad de esterilización no funciona, o cuando es necesario acceder a la celda de

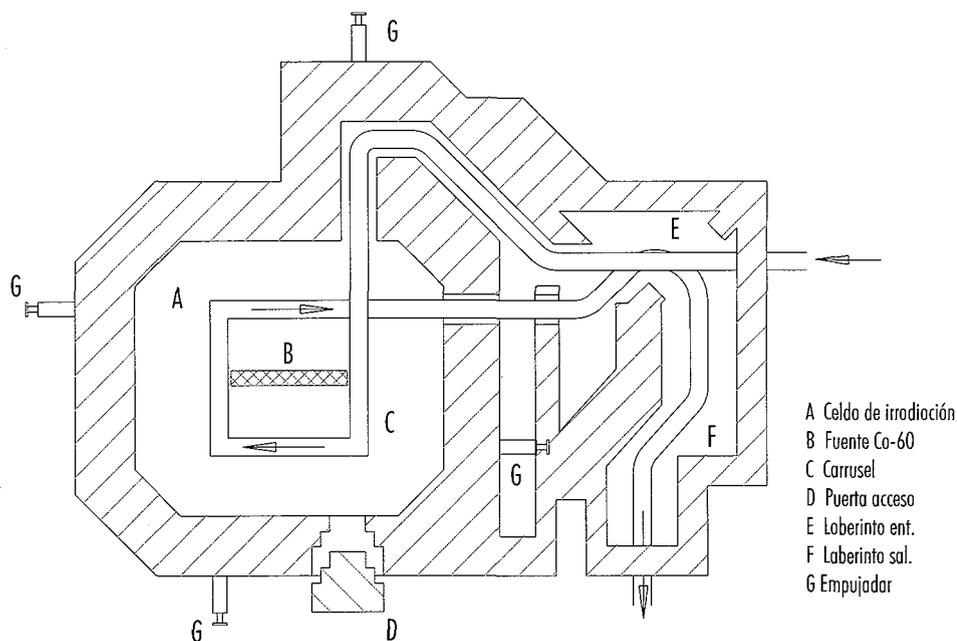


Figura 4.17. Esquema del irradiador industrial César.

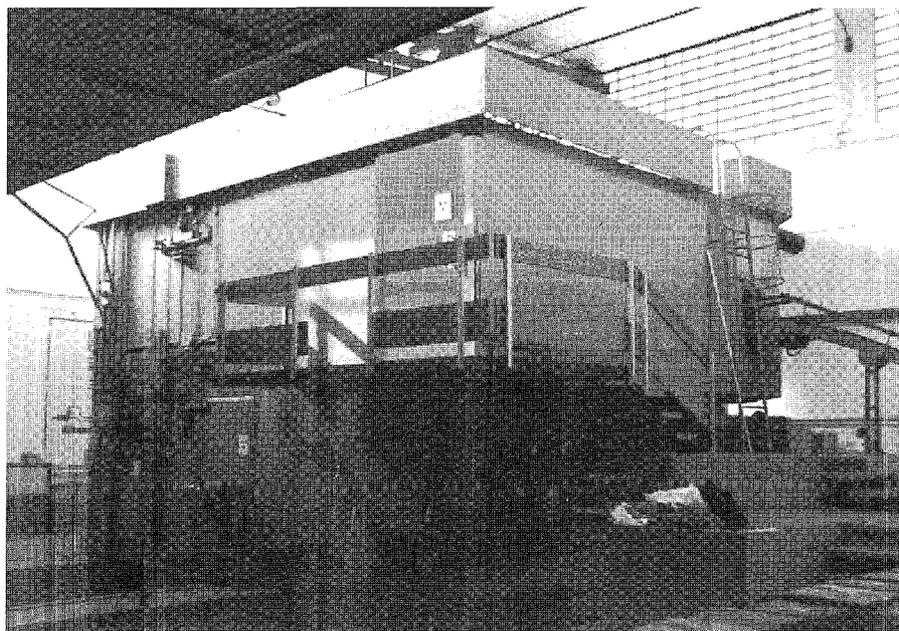
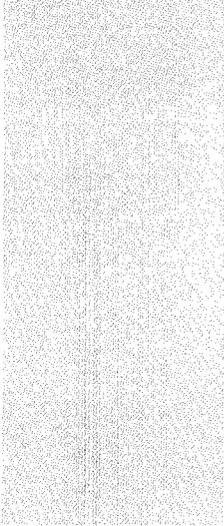


Figura 4.18. Una vista del irradiador industrial César.

irradiación, la fuente se oculta en un blindaje situado bajo el suelo. Dicho pozo se encuentra refrigerado por un serpentín de agua para evacuar el calor generado por las fuentes de ^{60}Co . A medida que la actividad disminuye, (el período de semidesintegración del ^{60}Co es de 5.271 años), algunos cilindros son reemplazados por otros nuevos y la configuración de la persiana es modificada para obtener la máxima irradiación en el carrusel. La energía de los fotones del ^{60}Co , (1.174 MeV y 1.332 MeV), no es lo suficientemente elevada como para producir reacciones fotonucleares en los materiales a irradiar; por lo tanto, no existe el peligro de activación de los mismos.

En los experimentos realizados, todo el sistema de control de temperatura y almacenamiento de datos están situados fuera del irradiador. Sólo el cabezal de irradiación del experimento *BIC-2B*, (con las conexiones necesarias), y las ampollas de vidrio boro-silicatado del experimento *GABIC-2B* están sometidas a la acción de los fotones y.

El hecho de poder acceder a una instalación de estas características, (una instalación radiactiva de primera categoría), para la realización del programa de irradiaciones ha sido de un inestimable valor ya que ha permitido una supervisión directa y regular de todas las experiencias.



5. Ejecución de los experimentos de irradiación y calentamiento



5. Ejecución de los experimentos
de irradiación y calentamiento

5.1 Materiales de partida

El material de partida escogido para verificar los efectos de la irradiación y la temperatura en el material de relleno bentonítico se ha extraído del yacimiento de Cortijo de Archidona localizado en la Serrata de Níjar (Almería). Dicho material fue considerado en anteriores planes de I+D de ENRESA como el material más idóneo para el relleno y sellado de un AGP. Las propiedades que, a priori, hacen de esta bentonita un material óptimo para ser utilizada como material de relleno y sellado son: alto contenido en arcillas, bajo contenido en carbonatos y minerales coloidales, elevada plasticidad y buena compactabilidad (Villar *et al.*, 1998). La bentonita de referencia (llamada también bentonita S-2 y/o FEBEX) ha sido caracterizada extensamente en los últimos años. La Tabla 5.1. muestra los valores de las propiedades más relevantes determinadas

por diversos laboratorios, [CSIC, (Linares *et al.*, 1996), CIEMAT, (Rivas *et al.*, 1993 y Villar *et al.*, 1998), y Clay Technology, (Pusch *et al.*, 1996)]. Asimismo, dichos laboratorios también han estudiado el comportamiento de la bentonita en condiciones de temperatura y de alteración hidrotermal superiores a las esperables en un AGP (Tabla 5.2.).

De un muestreo realizado en el marco del proyecto FEBEX por CIEMAT, se destinaron 100 kg de bentonita granulada para los experimentos de irradiación. Dicho material tenía un contenido de granos con un tamaño mayor de 5 mm inferior al 5% y una fracción de granos con tamaño inferior a 74 μm mayor del 85%. Asimismo el contenido inicial en agua del material era del 14 %. Para la realización de los experimentos se han realizado probetas cilíndricas, compactadas a densidad 1.8 g/cm³, de 4.2 cm longitud y 4.8 cm de diámetro. La compactación se ha realizado mediante una prensa electromecáni-

Tabla 5.1
Síntesis de las propiedades de la bentonita S-2 según algunos laboratorios.

Propiedad	Muestras de referencia			
	CSIC	CIEMAT93	Clay Tech.	FEBEX
Granulometría <2 mm (%)	84.6			45-68
% Montmorillonita	92			88-96
Superficie Específica m ² /g	558	570		640-660
CEC meq/100g	99	88	121	106-113
Cationes de Cambio	Mg > Ca > Na > K	Ca > Mg > Na > K	Ca > Mg > Na > K	Ca > Mg > Na > K
pH lixiviados acuosos	9.1		10.3	8.9-9.0
Contenido en H ₂ O (%)		10-13	16.9	
Límite líquido (%)		213	225	102
Porosidad %		30		
Composición H ₂ O intersticial				0.3M; pH 7.2
Succión libre				
Presión de hinchamiento (MPa)			0.5	4.9-7.9
Hinchamiento carga 0.5 MPa				17.5
Cohesion (MPa)				0.7-4.5
Resistencia a la cizalla (kPa)			28	
Conductividad hidráulica (m/s)		1.80E-13	6.80E-11	5.90E-14

Tabla 5.2
Síntesis de los estudios del comportamiento de la bentonita en condiciones de temperatura y de alteración hidrotermal superiores a las esperables en un AGP.

Propiedad	Experimento de alteración hidrotermal			
	CSIC	CIEMAT93	CIEMAT95	Clay Tech.
Granulometría <2 mm (%)				
% Montmorillonita	Camb. min. *			Camb. min. *
Superficie Específica m ² /g				
CEC meq/100g				112
Cationes de Cambio		*a		Ca>Mg>Na>K; *b
pH lixiviados acuosos	6.0-5.1 *d			7-5
Contenido en H ₂ O (%)			8-20	
Límite líquido (%)				
Porosidad %			22-26	
Composición H ₂ O intersticial				
Succión libre			sin. diferencia	
Presión de hinchamiento (MPa)				
Hinchamiento carga 0.5 MPa				
Cohesion (MPa)			0.1-7	
Resistencia o la cizalla (kPa)				30
Conductividad hidráulica (m/s)				1.10E-10

Comb. Min. Existencia de cambios mineralógicos de la bentonita en contacto con soluciones de KCl > 0.2 M*

**a Sustitución de Na⁺ y en menor cantidad Ca²⁺ y Mg²⁺ por K⁺. Esta reacción es independiente del tiempo pero dependiente de la salinidad*

**b Adsorción de Ca²⁺ en contacto con agua granítica y de K⁺ en contacto con solución Kcl*

**c Sustitución de Ca²⁺ y Mg²⁺ por K⁺. Esta reacción es independiente de la temperatura pero tiene lugar a partir de 2 meses*

**d Disminución del pH por efecto de la T y la salinidad*

ca Instron 4507, (Fig 5.1.). Ésta se ha llevado a cabo aplicando a las distintas muestras granuladas una fuerza de 30 kN, mediante una rampa de 45 s y manteniendo la carga máxima durante 1 minuto, a fin de homogeneizar el compactado.

En los experimentos dedicados a verificar el efecto de la corrosión del acero, se han instalado, en cada contenedor, 4 discos de acero al carbono, de 40 mm de diámetro y 5 mm de espesor dentro del granulado bentonítico, (el primero esta situado en torno a 0.5 cm, el segundo en torno a 7.5 cm, el tercero en torno a los 12.5 cm y el último a 19.5 cm de la parte superior de la muestra de bentonita).

Estos discos fueron pesados antes de ser emplazados en la matriz bentonítica en el experimento BIC-2B, para medir por gravimetría la profundidad media de corrosión.

El agua con la que se ha saturado a las probetas de bentonita ha sido agua granítica comercial con la siguiente composición: HCO³⁻ 153 mg/l, SO₄²⁻ 14 mg/l, Cl⁻ 11 mg/l, Ca²⁺ 41 mg/l, Na⁺ 13 mg/l y Mg²⁺ 8 mg/l. El Eh inicial era de +205 mV y el pH de 7.78.

En las series de experimentos BIC-2A y BIC-2B, previamente a la fase de experimentación, cuatro probetas de bentonita fueron confinadas en cada una



Figura 5.1. La imagen derecha muestra la prensa Instron 4807 durante una de las compactaciones. La imagen izquierda muestra la consola de control de la misma.

de las seis cápsulas metálicas, de 20 cm de longitud y 5 cm de diámetro interior. Tras su hidratación en condiciones estáticas, se cerraron los contenedores y se dejó que las muestras se expandieran dentro del contenedor durante 30 días antes de proceder a la fase experimental.

En las series de experimentos GABIC-2A y GABIC-2B, una probeta cilíndrica de bentonita, con o sin disco de acero al carbono insertado, fue emplazada en cada uno de los contenedores de vidrio empleados, (Fig 5.2.), de 50 mm de diámetro y 150 mm de longitud. La relación volumétrica sólido/atmósfera fue, aproximadamente, de 1/6, empleándose bien atmósfera oxidante o anóxica, de acuerdo con lo expuesto en el capítulo tres. Tras su hidratación en condiciones estáticas, los contenedores fueron soldados antes de iniciar los experimentos.

5.2 Experimento de calentamiento de las muestras de bentonita (BIC-2A)

La experiencia de calentamiento de las muestras de bentonita saturada descrita en el apartado 3.2 se

inició el día 4 de Mayo de 1998. Tras 59 días de calentamiento, se detuvo el día 2 de Julio de 1998. Durante esta parada se realizó la sustitución de cápsulas ya comentada. Seguidamente, el experi-

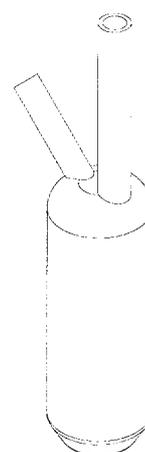


Figura 5.2. Vista de una de las ampollas utilizadas para la obtención de muestras para el análisis de gases.

mento de calentamiento se reanudó hasta el día 2 de Septiembre de 1998. La duración total del experimento BIC-2A fue de 121 días.

La totalidad del experimento transcurrió de manera muy satisfactoria, sin producirse ninguna desviación respecto de lo planificado. La Fig 5.3. muestra el sistema de irradiación con gradiente térmico durante el experimento BIC-2A. Se observa el cabezal de irradiación a la derecha, con las ventanas frontales y parte del aislante interior visible. A su izquierda se encuentra el sistema informático encargado de la monitorización y almacenamiento de los valores de las temperaturas. También se observa parte de la electrónica asociada al control de la temperatura.

La Fig 5.4. muestra la evolución de las temperaturas superior e inferior durante los cuatro meses de duración de la experiencia. Dado que la regulación actúa sobre la temperatura de la placa superior, puede observarse como la estabilidad de la misma es excelente. Durante los dos primeros meses de la experiencia, la temperatura media fue de 129.7 °C, mientras que durante los dos meses finales ésta fue de 129.5 °C. Durante todo el tiempo útil del experimento BIC-2A, el valor medio la temperatura superior fue de 129.6 °C.

La temperatura inferior se ve influida por factores externos y refleja, hasta un cierto punto, las variaciones en la temperatura ambiente. Este efecto era esperable y ya se avanzó en el capítulo cuatro. El rizado que puede observarse se debe a los ciclos térmicos ambientales diarios, (diferencias en la temperatura ambiente diurna y nocturna), en conjunción con las horas de funcionamiento del equipo de aire acondicionado de la sala donde se llevó a cabo este experimento. La temperatura media inferior durante los dos primeros meses de calentamiento fue de 94.7 °C, mientras que durante los últimos dos meses, ésta fue de 88.3 °C.

Se aprovechó la parada programada a los dos meses, realizada para cumplir con la estrategia de sustitución de cilindros, a fin de ajustar el espesor de los aislantes y así acercar las condiciones experimentales reales a las de referencia.

Esta modificación justifica la diferencia de 6 °C existente entre la temperatura media de los primeros dos meses y la de los últimos dos meses. Con este cambio, el valor medio de la temperatura inferior, para los cuatro meses de experimentación, resulta ser de 91.4 °C, valor muy próximo al de referencia, (90 °C).

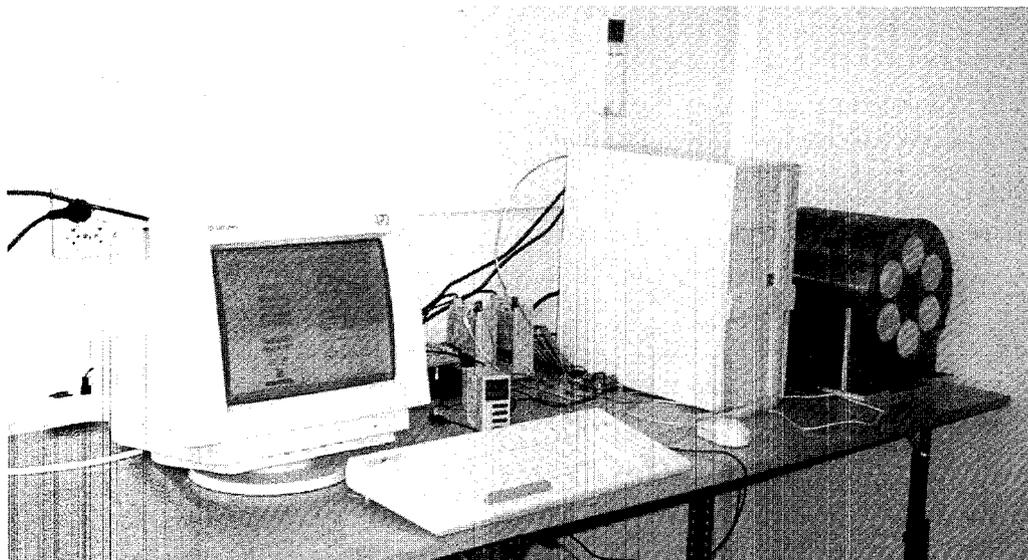


Figura 5.3. Ejecución del experimento BIC-2A.

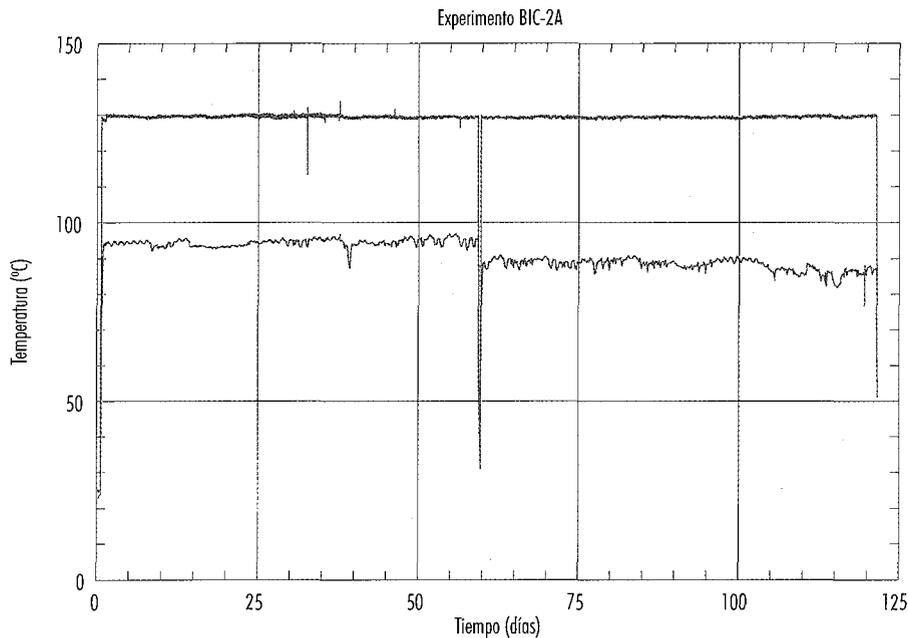


Figura 5.4. Gráfico de la temperatura de las placas superior e inferior durante el experimento BIC-2A.

5.3 Experimento de irradiación y calentamiento de las muestras de bentonita (BIC-2B)

La experiencia descrita en el apartado 3.3 se inició el día 16 de Diciembre de 1998. Tras 61 días de irradiación y calentamiento simultáneos, se detuvo el experimento el día 15 de Febrero de 1999. Durante esta parada se realizó la sustitución de cápsulas prevista. El experimento de irradiación más calentamiento se reanudó hasta el día 19 de Abril de 1999. La duración total del experimento BIC-2B fue de 124 días. Todo el experimento transcurrió satisfactoriamente, sin producirse ninguna desviación respecto del plan de irradiación previsto. La Fig 5.5. muestra el cabezal de irradiación en el interior de la celda de irradiación, mientras que la Fig 5.6. muestra el sistema de control de temperatura y el sistema de monitorización de las temperaturas y de la tasa de dosis, instalado en la planta de irradiación.

La Fig 5.7. muestra la evolución de la temperatura superior e inferior, de la tasa de dosis y de la dosis absorbida durante cuatro días del experimento BIC-2B. Puede observarse como la tasa de dosis es

variable en función del material que se está irradiando en la planta. La irradiación de un material más denso provoca una ligera caída en la tasa de dosis. Estas fluctuaciones sólo pueden observarse si se emplean sistemas dosimétricos activos. También se observan algunas paradas esporádicas de la planta, que se prolongan durante períodos de tiempo bastante cortos, inferiores a 1 hora). Estas paradas se correlacionan con un ligero enfriamiento de la placa difusora de calor inferior; esto es una evidencia directa del efecto térmico de una alta tasa de dosis. La placa superior no se ve afectada, ya que la regulación de temperatura se realiza en ese punto.

5.3.1 Evolución de las temperaturas

La Fig 5.8. es la homóloga a la Fig 5.4. para el experimento BIC-2B. Muestra la evolución de la temperatura superior e inferior durante los 124 días de la experiencia BIC-2B. El enfriamiento que tiene lugar tras 61 días de irradiación se debe a la sustitución de cilindros ya comentada. Otros enfriamientos que pueden observarse se deben a interrupciones, de corta duración, del suministro eléctrico

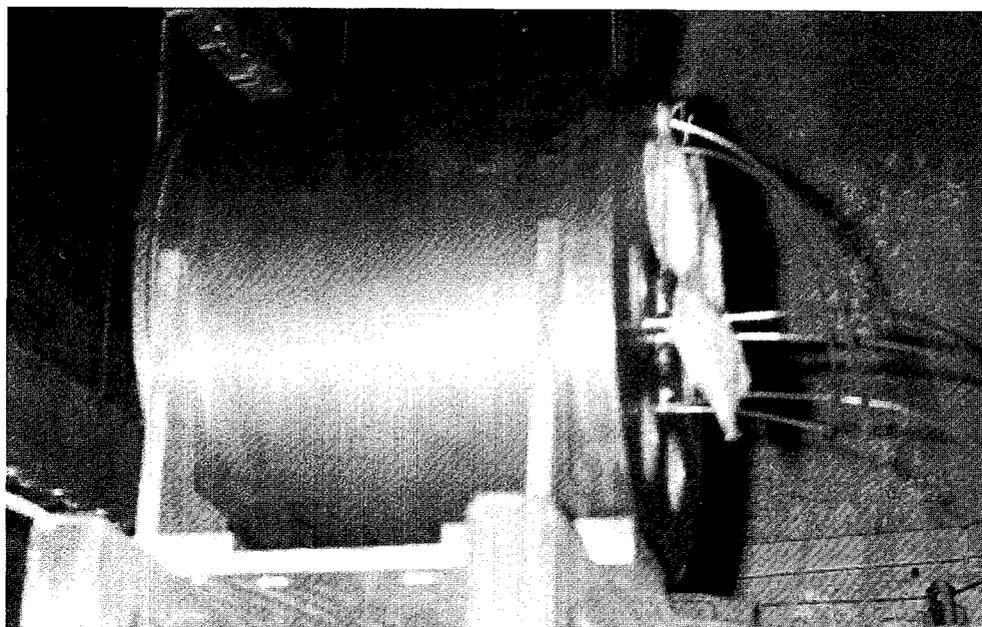


Figura 5.5. Ejecución del experimento BIC-2B en el interior del irradiado César. Se puede observar en la parte trasera del cabezal de irradiación los cables necesarios para el control y monitorización del sistema, así como los paquetes conteniendo dosímetros de alanina y cuarzo.

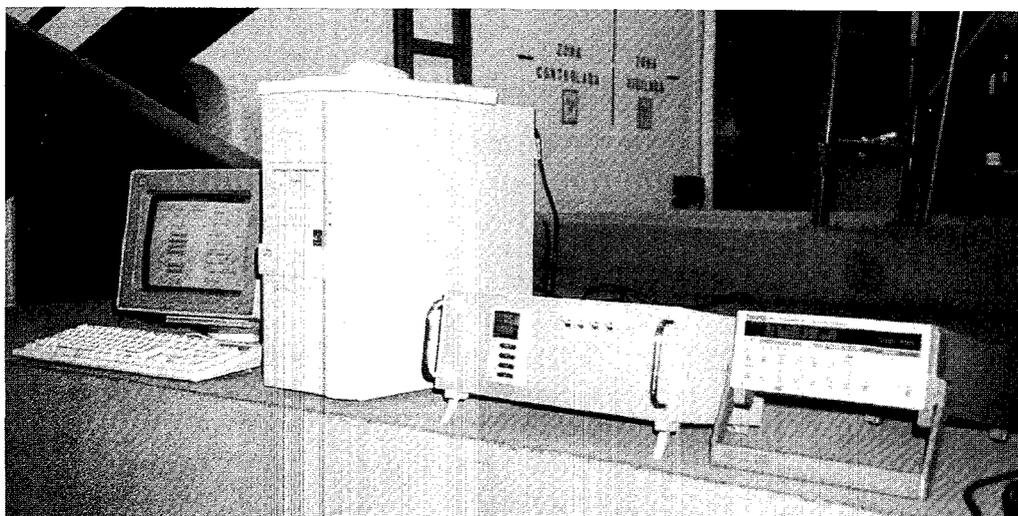


Figura 5.6. Sistema de control y monitorización del experimento BIC-2B, instalado en la planta del irradiador César.

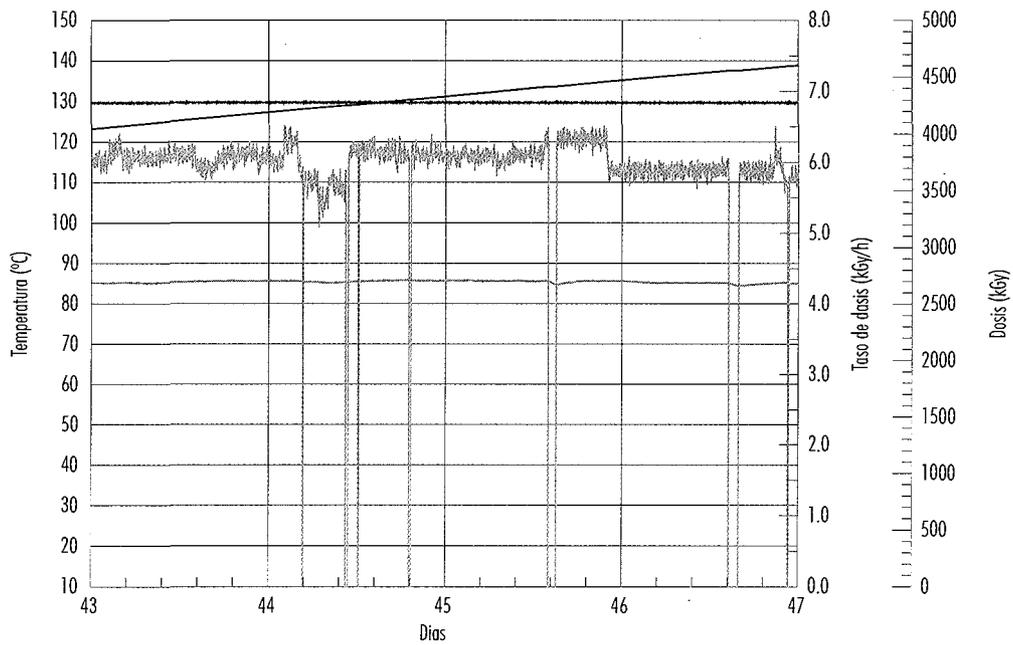


Figura 5.7. Gráfico de la evolución de la temperatura de la placa superior (azul oscuro), inferior (gris), tasa de dosis (azul claro) y dosis acumulada (negro) durante cuatro días del experimento BIC-2B.

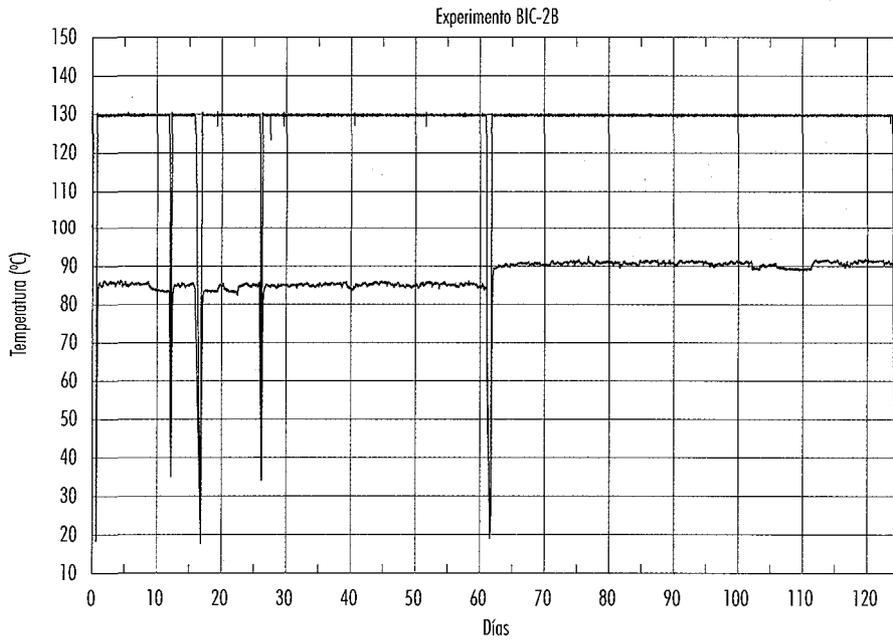


Figura 5.8. Gráfico de la temperatura de las placas superior e inferior durante el experimento BIC-2B.

en la planta de irradiación. A partir de los datos del gráfico se calcula una temperatura media superior, durante los primeros dos meses de experimentación, de 129.3 °C. Durante los dos últimos meses, ésta fue de 129.7 °C, resultando una temperatura media global de 129.5 °C.

La temperatura media de la placa difusora inferior presenta variaciones en función de la temperatura ambiente y en función del valor de la tasa de dosis. En este caso, las oscilaciones diarias en función de la temperatura ambiente no son tan evidentes, ya que las masivas paredes del irradiador amortiguan las fluctuaciones de la temperatura ambiente. El valor medio de esta temperatura durante los dos primeros meses del experimento fue de 84.7 °C, siendo de 90.6 °C durante los dos últimos meses. El valor medio de la temperatura inferior durante los cuatro meses de la experiencia fue de 87.7 °C, valor muy cercano a los 90 °C de referencia.

5.3.2 Evolución de la tasa de dosis y determinación de la dosis absorbida

La Fig 5.9. muestra la evolución de la tasa de dosis y de la dosis absorbida, tal y como es registrada

por el sistema de monitorización. Los valores mostrados corresponden a la bentonita más expuesta a la radiación, (que también es la bentonita sometida a temperatura más elevada); se trata pues de la máxima dosis en la bentonita. A partir de los datos mostrados se estima una dosis absorbida máxima igual a 10.53 MGy. De estos, 5.05 MGy fueron suministrados durante los primeros dos meses de experimentación; mientras que el resto, (5.48 MGy), se debe a la contribución de los últimos dos meses. Esta última contribución es algo mayor dado que la planta de irradiación estuvo menos días en situación de parada.

La tasa de dosis, para la bentonita más expuesta, osciló entre 3.7 kGy/h y 5.3 kGy/h, dependiendo del material que se irradiaba en la planta. El valor medio de la misma, durante los dos primeros meses, fue de 4.49 kGy/h; mientras que para los dos últimos meses, ésta fue de 4.50 kGy/h. Si se tienen en cuenta todos los días de experimentación, incluyendo los días de parada, la tasa de dosis efectiva desciende hasta 3.6 kGy/h.

La Fig 5.10. muestra la evolución temporal de la tasa de dosis efectiva y de la dosis absorbida. El valor máximo resulta ser de 4.3 kGy/h, que se alcan-

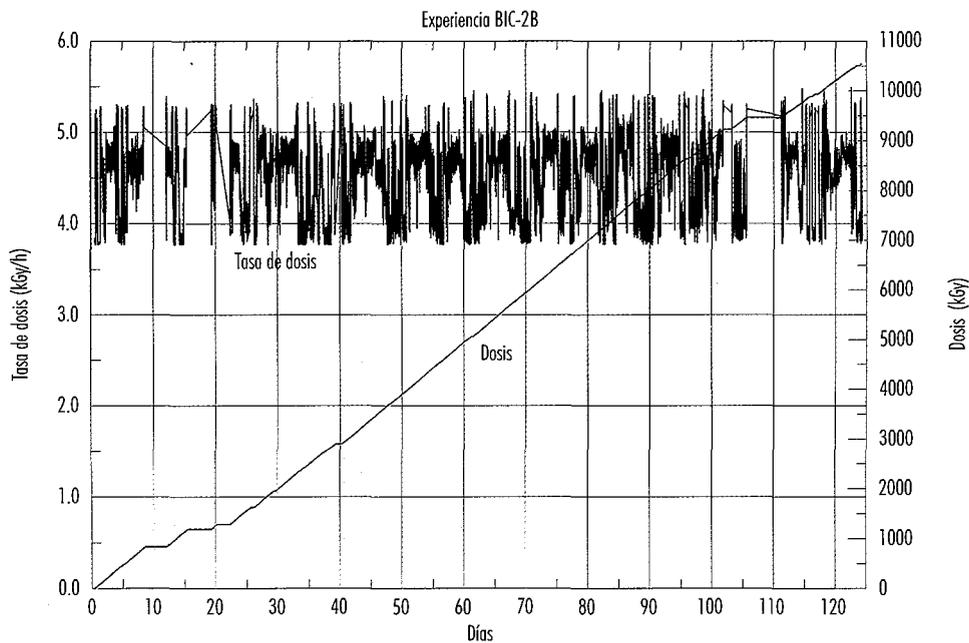


Figura 5.9. Evolución de la tasa de dosis y dosis acumulada durante el experimento BIC-2B.

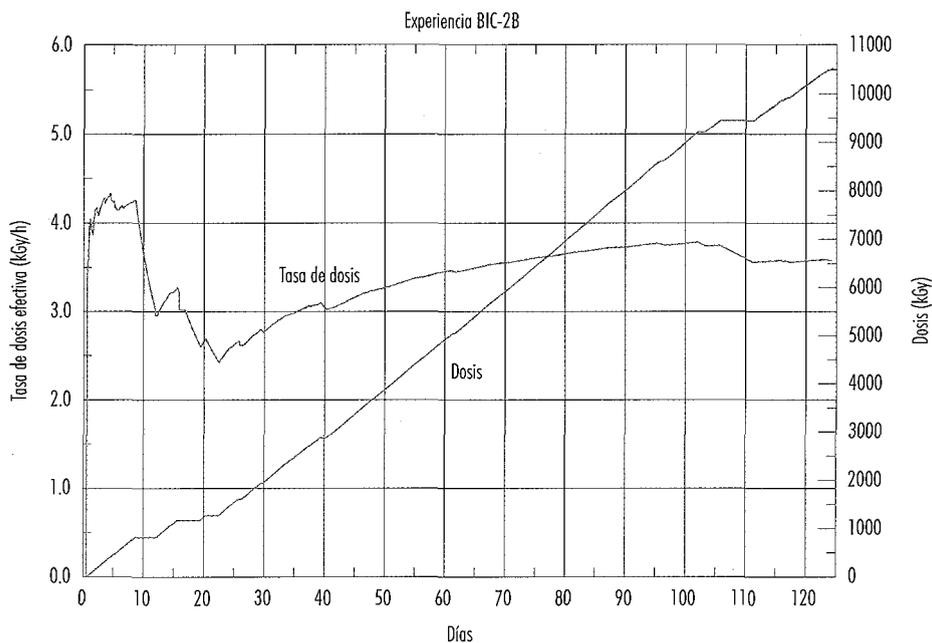


Figura 5.10. Evolución de la dosis efectiva y dosis acumulada durante el experimento BIC-2B.

za dentro de los primeros diez días de experimentación. El valor mínimo es de 2.4 kGy/h, produciéndose el día 23 del experimento. El valor final, como ya se ha comentado, es de 3.6 kGy/h, valor muy cercano a los 3.5 kGy/h de referencia.

Como se ha indicado en el capítulo cuatro, este sistema de medida de la tasa de dosis en continuo está respaldado por un sistema de dosímetros pasivos. En la Tabla 5.3. se comparan los resultados obtenidos con los distintos tipos de dosímetros. Se han empleado 24 dosímetros de alanina, en ocho lotes de tres dosímetros y 6 dosímetros de cuarzo, organizados en tres lotes de dos dosímetros.

Los resultados se comparan con las estimaciones obtenidas a partir de la cámara de ionización. Todos los dosímetros estaban en la parte posterior del cabezal de irradiación, (Fig 5.5.), y por tanto las medidas de la cámara de ionización deben corregirse para tener en cuenta este factor. La corrección se basa en dosimetrías realizadas en el interior de la celda mediante dosímetros "red Perspex". Un cronograma detallado mostrando la colocación en el tiempo de estos dosímetros se encuentra en el apéndice 1.

Cada grupo de tres dosímetros de alanina ha permanecido alrededor de 4.5 días en el interior de la celda de irradiación. De este modo se asegura una dosis integrada inferior a los 200 kGy, (valor que corresponde al límite superior de dosis de este sistema dosimétrico). En total se han muestreado 36 días de la experiencia BIC-2B, es decir un 30 % de la duración total de la misma. Un grupo de dosímetros de cuarzo ha permanecido durante los dos primeros meses del experimento, (Q3 y Q4), mientras que un segundo grupo ha permanecido durante los dos últimos meses, (Q4 y Q5). El último grupo de dosímetros de cuarzo, (Q1 y Q2), ha estado irradiándose durante toda la duración del experimento BIC-2B.

Los resultados obtenidos mediante dosimetría pasiva, alanina y cuarzo, no son coincidentes con los inferidos mediante la cámara de ionización, ya que los valores de los primeros son mucho más bajos. De hecho, si se tiene en cuenta el tiempo de irradiación, los resultados obtenidos mediante alanina y mediante cuarzo tampoco son coincidentes entre sí, lo que pone en tela de juicio estos valores.

En general, los resultados proporcionados por los dosímetros de alanina son 4.5 veces inferiores a los

Tabla 5.3

Resultados de la dosimetría pasiva, (Axx indica un dosímetro de alanina, Qx indica un dosímetro de cuarzo). La temperatura de irradiación fue de 35 °C aproximadamente.

Dosímetro	Fecha Entrada	Fecha Salida	Días de irradiación	Dosis (kGy)	Dosis Media (kGy)	Dosis Cámara (kGy)
A1				36.7		
A2	16/12/98	21/12/98	4.5594	36.5	36.3 ^{0.5}	161.2
A3				35.7		
A4				30.5		
A5	11/01/99	15/01/99	3.7958	31.0	30.8 ^{0.3}	138.6
A6				30.8		
A7				34.9		
A8	21/01/99	27/01/99	4.5233	35.8	35.6 ^{0.6}	155.1
A9				36.0		
A10				36.0		
A11	01/02/99	06/02/99	4.6344	34.7	35.0 ^{0.9}	161.9
A12				34.4		
A13				38.9		
A14	15/02/99	20/02/99	4.6116	38.1	38.0 ^{0.9}	165.8
A15				37.1		
A16				39.8		
A17	01/03/99	06/03/99	4.8009	39.4	39.1 ^{0.9}	173.2
A18				38.0		
A19				39.1		
A20	15/03/99	20/03/99	4.8434	38.7	38.6 ^{0.5}	175.2
A21				38.1		
A22				39.9		
A23	31/03/99	05/04/99	4.3847	38.7	39.5 ^{0.7}	156.1
A24				39.8		
Q1	16/12/98	19/04/99	97.6864	436	439 ⁴	3500.3
Q2				441		
Q3	16/12/98	15/02/99	46.9026	162	167 ⁷	1678.7
Q4				172		
Q5	15/02/99	19/04/99	50.7837	176	179 ⁴	1821.6
Q6				182		

obtenidos a partir de la cámara de ionización; mientras que los obtenidos mediante los dosímetros de cuarzo son unas 10 veces inferiores.

Según las evaluaciones realizadas por *MessTechnik*, los dosímetros de alanina han recibido 8 kGy por día, aproximadamente; mientras que los valores para los dosímetros de cuarzo oscilan entre 3.5 y 4.5 kGy por día. Si se tiene en cuenta que ambos tipos de dosímetros estaban situados en posiciones muy próximas entre sí, se deduce que el funcionamiento de los mismos no es adecuado. Además, los valores obtenidos mediante estos dosímetros son muy bajos en relación a la alta actividad de la fuente de ^{60}Co empleada.

Finalmente, debe destacarse el hecho de que la sensibilidad teórica de la cámara de ionización está bien contrastada mediante el uso de dosímetros de "red Perspex" y que los valores obtenidos mediante este sistema están en el rango de trabajo habitual del irradiador. Por lo tanto, los valores de la cámara de ionización deben aceptarse como correctos.

5.4 Resumen de las características de los experimentos BIC-2

A modo de resumen, las Tablas 5.4. y 5.5. muestran los valores experimentales de las temperaturas medias y de los tiempos de calentamiento empleados en el experimento BIC-2A. En la Tabla 5.4. se exponen los valores para las probetas de bentonita, mientras que la Tabla 5.5. muestra los valores correspondientes a los discos de acero al carbono.

Por su parte, las Tablas 5.6. y 5.7. son homólogas a las vistas anteriormente pero relativas a la experiencia BIC-2B.

5.5 Experimentos de generación de gases (GABIC-2)

La experiencia de calentamiento de los contenedores de vidrio borosilicatado que se ha descrito en el apartado 3.3 se inició el día 9 de Marzo de 1999. Ésta se detuvo el día 30 de Junio de 1999. La du-

Tabla 5.4
Muestras calentadas. Valores experimentales de temperaturas y tiempos de irradiación.

Dist. (cm)	CA (59 días)		CB (62 días)		CE, CF (121 días)	
	Temp. (°C)	Dosis (kGy)	Temp. (°C)	Dosis (kGy)	Temp. (°C)	Dosis (kGy)
0.0-5.0	125	0	124	0	125	0
5.0-10.0	117	0	114	0	115	0
10.0-15.0	108	0	104	0	106	0
15.0-20.0	99	0	93	0	96	0

Tabla 5.5
Probetas de acero calentadas. Valores experimentales de temperaturas y tiempos de irradiación.

Dist. (cm)	CC (59 días)		CD (62 días)		CG, CH (121 días)	
	Temp. (°C)	Dosis (kGy)	Temp. (°C)	Dosis (kGy)	Temp. (°C)	Dosis (kGy)
0.0-1.0	129	0	128	0	129	0
7.0-8.0	117	0	114	0	115	0
12.0-13.0	108	0	104	0	106	0
19.0-20.0	96	0	89	0	92	0

Tabla 5.6
Muestras irradiadas. Valores experimentales de temperaturas, dosis y tiempos de irradiación

Dist. (cm)	IA (61 días)		IB (63 días)		IE, IF (124 días)	
	Temp. (°C)	Dosis (kGy)	Temp. (°C)	Dosis (kGy)	Temp. (°C)	Dosis (kGy)
0.0-5.0	124	4500	128	4900	126	9400
5.0-10.0	113	3500	117	3800	115	7400
10.0-15.0	101	2700	106	3000	104	5700
15.0-20.0	90	2100	96	2200	93	4300

Tabla 5.7
Probetas de acero irradiadas. Valores experimentales de temperaturas, dosis y tiempos de irradiación

Dist. (cm)	IC (61 días)		ID (63 días)		IG, IH (124 días)	
	Temp. (°C)	Dosis (kGy)	Temp. (°C)	Dosis (kGy)	Temp. (°C)	Dosis (kGy)
0.0-1.0	128	4900	132	5400	130	10300
7.0-8.0	113	3500	117	3800	115	7400
12.0-13.0	101	2700	106	3000	104	5700
19.0-20.0	86	1800	92	2000	89	3800

ración total del experimento GABIC-2A fue de 114 días. Durante la totalidad del experimento, las muestras estuvieron sometidas a una temperatura de 40 °C.

La experiencia de irradiación de los contenedores de vidrio borosilicatado que contenían bentonita se

inició el día 21 de Diciembre de 1998, finalizando el día 19 de Abril de 1999. La duración total del experimento GABIC-2B fue de 120 días. Durante la totalidad de este experimento, las muestras estuvieron sometidas a una temperatura próxima a los 40 °C. La dosis absorbida por las mismas se ha estimado en 4 MGy.

6. Métodos de análisis

6. Métodos de análisis

6.1 Extracción de muestras

En los experimentos *BIC-2A* y *BIC-2B*, se han estudiado los cambios en bentonita y la corrosión del acero englobado en la misma que se encontraban confinadas en cápsulas metálicas. En los experimentos que contemplaban el análisis de la bentonita, se han estudiado muestras procedentes de 7 cápsulas metálicas. En dichas cápsulas, la bentonita se ha estado saturando con agua de referencia durante 30 días. Una cápsula contenía bentonita de referencia (bentonita compactada y saturada), otras 2 cápsulas contenían bentonita sometida a calentamiento y las 4 restantes contenían bentonita irradiada y calentada. En los experimentos que contemplaban el sistema bentonita-agua-acero, se han analizado muestras procedentes de 6 cápsulas metálicas, en los que 4 discos de acero estaban englobados en bentonita compactada y saturada. Dos contenedores contenían bentonita sometida a calentamiento y las 4 restantes contenían bentonita irradiada y calentada.

En ambos casos, la extracción de las muestras de bentonita se realizó introduciendo un tubo sacatestigos de aluminio por rotoperCUSión manual en la cápsula. La bentonita fue extraída a intervalos de 5 en 5 cm, obteniendo 4 muestras por cápsulas (Fig 6.1.). Las muestras fueron numeradas utilizando un código alfanumérico de 3 caracteres. El primer carácter representa las condiciones experimentales: R para muestras de referencia, C para muestras sometidas a un ensayo de calentamiento e I para muestras sometidas a un ensayo de irradiación y calentamiento. El segundo carácter representa el código de la cápsula, que varía entre A y H. Los có-

digos A, B, E y F representan las cápsulas cuyas muestras se utilizarán para el estudio de los cambios en el sistema bentonita-agua, mientras que los códigos C, D, G y H representan las cápsulas cuyas muestras se utilizarán para el estudio de la corrosión en el acero englobado en la bentonita. Finalmente, el tercer carácter (un número que varía entre 1 y 4) representa la posición en la cápsula. El dígito 1 corresponde a la bentonita entre 0 y 5 cm, el dígito 2 corresponde a la bentonita entre 5 y 10 cm, el dígito 3 corresponde a la bentonita entre 10 y 15 cm y el dígito 4 corresponde a la bentonita entre 15 y 20 cm. En los experimentos de irradiación y/o calentamiento el dígito 1 corresponde a la muestra que ha estado sometida a la mayor dosis y/o temperatura y el dígito 4 corresponde a la que ha estado sometida a la menor.

En los experimentos *GABIC-2A* y *GABIC-2B* se ha estudiado los gases generados en el sistema bentonita-agua-acero. Se han analizado muestras procedentes de 7 contenedores de vidrio borosilicatado. Tres contenedores de vidrio contenían bentonita sometida a calentamiento y otros cuatro contenían bentonita irradiada y calentada. Las muestras de gases fueron tomadas de los contenedores con una jeringa a través de un septum.

6.2 Análisis de bentonita

El diagrama de flujo en el laboratorio que han sufrido las muestras que solo contienen bentonita (sin disco de acero) se muestra en la Fig 6.2. Tras su extracción, y a fin de mantener la muestra lo menos alterada posible, se realizaron las medidas de Eh y pH utilizando un equipo portátil. Posteriormente las

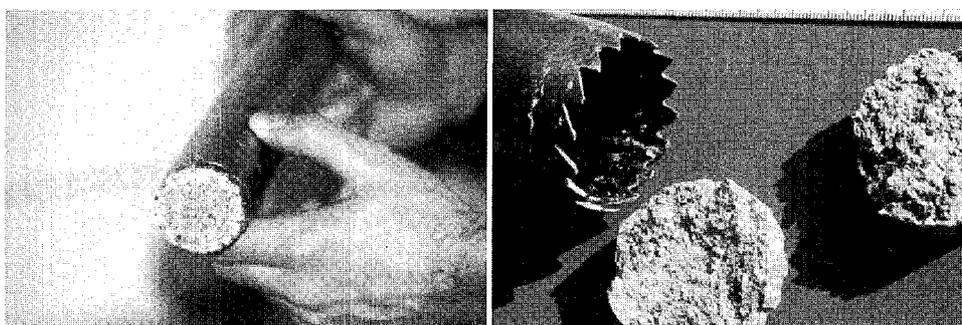


Figura 6.1. Extracción de muestras mediante el tubo sacatestigos.

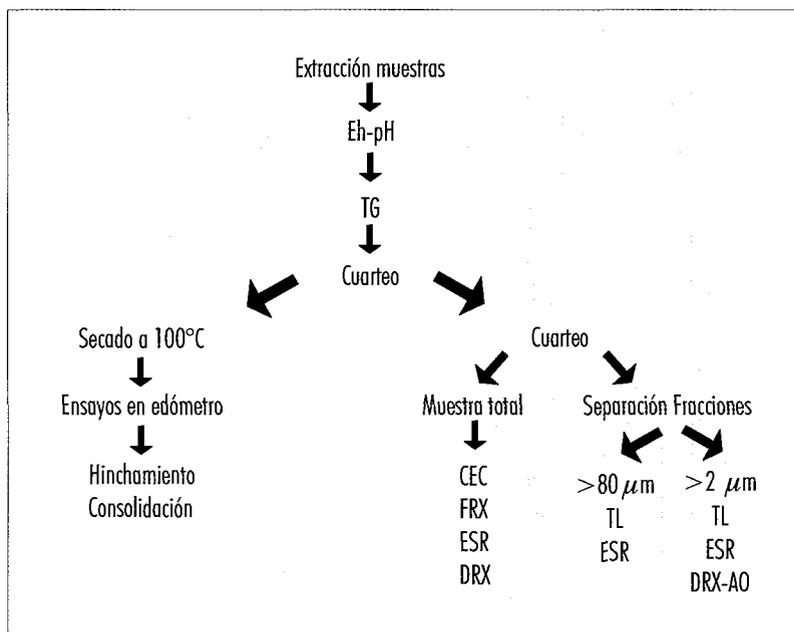


Figura 6.2. Marcha analítica de las cápsulas que sólo contenían bentonita (A, B, E y F).

muestras fueron selladas en bolsas de plástico a fin de preservar su contenido en agua. Una vez realizado el análisis de contenido en agua por termogravimetría (TG), se procedió al primer cuarteo. Una alícuota de unos 100 g fue separada para los ensayos en edómetro. El resto de la muestra fue nuevamente cuarteado, obteniéndose 4 alícuotas. Una alícuota se utilizó para el análisis de muestra total, mientras que el material de las 3 restantes fue utilizado para la separación de la bentonita en fracciones granulométricas, a fin de discernir si la generación de los defectos cristalinos inducidos por radiación afecta del mismo modo a la montmorillonita y a los minerales accesorios de la bentonita.

La separación de las diferentes fracciones granulométricas se ha realizado por decantación. Dicha separación permite trabajar con una fracción de tamaño inferior a $2 \mu\text{m}$ (enriquecida en montmorillonita) y una fracción de tamaño mayor a $80 \mu\text{m}$ (enriquecida en minerales accesorios). 25 g de bentonita fueron mezclados con 200 ml de agua destilada en un frasco de plástico. Dicha mezcla fue agitada durante 24 horas, y centrifugada a 6000 rpm durante 15 minutos. Tras la separación del líquido sobrenadante, la parte superficial de la mez-

cla, que corresponde a la fracción fina (tamaño de grano inferior a $2 \mu\text{m}$), fue extraída con una espátula. El resto de la muestra fue tamizada guardándose la fracción de tamaño de grano superior a $80 \mu\text{m}$.

Los diversos análisis realizados sobre la bentonita se describen a continuación. Estos han sido clasificados en cuatro categorías: los referentes a las composiciones química y mineralógica de la bentonita, los referentes al estudio del sistema bentonita-agua, los referentes al estudio de las propiedades de la bentonita y los referentes a la generación de defectos cristalinos de la bentonita.

6.2.1 Composición mineralógica y química de la bentonita

a) Análisis por Difracción de Rayos X

El objetivo de este tipo de análisis es la observación de posibles cambios en la montmorillonita así como la detección de fases minerales neoformadas. Se ha utilizado un difractor Siemens D-500, con tubo anticátodo de cobre y condiciones de excitación de 40 kV y 30 mA. Para cada muestra se han realizado dos difracciones. Una de muestra total en polvo,

y otra sobre la fracción de tamaño de grano inferior a $2 \mu\text{m}$ de las bentonitas mediante la obtención de agregados orientados.

La difracción de muestra total se ha realizado para la determinación mineralógica de la bentonita. Se ha efectuado un barrido para valores de 2θ entre 2° y 50° . La difracción de agregados orientados se ha realizado para un estudio en detalle de la montmorillonita. En este último caso, para el que se ha realizado un barrido para valores de 2θ entre 2° y 20° , se han obtenido 3 difractogramas de agregados orientados por muestra: el primero de ellos sin tratamiento previo, el segundo ha sido solvatado con etilenglicol y el tercero ha sido calentado a 550°C . Del estudio del difractograma de la arcilla solvatada en etilenglicol se ha calculado la anchura del pico (001). A fin de cuantificar la cantidad de interstratificados de illita/esmectita (Moore y Reynolds, 1989), se ha medido la distancia entre el pico localizado en torno a 10.31 \AA (correspondiente a la difracción del pico 0011/002E) y el pico localizado en torno a 15.80 \AA (correspondiente a la difracción del pico 0021/003E).

b) Análisis químico de muestra total

El objetivo de este análisis es la determinación de posibles cambios locales en la composición química ligados a procesos de transferencia de masa causados por circulación de fluidos. Tras el proceso de cuarteo, se dejó secar la muestra a 60°C en una estufa durante 24 h y posteriormente fue molida en un mortero de ágata. Mediante dicho procedimiento se consigue mantener el contenido en agua total en torno al 14 %, lo que permite por un lado una mejor comparación de resultados entre muestras y por otro lado se facilita la molturación. Los análisis efectuados han sido la determinación de los elementos mayoritarios por Espectrometría de Fluorescencia de Rayos X (FRX) y la determinación de carbonatos por calcimetría. En los análisis de FRX, la muestra de bentonita (300 mg) fue fundida con tetraborato de litio (dilución 1:20), tras adición de yoduro de litio como tensoactivo, a 1150°C en un horno de inducción por radiofrecuencia. Los análisis fueron realizados mediante un espectrofotómetro de fluorescencia X, Philips PW 2400, con anticátodo de rodio. Los óxidos analizados fueron Al_2O_3 , P_2O_5 , K_2O , CaO , SiO_2 , TiO_2 , MnO , Fe_2O_3 , MgO y Na_2O . Los análisis se efectuaron por duplicado, obteniéndose de la suma de los óxidos valores en torno al 86% de muestra total. En los análisis de calcimetría, las muestras (2 g) fueron atacadas me-

dante 10 ml de una solución 1:1 de HCl, midiéndose el CO_2 generado en un calcímetro Bernard.

6.2.2 Estudio del sistema bentonita-agua

a) Termogravimetría

El objetivo de este tipo de análisis es medir el contenido en agua de las muestras a fin de verificar la existencia de fenómenos de migración de fluidos en la bentonita debidos a la presencia de un gradiente térmico. El análisis termogravimétrico se ha realizado en un termoanalizador SETARAM TG-DTA92, con unos 200 mg de muestra y utilizando un crisol de sílice. Las condiciones de trabajo fueron las siguientes: intervalo de temperatura entre 20 y 900°C , velocidad de calentamiento de $10^\circ\text{C}/\text{min}$ y atmósfera de argón (flujo de gas 2 l/h).

b) Condiciones redox y de pH.

El objetivo de este tipo de análisis es obtener información sobre el estado de oxidación-reducción y del pH de la bentonita y sus posibles cambios debido al efecto de la temperatura y de la radiólisis. El análisis de dichos parámetros se ha realizado sobre la muestra de bentonita saturada, con un equipo CRISON pH/mV-meter 506, utilizando para cada tipo de medida un electrodo específico.

6.2.3 Estudio de las propiedades de la bentonita

a) Determinación de la capacidad de cambio catiónico

El objetivo de este análisis es la verificación de posibles cambios en la capacidad de retención de contaminantes. La muestra de bentonita (100 mg) se saturó en 50 ml de acetato amónico (pH 7.0) con agitación de 10 minutos y reposo de 24 horas, a fin de desplazar los cationes de cambio. Posteriormente, se recogió el acetato amónico y se determinaron los cationes (Na, K, Mg y Ca) por espectrometría de absorción atómica. Por otro lado, la bentonita fue lavada con isopropanol. Tras agitación de la muestra se eliminó el isopropanol, comprobando en éste la ausencia del NH_4 mediante su ataque con el reactivo de Nessler. A su vez, la bentonita fue tratada con 30 ml de una solución 1 M de NaCl ligeramente acidificada (0.005M HCl), a fin de desplazar el NH_4 . Una vez extraída la solución, ésta fue enrasada con agua destilada a 100 ml, y el amonio de-

terminado por colorimetría en un analizador de flujo continuo Technicon.

b) Determinación de las propiedades mecánicas

El estudio de las propiedades mecánicas se ha realizado utilizando edómetros convencionales. Previamente, las alícuotas destinadas a la realización de los ensayos mecánicos fueron calentadas a 100 °C durante 24 horas, pesadas y compactadas a una densidad nominal próxima a 1.65 g/cm³. Las dimensiones de las muestras eran 50 mm de diámetro y 15 mm de altura. Se han realizado dos tipos de ensayo con cada muestra: ensayo de hinchamiento de la bentonita por embebimiento en agua destilada y posterior ensayo de consolidación. Tras los ensayos se secó a 100° C la muestra y tras su pesada se calculó su densidad seca.

En el ensayo de hinchamiento (Fig 6.3.) se controló la evolución del hinchamiento bajo carga de 0.5 MPa en función del tiempo. Se estimó que la muestra había alcanzado el estado estacionario de hinchamiento, cuando la diferencia de hinchamiento entre 2 medidas, separadas en un intervalo de 24 horas, era inferior al 0.1%.

En el ensayo de consolidación (Fig 6.4.) las muestras, que se habían hinchado previamente a 0.5 MPa, fueron consolidadas bajo carga de 1.5 MPa en condiciones edométricas (confinamiento lateral), controlando su deformación en función del tiempo.

Los datos experimentales de la curva deformación-tiempo se han ajustado, utilizando el método de los mínimos cuadrados, al siguiente modelo analítico, en el cual se contempla la consolidación como la resultante de las consolidaciones instantánea, primaria y secundaria.

$$C = C_o + \frac{(\sigma_f - \sigma_i) \cdot U(t)}{E_m} + C_\alpha \cdot \log \left(\frac{t}{t_p} \right)$$

C= consolidación

C_o= consolidación instantánea

E_m= módulo edométrico

U= grado de consolidación

C_α= coeficiente de consolidación secundaria

σ_f- σ_i= diferencia de carga

t_p= tiempo de la consolidación primaria

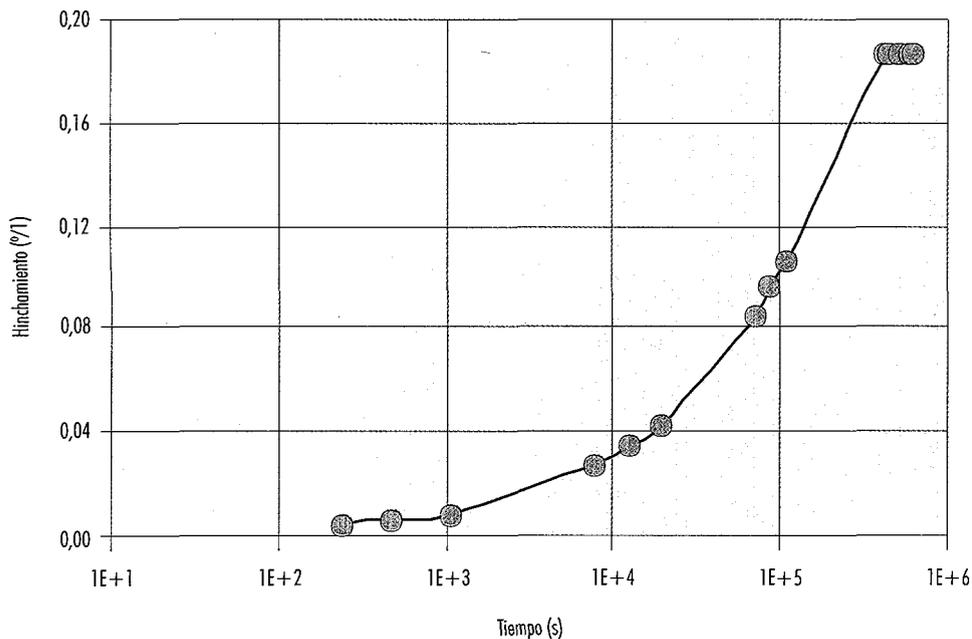


Figura 6.3. Ejemplo de ensayo de hinchamiento (muestra de referencia).

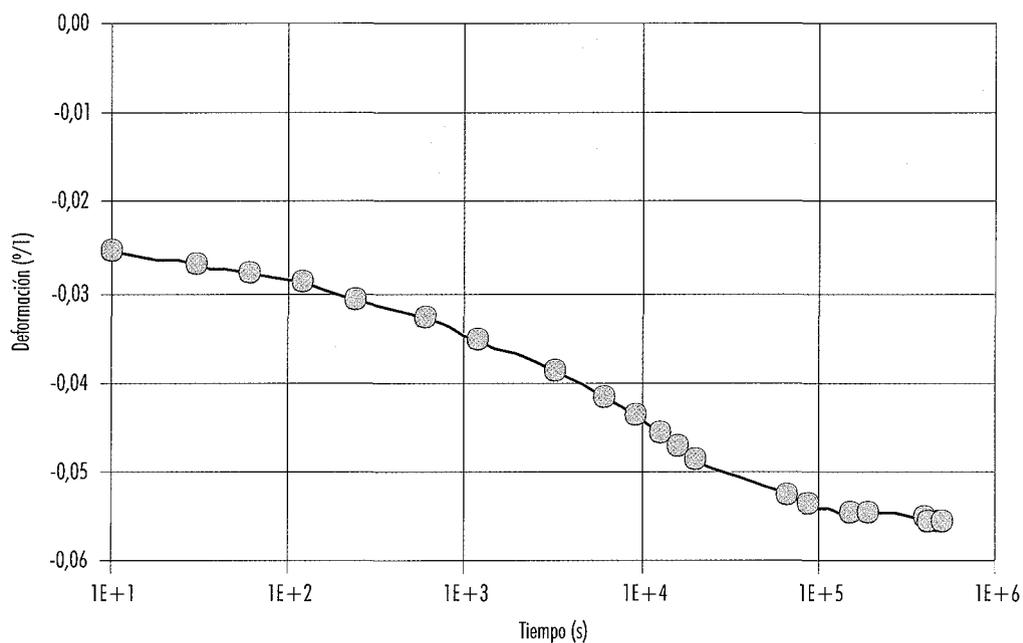


Figura 6.4. Ejemplo de ensayo de consolidación (muestra de referencia).

El tiempo en el que finaliza la consolidación primaria (t_p) corresponde al punto de inflexión de la de la curva deformación-tiempo presente entre 10^4 y 10^5 segundos. Dicho punto se ha obtenido como la intersección de las extrapolaciones lineales correspondientes al tramo central y el tramo final de la curva.

La Fig 6.4. muestra la diferencia entre los datos experimentales y los obtenidos mediante el ajuste analítico utilizado. Se ha considerado que el ajuste era correcto cuando la diferencia entre el valor medido y el estimado era inferior a 3 mm (precisión de la lectura del comparador micrométrico del edómetro). Expresado en función de la deformación el error máximo era inferior a 0.0002.

Una vez calculado el valor de la consolidación primaria, se puede determinar la conductividad hidráulica de la muestra saturada a partir de los datos del ensayo de consolidación. Conociendo para diversos intervalos de tiempo el espesor de la muestra y su grado de consolidación, el coeficiente de consolidación (C_v) puede obtenerse ajustando por mínimos cuadrados la siguiente relación:

$$C_v = \frac{H^2 \cdot T_v}{t}$$

siendo:

H = semiespesor de la muestra en el tiempo t

T_v = factor de tiempo (adimensional), correspondiente al valor del grado de consolidación U en el tiempo t

Finalmente la conductividad hidráulica se ha calculado mediante la fórmula:

$$k = \frac{C_v \cdot \gamma_w}{E_m}$$

con

k = conductividad hidráulica

γ_w = densidad del agua

6.2.4 Generación de defectos cristalinos

Los defectos cristalinos inducidos por radiación consisten en la presencia de electrones desapareados en la posición estructural del oxígeno tanto de las capas octaédricas como de las tetraédricas de la montmorillonita. Su estudio se ha abordado utilizando 2 técnicas complementarias. Por una parte se ha utilizado Espectroscopia de Resonancia de Spin Electrónico (ESR), ya que los electrones desa-

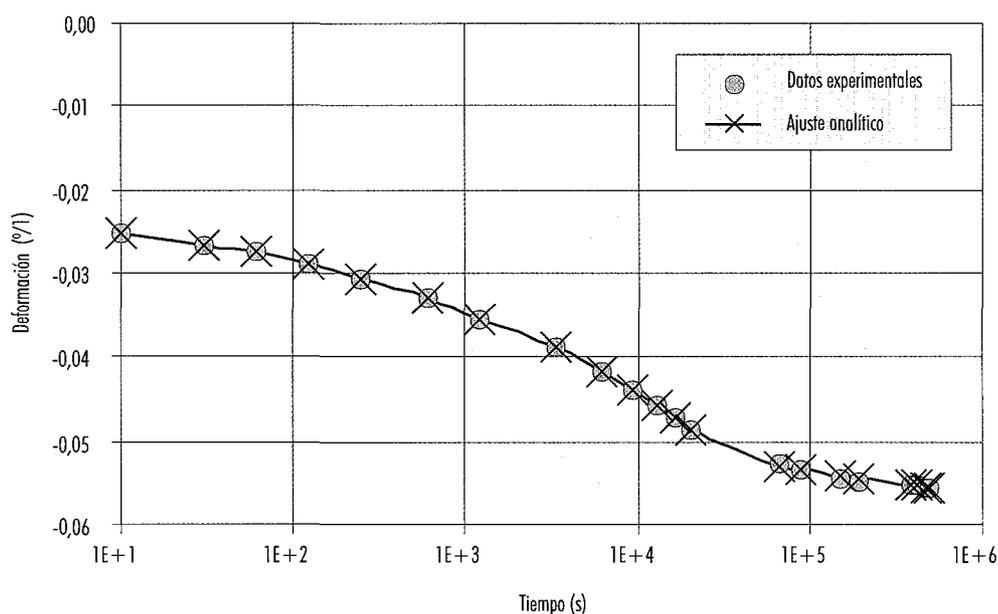


Figura 6.5. Ejemplo de ensayo de consolidación (muestra de referencia, 5-10 cm).

pareados cuando están expuestos a un campo magnético intenso absorben la radiación de microondas. Por otro lado, la activación térmica (calentamiento) de las muestras tiende a recombinar los defectos, restaurando la red cristalina original. Esta recombinación va acompañada de liberación de energía, bien en forma de luz visible, bien en forma de calor. Por dicho motivo la concentración de defectos puede estimarse a partir de medidas de termoluminiscencia (TL) o calorimétricas. El estudio de los defectos se ha realizado tanto en la muestra total como en las fracciones fina (tamaño de grano inferior a $2\ \mu\text{m}$) y gruesa (tamaño de grano superior a $80\ \mu\text{m}$). Ya que los análisis de ESR, TL y calorimetría requieren muestra en polvo, tanto la muestra total como la fracción gruesa fueron molidas previamente a los análisis.

a) Análisis de Resonancia de Espín Electrónico

Los espectros de resonancia de spin electrónico se han obtenido a temperatura ambiente en un espectrómetro ESP 300E Bruker, utilizando una fuente de radiación de microondas con una frecuencia de resonancia de 9.78 GHz (localizada en la banda X de las microondas). Las condiciones experimentales

fueron las siguientes: frecuencia modular de 100 kHz, amplitud de modulación de 0.32 mT, potencia de microondas de 5 mW y constante de tiempo de 10 ms. A partir de los espectros se calcula el factor de escisión g para cada resonancia. La concentración de los defectos, que es proporcional al número de spins por mg, se expresa en unidades arbitrarias de intensidad.

La Fig 6.6.(a) muestra el espectro global, registrado como la primera derivada de la absorción, obtenido en el intervalo de 10 a 510 mT. El espectro muestra dos señales claras. Un pico estrecho cuyo centro se encuentra alrededor de 160 mT ($g=4.4$), característico de Fe^{3+} en posiciones octaédricas y tetraédricas y una banda ancha, (aproximadamente entre 240 y 350 mT) asociada a la presencia de óxidos de hierro (Angel y Vincent, 1978). La presencia de esta banda genera interferencias con la región de los defectos inducidos por radiación, lo cual implica realizar algún procesado matemático posterior con los datos. Por dicho motivo, se utilizaron técnicas numéricas de optimización de la calidad espectral (filtrado por medias móviles, derivación y eliminación de tendencias) en el intervalo comprendido entre 315 a 385 mT. En dicho intervalo tienen lugar las resonancias debidas a los de-

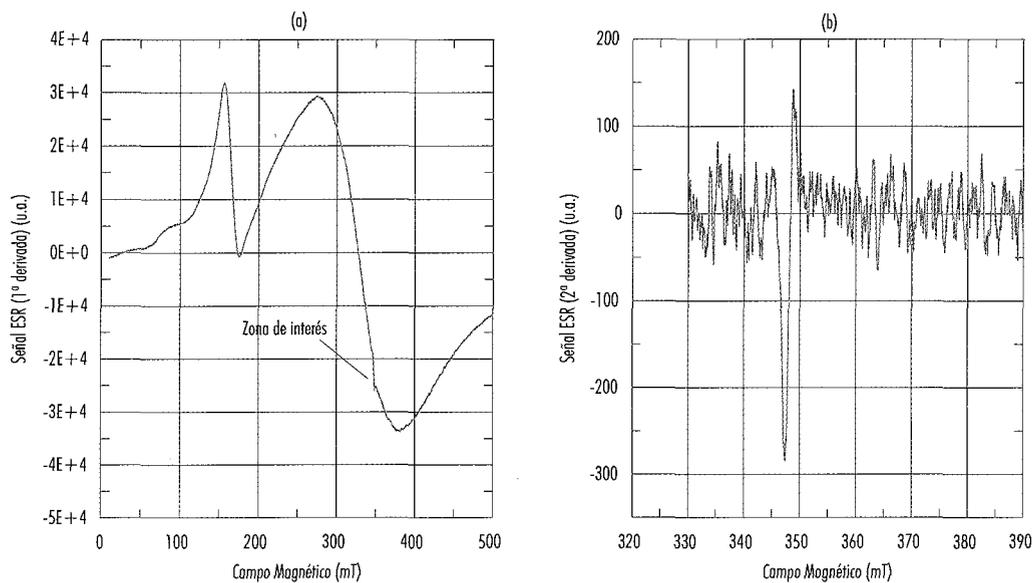


Figura 6.6. (a) Primera derivada del espectro de absorción ESR de la fracción fina de una muestra de bentonita irradiada. (b) Segunda derivada del espectro de absorción ESR de la misma muestra en la región de interés.

fectos cristalinos de naturaleza paramagnética. Para una mejor resolución, los espectros se representaron como la segunda derivada de la absorción electromagnética.

La fracción fina (tamaño de grano inferior a $2\ \mu\text{m}$), presenta una única banda espectral localizada a $348\ \text{mT}$ ($g=2.010$), tal como muestra la Fig 6.6.(b). La fracción gruesa (tamaño de grano superior a $80\ \mu\text{m}$; enriquecida en plagioclasas, cuarzo y calcita), presenta la misma banda espectral localizada a $348\ \text{mT}$ ($g=2.010$), así como otras seis bandas espectrales: $g=2.151$ ($325\ \text{mT}$), $g=2.093$ ($335\ \text{mT}$), $g=2.037$ ($342\ \text{mT}$), $g=1.981$ ($352\ \text{mT}$), $g=1.928$ ($362\ \text{mT}$) y $g=1.874$ ($372\ \text{mT}$). En la Fig 6.7. se muestra el espectro de la fracción gruesa (tamaño de grano superior a $80\ \mu\text{m}$). Estas últimas resonancias debemos atribuir las al acoplamiento de núcleos de ^{55}Mn , presentes en las fases minerales accesorias, con los defectos cristalinos. El espectro de la muestra total presenta las mismas bandas espectrales que la fracción gruesa.

b) Emisión Termoluminiscente

La termoluminiscencia se basa en la propiedad que tienen algunos materiales aislantes o semiconducto-

res de retener en su estructura cristalina parte de la energía depositada por la radiación ionizante. Esta energía puede ser liberada cuando se eleva la temperatura del cuerpo y se pone de manifiesto mediante una emisión de luz que puede cuantificarse mediante un tubo fotomultiplicador. Esta emisión de luz se relaciona con la cantidad de electrones y huecos que quedan atrapados cerca de las imperfecciones o defectos de la estructura cristalina del material.

El equipo instrumental empleado es un lector de termoluminiscencia Universal Toledo TLD Reader Model 654D de Vynten Instruments. El protocolo de lectura se muestra a continuación:

- Pre calentamiento nulo
- Rampa de calentamiento: $3.5\ \text{°C/s}$
- Temperatura máxima de lectura: $430\ \text{°C}$
- Recocido nulo
- Tiempo de lectura: $150\ \text{s}$

c) Calorimetría

El análisis calorimétrico tiene como objetivo acotar la energía acumulada en la bentonita por el efecto

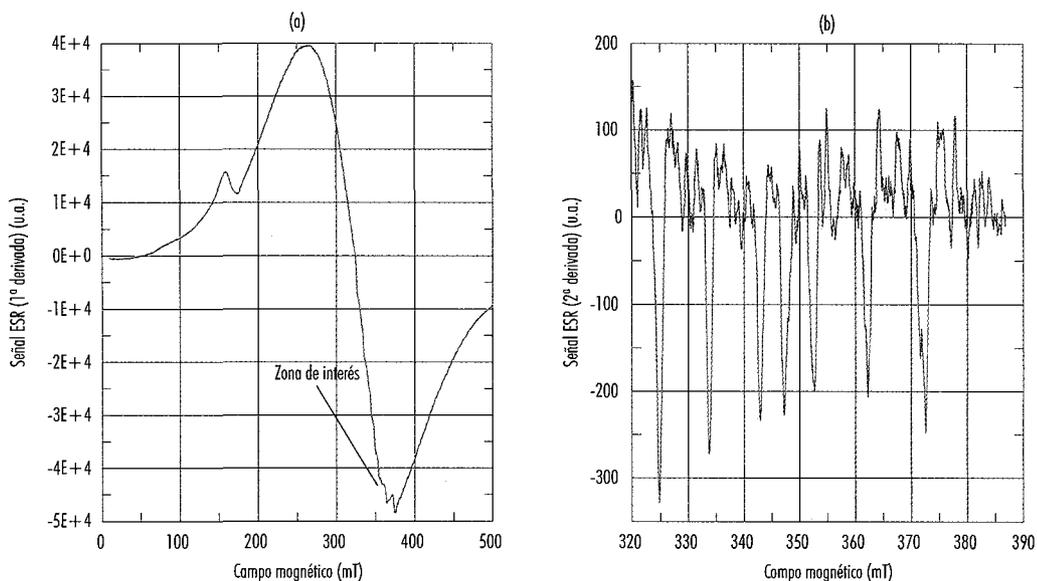


Figura 6.7. (a) Primera derivada del espectro de absorción ESR de la fracción gruesa de una muestra de bentonita irradiada. (b) Segunda derivada del espectro de absorción ESR de la misma muestra en la región de interés.

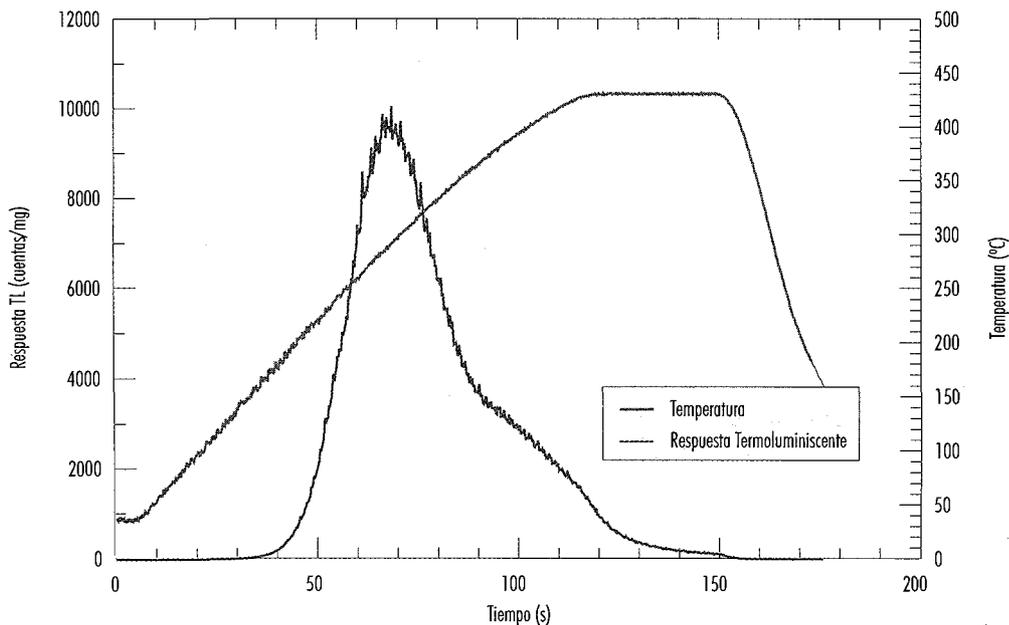


Figura 6.8. Ejemplo de la curva de emisión termoluminiscente para una muestra de bentonita irradiada durante 2 meses aproximadamente 2 Mgy) a 95°C.

de la radiación γ a la que ha estado sometida. Dado que el efecto de liberación de la energía acumulada tiene lugar en un dominio de temperatura en que simultáneamente existe un efecto endotérmico debido a la existencia de agua ligada, una evaluación de este efecto se ha llevado a cabo combinando técnicas de análisis térmico diferencial y a través de análisis termogravimétrico. Las condiciones experimentales en ambos tipos de medidas se describen a continuación.

Los análisis calorimétricos, (ATD), se han llevado a cabo mediante un Analizador Térmico Diferencial TA Instruments 2920. Las condiciones experimentales han sido:

- Cápsulas de 40 μ l. La parte superior de las cápsulas que, en condiciones normales aseguran la estanqueidad del material, ha sido perforada de forma espacialmente uniforme para permitir la pérdida de vapor de agua que incrementaría la presión interna del recinto con el consiguiente desequilibrio de la línea de base.
- Velocidad de calentamiento: Aunque los primeros ensayos han sido realizados a 10 $^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$, la coexistencia de efectos térmicos nos ha obligado a trabajar en el dominio de bajas velocidades, es decir 2 $^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$.
- Masas analizadas: Aunque la capacidad de las cápsulas es de 40 μ l, la existencia de la fase vapor del agua obliga a liberar dentro de aquéllas un volumen libre de aproximadamente el 50%, por lo que las masas utilizadas han estado en el rango de 15-20 mg.
- Gas de purga: En las experiencias previas se utilizó N_2 . Sin embargo con el fin de aumentar la sensibilidad del sistema las experiencias posteriores se han realizado con He.

Un conjunto de medidas térmicas se ha realizado bajo condiciones de atmósfera totalmente seca empleando P_2O_5 .

Por otro lado, los análisis termogravimétricos, (TG), se han realizado mediante un analizador TGA DuPont 2000 empleando las siguientes condiciones experimentales:

- Cápsulas de 40 μ l: Estas son idénticas a las utilizadas para el análisis calorimétrico.
- Velocidad de calentamiento: 10 $^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$.
- Masas analizadas: En el rango de 10-15 mg.
- Gas de purga: Se ha empleado N_2 .

Algunas medidas han sido realizadas bajo atmósfera totalmente seca empleando P_2O_5 .

Los análisis correspondientes a TG han mostrado que, para muestras saturadas durante 24 horas en atmósfera saturada de agua a temperatura ambiente, existen dos tipos de agua. Por un lado el agua más superficial del espacio interlaminar se libera en el dominio de temperatura desde ambiente hasta 100 $^{\circ}\text{C}$. Esta pérdida corresponde aproximadamente a un 17-18% de la masa inicial de la muestra.

Por otro lado existe otro tipo de agua, más firmemente adsorbida en el espacio interlaminar, cuya liberación necesita una energía térmica mínima que corresponde a una temperatura de 110 $^{\circ}\text{C}$ - 120 $^{\circ}\text{C}$; la pérdida de masa de este segundo efecto corresponde a un 2.3%, tal como se muestra en la Fig 6.9. Este segundo efecto constituye desde el punto de vista de la evaluación del efecto asociado a la radiación uno de los mayores inconvenientes, puesto que tiene lugar en el mismo intervalo de temperaturas.

Para intentar evitar el efecto endotérmico debido a la pérdida de agua se han realizado dos tipos de ensayos.

Por un lado se han efectuado medidas de TG bajo una atmósfera totalmente seca mediante la introducción en el recinto de medida de P_2O_5 . Inicialmente se realizó la experiencia durante 24 horas, bajo control de la masa y a 25 $^{\circ}\text{C}$, (Fig 6.10.). La pérdida de masa en esta experiencia fue del 12%, (valor estable después de 7 horas), claramente inferior al 17-18% constatado en las experiencias anteriores. Un calentamiento posterior indicó una pérdida de agua en el dominio de temperatura de 25 $^{\circ}\text{C}$ hasta 250 $^{\circ}\text{C}$ del orden de 6%. Puesta de manifiesto la presencia de agua, aún en estas severas condiciones, se realizaron un conjunto de nuevas experiencias similares pero manteniendo la muestra a 100 $^{\circ}\text{C}$, con el fin de acelerar el proceso de pérdida de agua. Un posterior calentamiento mostró la existencia de un único efecto de pérdida de agua alrededor de 120 $^{\circ}\text{C}$ y del orden del 2.3% de la masa inicial.

En conclusión, el proceso de absorción de agua por parte del P_2O_5 es sólo capaz de extraer el agua más superficial del espacio interlaminar pero no es capaz, incluso a 100 $^{\circ}\text{C}$, de absorber el segundo tipo de agua más ligada. En consecuencia, en las medidas calorimétricas que se han efectuado, el efecto endotérmico del agua más firmemente adsorbida, existente a 120 $^{\circ}\text{C}$, está siempre presente.

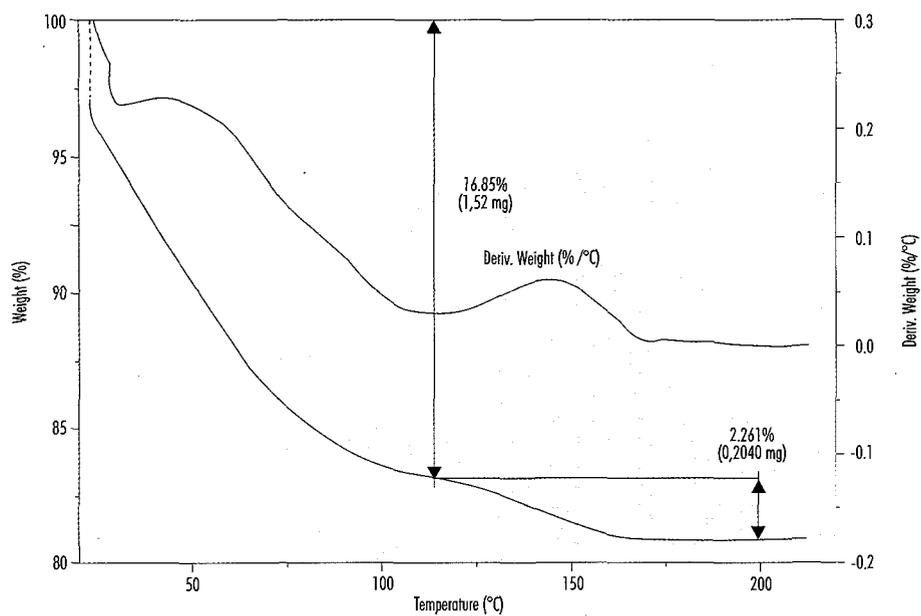


Figura 6.9. Termograma de una muestra de bentonita saturada en atmósfera con una humedad relativa del 100%.

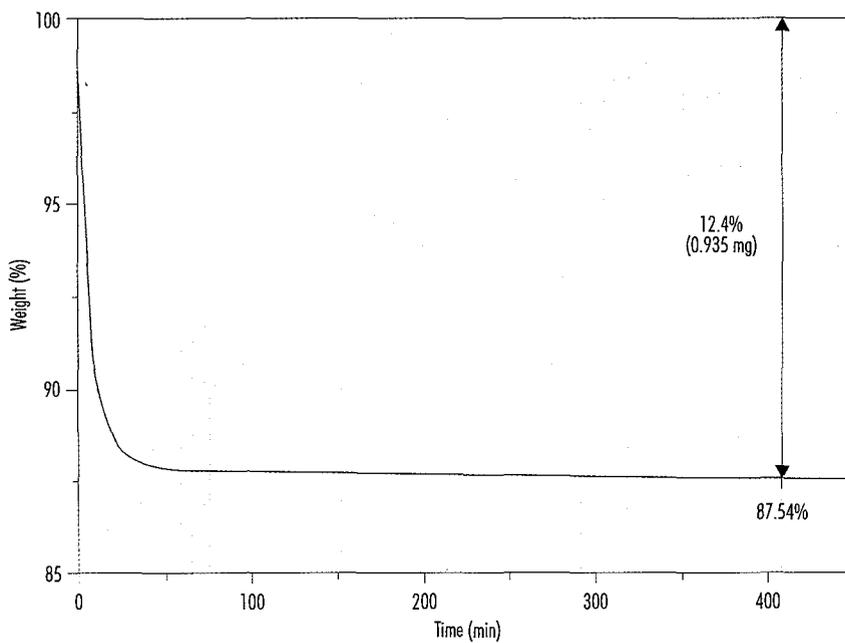


Figura 6.10. Termograma de la deshidrotación isotérmica de la bentonita a 25°C en presencia de P₂O₅.

Por lo anteriormente expuesto, se ha considerado que las condiciones más eficaces para la evaluación del efecto asociado a la radiación en la bentonita, es la saturación previa de la misma, en una atmósfera con humedad relativa del 100% y a 25 °C y su posterior medida calorimétrica. Esta condición permite asegurar una idéntica condición del estado de saturación inicial de las muestras, y, por lo tanto, una mayor reproducibilidad.

Debe destacarse que las muestras irradiadas que han sido calentadas hasta 230 °C no muestran, en una posterior medida, ningún efecto térmico. Esta temperatura ha sido considerada como la temperatura final para los ensayos posteriores.

El procedimiento seguido para cada muestra ha sido:

- Preparación de la cápsula con cobertura perforada con muestra irradiada.
- Mantenimiento de las mismas en atmósfera saturada de vapor de agua durante 24 horas a 25 °C.
- Primer ensayo calorimétrico sobre la muestra desde temperatura ambiente hasta 230 °C.
- Mantenimiento de la misma cápsula, (en este caso con el efecto de la radiación ya eliminado), en atmósfera saturada de vapor de agua durante 24 horas a 25 °C.
- Segundo ensayo calorimétrico, sobre la misma muestra, desde temperatura ambiente hasta 230 °C.

Este procedimiento permite mediante dos medidas sobre la misma muestra determinar, por diferencia, el efecto energía acumulada inducida por la radiación.

6.3 Análisis de las probetas de acero al carbono

Las probetas metálicas procedentes de los experimentos BIC-2A y BIC-2B se han sometido a distintos análisis a fin de determinar la magnitud de la corrosión en función de las distintas condiciones de experimentación empleadas. El diagrama de flujo de los distintos procedimientos que incluyen los análisis de corrosión se detalla a continuación:

- Extracción de las probetas metálicas del medio bentonítico y posterior observación de la distribución de la bentonita adherida a la superficie de las mismas.

- Decapado de las dos superficies planas de las probetas, para la completa eliminación de los restos de bentonita y del óxido formado. Esta operación se realiza mediante una inmersión de las probetas en HCl diluido al 18% en peso, al que se añade un inhibidor, de acuerdo con las normas ASTM G1, ISO 9226 e ISO 8407.
- Observación del estado superficial de las probetas metálicas mediante microscopio óptico, antes y después del decapado químico. Se emplea un microscopio Nikon Labophot de polarización con sistema fotográfico automático. Cuenta con una fuente de iluminación, para la observación de las probetas por reflexión, Intralux 5000 de fibra óptica.
- Determinación de la rugosidad superficial de las probetas mediante un rugosímetro Talysurf Clans 30K con palpador inductivo. La rugosidad se determina en un cuadrado de 4 o 5 mm de lado, situado en el centro de cada una de las caras de las probetas.
- Determinación de la profundidad de las picaduras más representativas de las probetas. Esta determinación se lleva a cabo, por diferencia de enfoque, mediante el microscopio óptico antes mencionado y se realiza sobre las muestras de la serie C.
- Determinación del valor medio del ataque corrosivo mediante gravimetría. Este procedimiento sólo se lleva a cabo en las probetas de la serie I; es decir, las probetas irradiadas. Consiste en determinar la pérdida de peso de las probetas tras someterlas a las condiciones experimentales correspondientes. El peso final debe determinarse tras el decapado químico.

6.3.1 Determinación de la rugosidad superficial

La rugosidad superficial se determina mediante un rugosímetro Talysurf Clans 30K, (Fig 6.11.). Su palpador inductivo explora la zona de estudio en pasadas paralelas, determinando el perfil de alturas de la superficie. El programa de control del rugosímetro proporciona un mapa 3D de la superficie explorada y una serie de parámetros estadísticos que se enumeran a continuación.

Si se supone un perfil de alturas, para una de las pasadas del rugosímetro, como el indicado en la Fig 6.12. La rugosidad media, (sPa), vendría dada por la integral:

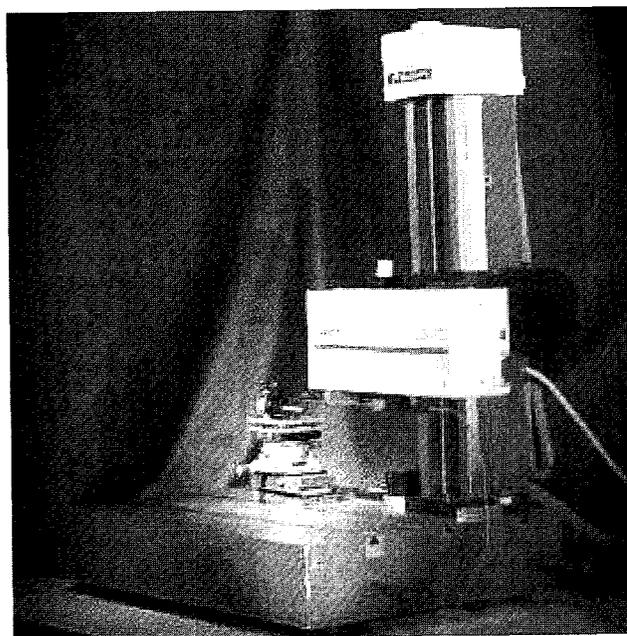


Figura 6.11. Rugosímetro Talysurf Clans para el estudio de la rugosidad superficial.

$$sPa = \frac{1}{L_0} \int_0^{L_0} |Z(L)| dL$$

aplicada a las distintas exploraciones del palpador, y siendo L_0 la longitud de exploración.

La máxima desviación positiva respecto de la cota cero, (sPv), sería la altura del pico 1; mientras que, la máxima desviación negativa, (sPp), sería, en valor absoluto, la cota del pico identificado como 2 en la Fig 6.12.

La rugosidad máxima, (sPt), sería la suma de los dos valores definidos anteriormente

$$sPt = sPv + sPp$$

Los picos que contribuyen a la rugosidad máxima, definida en este sentido, no tienen por que ser consecutivos. De ahí se deduce que este valor siempre será mayor o igual que la profundidad de la mayor picadura en la misma zona de estudio.

Un quinto parámetro que proporciona el rugosímetro es la raíz cuadrada de la media de los cuadrados de las alturas, (sPq), es decir:

$$sPq = \sqrt{\frac{1}{L_0} \int_0^{L_0} Z(L)^2 dL}$$

Un último parámetro, ($sPsk$), da una indicación de si existen más "picos" que "valles" o viceversa. Un perfil como el de la Fig 6.13., con más picos que valles, presentará un valor de $sPsk$ positivo; mientras que, un perfil como el de la Fig 6.14. lo tendrá negativo. Obviamente, las probetas sometidas a ambientes corrosivos tenderán a presentar perfiles con valores de $sPsk$ negativos.

6.3.2 Gravimetría

Para determinar el ataque corrosivo promedio en una probeta mediante gravimetría, debe determinarse la pérdida de masa ocasionada por las condiciones de experimentación, con una precisión, al menos, de décimas de miligramo. La determinación de la masa final, tras la irradiación y/o calentamiento en medio arcilloso, se realiza después del decaído químico ya comentado, a fin de eliminar los restos de bentonita y de óxidos. Conociendo las dimensiones de la probeta y la densidad del acero, se calcula la corrosión promedio por unidad de área como:

$$\text{Corrosión [g / cm}^2\text{]} = \frac{\text{Pérdida de masa [g]}}{\text{área de la probeta [cm}^2\text{]}}$$

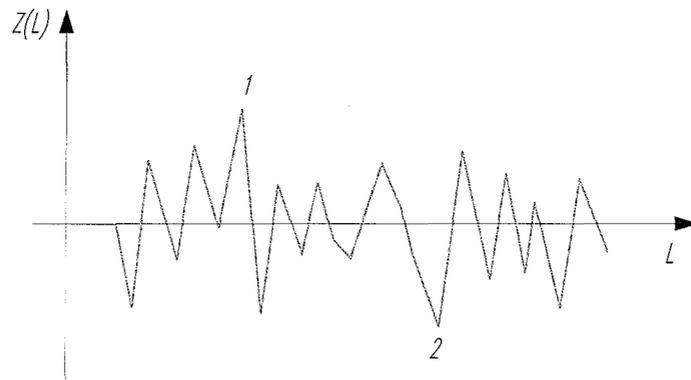


Figura 6.12. Hipotético perfil de alturas en una de las pasadas del rugosímetro.

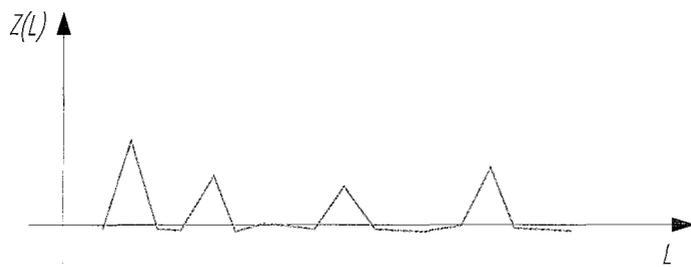


Figura 6.13. Hipotético perfil de alturas con un valor de sPsk positivo.

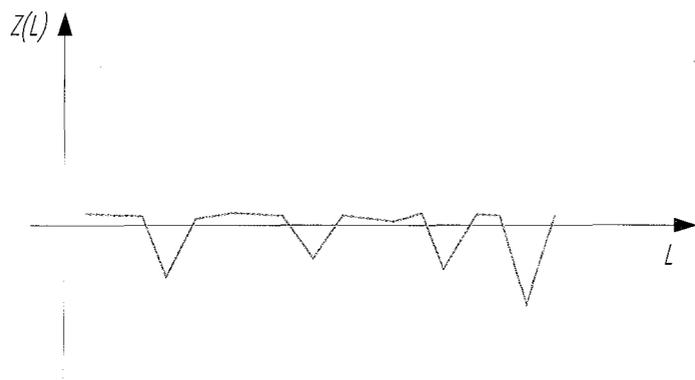


Figura 6.14. Hipotético perfil de alturas con un valor de sPsk negativo.

y la penetración promedio como:

$$\text{Penetración media [cm]} = \frac{\text{Pérdida de masa [g]}}{\text{área de la probeta [cm}^2\text{]} \times \text{Densidad del acero [g/cm}^3\text{]}}$$

6.4 Análisis de gases

Tras extracción de los gases, su análisis se ha realizado por cromatografía de gases y su cuantifica-

ción se ha realizado utilizando el método del patrón externo.

Las condiciones analíticas para el análisis de CO₂ fueron: columna Porapak Q, 50/80 mesh, 4m · 1/4" OD a 120 °C siendo el gas portador He.

Para el análisis de H₂ se utilizó una columna de tamiz molecular de 5 Å, 80/100 mesh, 3m · 1/8" OD, a 60 °C siendo el gas portador argón. En ambos casos se utilizó un Detector de Conductividad Térmica (TCD).

7. Resultados obtenidos

7. Resultados obtenidos

7.1 Composición mineralógica y química de la bentonita

7.1.1 Composición mineralógica

El análisis mediante DRX de muestra total en polvo sobre la bentonita de referencia ha permitido identificar las siguientes fases minerales (ver Fig 7.1.) que expresadas en orden de abundancia relativa, son las siguientes:

- *Montmorillonita*:
Presenta las reflexiones basales (001) a 15.05 Å y (003) a 5.04 Å. Asimismo aparecen varias reflexiones hk tales como las (02-11) a 4.47 Å, (13-20) a 2.56 Å y (15-24-31) a 1.69 Å.
- *Plagioclasas*:
Con reflexiones a 6.52 Å, 3.77 Å, 3.64 Å, 3.21 Å y 3.17 Å
- *Cristobalita*:
Con reflexiones a 2.83 Å
- *Cuarzo*:
Con reflexiones a 3.34 Å y 4.24 Å

- *Calcita*:
Con reflexiones a 3.03 Å
- *Tridimita*:
Con reflexiones a 4.30 Å, 4.07 Å

No se ha detectado ningún cambio en la composición mineralógica ni en las muestras sometidas a calentamiento, ni en las sometidas a irradiación y calentamiento. En ambos casos los espectros de DRX son similares a los de las muestras de referencia.

El estudio de las características de la montmorillonita de las bentonitas de referencia, realizado a partir de agregados orientados, muestra como la montmorillonita (14.7 Å) se hincha con etilenglicol a 16.9 Å y se contrae a 9.7 Å tras su tratamiento térmico a 550 °C (Fig 7.2.). En el espectro de difracción de la montmorillonita solvatada en etilenglicol se observa una distancia 2θ entre el pico (0011/002E) y el pico (0021/003E) en torno a 5.55°. Dicha distancia corresponde a la existencia de interstratificados de illita/esmectita de una cantidad cercana al 15 % (Moore y Reynolds, 1989). La anchura promedio del pico (001) de la montmorillonita oscila entre 1.68° y 0.97° lo que da, aplicando la ecuación de Scherrer, un rango de tamaño de cristalito entre 48 Å y 83 Å.

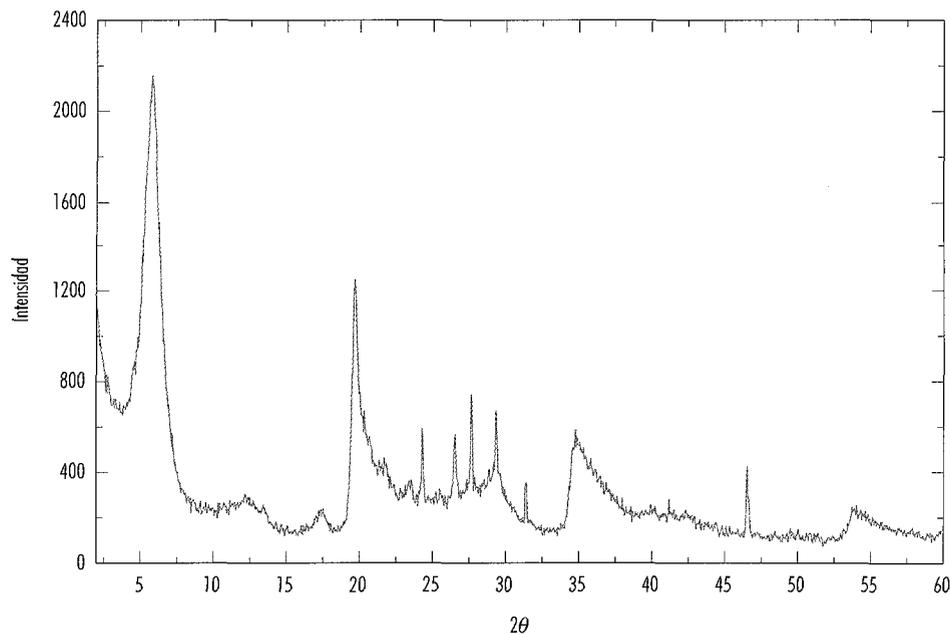


Figura 7.1. Diffractograma de muestra total típico para la bentonita de referencia.

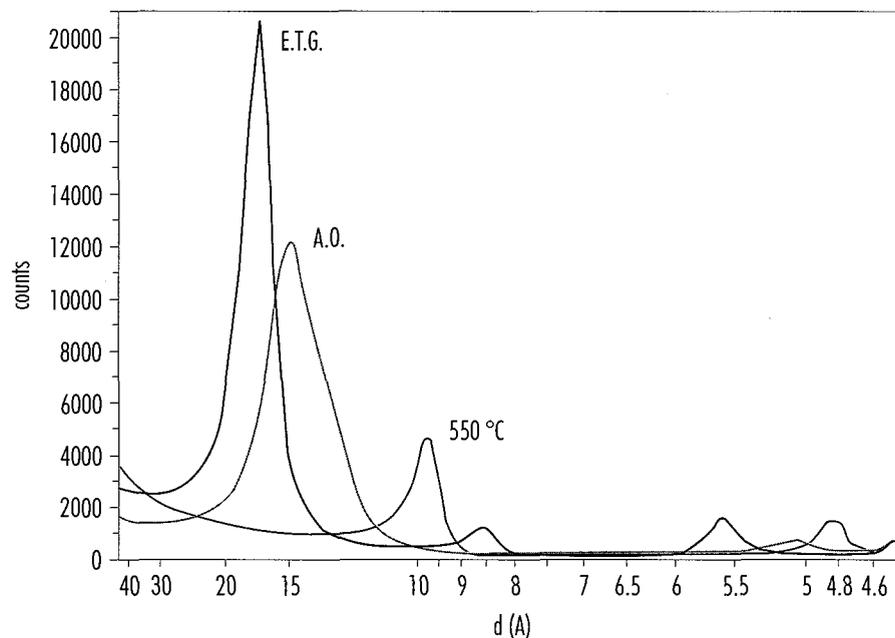


Figura 7.2. Diffractogramas de agregados orientados de la montmorillonita de referencia.

En las bentonitas sometidas a calentamiento, los agregados orientados solvatados en etilenglicol también muestran la existencia de interestratificados de illita/esmectita en torno al 15 %. La anchura promedio del pico (001) de la montmorillonita oscila entre 0.77° y 0.97° , lo que da un rango de tamaño de cristalito entre 105 Å y 83 Å. Finalmente, las bentonitas sometidas a irradiación y calentamiento presentan espectros de DRX de agregados orientados solvatados en etilenglicol similares a las anteriores, con una concentración de interestratificados de illita/esmectita cercana al 15 %. La anchura promedio del pico (001) de la montmorillonita oscila entre 0.75° y 0.83° , lo que da un rango de tamaño de cristalito entre 107 Å y 97 Å. La Tabla 7.1 muestra los datos más relevantes del análisis de difracción de agregados orientados solvatados en etilenglicol.

De lo anteriormente descrito, se deduce que en las actuales condiciones experimentales, no tiene lugar ninguna transformación mineralógica relevante en la bentonita. Tampoco se ha detectado la disolución de minerales minoritarios, (calcita, cuarzo y feldspatos), de la bentonita, y posterior precipitación de cementos silíceos y sulfatos, tal como tuvo lugar en el experimento de irradiación realizado en la bentonita

MX-80 (Pusch *et al.*, 1993). Únicamente, existe un aumento del espesor promedio de los cristalitos de montmorillonita. En cambio, en este tipo de bentonitas, cuando se saturan en soluciones enriquecidas en KCl, (entre 0.2 y 1M), a temperaturas superiores a 60°C , se produce una disminución del tamaño del cristalito en la montmorillonita, (Linares *et al.*, 1996), así como un aumento de la presencia de interestratificados illita/esmectita desde un 15% a un 30%.

7.1.2 Composición química

Los análisis químicos de los elementos mayoritarios, realizados mediante Espectrometría de Fluorescencia de rayos X, se muestran en la Tabla 7.2. Del análisis de resultados en las muestras de referencia se desprende la escasa variabilidad entre muestras. Los valores medidos están en consonancia con los obtenidos por CSIC-Zaidín y CIEMAT en el marco del proyecto FEBEX, (Villar *et al.*, 1998). No obstante, hay algunas discrepancias entre los valores medidos y los citados por los laboratorios mencionados. Los valores de Fe_2O_3 (promedio 3.4 %) son similares a los de CSIC-Zaidín, (promedio 3.5 %), mientras que los del CIEMAT presentan un promedio de 2.9 %. Los análisis de K_2O , (promedio 1.0 %), y Na_2O , (promedio 1.2 %), se asemejan más a

Tabla 7.1
Parámetros obtenidos en el difractograma de agregados orientados solvatados en etilenglicol para la difracción basal 001 de la montmorillonita.

Muestra	2 θ	d (Å)	Índice asimetría	FWHM	T (°C)	Dosis (MGy)
RA-1	5.530	15.990	0.761	1.680	20	0
RA-2	5.376	16.439	0.756	1.307	20	0
RA-3	5.326	16.593	1.129	0.974	20	0
RA-4	5.226	16.910	0.704	1.165	20	0
CA-1	5.276	16.750	1.296	0.873	125	0
CA-2	5.326	16.593	0.646	1.319	115	0
CA-3	5.226	16.910	0.805	0.993	105	0
CA-4	5.276	16.750	1.147	0.856	95	0
CE-1	5.276	16.750	1.560	0.813	125	0
CE-2	5.276	16.750	1.085	0.969	115	0
CE-3	5.276	16.750	1.472	0.769	105	0
CE-4	5.226	16.910	1.082	0.826	95	0
IA-1	5.176	17.074	1.119	0.753	125	4.5
IA-2	5.226	16.910	1.073	0.841	115	3.5
IA-3	5.276	16.750	1.350	0.754	105	2.7
IA-4	5.226	16.910	1.109	0.801	95	2.1
IB-1	5.226	16.910	1.324	0.828	125	4.9
IB-2	5.226	16.910	1.470	0.784	115	3.8
IB-3	5.176	17.074	1.362	0.811	105	3
IB-4	5.226	16.910	1.232	0.813	95	2.2
IE-1	5.276	16.750	1.428	0.809	125	9.4
IE-2	5.176	17.074	1.096	0.798	115	7.4
IE-3	5.176	17.074	1.250	0.770	105	6.2
IE-4	5.276	16.750	1.361	0.789	95	4.5
IF-1	5.226	16.910	1.740	0.808	125	9.4
IF-2	5.176	17.074	1.153	0.805	115	7.4
IF-3	5.226	16.910	1.221	0.794	105	6.2
IF-4	5.276	16.750	1.131	0.757	95	4.5

los del CIEMAT, (promedios 1.1 % y 1.4 %, respectivamente), que a los del CSIC-Zaidín, (promedios 1,2 % y 2.3 %, respectivamente).

La Tabla 7.2. presenta también los resultados de los análisis químicos de los elementos mayoritarios de las muestras sometidas a calentamiento y de las sometidas a irradiación y calentamiento. Del análisis de resultados se desprende la escasa variabilidad de la bentonita por efecto de la temperatura y la radiación.

Asimismo, se ha analizado el contenido en carbonato de las bentonitas por calcimetría. Dado que a partir de los espectros de difracción de rayos X se ha visto que el carbonato se encuentra de forma

mayoritaria como calcita (> 90%), los resultados de las calcimetrías se expresan como % de calcita. Del análisis de resultados se desprende la escasa presencia de esta fase mineral, (entre 0.21% y 0.67%), en las muestras de referencia. En las muestras sometidas a calentamiento, los contenidos en carbonato son similares a las anteriores, (entre 0.08% y 0.77%), exceptuando dos muestras que presentan valores anómalos, (entre 1% y 2%). Del mismo modo, tampoco se perciben cambios en los contenidos en calcita (entre 0.08% y 0.71%) en las muestras sometidas a irradiación y calentamiento. Los resultados de las calcimetrías para todas las muestras se encuentran en la Tabla 7.3.

Tabla 7.2
Resultados de los análisis químicos por FRX de las bentonitas estudiadas.

REF	Al ₂ O ₃ %	P ₂ O ₅ %	K ₂ O %	CaO %	SiO ₂ %	TiO ₂ %	MnO %	Fe ₂ O ₃ %	MgO %	Na ₂ O %
RA1	17.85	0.07	0.98	1.86	57.18	0.30	0.04	3.39	4.61	1.13
RA1	17.93	0.06	1.00	1.88	57.79	0.28	0.04	3.46	4.53	1.11
RA2	18.00	0.07	1.07	1.95	57.25	0.33	0.04	3.45	4.53	1.20
RA2	17.72	0.10	1.06	1.93	57.11	0.32	0.05	3.48	4.54	1.16
RA3	18.24	0.21	0.93	1.95	57.92	0.25	0.04	3.50	4.60	1.14
RA3	18.01	0.17	0.93	1.92	57.42	0.31	0.04	3.42	4.61	1.12
RA4	17.73	0.20	1.02	2.00	57.08	0.30	0.04	3.39	4.47	1.25
RA4	17.38	0.11	0.99	1.78	55.79	0.36	0.04	3.30	4.39	1.07
CA1	17.71	0.06	1.01	1.93	56.43	0.29	0.04	3.35	4.50	1.21
CA1	17.98	0.08	1.03	1.98	58.00	0.31	0.04	3.40	4.60	1.27
CA2	17.66	0.09	1.02	1.81	57.05	0.32	0.04	3.38	4.56	1.18
CA2	17.49	0.09	1.01	1.75	56.56	0.29	0.04	3.39	4.55	1.11
CA3	17.57	0.12	0.96	2.41	56.40	0.36	0.05	3.39	4.51	1.05
CA3	17.61	0.11	0.98	2.44	56.12	0.30	0.05	3.36	4.59	1.14
CA4	17.64	0.19	0.95	1.96	56.54	0.30	0.04	3.30	4.52	1.06
CA4	17.83	0.24	0.94	1.92	57.10	0.24	0.04	3.38	4.61	1.09
CE1	17.65	0.11	1.05	1.99	56.99	0.29	0.04	3.44	4.50	1.49
CE1	17.56	0.09	1.01	1.97	56.41	0.27	0.04	3.36	4.52	1.38
CE2	17.38	0.07	1.00	1.86	55.81	0.28	0.04	3.46	4.33	1.16
CE2	17.68	0.07	1.01	1.89	56.70	0.24	0.04	3.54	4.40	1.10
CE3	17.59	0.11	0.97	1.89	55.54	0.42	0.04	3.33	4.38	1.05
CE3	17.84	0.09	0.99	1.91	56.42	0.33	0.04	3.40	4.41	1.05

Tabla 7.2
Resultados de los análisis químicos por FRX de las bentonitas estudiadas (continuación).

REF	Al ₂ O ₃ %	P ₂ O ₅ %	K ₂ O %	CaO %	SiO ₂ %	TiO ₂ %	MnO %	Fe ₂ O ₃ %	MgO %	Na ₂ O %
CE4	17.87	0.13	1.02	1.88	56.63	0.48	0.04	3.30	4.47	1.09
CE4	17.50	0.13	1.01	1.83	55.50	0.47	0.04	3.24	4.40	1.10
IA1	17.37	0.07	1.00	1.86	56.07	0.21	0.04	3.36	4.49	1.19
IA1	17.31	0.06	1.00	1.91	56.03	0.20	0.04	3.37	4.49	1.25
IA2	17.42	0.06	0.92	1.88	55.78	0.19	0.04	3.34	4.51	1.18
IA2	17.42	0.08	0.92	1.87	55.63	0.21	0.04	3.33	4.47	1.16
IA3	17.52	0.12	0.95	1.81	55.33	0.23	0.04	3.28	4.51	1.08
IA3	17.21	0.09	0.94	1.81	55.50	0.26	0.04	3.25	4.42	1.04
IA4	17.31	0.11	1.02	1.80	55.77	0.38	0.04	3.27	4.33	1.08
IA4	17.25	0.10	1.01	1.79	55.53	0.39	0.04	3.25	4.33	1.07
IB1	17.56	0.14	0.96	1.80	56.40	0.23	0.04	3.39	4.58	1.38
IB1	17.49	0.09	0.97	1.79	56.43	0.25	0.04	3.37	4.59	1.42
IB2	17.61	0.10	1.02	1.97	56.01	0.23	0.04	3.38	4.51	1.30
IB2	17.54	0.07	1.03	1.95	56.00	0.25	0.04	3.40	4.49	1.32
IB3	17.41	0.08	1.01	1.89	56.30	0.31	0.04	3.27	4.57	1.20
IB3	17.39	0.08	1.00	1.88	56.49	0.30	0.04	3.28	4.59	1.24
IB4	17.37	0.10	0.98	1.94	55.90	0.32	0.04	3.30	4.47	1.25
IB4	17.32	0.09	0.99	1.93	56.07	0.32	0.04	3.30	4.44	1.24
IE1	17.31	0.10	0.95	1.93	55.70	0.24	0.04	3.28	4.51	1.30
IE1	17.31	0.08	0.94	1.87	55.27	0.26	0.04	3.26	4.50	1.27
IE2	17.37	0.10	0.98	2.01	56.46	0.24	0.04	3.34	4.53	1.34
IE2	17.54	0.15	0.96	2.01	56.67	0.27	0.04	3.34	4.46	1.32
IE3	17.52	0.10	1.13	1.79	56.29	0.25	0.04	3.29	4.41	1.27
IE3	17.41	0.09	1.13	1.78	56.24	0.38	0.04	3.25	4.38	1.33
IE4	17.58	0.08	0.98	1.91	55.96	0.22	0.04	3.35	4.40	1.22
IE4	17.40	0.08	0.97	1.86	55.32	0.28	0.04	3.29	4.36	1.21
IF1	17.39	0.08	1.00	1.84	55.55	0.25	0.04	3.30	4.48	1.36
IF1	17.50	0.08	1.00	1.85	55.61	0.28	0.04	3.28	4.51	1.39
IF2	17.50	0.08	0.94	1.81	55.97	0.26	0.04	3.34	4.55	1.35
IF3	17.32	0.16	0.98	1.89	55.69	0.31	0.04	3.27	4.38	1.27
IF3	17.38	0.10	0.99	1.89	55.87	0.27	0.04	3.31	4.40	1.34
IF4	17.55	0.09	0.96	1.95	55.82	0.33	0.04	3.33	4.46	1.26

Tabla 7.3
Contenido en carbonato expresado en forma de calcita para las bentonitas estudiadas.

Referencia	% Calcita
RA-1	0.21
RA-2	0.46
RA-3	0.48
RA-4	0.68
CA-1	0.34
CA-2	0.3
CA-3	1.71
CA-4	1.13
CE-1	0.09
CE-2	0.29
CE-3	0.77
CE-4	0.38
IA-1	0.13
IA-2	0.08
IA-3	0.71
IA-4	0.34
IB-1	0.09
IB-2	0.24
IB-3	0.34
IB-4	0.39
IE-1	0.28
IE-2	0.48
IE-3	0.3
IE-4	0.6
IF-1	0.09
IF-2	0.38
IF-3	0.49
IF-4	0.39

A fin de verificar la existencia de cambios en la composición química de las bentonitas, se procedió a calcular la distribución de cationes, tomando como base una fórmula estructural con un contenido aniónico $O_{20} \cdot (OH)_4$. Tras la transformación de los resultados de los análisis químicos, se representaron el número total de cationes por celda en un diagrama ternario $M^+ - 4Si - R^{2+}$, (Meunier *et al.*, 1992). El vértice M^+ representa el número de cationes de K, Na y 2 veces el Ca. El vértice $4Si$ representa el número de cationes de Si dividido por 4 y el vértice R^{2+} representa el número de cationes de Fe^{2+} y Mg.

El uso del diagrama $M^+ - 4Si - R^{2+}$ permite observar la evolución de la carga laminar de las esmectitas, así como definir su composición mineralógica.

La Fig 7.3. muestra la representación de los datos químicos de las bentonitas en el diagrama ternario $M^+ - 4Si - R^{2+}$. En dicho diagrama se han incluido los campos de estabilidad de la beidellita de baja carga, beidellita de alta carga, montmorillonita de baja carga y montmorillonita de alta carga. Asimismo se ha incluido el polo illítico que corresponde a

un interstratificado de 95% de illita y 5 % de esmectita. De la representación de las muestras estudiadas se infiere que todas las muestras presentan composiciones muy similares, hallándose agrupadas en el campo de estabilidad de la montmorillonita de alta carga. Consecuentemente, se puede descartar que la circulación de fluidos en las presentes condiciones de irradiación y calentamiento conlleve fenómenos de illitización o beidellitización.

Los resultados obtenidos han sido comparados con los experimentos de alteración hidrotermal realizados sobre la misma bentonita y con los experimentos de irradiación realizados en la bentonita MX-80. Estas bentonitas, en contacto con soluciones enriquecidas en KCl, (entre 0.2 y 1M), y a temperaturas superiores a 60 °C, no presentan indicios de transformación de la montmorillonita a illita, tal como se deduce de los análisis químicos de Linares *et al.*, (1996). En cambio, la irradiación de la bentonita MX-80, produjo la disminución de los contenidos en Na_2O en las muestras irradiadas con respecto a las calentadas y a las de referencia. Dicha característica fue atribuida a la disolución de los feldspatos, (Pusch *et al.*, 1993).

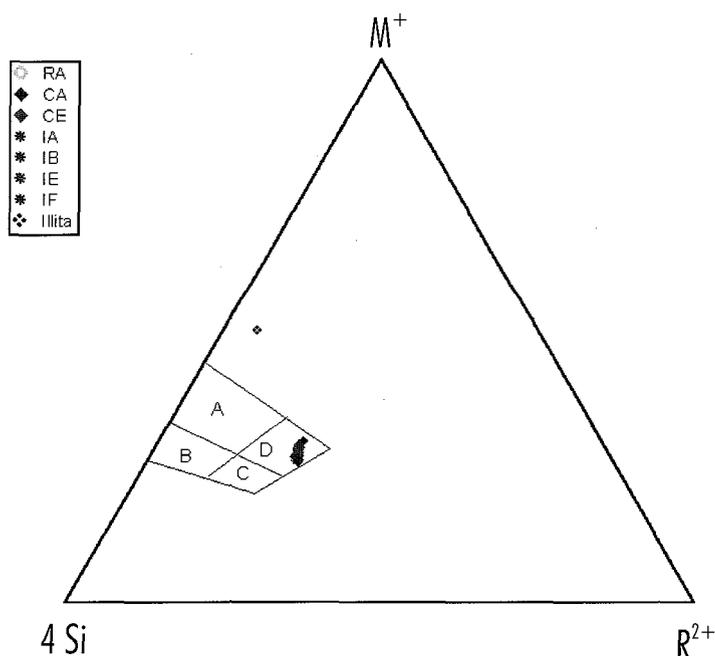


Figura 7.3. Representación en el sistema ternario $M^+ - 4Si - R^{2+}$ de la composición química de las bentonitas estudiadas. El campo de estabilidad A corresponde a la beidellita de carga alta, el B a la beidellita de carga baja, el C a la montmorillonita de carga baja y el D a la montmorillonita de carga alta.

7.2 Sistema bentonita-agua

7.2.1 Contenido en agua

La distribución del agua en las muestras de referencia no es homogénea, variando su contenido entre el 31% y el 20%. A pesar que se esperaba alcanzar la saturación teórica del 24 % en toda la muestra, se ha detectado la existencia de un gradiente en el contenido de agua negativo desde el extremo inicial (31%) hasta el final (20%) del contenedor. Se ha considerado como inicio del contenedor el extremo por donde se procedió a la saturación de las muestras. Asimismo, en las muestras sometidas a irradiación y/o calentamiento, el inicio representa la bentonita sometida a la mayor tasa de dosis y/o temperatura.

En las muestras sometidas a ensayos de calentamiento, se observa la existencia de un gradiente en el contenido de agua positivo desde el extremo inicial (20 %) hasta el final (27 %) del contenedor. Dicho gradiente es coherente con el gradiente de temperatura, presentando mayor cantidad de agua las zonas más frías (90 °C) y menor las más calientes (130 °C). Este gradiente es inverso al existente

en las muestras de referencia lo que indica la presencia de termodifusión durante el ensayo (Fig 7.4.).

También en las muestras sometidas a irradiación y calentamiento, presentan el mismo gradiente en el contenido de agua positivo desde el extremo inicial (entre 18% y 22%) hasta el final (entre 26% y 32%) del contenedor (Fig 7.5.). Dicho gradiente es idéntico al observado en el ensayo de calentamiento, presentando también mayor cantidad de agua las zonas más frías (90 °C) y menor las más calientes (130 °C). No se puede inferir que la radiación condicione los fenómenos de termodifusión durante el ensayo.

7.2.2 Condiciones redox y de pH

Para cada muestra se han realizado tres determinaciones tanto del Eh como del pH. Las condiciones de partida redox, medidas en las bentonitas de referencia, muestran que ésta se encuentra en medio oxidante, (Eh entre +260 y +290 mV), presentando unas pequeñas variaciones locales.

La evolución del Eh promedio tanto en la muestra de referencia como en las que han sido sometidas a calentamiento durante 2 y 4 meses se muestra en la Fig 7.6. Tanto en una como en las otras se ha

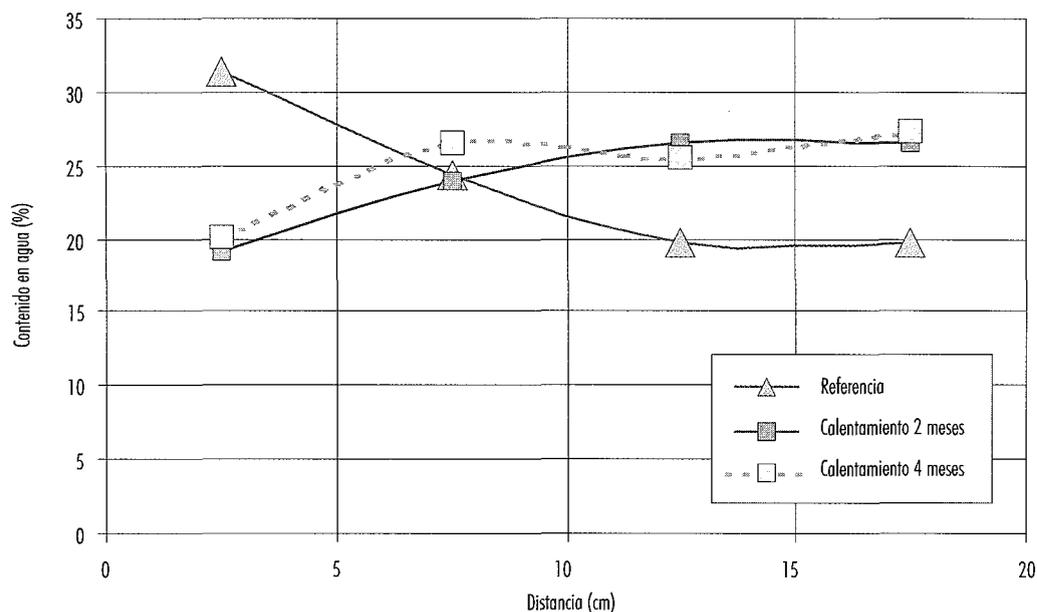


Figura 7.4. Evolución del contenido en agua a lo largo de los cilindros de bentonita de referencia y calentadas.

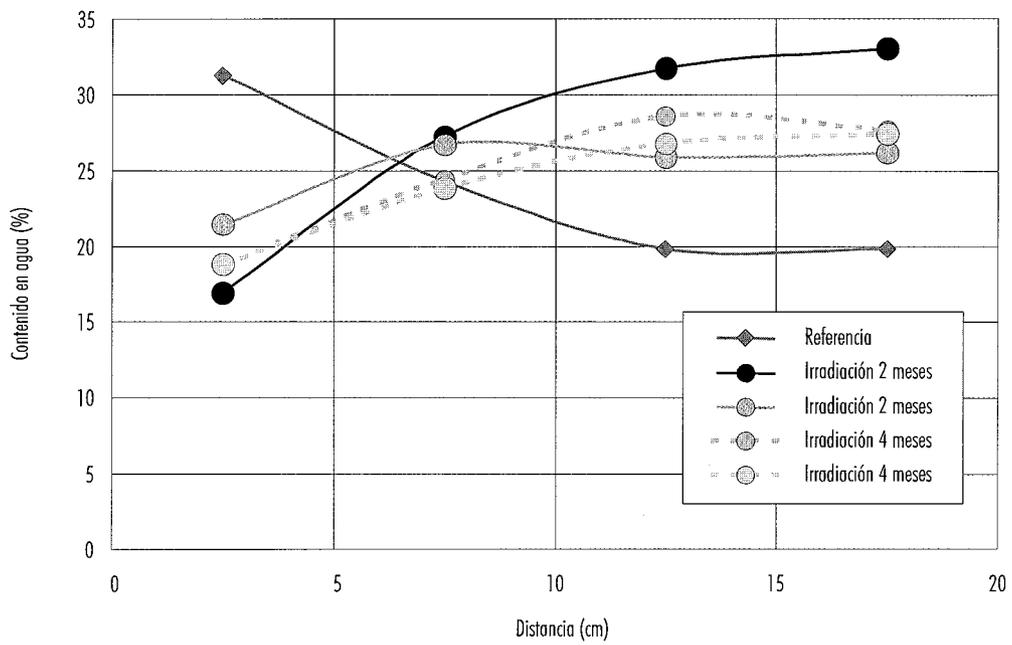


Figura 7.5. Evolución del contenido en agua a lo largo de los cilindros de bentonita de referencia e irradiados.

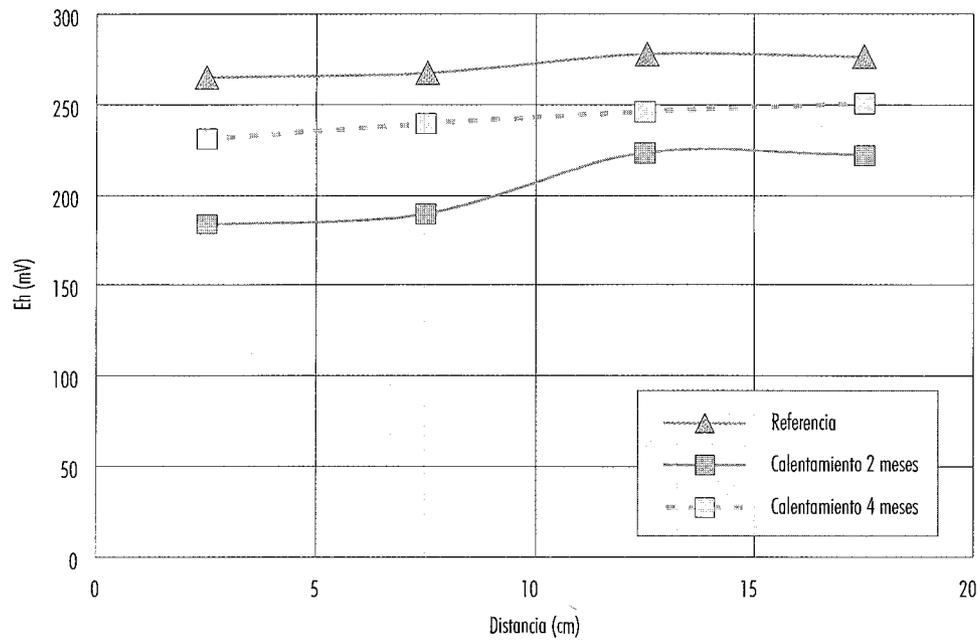


Figura 7.6. Evolución del Eh a lo largo de los cilindros de bentonita de referencia y calentadas.

detectado un ligero aumento del Eh hacia el final del cilindro. Asimismo se observa como el Eh tiende a disminuir en condiciones de calentamiento, manteniéndose no obstante la bentonita en medio oxidante, (Eh entre +180 y +230 mV). Por otro lado, la Fig 7.7. muestra la evolución del Eh promedio tanto en la muestra de referencia como en las que han sido sometidas a irradiación y calentamiento durante 2 y 4 meses. En las muestras sometidas a irradiación de 2 meses el Eh tiende a disminuir con respecto a la muestra de referencia, manteniéndose no obstante la bentonita en estado oxidante, (Eh entre +200 y +260 mV). En las muestras sometidas a irradiación de 4 meses, la muestra mas cercana a la interfase acero-bentonita presenta un aumento del Eh (en torno a +290 mV) mientras que en las muestras más alejadas el Eh es ligeramente inferior al de las muestras de referencia (en torno a +250 mV).

En lo que respecta al pH de las muestras de referencia, se ha detectado la existencia de un gradiente negativo desde el inicio (6.6) hasta el final (5.7) del cilindro de bentonita, similar al existente para el contenido en agua. La buena correlación del contenido en agua con los valores de pH sugiere, que

éste tiende a la acidificación cuando la cantidad de agua en la bentonita es menor. Los valores de pH oscilan entre 5.7 y 6.6. En las muestras sometidas a calentamiento, se observa la existencia de un gradiente positivo del pH promedio desde el inicio (5.1) hasta el final (6.6) del cilindro (ver Fig 7.8.). Dicho gradiente es inverso al existente en las muestras de referencia. Finalmente, las muestras sometidas a irradiación y calentamiento, presentan el mismo gradiente positivo del pH promedio desde el extremo inicial (3.5) hasta el final (6.8) del contenedor (ver Fig 7.9.) que el observado en el ensayo de calentamiento. No obstante, en la muestra mas cercana a la interfase acero-bentonita se observa un notable descenso del pH. Dicho descenso hay que atribuirlo a la escasa cantidad de agua de la bentonita y a un efecto adicional de acidificación inducido por la radiación.

Los resultados de cada una de las medidas realizadas tanto para el Eh como para el pH de las muestras de bentonita se muestran en la Tabla 7.4.

Del análisis de resultados, se deduce que en las actuales condiciones experimentales, se forma un frente ácido en la bentonita debido a la migración del agua en la zona cercana a la fuente de calor.

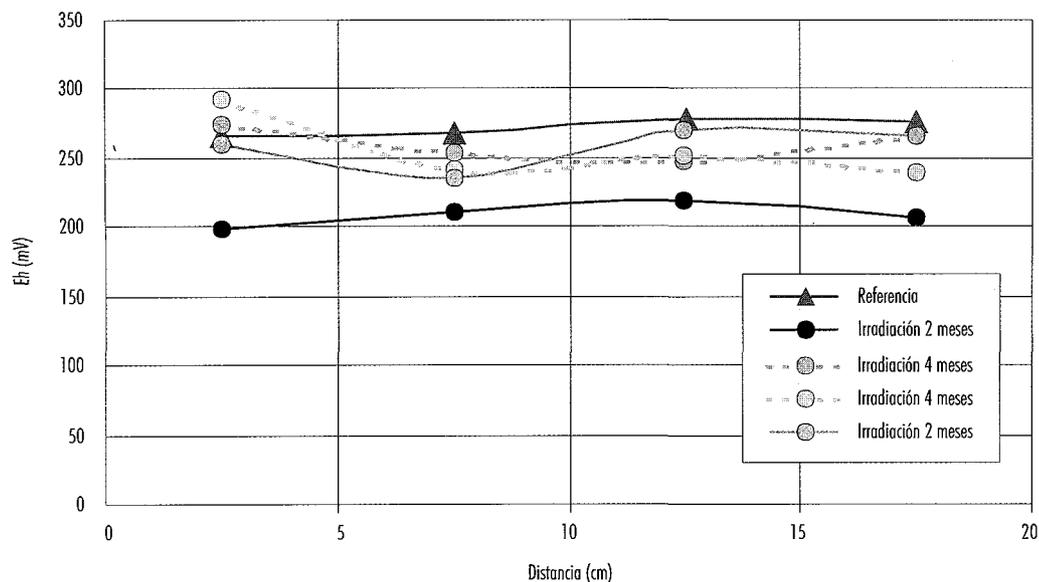


Figura 7.7. Evolución del Eh a lo largo de los cilindros de bentonita de referencia e irradiados.

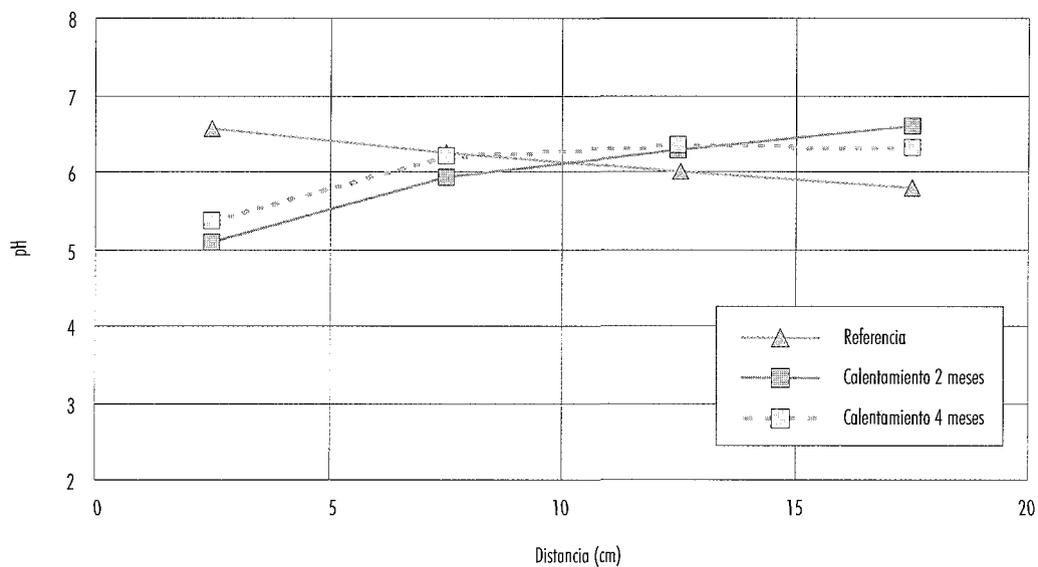


Figura 7.8. Evolución del pH a lo largo de los cilindros de bentonita de referencia y calentadas.

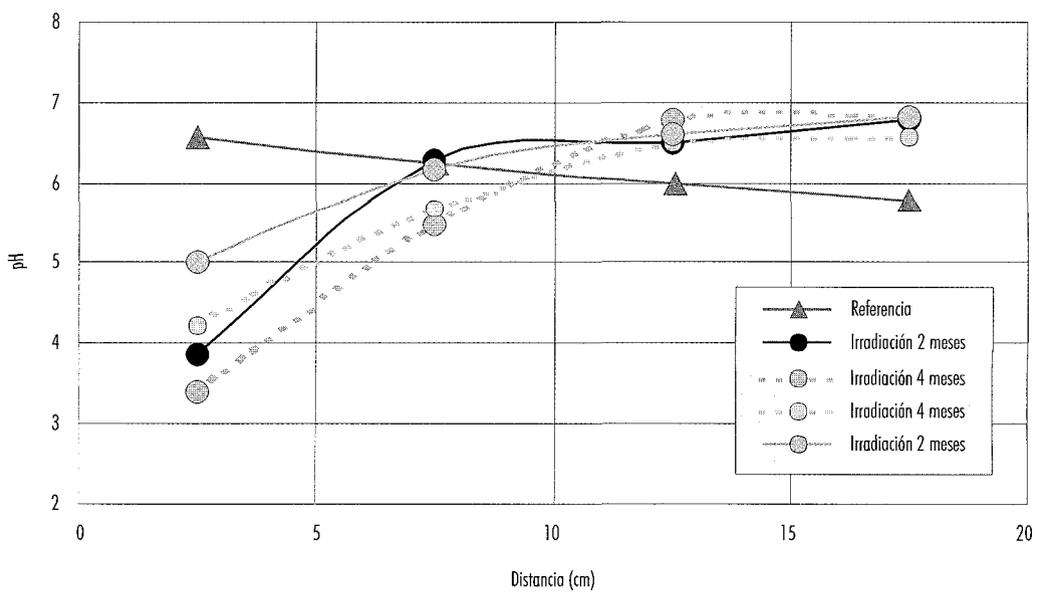


Figura 7.9. Evolución del pH a lo largo de los cilindros de bentonita de referencia e irradiadas.

Tabla 7.4
Resultados de los análisis de Eh y pH así como sus promedios en las bentonitas estudiadas.

Muestra	Eh (mV)				pH			
	1	2	3	media	1	2	3	media
RA1	262	261	273	265	6.56	6.51	6.61	6.56
RA2	259	268	276	268	6.12	6.24	6.40	6.25
RA3	266	278	290	278	5.99	6.00	6.02	6.00
RA4	265	290	275	277	5.76	5.77	5.81	5.78
CA1	184	182	186	184	5.10	5.09	5.09	5.09
CA2	184	192	194	190	5.90	5.78	6.10	5.93
CA3	220	226	224	223	6.21	6.33	6.25	6.26
CA4	215	225	226	222	6.56	6.60	6.62	6.59
CE1	232	228	234	231	5.30	5.39	5.41	5.37
CE2	235	238	246	240	6.19	6.28	6.15	6.21
CE3	240	248	251	246	6.28	6.39	6.35	6.34
CE4	242	250	260	251	6.29	6.39	6.30	6.33
IA1	195	190	210	198	3.83	3.79	3.94	3.85
IA2	210	207	217	211	6.12	6.27	6.46	6.28
IA3	223	224	207	218	6.30	6.60	6.56	6.49
IA4	198	202	220	207	6.82	6.77	6.80	6.80
IB1	253	260	265	259	4.83	4.94	5.23	5.00
IB2	231	235	241	236	6.05	6.22	6.30	6.19
IB3	266	275	268	270	6.65	6.66	6.54	6.62
IB4	267	258	273	266	6.82	6.86	6.79	6.82
IE1	280	276	269	275	3.43	3.33	3.40	3.39
IE2	243	262	257	254	5.51	5.44	5.39	5.45
IE3	244	252	248	248	6.58	6.89	6.86	6.78
IE4	260	267	270	266	6.82	6.69	7.00	6.84
IF1	293	289	294	292	4.10	4.28	4.30	4.23
IF2	247	239	240	242	5.56	5.61	5.87	5.68
IF3	245	260	248	251	6.33	6.51	6.65	6.50
IF4	235	250	232	239	6.52	6.55	6.65	6.57

Asimismo, en el contacto bentonita-acero, en presencia del campo de radiación γ , tiene lugar un aumento del potencial redox y una acidificación del pH.

7.3 Propiedades de la bentonita

7.3.1 Capacidad de Cambio Catiónico

La capacidad de cambio catiónico de la bentonita de referencia se encuentra en torno a 125 meq/100 g. Dicho valor es ligeramente superior al determinado, (en torno a 110 meq/100 g), por otros grupos en el experimento FEBEX (Villar *et al.*, 1998).

Las muestras que han estado sometidas a calentamiento durante 2 meses muestran valores de capacidad de cambio catiónico similares a los de las muestras de referencia. No obstante, en las muestras sometidas a calentamiento durante 4 meses se detectan cambios significativos, decreciendo la capacidad de cambio catiónico de 125 a 115 meq/100 g. La Fig 7.10. muestra la evolución de la capacidad de cambio catiónico tanto en la muestra de referencia como en las que han sido sometidas a calentamiento durante 2 y 4 meses.

Por otro lado, las muestras que han estado sometidas a irradiación y calentamiento durante 2 meses muestran valores menores en la capacidad de cambio catiónico que los medidos en las muestras de referencia. Dicho fenómeno se magnifica en las muestras que han estado sometidas a irradiación y calentamiento durante 4 meses. En este último caso, la capacidad de cambio catiónico decrece de 125 a 95 meq/100 g. No se ha podido detectar ninguna variación debido a las distintas temperaturas o dosis, dependiendo exclusivamente del tiempo de experimentación. La Fig 7.11. muestra la evolución de la capacidad de cambio catiónico tanto en la muestra de referencia como en las que han sido sometidas a irradiación y calentamiento durante 2 y 4 meses.

En las muestras de referencia los valores de los cationes de cambio mayoritarios son de 47 meq/100 g para el Ca^{2+} , de 33 meq/100 g para el Mg^{2+} y de 30 meq/100 g para el Na^+ . El K^+ (2 meq/100 g) se encuentra poco adsorbido en las bentonitas. Asimismo, las muestras que han estado sometidas a calentamiento durante 2 meses, presentan valores de cationes de cambio mayoritarios similares a los de las muestras de referencia. Sin embargo, en las

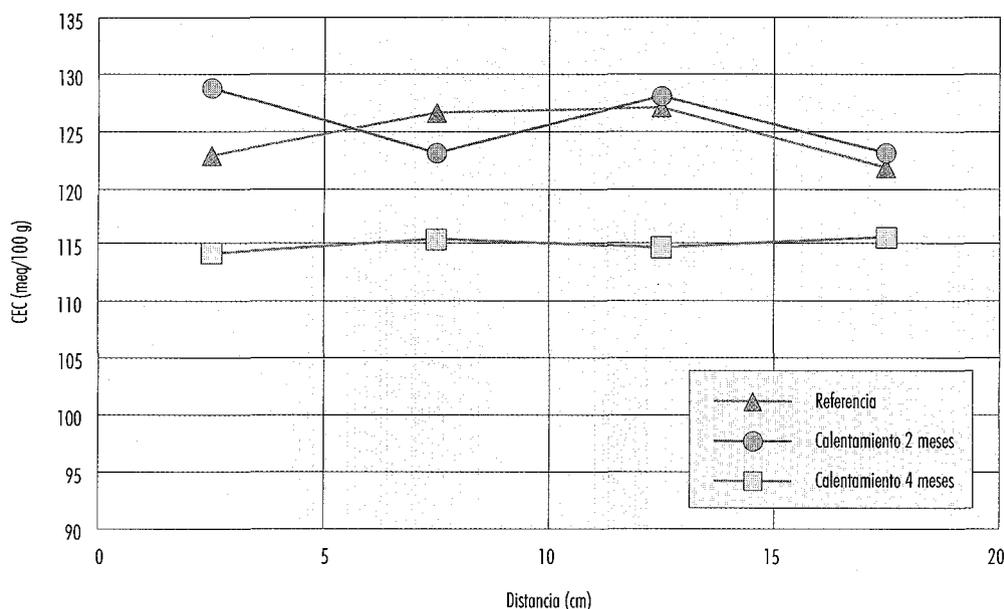


Figura 7.10. Evolución de la Capacidad de Cambio Catiónico (CEC) a lo largo de los cilindros de bentonita de referencia y calentadas.

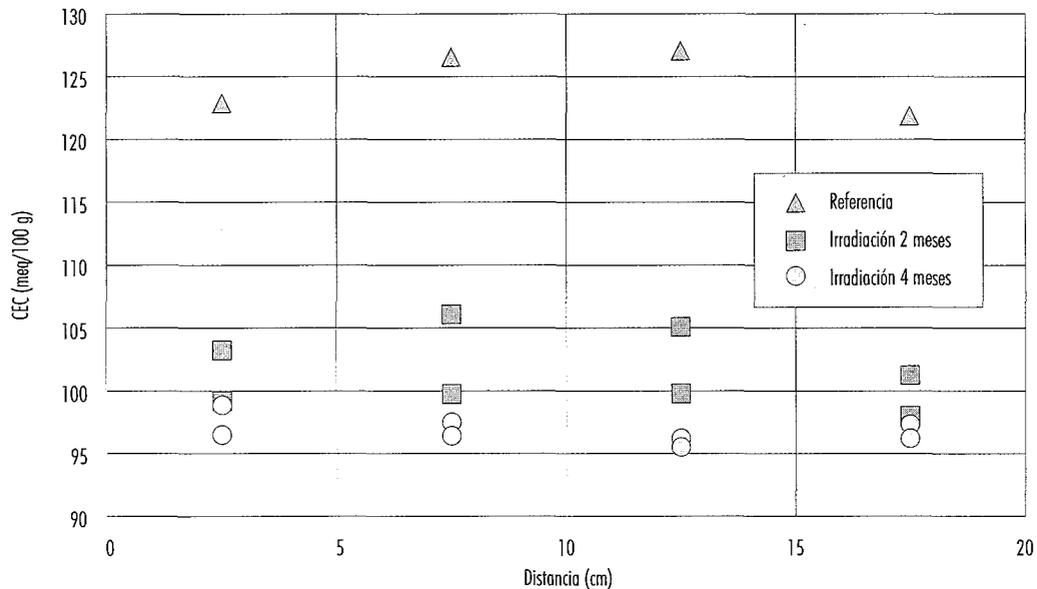


Figura 7.11. Evolución de la Capacidad de Cambio Catiónico (CEC) a lo largo de los cilindros de bentonita de referencia e irradiadas.

muestras sometidas a calentamiento durante 4 meses, así como en todas las muestras sometidas a irradiación y calentamiento se detectan los siguientes cambios. El Ca^{2+} disminuye, (de 47 a 37 meq/100 g), y el K^{+} aumenta, (de 2.0 a 4.0 meq/100 g). Finalmente, el comportamiento de Mg^{2+} y Na^{+} es antitético. El Na^{+} tiende a estar más adsorbido en las muestras sometidas a temperatura mayor de 115 °C, (de 24 a 38 meq/100 g), mientras que el Mg^{2+} tiende a estar empobrecido, (de 38 a 28 meq/100 g). En las muestras que han estado a temperaturas entre 90 °C y 115 °C, el comportamiento es a la inversa. Los valores de la capacidad de cambio catiónico así como de los cationes de cambio mayoritario de todas las muestras se encuentran en la Tabla 7.5.

La evolución de la capacidad de cambio catiónico muestra que esta propiedad es muy variable, dependiendo de las condiciones experimentales. Si ya el efecto del calentamiento favorece su disminución, éste es más acusado en presencia del campo de radiación gamma. La disminución de la capacidad de cambio catiónico en estas bentonitas ya fue descrita por Pusch *et al.*, (1996). Dichos autores observaron como la bentonita en contacto con el agua granítica de referencia sueca, (Finnsjö; Fors-

mark), y a temperaturas superiores a 70 °C, presentaba disminuciones de la capacidad de cambio catiónico similar a la medida en el experimento de calentamiento BIC-2A. En cambio, la irradiación de la bentonita MX-80, se traducía en un aumento de su capacidad de cambio, (Pusch *et al.*, 1993). En dicho experimento, se determinó que el proceso dominante de transformación era el descenso de la concentración del catión de cambio mayoritario Na^{+} , debido a la adsorción del catión Ca^{2+} durante la irradiación.

7.3.2 Propiedades mecánicas

Los ensayos de hinchamiento bajo carga de 0.5 MPa realizados sobre las muestras de referencia presentan valores que oscilan entre 16% y 18%, (Fig 6.3.). Estos valores están en consonancia con los obtenidos en el proyecto FEBEX, (Villar *et al.*, 1998). Las diferencias observadas son aparentemente aleatorias, ya que no se ha detectado ningún tipo de control por parte de la densidad de la muestra ni de su mineralogía. En las muestras sometidas a calentamiento los valores oscilan entre 14% y 17% de hinchamiento bajo carga de 0.5 MPa, siendo ligeramente menores a los de las muestras de referencia.

Tabla 7.5
Capacidad de cambio catiónico y cationes de cambio en las bentonitas estudiadas.

REF	CEC (meq/100g)	Ca ²⁺ (meq/100g)	Mg ²⁺ (meq/100g)	Na ⁺ (meq/100g)	K ⁺ (meq/100g)
RA1	122.9	45.3	32.6	27.9	2.1
RA2	126.6	49.3	32.7	30.7	2.1
RA3	127.0	48.1	33.4	30.4	2.0
RA4	121.8	47.9	32.1	29.6	1.9
CA1	128.8	47.3	29.8	33.6	2.0
CA2	123.1	49.9	29.8	32.4	2.3
CA3	128.1	59.7	31.7	27.8	2.1
CA4	123.1	49.4	31.9	28.5	2.0
CE1	114.2	36.5	28.1	41.0	2.4
CE2	115.4	39.2	28.6	30.2	2.6
CE3	114.7	37.3	30.2	28.2	2.3
CE4	115.5	35.7	31.6	28.1	2.5
IA1	103.2	44.7	27.5	38.4	3.8
IA2	106.1	45.5	28.4	35.5	3.9
IA3	105.1	47.1	29.1	32.1	3.6
IA4	101.2	50.5	28.7	28.5	4.0
IB1	99.2	35.2	31.4	29.6	2.8
IB2	99.8	39.2	32.8	26.0	2.5
IB3	99.8	38.0	37.7	24.9	2.9
IB4	98.0	38.5	38.3	24.8	2.9
IE1	98.9	38.0	32.7	27.4	2.7
IE2	97.5	39.3	35.1	27.8	3.0
IE3	96.2	36.8	37.1	24.4	3.0
IE4	97.3	38.3	38.6	24.2	2.9
IF1	96.5	36.8	34.3	28.1	2.8
IF2	96.4	37.5	35.0	27.5	3.0
IF3	95.5	38.5	36.8	25.3	3.0
IF4	96.2	38.5	38.4	24.9	3.0

En cambio, en las muestras sometidas a irradiación y calentamiento, los valores de hinchamiento oscilan entre el 12% y 18%. Se ha podido constatar la presencia de un hinchamiento diferencial en la bentonita, siendo el hinchamiento menor en la zona próxima a la fuente de irradiación (Fig 7.12.). En cambio, las muestras mas alejadas de la fuente de irradiación presentan hinchamientos similares a los de las bentonitas de referencia.

Los ensayos de consolidación bajo carga de 1.5 MPa en las muestras de referencia, se han traducido en deformaciones de la bentonita del orden del 5% (Fig 6.4.). Dichas deformaciones corresponden a módulos edométricos entre 22 y 28 MPa. La conductividad hidráulica que se deriva del ensayo de consolidación oscila entre $1.5 \cdot 10^{-13}$ y $7.8 \cdot 10^{-14}$ m/s, mientras que la consolidación secundaria, que se inicia en torno a las 13 horas, presenta coeficientes que varían entre $2.3 \cdot 10^{-3}$ y $3.2 \cdot 10^{-3}$. Los valores de conductividad hidráulica están en consonancia con los del proyecto FEBEX, mientras que los valores del módulo edométrico son ligeramente inferiores. Se ha podido verificar que la presencia de calcita, probablemente como cemento, es responsable del aumento del módulo edométrico y de la disminución del coeficiente de consolidación secundaria y de la

conductividad hidráulica de la bentonita entre las diferentes muestras. La densidad de la bentonita afecta del mismo modo a las propiedades mecánicas (módulo edométrico y coeficiente de consolidación secundaria) pero no a la conductividad hidráulica de la bentonita.

Las muestras sometidas a calentamiento, presentan módulos edométricos ligeramente superiores a los de las bentonitas de referencia, oscilando éstos entre 29 y 43 Mpa.

Gran parte de la variabilidad en el módulo edométrico es atribuible a la densidad de la muestra, aumentando éste en las muestras mas densas. La conductividad hidráulica que se deriva del ensayo de consolidación es similar a la de las muestras de referencia y oscila entre $1.8 \cdot 10^{-13}$ y $7.2 \cdot 10^{-14}$ m/s. Sin embargo, se observa que las muestras que han estado sometidas a temperaturas mas altas presentan conductividades hidráulicas ligeramente superiores. La consolidación secundaria, que presenta coeficientes similares a los de las muestras de referencia (entre $1.6 \cdot 10^{-3}$ y $3.2 \cdot 10^{-3}$), es el único parámetro que presenta un control mineralógico. Un mayor contenido en calcita es responsable de la disminución del coeficiente de consolidación secundaria.

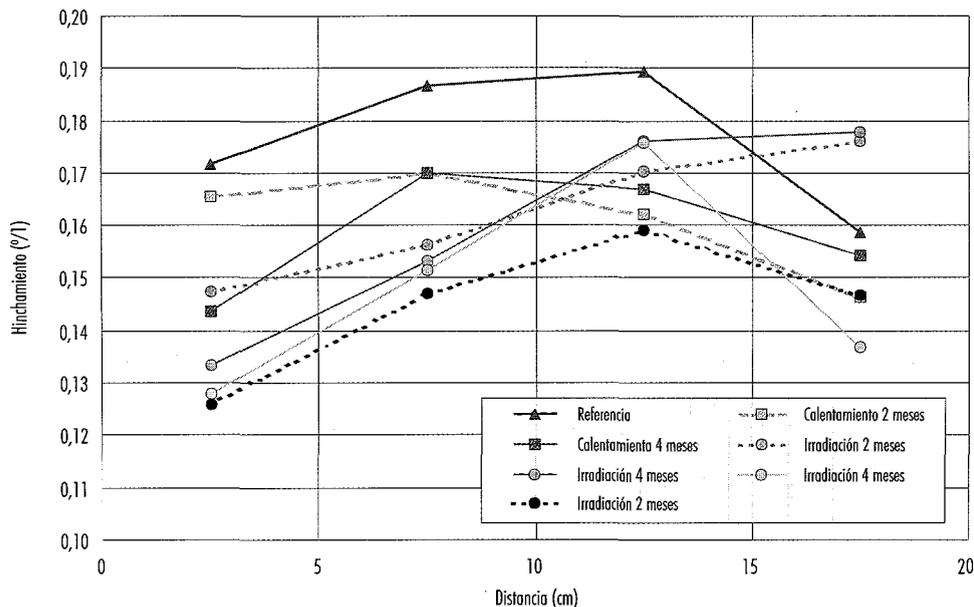


Figura 7.12. Evolución de la capacidad de hinchamiento a lo largo de los cilindros de bentonita.

También en las muestras sometidas a irradiación y calentamiento, la variabilidad en el módulo edométrico es atribuible a la densidad de las mismas, aumentando éste en las muestras más densas. No obstante, sus módulos edométricos son inferiores a los de sus homólogas sometidas solo a calentamiento (entre 18 y 33 MPa). La conductividad hidráulica es ligeramente superior a la de las muestras calentadas, variando entre $3.4 \cdot 10^{-13}$ y $7.3 \cdot 10^{-14}$ m/s. Por otro lado, la variabilidad del coeficiente de consolidación secundaria es más acusada que en las muestras de referencia y en las muestras sometidas a calentamiento. Estos oscilan entre $8.4 \cdot 10^{-4}$ y $5.2 \cdot 10^{-3}$, presentando buena correlación negativa con la densidad de la muestra. La Tabla 7.6. presenta los valores de los parámetros geomecánicos más relevantes de las bentonitas estudiadas.

A lo largo de la ejecución de los ensayos en edómetro se ha detectado en algunas muestras la presencia de eflorescencias atribuibles a la presencia de sulfatos, aunque la existencia de estas sales no influye en ninguna propiedad geomecánica. En general, se observa como la capacidad de hinchamiento disminuye en las muestras sometidas a mayor temperatura. Este fenómeno se magnifica en presencia del campo de irradiación gamma. Del mismo modo, para temperaturas superiores a 120 °C existe un ligero aumento de la conductividad hidráulica. Finalmente, el módulo edométrico aumenta en las muestras calentadas con respecto a las de referencia.

Algunas de estas características ya fueron reconocidas en los experimentos de alteración hidrotermal realizados sobre la misma bentonita y en los experimentos de irradiación realizados en la bentonita MX-80. Pusch *et al.*, (1996) observaron como esta bentonita en contacto con el agua granítica de referencia sueca (Finnsjön; Forsmark) y a temperaturas superiores a 70 °C, presentaba un aumento significativo de la conductividad hidráulica en un orden de magnitud respecto a las muestras de referencia. La comparación entre experimentos es en este caso algo difícil. Los valores de conductividad hidráulica para las muestras de referencia muestran diferencias de tres órdenes de magnitud entre los valores obtenidos por estos autores y las de los experimentos BIC-2A.

En los experimentos de irradiación de la bentonita MX-80 (Pusch *et al.*, 1993), se detectó un ligero aumento de la conductividad hidráulica en las muestras irradiadas y calentadas, coherente con los valores de los experimentos BIC-2B. Otro hecho a destacar fue la menor deformabilidad (que se traduciría en un mayor módulo edométrico) en las muestras más ca-

lentadas con respecto a las de referencia. Finalmente, se detectaron comportamientos desiguales en los hinchamientos, aunque sin poderse observar ninguna tendencia.

7.4 Generación de defectos cristalinos en la bentonita

7.4.1 Determinación de los defectos cristalinos por ESR

En las muestras de referencia, la intensidad de la banda espectral de 348 mT, correspondiente a las resonancias de los defectos cristalinos, es un orden de magnitud superior en la fracción gruesa (entre $2.8 \cdot 10^{-4}$ y $5.8 \cdot 10^{-4}$ unidades arbitrarias (u.a.)) que en la fracción arcillosa (entre $1.5 \cdot 10^{-5}$ y $9.5 \cdot 10^{-5}$ u.a.). Dicha magnitud corresponde a los defectos preexistentes generados en el pasado geológico. Al ser la muestra total la suma de las dos fracciones, aquella presenta una concentración intermedia.

La intensidad de la banda espectral de 348 mT de las muestras sometidas al ensayo de calentamiento es similar a la de las muestras de referencia. En la fracción gruesa oscila entre $1.7 \cdot 10^{-4}$ y $9.5 \cdot 10^{-4}$ u.a. y en la fracción arcillosa entre $1.6 \cdot 10^{-5}$ y $1.3 \cdot 10^{-4}$ u.a. Dicha similitud confirma que los defectos cristalinos, tanto los presentes en la montmorillonita como en las fases accesorias, son estables a temperaturas reales de Almacenamiento Geológico Profundo.

Los espectros de las muestras sometidas a irradiación y calentamiento muestran que la irradiación induce a un aumento en la concentración de los defectos preexistentes. En la fracción arcillosa, la intensidad de la banda espectral de 348 mT de las muestras aumenta en un orden de magnitud (entre $1.5 \cdot 10^{-4}$ y $5.8 \cdot 10^{-4}$ u.a.) con respecto a las muestras de referencia. Se ha observado como en general un aumento de la dosis conlleva un aumento de la concentración de los defectos.

En la fracción gruesa el efecto de la irradiación no se percibe tan claramente ya que solo algunas muestras sobrepasan los valores de fondo (entre $1 \cdot 10^{-4}$ y $1 \cdot 10^{-3}$ u.a.). Las muestras anómalas presentan valores entre $1.2 \cdot 10^{-3}$ y $8.6 \cdot 10^{-3}$ u.a. Dicho efecto se suele detectar en muestras que presentan temperaturas entre 100 °C y 110 °C. La evolución de la concentración de los defectos en función de la dosis se muestra en la Fig 7.13. Los datos de intensidades de las resonancias para todas las muestras estudiadas se encuentran en la Tabla 7.7.

Tabla 7.6
Parámetros geomecánicos de las bentonitas estudiadas obtenidos a partir de los ensayos de hinchamiento y consolidación.

Muestra	t (meses)	T (°C)	Dosis (MGy)	Densidad (g/cm ³)	Hinchamiento (o/l)	Em (MPa)	k (m/s)	C α
RA-1	0	20	0	1.634	0.1717	22.96	1.31E-13	3.24E-03
RA-2	0	20	0	1.654	0.1867	21.36	1.48E-13	2.76E-03
RA-3	0	20	0	1.628	0.1895	28.43	9.29E-14	2.82E-03
RA-4	0	20	0	1.663	0.1587	27.96	7.78E-14	2.34E-03
CA-1	2	125	0	1.673	0.1657	29.50	1.79E-13	3.20E-03
CA-2	2	115	0	1.676	0.1700	43.61	8.18E-14	1.72E-03
CA-3	2	105	0	1.646	0.1620	30.72	8.16E-14	1.86E-03
CA-4	4	95	0	1.658	0.1463	29.17	9.87E-14	2.01E-03
CE-1	4	125	0	1.655	0.1437	31.86	1.31E-13	1.86E-03
CE-2	4	115	0	1.635	0.1700	28.55	7.81E-14	2.73E-03
CE-3	4	105	0	1.649	0.1668	28.46	8.30E-14	1.56E-03
CE-4	4	95	0	1.649	0.1541	28.29	7.18E-14	2.94E-03
IA-1	2	125	4.5	1.641	0.1475	28.63	1.25E-13	1.37E-03
IA-2	2	115	3.5	1.632	0.1563	30.42	9.24E-14	1.70E-03
IA-3	2	105	2.7	1.636	0.1703	23.20	1.32E-13	8.45E-04
IA-4	2	95	2.1	1.631	0.1760	20.20	1.81E-13	4.31E-03
IB-1	2	125	4.9	1.631	0.1260	29.81	1.31E-13	2.10E-03
IB-2	2	115	3.8	1.631	0.1472	27.80	1.02E-13	3.08E-03
IB-3	2	105	3	1.627	0.1592	33.52	7.35E-14	2.57E-03
IB-4	2	95	2.2	1.616	0.1466	18.84	1.58E-13	5.19E-03
IE-1	4	125	9.4	1.641	0.1333	30.20	3.42E-13	3.42E-03
IE-2	4	115	7.4	1.635	0.1533	32.36	7.29E-14	2.11E-03
IE-3	4	105	6.2	1.639	0.1760	34.90	6.23E-14	2.89E-03
IE-4	4	95	4.5	1.626	0.1779	30.16	7.84E-14	3.92E-03
IF-1	4	125	9.4	1.612	0.1279	28.86	1.89E-13	2.63E-03
IF-2	4	115	7.4	1.626	0.1517	30.16	9.85E-14	3.64E-03
IF-3	4	105	6.2	1.625	0.1757	30.18	9.27E-14	2.33E-03
IF-4	4	95	4.5	1.632	0.1370	29.03	8.14E-14	1.82E-03

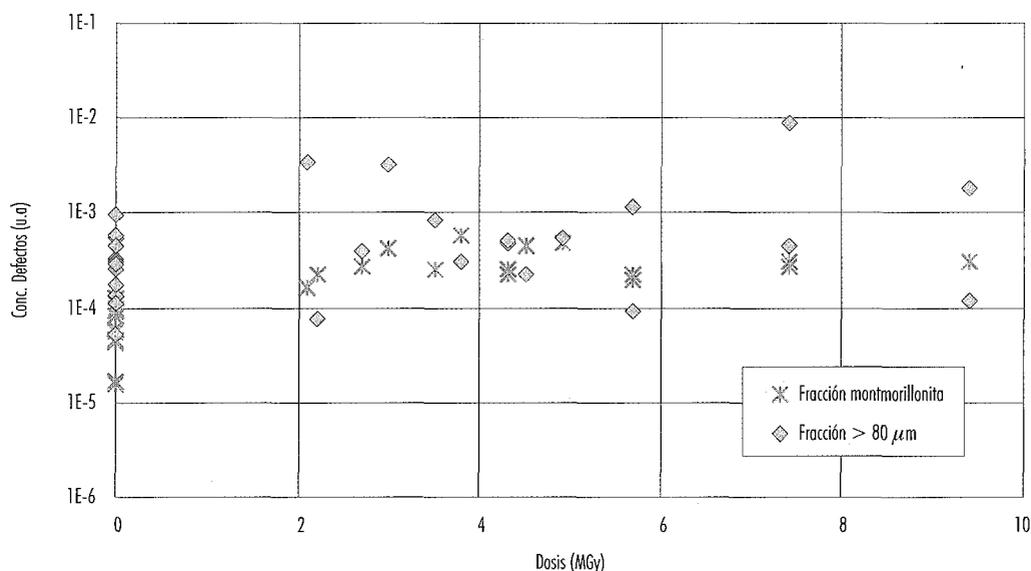


Figura 7.13. Evolución de la intensidad de ESR, para las dos fracciones granulométricas estudiadas, en función de la dosis.

Los resultados anteriormente expuestos están en consonancia con los obtenidos por Pusch *et al.*, (1993) en los experimentos de irradiación de la bentonita MX-80. Dichos autores determinaron que la radiación era responsable de un aumento indeterminado de la concentración de los defectos en la montmorillonita.

7.4.2 Análisis de la respuesta termoluminiscente

Los gráficos presentados en la Fig 7.14. muestran distintas curvas de emisión termoluminiscente obtenidas sobre la fracción fina de muestras de bentonita calentadas durante cuatro meses, (experimento BIC-2A). En el gráfico se presentan cuatro curvas, que se corresponden con cada una de las porciones en que se divide el cilindro de bentonita una vez completada la experiencia. La menor respuesta termoluminiscente se da para la muestra sometida a mayor temperatura, ($2.6 \cdot 10^3$ ctas/mg), mientras que muestras sometidas a temperaturas inferiores presentan respuestas termoluminiscentes algo mayores; el máximo valor corresponde a la muestra MCE-4, ($6.3 \cdot 10^3$ ctas/mg). Sin embargo, las disper-

siones asociadas a estos valores son muy considerables y no es posible afirmar, de forma definitiva, que haya diferencias significativas entre las distintas curvas. En tres de las cuatro curvas, el pico de emisión aparece cercano a los 390 °C. Los valores medios obtenidos son del mismo orden de magnitud que los hallados sobre las muestras de montmorillonita de referencia. Estos últimos están comprendidos entre $6.5 \cdot 10^2$ ctas/mg y $2.7 \cdot 10^3$ ctas/mg, con valores de la desviación típica de hasta un 60%. No existen, pues, indicios de que el calentamiento haya afectado a los centros de defectos en la montmorillonita de manera significativa.

La Fig 7.15. corresponde a la fracción gruesa de la bentonita calentada en la experiencia BIC-2A. Los valores de la respuesta termoluminiscente varían entre $2.4 \cdot 10^4$ ctas/mg y $4.6 \cdot 10^4$ ctas/mg. La respuesta va aumentando a medida que se exploran muestras sometidas a una temperatura menos elevadas y que han recibido dosis inferiores. Aproximadamente, este comportamiento también es seguido por las muestras enriquecidas en montmorillonita. Las muestras equivalentes de referencia, que no han sido irradiadas ni calentadas, presentan unos valores que se sitúan entre $4.7 \cdot 10^4$ ctas/mg y $9.2 \cdot 10^4$ ctas/mg. En este caso, el calentamiento de

Tabla 7.7
Valores de la intensidad de ESR, tanto de muestra total como de las dos fracciones granulométricas, de las bentonitas estudiadas.

Muestra	Fr. Montmorillonita	Fr. >80 μm	Muestra total
RA-1	5.67E-05	5.78E-04	1.77E-04
RA-2	1.50E-05	2.83E-04	3.78E-04
RA-3	8.13E-05	5.13E-05	3.88E-05
RA-4	9.49E-05	4.45E-04	9.46E-05
CA-1	4.16E-05	2.54E-04	1.32E-04
CA-2	1.62E-05	3.35E-04	5.91E-05
CA-3	4.47E-05	5.57E-04	1.06E-04
CA-4	1.10E-04	1.36E-04	6.30E-05
CE-1	1.28E-04	9.52E-04	7.07E-05
CE-2	1.25E-04	1.08E-04	7.58E-06
CE-3	5.97E-05	3.15E-04	2.47E-04
CE-4	9.43E-05	1.74E-04	6.11E-06
IA-1	4.42E-04	2.16E-04	5.89E-04
IA-2	2.55E-04	8.47E-04	2.91E-04
IA-3	2.64E-04	3.88E-04	1.38E-05
IA-4	1.59E-04	3.43E-03	5.84E-04
IB-1	4.69E-04	5.39E-04	3.81E-04
IB-2	5.79E-04	2.99E-04	4.30E-04
IB-3	4.11E-04	3.18E-03	3.91E-05
IB-4	2.17E-04	7.65E-05	3.90E-04
IE-1	3.15E-04	1.18E-04	7.11E-04
IE-2	2.71E-04	8.65E-03	3.61E-04
IE-3	2.26E-04	9.01E-05	2.86E-04
IE-4	2.28E-04	4.72E-04	2.25E-04
IF-1	3.11E-04	1.82E-03	5.68E-04
IF-2	3.06E-04	4.38E-04	4.41E-04
IF-3	1.98E-04	1.18E-03	4.29E-05
IF-4	2.61E-04	5.13E-04	3.42E-04

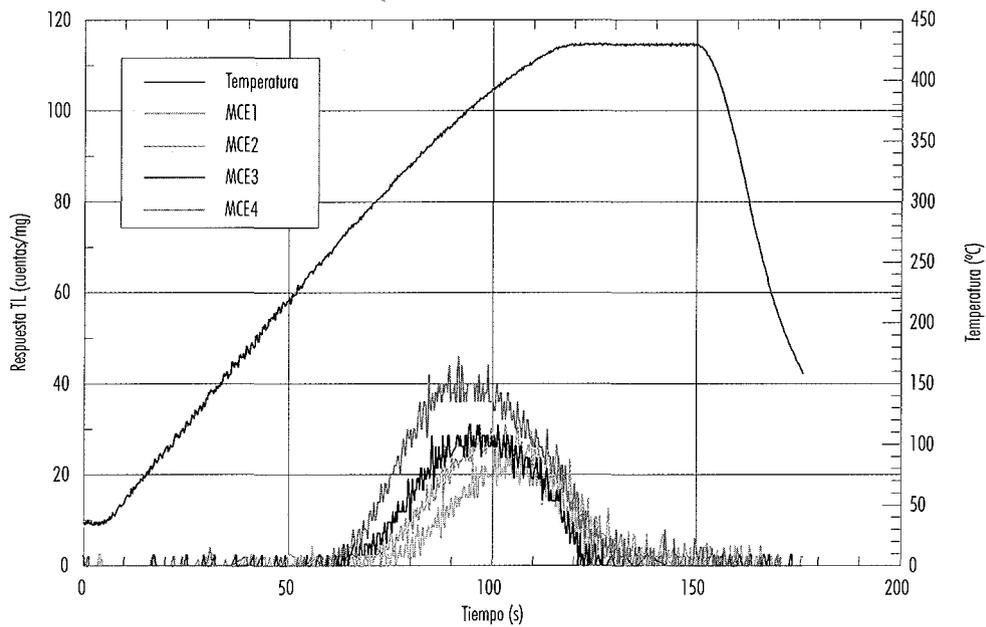


Figura 7.14. Curvas de emisión termoluminiscente para la fracción fina de muestras de bentonita calentadas durante cuatro meses en el experimento BIC-2A (la escala se ha amplificado 10 veces respecto a la Fig 7.16.).

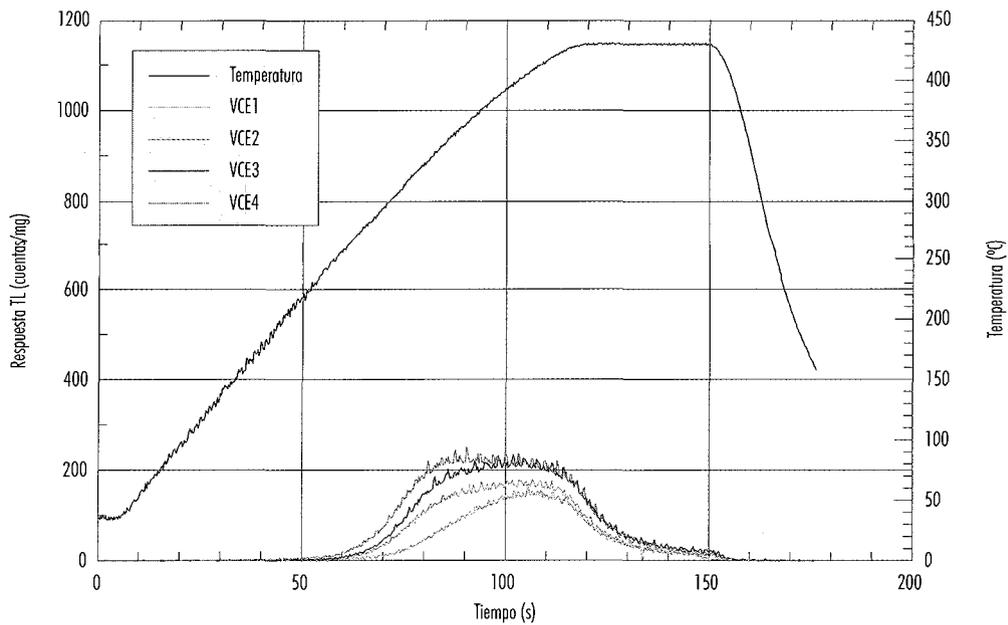


Figura 7.15. Curvo de emisión termoluminiscente para la fracción gruesa de muestras de bentonita calentada durante cuatro meses en el experimento BIC-2A (la escala se ha amplificado 10 veces respecto a la Fig 7.17.).

las muestras se pone de manifiesto disminuyendo la respuesta termoluminiscente de las mismas. Al ser la recombinación de electrones y huecos un proceso activado térmicamente, la permanencia durante tiempos prolongados a temperaturas relativamente elevadas, facilita recombinaciones que disminuyen la respuesta final.

En la Fig 7.16. se presentan resultados para la fracción fina del experimento BIC-2B. La presencia adicional de radiación se traduce en un gran aumento de la respuesta termoluminiscente, indicando un importante incremento en el número de centros de defectos. En estas muestras la población de portadores de carga, electrones y huecos, atrapados cerca de defectos reticulares es muchísimo más importante. La respuesta termoluminiscente, para las distintas posiciones en el interior de la probeta de bentonita, varía entre $5.6 \cdot 10^4$ ctas/mg y $9.3 \cdot 10^4$ ctas/mg. Respecto a las muestras de referencia, esto significa un incremento en la respuesta en un factor comprendido entre 30 y 50. La muestra que presenta una menor respuesta vuelve a ser la situada en la posición 1, es decir, la sometida a mayor temperatura y, en este caso, a mayor dosis de radiación. Este comportamiento indica que el efecto

de recocido provocado por la temperatura llega a ser más importante que la creación de nuevos centros de defectos. La posición de los picos de las curvas de emisión también se han visto modificadas. Las cuatro curvas presentan el pico principal a una temperatura comprendida entre 275 y 285 °C. Las curvas son asimétricas, con una larga cola en la región de alta temperatura, esto sugiere la presencia de un pico de reducidas dimensiones a una temperatura cercana a 390 °C. Es interesante hacer notar que los valores obtenidos para la fracción fina de la bentonita irradiada son muy similares a los correspondientes a la fracción gruesa no irradiada o de referencia, es decir, que la fracción gruesa es mucho más sensible que la fracción fina. La forma de las curvas sugiere la presencia de dos picos de emisión, uno que aparece a 360 °C y otro a 390 °C.

Las curvas presentadas en la Fig 7.17. corresponden a la fracción gruesa de muestras de bentonita irradiadas y calentadas, durante cuatro meses, en el experimento BIC-2B. A estas curvas les corresponden los valores más elevados de la respuesta termoluminiscente. Dichos valores oscilan entre $9.2 \cdot 10^5$ ctas/mg, obtenido sobre la muestra expuesta a mayor temperatura y mayor dosis, (VIE-1),

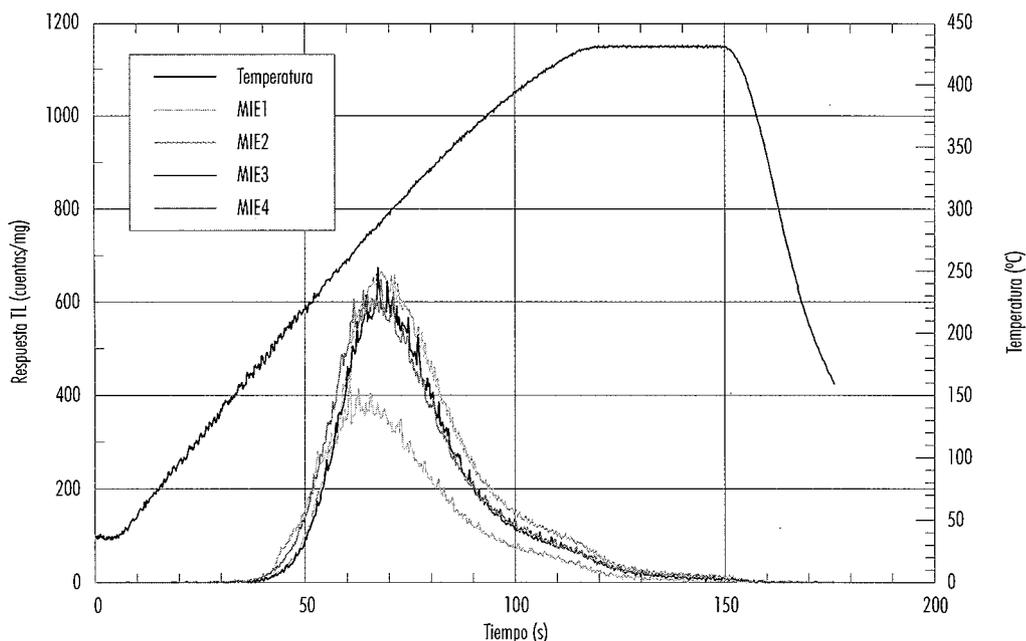


Figura 7.16. Curva de emisión termoluminiscente para la fracción fina de muestras de bentonita irradiadas durante cuatro meses en el experimento BIC-2B.

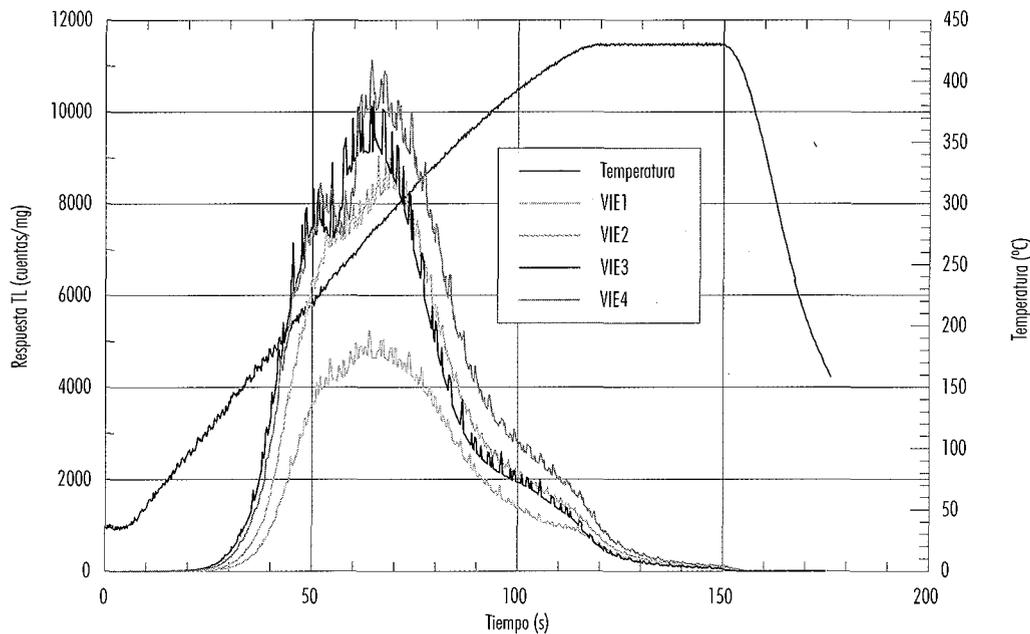


Figura 7.17. Curva de emisión termoluminiscente para la fracción gruesa de muestras de bentonita irradiadas durante cuatro meses en el experimento BIC-2B.

y $1.9 \cdot 10^6$ ctas/mg, para la muestra sometida a menor temperatura, menor tasa de dosis y menor dosis, (VIE-4).

Respecto a las muestras de referencia, la respuesta termoluminiscente se multiplica por un factor comprendido entre 15 y 30, mientras que existe un incremento en un factor próximo a 40 en relación a las muestras calentadas. Los obtenidos para la fracción gruesa son comparables a los obtenidos en algunas muestras salinas irradiadas a estos niveles de dosis, (Dies *et al.*, 1995). Como en los casos anteriores, la mínima respuesta se da para la muestra enfrentada a la radiación, mientras que la máxima aparece en las muestras menos irradiadas. Este comportamiento, que puede reproducirse bastante bien en las diversas muestras y fracciones, indica claramente que la temperatura y/o la tasa de dosis son factores muy importantes de cara a la generación y estabilización de los defectos. Puede considerarse que las curvas obtenidas presentan hasta tres picos. El principal tiene lugar, aproximadamente, a 275 °C. Un pico menor aparece hacia los 225 °C; mientras que parece existir un exceso de señal en la región de altas temperaturas que podría achacarse a un pico presente hacia los 390 °C.

Finalmente, la Fig 7.18. presenta los valores medios, y la dispersión, de todos los valores de la respuesta termoluminiscente, determinada sobre las fracciones fina y gruesa de las muestras de bentonita de los experimentos BIC-2A y BIC-2B. Los valores se muestran en función de la posición en el interior de las cápsulas portamuestras, correspondiendo, a cada posición, una distinta combinación de dosis total, tasa de dosis y temperatura, tal y como se expone en las Tablas 5.4 y 5.6. Muchos de los detalles mencionados acerca de las figuras anteriores se ponen de manifiesto claramente en esta figura. La respuesta termoluminiscente se estructura en tres regiones claramente diferenciadas. La región con los valores más bajos corresponde a la fracción fina de las muestras de referencia y de las muestras calentadas; sin embargo, dada la gran variabilidad de resultados, no puede determinarse cual es el tipo de muestra que presenta una mayor respuesta termoluminiscente.

En la segunda región, la fracción gruesa de las muestras de referencia presenta, prácticamente, los mismos valores que la fracción fina de las muestras irradiadas, mientras que la fracción gruesa de las muestras calentadas presenta una respuesta algo

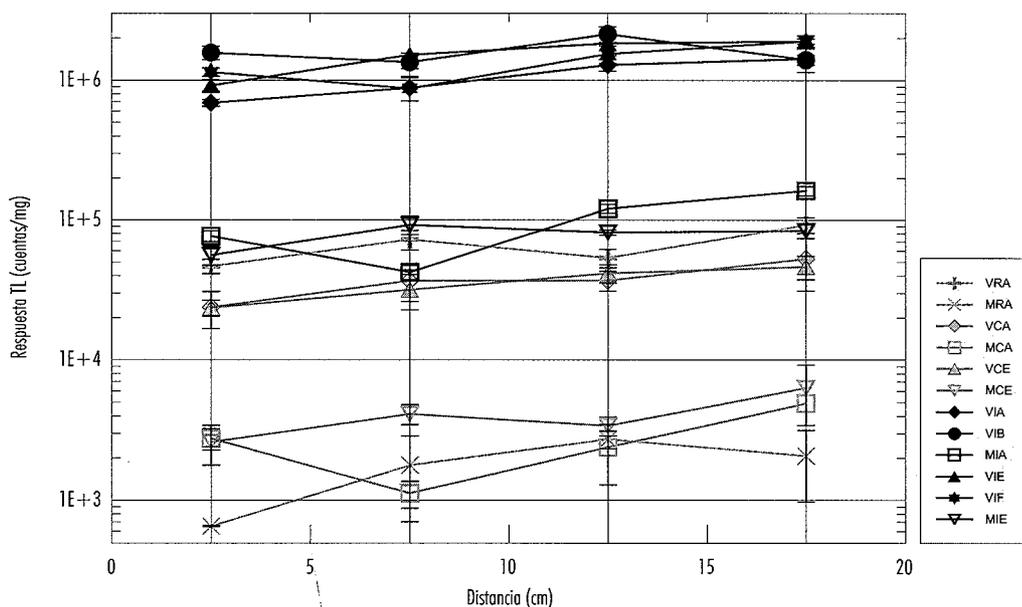


Figura 7.18. Valores de la respuesta termoluminiscente para todas las fracciones de las muestras estudiadas en los experimentos BIC-2A y BIC-2B, también se muestran valores de muestras de referencia. La nomenclatura empleada es la explicada al inicio de este apartado.

inferior. En la tercera y última región es donde aparecen los valores más elevados, que corresponden a las fracciones gruesas de las muestras irradiadas.

Por otra parte, una tendencia de carácter general, es que para cada región, las muestras sometidas a mayor temperatura presentan una menor respuesta termoluminiscente, aunque algunas hayan estado irradiadas a dosis mayores.

En cuanto a la influencia del tiempo de experimentación, para la fracción gruesa de las muestras irradiadas y para una misma posición dentro del cilindro de bentonita, el pasar de dos meses de experimentación a cuatro no comporta un incremento claro de la respuesta termoluminiscente. Las curvas presentadas sugieren la actuación de un mecanismo de saturación frente a la dosis.

Si, por el contrario, se consideran los resultados para las fracciones finas, se constata, para posiciones homólogas dentro del cilindro de bentonita, una ligera disminución de la respuesta termoluminiscente al incrementarse la dosis. Tal respuesta se explica como un efecto de recocido térmico que contrarresta la capacidad de la radiación para crear centros de defectos en la montmorillonita.

7.4.3 Calorimetría

Los resultados de termoluminiscencia expresados en cuentas por miligramo se han calibrado a partir de los análisis calorimétricos. Con dicha finalidad se ha escogido la fracción superior a $80 \mu\text{m}$, debido a su alta sensibilidad, de la muestra IA-1.

La Fig 7.19. muestra los dos termogramas correspondientes a dicha muestra. A partir de la figura se observa que el balance energético está totalmente dominado por el efecto de la pérdida de agua y, como consecuencia, el efecto global en el dominio de temperaturas considerado es endotérmico.

La diferencia de energías entre ambos termogramas permite establecer que la energía acumulada por la radiación en esta muestra de bentonita es del orden de 5 J/g . Aplicando esta calibración, las muestras de bentonita presentarían energías acumuladas entre 5 J/g y 16 J/g .

Dichos resultados muestran que la energía acumulada por la fracción mayor de $80 \mu\text{m}$ es cercana a la observada en rocas salinas irradiadas a dosis similares, (Dies et al., 1995).

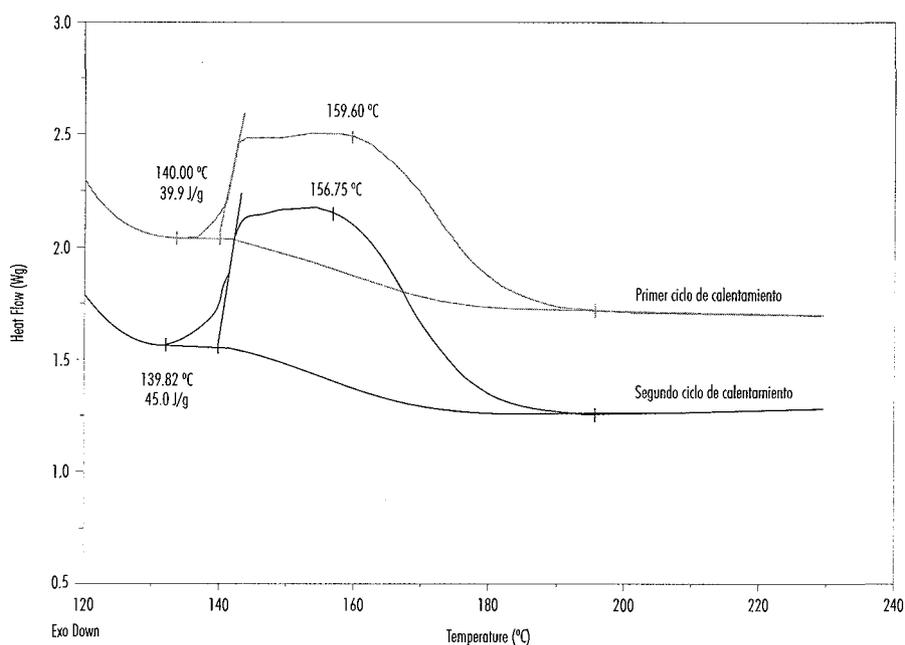


Figura 7.19. Termograma de la fracción mayor a $80\ \mu\text{m}$ de la muestra IA-1.

7.5 Análisis de corrosión en probetas de acero al carbono

7.5.1 Estado inicial de las probetas

El acabado superficial de las probetas antes de someterlas a las condiciones de los experimentos BIC-2A o BIC-2B es poco regular. La Fig 7.20. muestra el estado superficial inicial de una de las probetas. En ella se observan marcas paralelas debidas al mecanizado e incluso una hendidura más profunda debida a una inadecuada manipulación. En otras fotografías examinadas pueden observarse ligeras capas de óxido. Todo esto muestra que las probetas, tras su corte, no han sido sometidas a ningún tipo de tratamiento mecánico superficial, pulido o limpieza química. Estos defectos preexistentes localizados puntualmente pueden favorecer el avance de la corrosión por picadura.

La Fig 7.21. muestra el perfil de rugosidad superficial de una probeta, antes de someterla a cualquiera de las condiciones de experimentación. El valor de la rugosidad superficial media es de $0.505\ \mu\text{m}$, mientras que la rugosidad máxima es de $7.14\ \mu\text{m}$.

Esta diferencia de valores tan acusada vuelve a sugerir que las probetas no han sido sometidas a ningún proceso de acabado fino o pulido para homogeneizar la superficie.

7.5.2 Estudio de la interfase acero-bentonita

Tras la finalización de los experimentos BIC-2A y BIC-2B se ha detectado la formación de pátinas de óxido de hierro, concretamente hematites. Esta ha podido observarse tanto en la bentonita que ha estado en contacto con el acero como en las propias probetas metálicas, (Fig 7.22. y 7.23.). La identificación de la hematites se ha llevado a cabo mediante difracción de rayos X, habiéndose detectado también trazas de magnetita.

La formación de hematites es coherente con las condiciones de pH y Eh de la bentonita circundante. La Fig 7.24. muestra los campos de estabilidad del sistema Fe-H₂O, indicándose los valores de Eh y pH medidos en la bentonita saturada que englobaba a las probetas de acero. Puede observarse como todos los puntos determinados están en la región de estabilidad de la hematites.

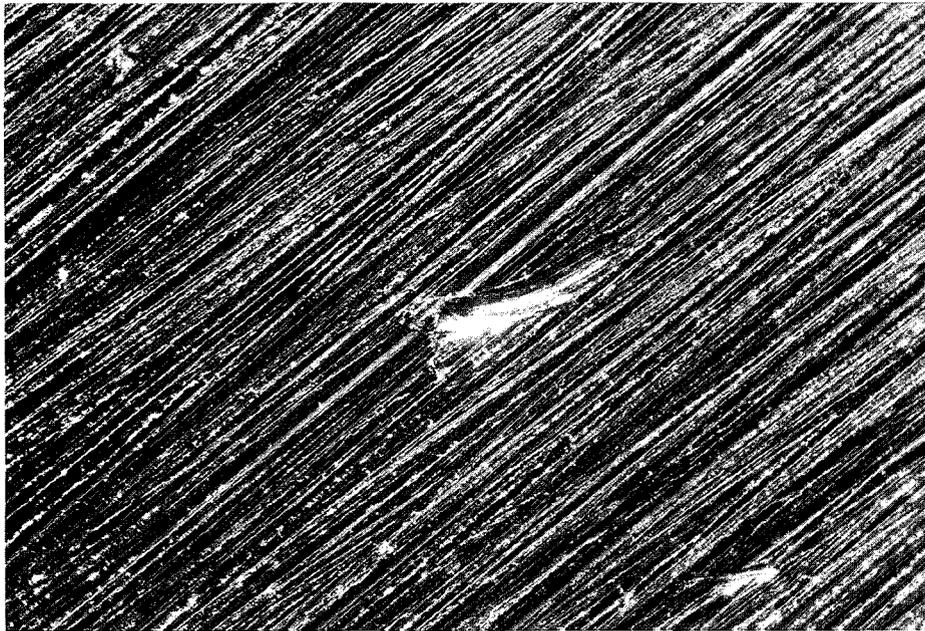


Figura 7.20. Superficie de una probeta previa a la experimentación; [Eje largo de la imagen: 3.75 mm].

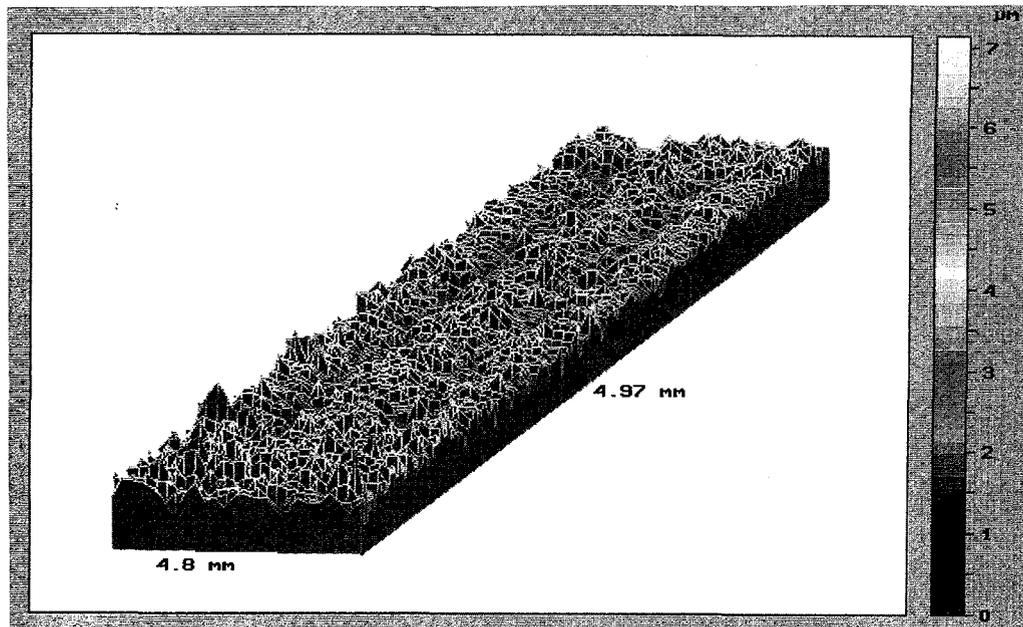


Figura 7.21. Perfil de rugosidad inicial de una de las probetas. Parámetros estadísticos: $sPa=0.505 \mu\text{m}$; $sPv=3.52 \mu\text{m}$; $sPp=3.62 \mu\text{m}$; $sPt=7.14 \mu\text{m}$; $sPq=0.652 \mu\text{m}$ y $sPsk=0.14 \mu\text{m}$.



Figura 7.22. Capa superficial de hematites en muestras de bentonita en contacto con las probetas metálicas.

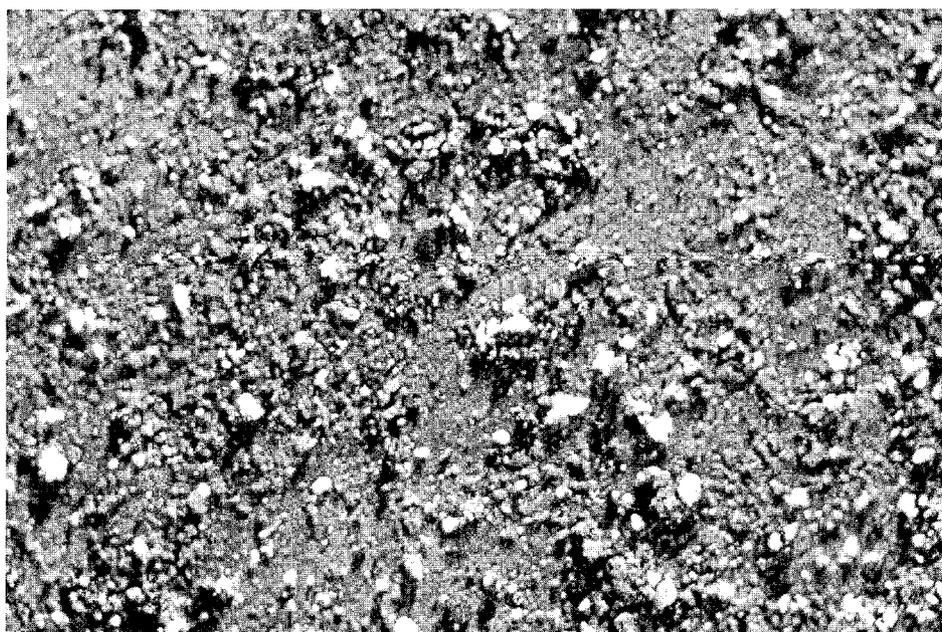


Figura 7.23. Depósito superficial de hematites en una probeta irradiada durante 4 meses a una dosis de 3.6 MGy y una temperatura de 91 °C. El contenido en agua de la bentonita circundante era del 27%. [Eje largo de la imagen: 3.75 mm].

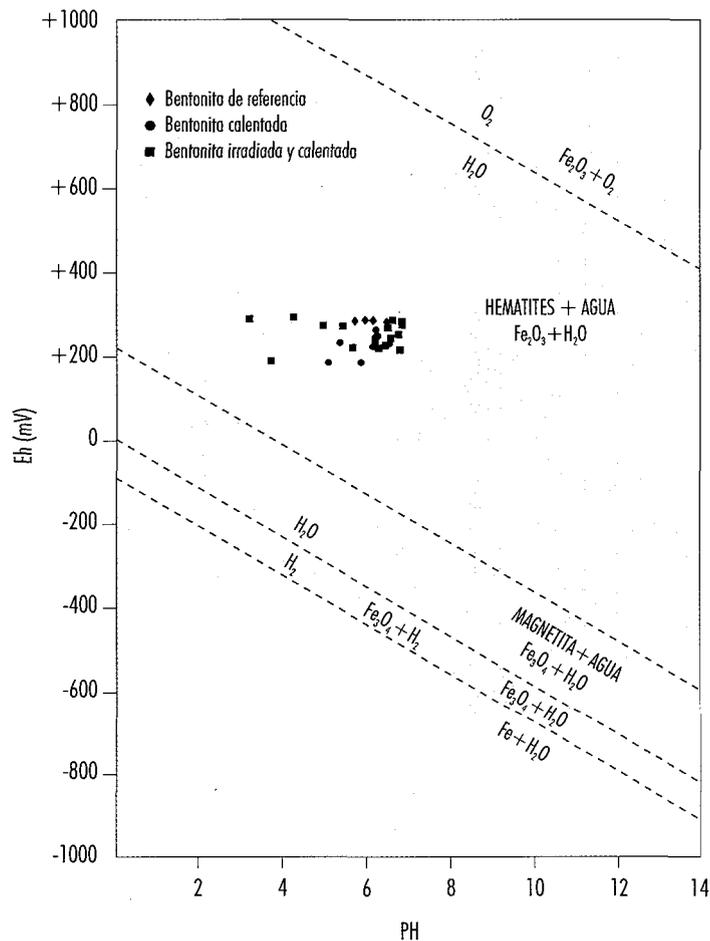


Figura 7.24. Diagrama Eh-pH indicando los campos de estabilidad del sistema Fe-H₂O.

7.5.3 Morfología del depósito arcilloso

Tras la extracción de las probetas metálicas, mediante la técnica de rotoperusión descrita en el capítulo seis, se han tomado distintas fotografías del depósito arcilloso que queda adherido en la superficie de las mismas. Las probetas del experimento BIC-2A sometidas a la máxima temperatura, (sufijo 1 en su identificación), presentan un depósito de bentonita menor y más regular. Se ha observado que la mayor temperatura provoca un secado de esa zona, con el consiguiente agrietamiento de la bentonita compactada. Estas fracturas provocan una disminución en la adherencia de la bentonita y el contacto bentonita-acero es menor. La Fig 7.25. muestra parte de la superficie de la probeta CG-1 tras su extracción.

En las probetas sometidas a una temperatura inferior, en las que no se producen fenómenos de fracturación de la bentonita compactada y el contenido en agua es mayor, el depósito bentonítico es mayor y menos regular, (Fig 7.26.). Se forman dominios donde el material se aglomera más, rodeados de zonas relativamente limpias de bentonita. También se ha observado algunas diferencias entre las dos caras de una misma probeta.

Previamente al decapado químico, también se ha observado la presencia de penetraciones bastante profundas y regulares. La Fig 7.27. muestra uno de estos casos, en los que una serie de penetraciones profundas están alineadas y muy próximas entre si. Dada su alineación, las perforaciones podrían deberse a defectos preexistentes que han favorecido el

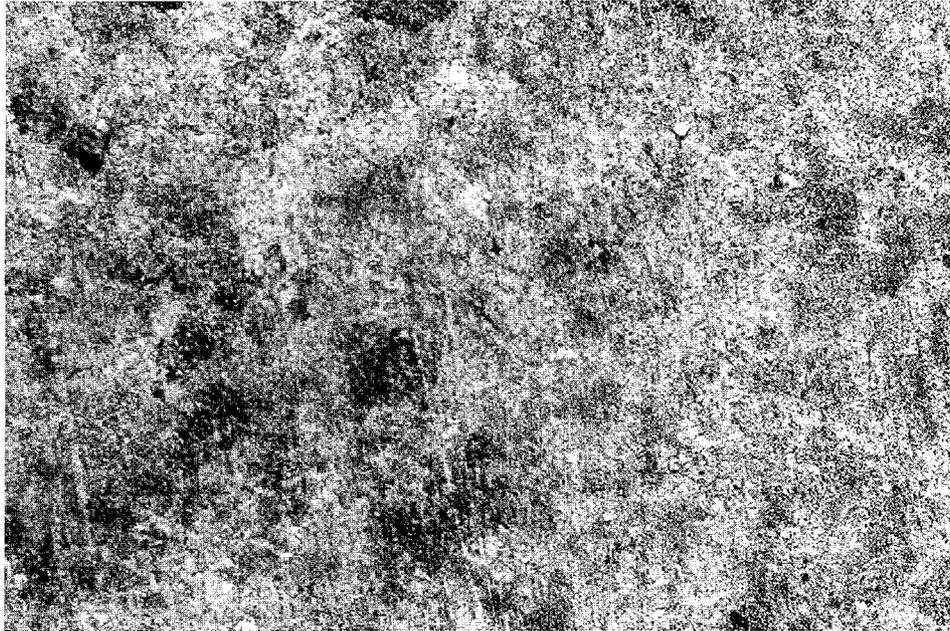


Figura 7.25. Depósito de bentonita en la probeta CG-1 tras su extracción; [Eje largo de la imagen: 3.75 mm].

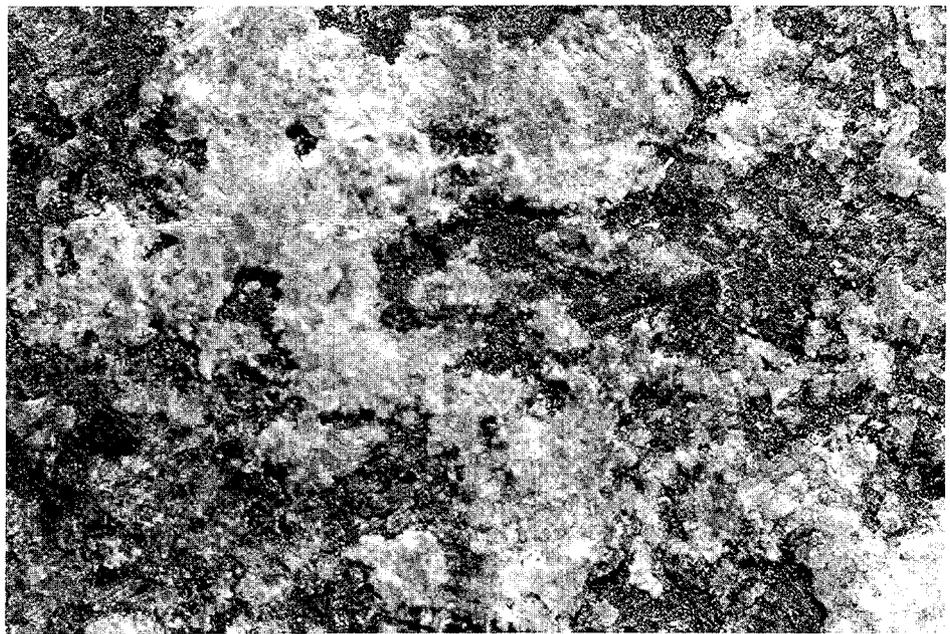


Figura 7.26. Microfotografía del depósito de bentonita en la probeta CH-2 tras su extracción; [Eje largo de la imagen: 3.75 mm].

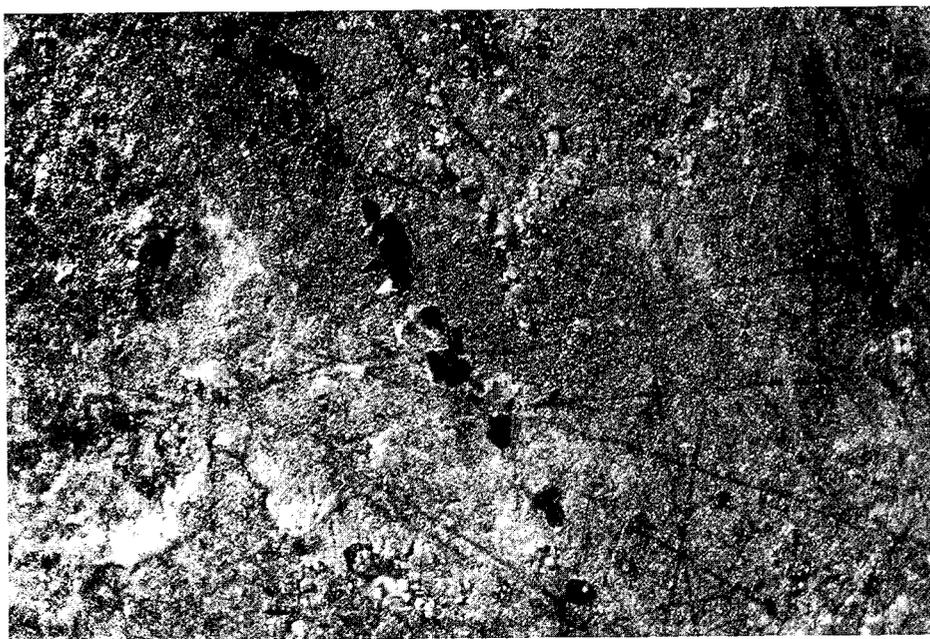


Figura 7.27. Alineación de picaduras detectadas en la probeta CD-1; [Eje largo de la imagen: 3.75 mm].

ataque corrosivo, dando lugar a picaduras de consideración.

De forma análoga a las muestras calentadas, las muestras irradiadas y calentadas del experimento BIC-2B, sometidas a una temperatura más elevada, (y en este caso a una mayor dosis de radiación gamma), tienden a presentar un depósito de bentonita menor y más uniforme que las probetas más frías. En esta característica común, la radiación y no parece añadir ningún efecto adicional. Por otra parte, al igual que en el experimento de calentamiento, también se han observado diferencias entre las dos caras de una misma probeta.

7.5.4 Estado superficial de las probetas decapadas. Ensayo de rugosidad

Tras el decapado químico, tanto en las probetas procedentes del experimento BIC-2A como en las procedentes del experimento BIC-2B, se han observado diferencias entre los discos sometidos a la máxima temperatura y las restantes. Las primeras presentan un ataque corrosivo menor y más uniforme que las segundas. Esto es coherente con la forma del depósito arcilloso descrito en el apartado

anterior. La Fig 7.28. muestra una ampliación de la superficie de las probetas CD-1 y CD-2, tras el decapado químico, en la que se puede apreciar estas diferencias. En otras probetas se han observado grietas que atraviesan la superficie de las mismas, de forma más o menos diametral. Por su parte, la Fig 7.29., muestra microfotografías de las probetas IC1 e IC3, tras el decapado químico. La probeta IC-3, sometida a temperatura más elevada y más irradiada, presenta un ataque corrosivo mayor y más irregular.

Tras la inspección mediante microscopio óptico, todas las probetas se han sometido a los ensayos de rugosidad superficial. Para las probetas del experimento BIC-2A, la rugosidad media más elevada se ha determinado en la probeta CH-2, ($10.6 \mu\text{m}$), mientras que el mayor valor de la rugosidad máxima corresponde a la probeta CH-3, ($131 \mu\text{m}$). La probeta con un ataque más irregular es la CG-1, con una relación entre la rugosidad media y la rugosidad máxima de 23.9.

La Fig 7.30. muestra, como ejemplo, los resultados de rugosidad superficial de una de las caras de la probeta CH-3.

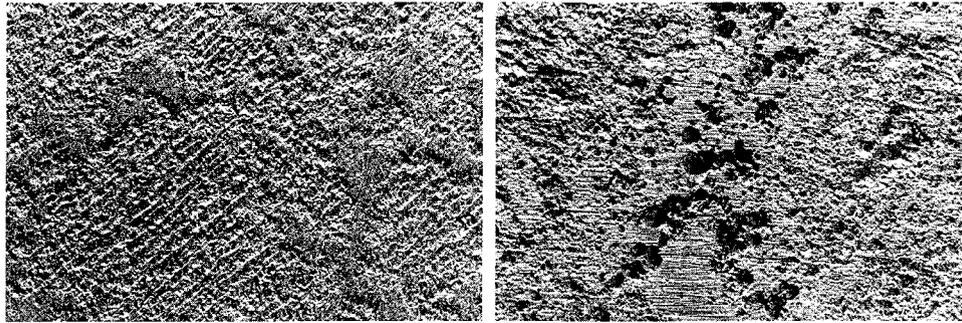


Figura 7.28. Ataque corrosivo en la probeta CD-1 (izquierda) y CD-2 (derecha); [Eje largo de la imagen: 3.75 mm].

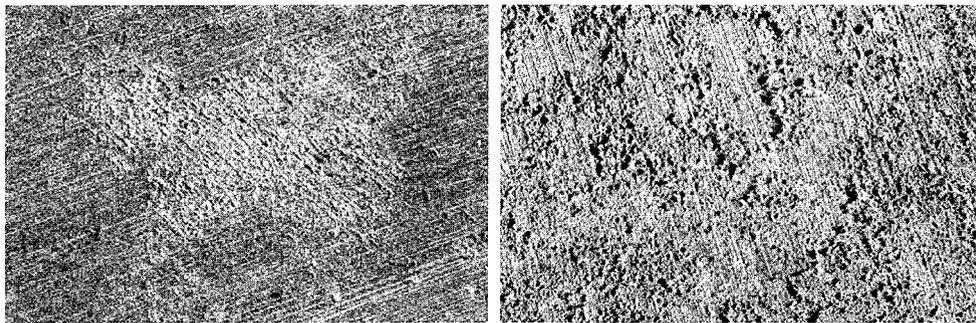


Figura 7.29. Ataque corrosivo en las probetas IC-1 (izquierda) e IC-3 (derecha); [Ejes largos de las imágenes: 3.75 mm].

En la Fig 7.31. se observan los promedios de las valores de rugosidad sPa para las dos caras de cada una de las probetas calentadas en el experimento BIC-2A; es decir, se muestran los valores de

$$\overline{sPa} = [sPa_{\text{Cara A}} + sPa_{\text{Cara B}}] / 2.$$

Las probetas identificadas con 1, (las probetas más calientes, 125 °C), muestran la menor rugosidad media. El valor máximo se da para las probetas marcadas con 3, (temperatura de ensayo cercana a 105 °C). Todos los valores determinados son muy superiores a la rugosidad media inicial, indicando la presencia de fenómenos de corrosión generalizada que han progresado bastante a lo largo del experimento de calentamiento. Las muestras calentadas durante cuatro meses presentan la máxima rugosidad superficial, en especial las probetas de la serie CH, con valores sorprendentemente elevados.

Por su parte, en el experimento BIC-2B, los ensayos de rugosidad superficial efectuados han determinado un valor máximo de la rugosidad superficial media de 10.4 μm , concretamente para la cara inferior de la probeta IH-1 y la cara superior de la probeta IG-4. Este valor es muy similar al máximo valor hallado en las probetas calentadas. Sin embargo, aunque el valor máximo prácticamente es el mismo, los valores determinados sobre las probetas irradiadas y calentadas simultáneamente son, en general, más elevados. Por su parte, el mayor valor de la rugosidad máxima corresponde a la cara superior de la probeta IG-4, (133 μm), mientras que el mayor valor de la relación entre la rugosidad media y la rugosidad máxima es de 24.9, dándose para la cara superior de la probeta IH-1. A modo de ejemplo, el perfil de rugosidad de una de las caras de la probeta IG-4 se muestra en la Fig 7.32.

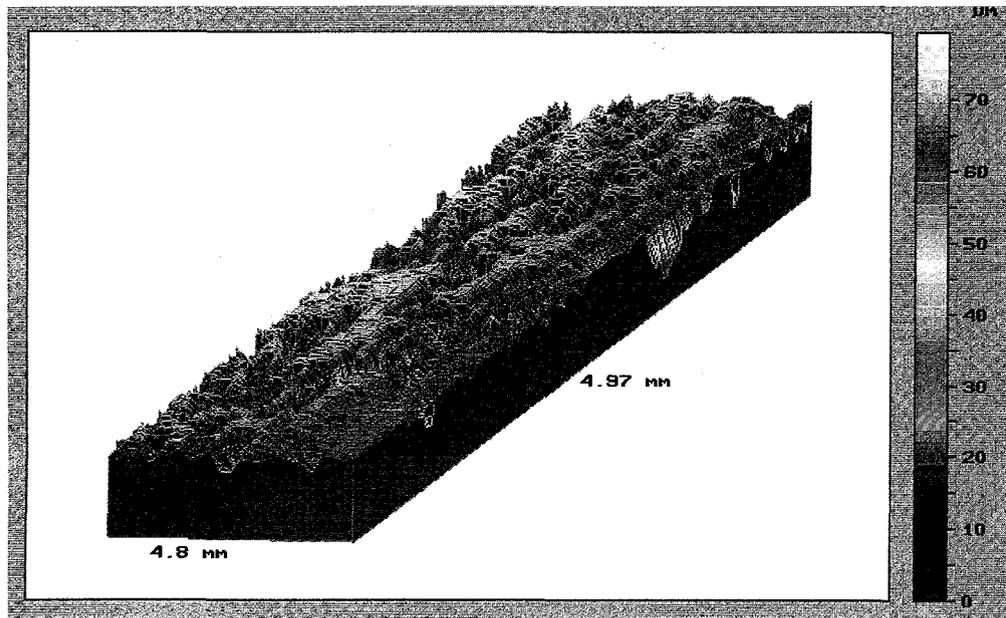


Figura 7.30. Perfil de rugosidad inicial de una de las caras de la probeta CH-3. Parámetros estadísticos: $sPa=7.97 \mu\text{m}$; $sPv=62.3 \mu\text{m}$; $sPp=17.1 \mu\text{m}$; $sPt=79.4 \mu\text{m}$; $sPq=10.6 \mu\text{m}$ y $sPsk=-1.64 \mu\text{m}$.

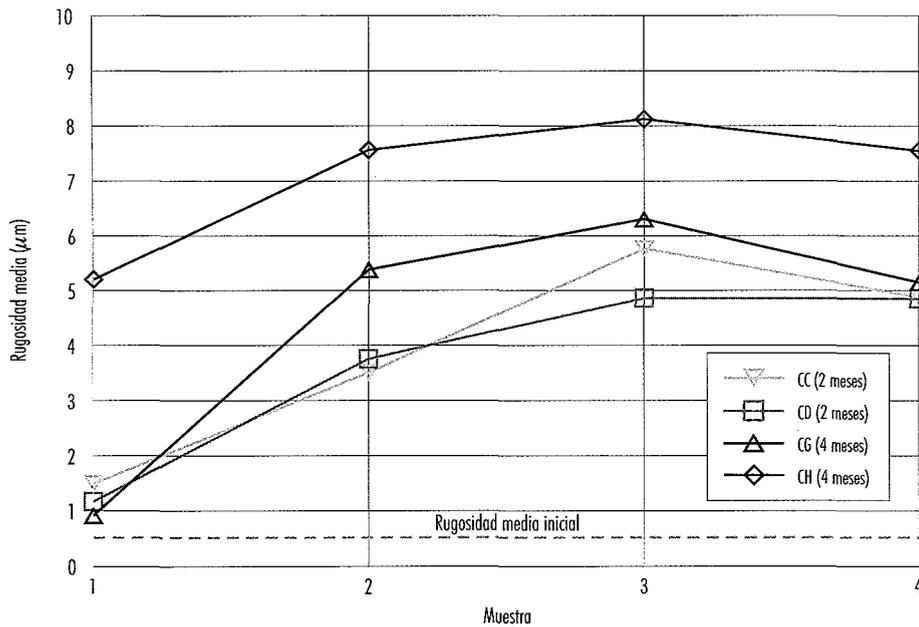


Figura 7.31. Promedio de los valores de sPa para las dos caras de cada una de las probetas calentadas. Los valores del eje de abscisas corresponden a los sufijos de la nomenclatura de las probetas y, por lo tanto, se asocian a la posición de las mismas en las cápsulas portamuestras.

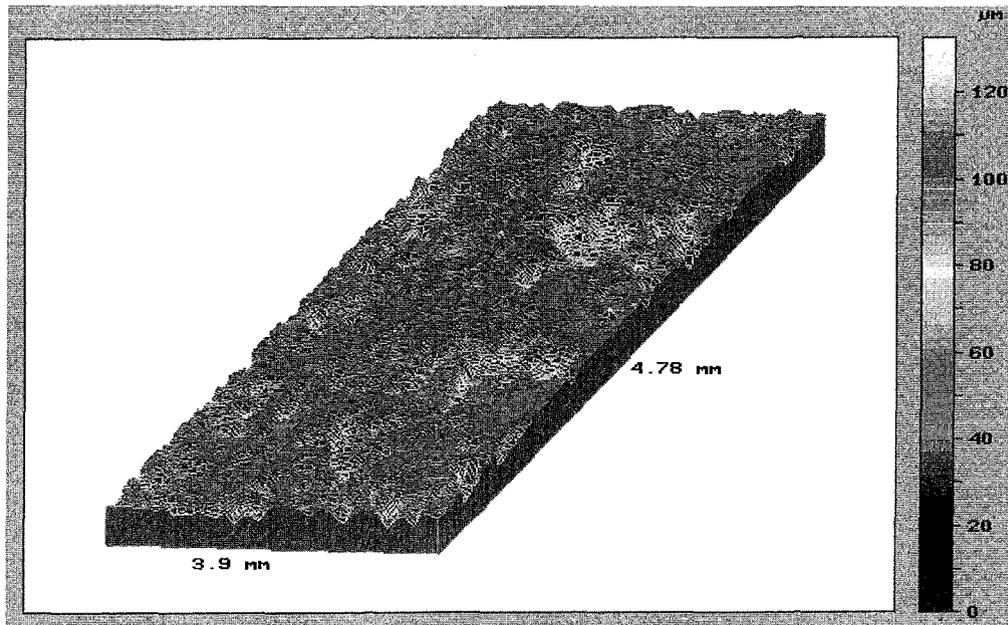


Figura 7.32. Perfil de rugosidad de una de las caras de la probeta IG-4. Parámetros estadísticos: $sPa = 10.4 \mu\text{m}$; $sPv = 98.3 \mu\text{m}$; $sPp = 34.3 \mu\text{m}$; $sPt = 133 \mu\text{m}$; $sPq = 13.1 \mu\text{m}$ y $sPsk = -1.35 \mu\text{m}$.

La Fig 7.33. muestra los promedios de las rugosidades medias (sPa) de las dos caras de cada una de las probetas tratadas en el experimento BIC-2B. Como en el caso de la Fig 7.31., las probetas identificadas con 1, (las probetas más calientes, 125°C , y sometidas a una mayor dosis de radiación), tienden a mostrar la menor rugosidad media. En este caso, el valor máximo se da para las probetas situadas en la posición 4, (temperatura de ensayo cercana a 95°C). Todos estos valores son muy superiores a la rugosidad media inicial. Asimismo, las muestras irradiadas durante cuatro meses, (IG e IH), presentan la máxima rugosidad superficial media, especialmente las probetas de la serie IG. Si se comparan estos valores con los mostrados en la Fig 7.12. se puede constatar que la radiación y tiende a potenciar el proceso de corrosión generalizada.

Comparando los valores individuales de la rugosidad superficial para las dos caras de una misma probeta, se observa que las diferencias son poco notables en el caso de las probetas 1, y más acusadas en el caso de probetas 2, 3 y 4. Esto sugiere que el mayor depósito arcilloso y la falta de homogeneidad del mismo, en las probetas 2, 3 y 4, ocasiona una mayor variabilidad en el avance de la corrosión en cada una de las dos caras.

La evolución de la rugosidad superficial media con la posición de la probeta en el interior de la cápsula portamuestras, tanto para el experimento BIC-2A como para el experimento BIC-2B, puede correlacionarse bastante bien con el contenido en agua de la matriz bentonítica, donde se hallan inmersas las probetas. Un mayor contenido en agua favorece un ambiente más corrosivo, y esta condición se verifica para las muestras más alejadas del foco caliente, tal y como se observa en los análisis termogravimétricos, (ver apartado 7.2).

La Fig 7.34. muestra los promedios de la rugosidad sPt , para las dos caras de cada una de las probetas tratadas en el experimento BIC-2A; es decir,

$$\overline{sPt} = [sPt_{\text{Cara A}} + sPt_{\text{Cara B}}] / 2.$$

En la Fig 7.35. se muestran los resultados homólogos para la profundidad de picadura determinada con el microscopio óptico. Ambas curvas coinciden con la Fig 7.31., en el sentido de que los valores más bajos se dan para las probetas sometidas a mayor temperatura, con un depósito arcilloso menor y más uniforme, y con un menor contenido en agua. Asimismo, los valores de picadura son algo menores, (aunque del mismo orden de magnitud),

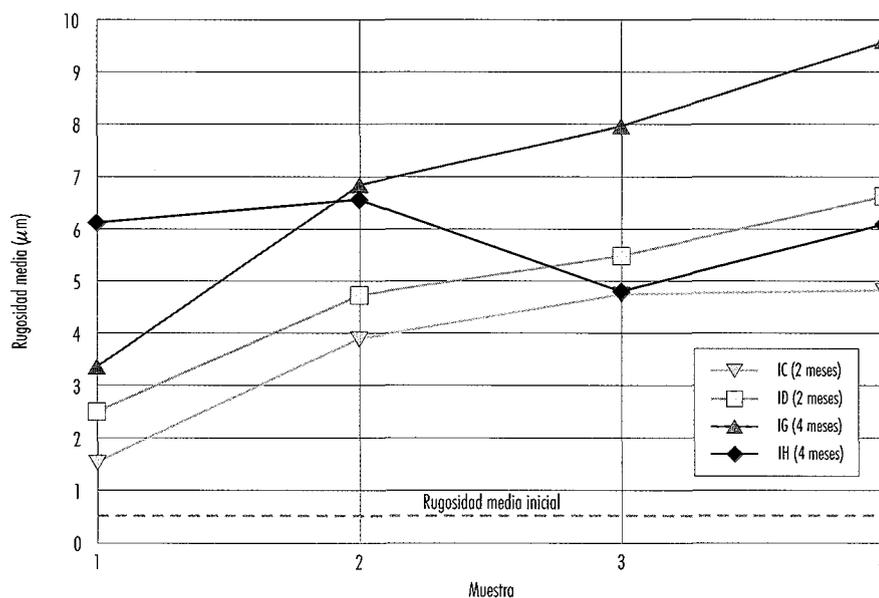


Figura 7.33. Promedio de los valores de sPa para las dos caras de cada una de las probetas irradiadas y calentadas. Los valores del eje de abscisas corresponden a los sufijos de la nomenclatura de las probetas y, por lo tanto, se asocian a la posición de las mismas en las cápsulas portamuestras.

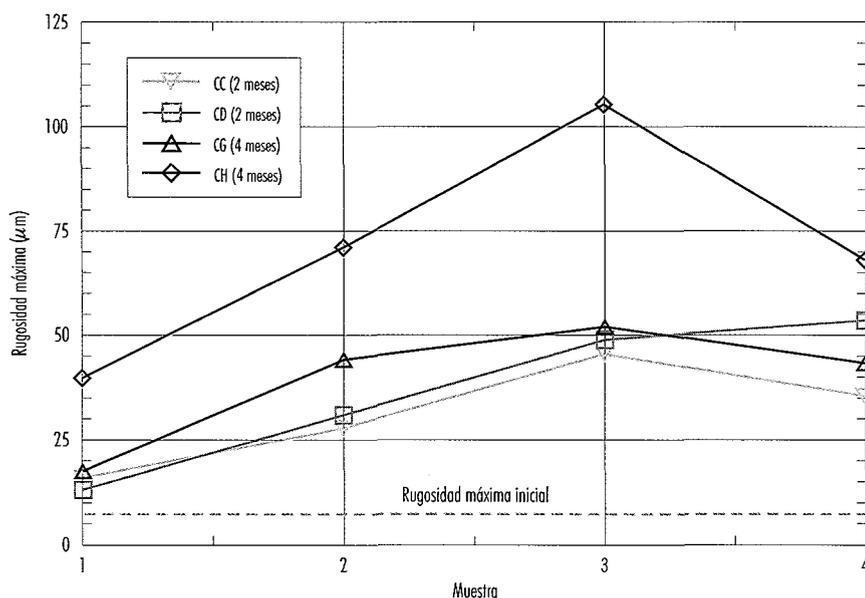


Figura 7.34. Promedio de los valores de sPt para las dos caras de cada una de las probetas calentadas. Los valores del eje de abscisas corresponden a los sufijos de la nomenclatura de las probetas y, por lo tanto, se asocian a la posición de las mismas en las cápsulas portamuestras.

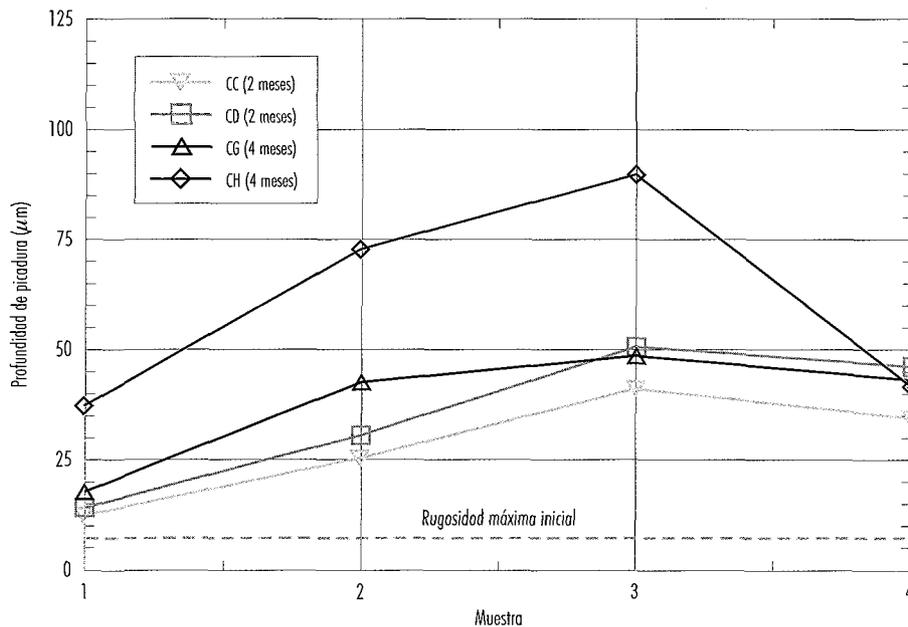


Figura 7.35. Promedio de la profundidad de picadura para las dos caras de cada una de las probetas calentadas. Los valores del eje de abscisas corresponden a los sufijos de la nomenclatura de las probetas y, por lo tanto, se asocian a la posición de las mismas en las cápsulas portamuestras.

que los valores de rugosidad máxima. Esto se debe a la forma en que se estima la rugosidad máxima. Todos los valores obtenidos son muy superiores a la rugosidad máxima inicial, indicando la fuerte actuación de procesos de corrosión; además, los valores asociados a las muestras calentadas durante cuatro meses son mayores que los asociados a las probetas calentadas durante dos meses.

Para las probetas irradiadas y calentadas del experimento BIC-2B, el gráfico análogo a la Fig 7.34. se muestra en la Fig 7.36., donde se exponen los promedios de las rugosidades máximas, (sPt). Los valores para cuatro meses de tratamiento tienden a ser superiores a los que resultan para dos meses, aunque esta tendencia no se muestra tan claramente como en la Fig 7.33.

Comparando con la Fig 7.34., se observa que en las posiciones 1, 2 y 4, el efecto diferencial de la radiación y se traduce en un claro aumento de la rugosidad máxima, mientras que para la posición 3 el valor máximo se da para una de las probetas calentadas. Si los defectos superficiales iniciales de las probetas, (pequeñas grietas y fisuras), acentúan los procesos de corrosión por picadura, que contribuyen

a aumentar la rugosidad máxima, la alta rugosidad máxima de la probeta CH-3 sugeriría que ésta podría tener, antes de iniciar la experiencia, un número importante de dichos defectos, al menos en la zona explorada por el rugosímetro. Como en los casos anteriores, los menores valores de rugosidad se dan para las probetas sometidas a mayor temperatura y mayor dosis, con un depósito arcilloso menor y más uniforme, y con un menor contenido en agua. Sin embargo, todos los valores obtenidos son muy superiores a la rugosidad máxima inicial.

7.5.5 Resultados de la gravimetría

Tras aplicar la técnica descrita en el apartado 6.3.2. a distintas probetas que han sido irradiadas y calentadas simultáneamente, se dispone de los valores de penetración media que se muestran en la Fig 7.37. Dado que la gravimetría tiene en consideración la totalidad del ataque corrosivo, la penetración media calculada mediante este método es mayor que la rugosidad media que se muestra en la Fig 7.33. Sin embargo, la forma de ambas gráficas son bastante parecidas, incluyendo los valores algo fluctuantes observados para las probetas de la serie IH.

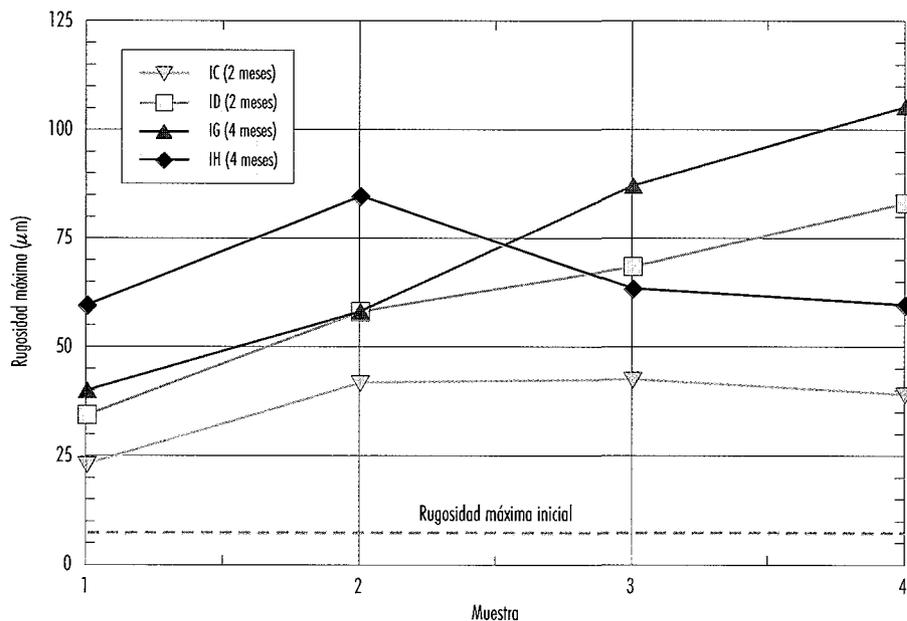


Figura 7.36. Promedio de los valores de sPt para las dos caras de cada una de las probetas irradiadas y calentadas. Los valores del eje de abscisas corresponden a los sufijos de la nomenclatura de las probetas y, por lo tanto, se asocian a la posición de las mismas en las cápsulas portamuestras.

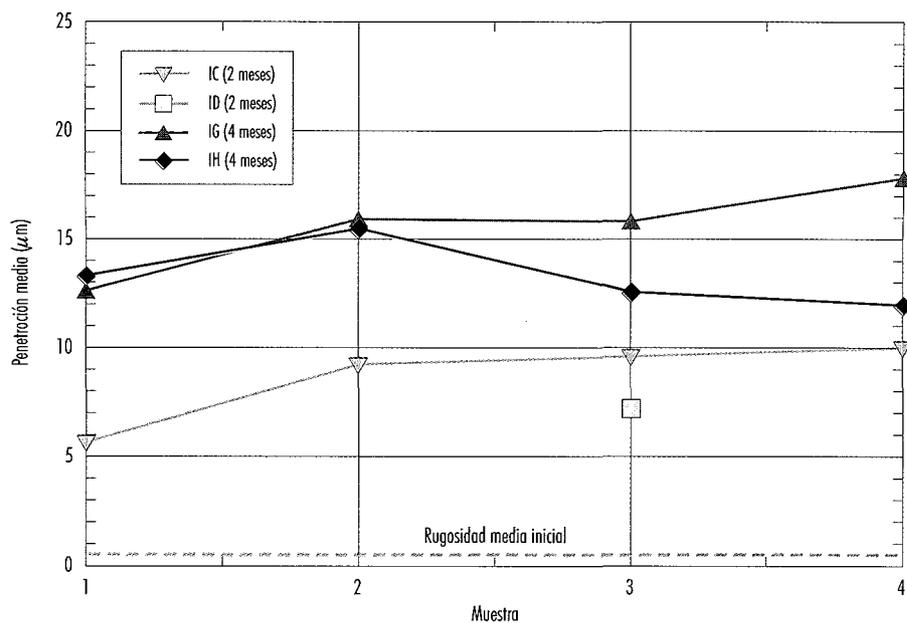


Figura 7.37. Valores de penetración media en cada una de las probetas irradiadas y calentadas. Los valores del eje de abscisas corresponden a los sufijos de la nomenclatura de las probetas y, por lo tanto, se asocian a la posición de las mismas en las cápsulas portamuestras.

7.5.6 Mecanismo de corrosión

Para establecer el mecanismo de corrosión que está actuando sobre las probetas son de interés los valores del potencial redox, (Eh), y del pH que han sido determinados sobre las distintas muestras de bentonita una vez extraídas de las cápsulas (ver apartado 7.2). Según toda la información disponible, el ataque corrosivo viene determinado por los valores del Eh y el pH de la bentonita, por la distribución y porosidad del depósito arcilloso, y por las condiciones de humedad, temperatura y radiación presentes. De acuerdo con los valores del Eh, (siempre positivos), la corrosión acontece en condiciones oxidantes.

En este tipo de corrosión, es importante la formación de picaduras que se originan bajo la capa de bentonita. Así, las probetas con una distribución irregular de bentonita presentan zonas de picaduras más localizadas. La formación de picaduras más profundas tendría lugar mediante aireación diferencial, facilitada por la presencia de grietas y/o fisuras previas. Las partículas de arcilla se introducirían en estas grietas y podrían formar una pila eléctrica que aumentaría la tasa de corrosión, (Fig 7.38.). La formación de dominios de bentonita, en la superfi-

cie de las probetas, puede venir motivada por la gran heterogeneidad en la granulometría del material de partida. Este factor, junto con la rugosidad superficial de las probetas, puede crear diferencias notables en la adherencia bentonita-probeta de acero durante la etapa de compactación. Esto, a su vez, puede provocar heterogeneidades en la porosidad y, por lo tanto, en el flujo de agua a través de la bentonita, tanto durante la fase de saturación de las muestras, como durante la etapa de calentamiento o de irradiación más calentamiento.

Todos estos factores pueden dar lugar a la formación de regiones donde la corrosión avance más rápidamente que en otras, como se ha observado en las distintas probetas.

Si bien en todas las probetas metálicas se ha detectado la formación de hematitas en la interfase bentonita-acero, (ver apartado 7.5.2), este proceso se magnifica en las probetas irradiadas. Este óxido de hierro se forma bajo condiciones oxidantes y su campo de estabilidad coincide con las condiciones de Eh y pH determinadas en la bentonita procedente del experimento BIC-2B, (Eh entre 200 y 300 mV y pH entre 3 y 7), (ver Fig 7.24.).

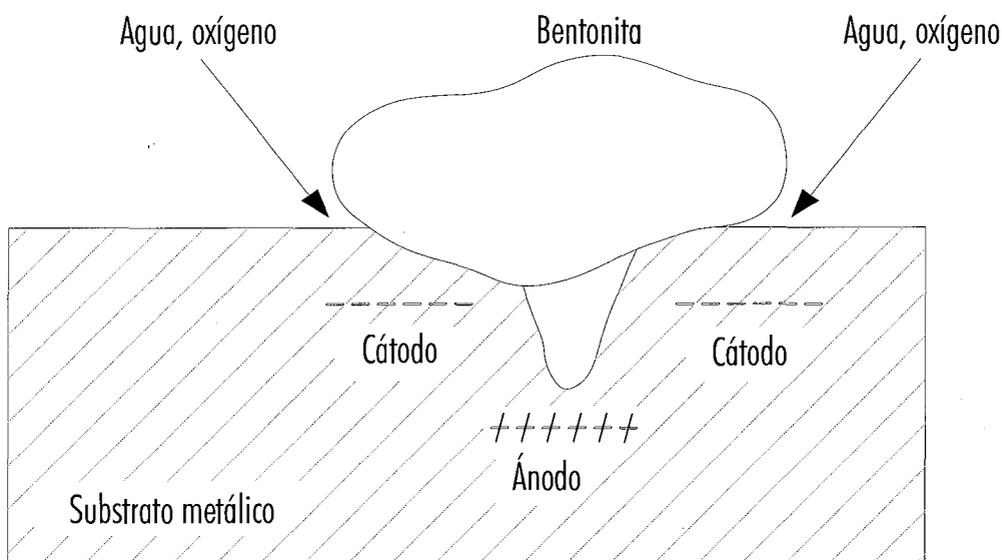


Figura 7.38. Esquema simplificado del mecanismo de corrosión propuesta. Esta se da en condiciones oxidantes.

7.5.7 Influencia de la radiación γ y de la temperatura en la corrosión del acero

El avance de la corrosión, tanto para las muestras calentadas, como para las muestras irradiadas y calentadas simultáneamente, es claramente sensible al tiempo de experimentación; mayores tiempos de experimentación implican mayores ataques corrosivos. Pasar de un tiempo de experimentación de dos meses a otro de cuatro meses puede suponer un incremento de hasta un 133% en los valores de la rugosidad media.

Los cambios de la rugosidad media, o máxima, en función de la posición de las probetas de acero en el interior de las cápsulas portamuestras, sugieren que el principal motor de la corrosión en las probetas de acero estudiadas es el agua y el oxígeno. Aunque las mayores temperaturas tienden a acentuar los procesos de corrosión, temperaturas más elevadas comportan menores contenidos en agua, (ver Fig 7.39.); por lo tanto, estamos en presencia de dos efectos que se oponen. Para la experiencia de calentamiento, (BIC-2A), la corrosión tiende a

progresar más en las probetas situadas en las posiciones 3, (aproximadamente a 105 °C); mientras que, para la experiencia de irradiación más calentamiento, (BIC-2B), es la posición 4, (aproximadamente a 95 °C), la que presenta mayores ataques de corrosión.

Se observa un comportamiento diferenciado para las muestras de acero que han estado sometidas a radiación γ . En general, esto se traduce en mayores valores de la rugosidad media o máxima. Para las probetas que han sufrido un mayor ataque corrosivo generalizado, es decir, las situadas en la posición 4, la rugosidad media, al cabo de 4 meses de experimentación, se ve incrementada por la radiación desde 6.34 μm hasta 7.83 μm , esto representa un incremento de cerca de un 23%. Para las mismas probetas, la rugosidad máxima se ve incrementada, en promedio, desde 55.6 μm hasta 82.4 μm , lo que supone un incremento de un 48%. Probablemente, el efecto de la radiación se pone de manifiesto cuando se generan productos de radiólisis, (oxígeno e hidrógeno), que favorecen el ataque corrosivo. El mayor ataque de corrosión generalizada se observa en una de las caras de la probeta

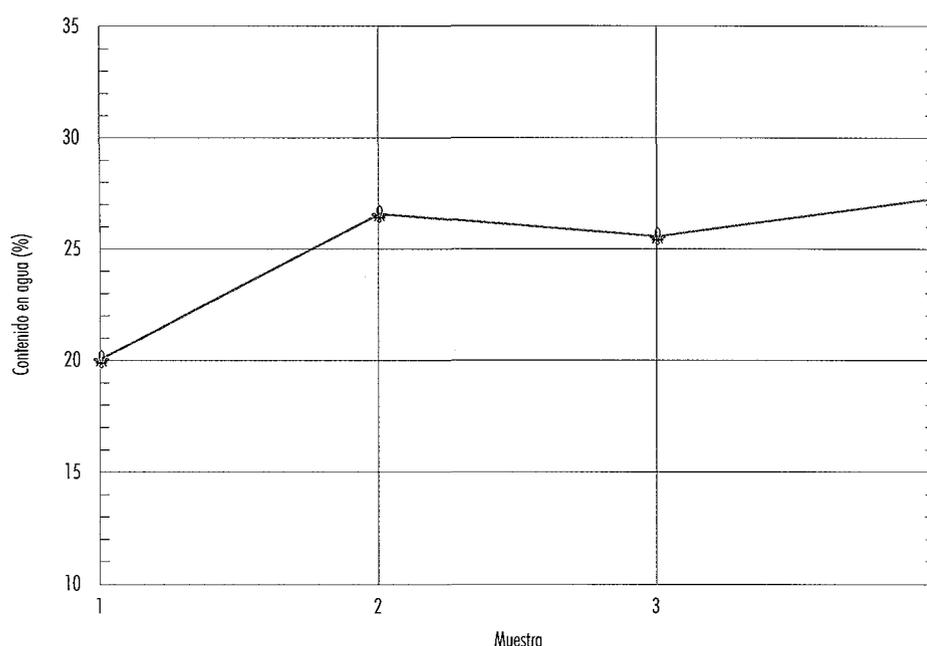


Fig 7.39. Contenido en agua de la bentonita, determinado por termogravimetría, según las distintas posiciones en el interior de una cápsula portamuestras calentada durante dos meses, (ver apartado 7.2.)

IG-4, cuya pátina de hematites, antes del decapado ácido, se observa en la Fig 7.23.

En el estudio realizado por el SKB, sobre la alteración de la arcilla MX-80 irradiada, (Pusch *et al.*, 1993), también se determinó la corrosión sobre dos discos de acero al carbono, en contacto con la arcilla que estaba siendo saturada en continuo mediante una bomba. Uno de los discos estuvo sometido a 130 °C durante un año; mientras que el otro, además, recibió, en el mismo período de tiempo, una dosis integrada de 32.7 MGy, a una tasa de dosis algo superior a 3.5 kGy/h. En el caso de la profundidad de corrosión media, ésta se incrementó desde 18 μm hasta 80 μm por efecto de la radiación; mientras que la profundidad máxima pasó de 160 μm a 480 μm . Estos valores tan elevados se deben a que el material de estudio no era exactamente el mismo que el empleado en los experimentos BIC-2, a la larga duración de la experiencia, tres veces más larga que los experimentos BIC-2, lo que implicó una dosis mucho más elevada, y a que se inyectaba agua a presión, lo que reducía el secado de la interfase arcilla-acero, incrementando la tasa de corrosión. Asimismo, también se detectó la presencia de hematites en la superficie de las probetas.

Los incrementos tan notables de la corrosión en el acero detectados en los experimentos BIC-2 y, sobre todo, en el descrito en Pusch *et al.* (1993) deben tomarse con cierta cautela. En estos experimentos se suministra una gran dosis integrada en un corto espacio de tiempo, al menos comparado con el de la vida de la cápsula metálica. Centrándonos en el experimento BIC-2B, aunque el mismo razonamiento es aplicable al experimento de Pusch *et*

al. (1993), esto hace que al final del mismo se estén viendo los resultados de cuatro meses de calentamiento, pero el equivalente a unos 1000 años de irradiación. Por supuesto, este factor magnifica la importancia del efecto de la radiación, siempre que supongamos que tasas de dosis muy bajas no van a comportar inesperados efectos en la catalización de la corrosión. Por otra parte, cuando la irradiación haya disminuido considerablemente, el oxígeno que permanezca en el campo próximo de un AGP se consumirá, aproximadamente, en unos 100 años. A partir de entonces, la corrosión no se dará en condiciones oxidantes, como ha sucedido en las experiencias BIC-2A y BIC-2B, sino en condiciones reductoras, (Enresa, 1997). Este fenómeno también disminuirá la tasa de corrosión que podría deducirse de los resultados de los experimentos BIC-2.

7.6 Generación de gases

Los resultados de los experimentos de desgasificación se presentan en la Tabla 7.8. Estos resultados se expresan como ml de gas por kg de bentonita seca. Del análisis de resultados se desprende unos contenidos variables de CO₂ ligados a la presencia variable de carbonatos en las muestras. Los contenidos en CO₂ son mayores en las muestras irradiadas sugiriendo que los carbonatos se descomponen parcialmente por radiólisis. En cambio, la generación de H₂ es mínima en condiciones de no irradiación. En condiciones de irradiación, la contribución de la corrosión de acero es baja detectándose un aumento del valor del H₂ cuando éste se forma en condiciones anóxicas.

Tabla 7.8
Valores de H₂ y CO₂ procedentes de los experimentos de desgasificación, expresados en ml por kg de bentonita.

Condiciones experimentales	Dosis (MGy)	mlH ₂ /Kg bentonita	mlCO ₂ /Kg bentonita
Bentonita saturada	4	136	208
Bentonita saturada + acero	4	141	39
Bentonita no saturada + acero	4	110	128
Bentonita saturada + acero (atm. de N ₂)	4	218	50
Bentonita saturada	—	0.09	21
Bentonita saturada + acero	—	21	6
Bentonita no saturada + acero	—	0.10	12

8. Conclusiones

8. Conclusiones

Todos los elementos integrantes del sistema de irradiación con gradiente térmico, diseñado y construido para la ejecución de los experimentos BIC-2, han funcionado de forma totalmente satisfactoria a lo largo de las mismas, sin presentarse ninguna anomalía. Además, el experimento de irradiación y calentamiento BIC-2B constituye el primer experimento de irradiación de bentonitas en el rango de las decenas de MGy que se realiza en España.

En lo que concierne a las alteraciones de la bentonita, no se observa ningún cambio ni en su composición mineralógica ni en su composición química debidas al aumento de la temperatura hasta 130 °C o a la irradiación hasta 10.5 MGy. En estas condiciones, la montmorillonita es estable frente a la circulación de fluidos, lo que excluye la presencia de fenómenos de illitización o beidellitización.

El contenido en agua de las bentonitas es mayor en las zonas más frías, (90 °C), y menor en las más calientes, (130 °C), debido a fenómenos de termodifusión durante los experimentos. Dicho fenómeno se observa tanto en los ensayos de calentamiento, (BIC-2A), como en los de irradiación, (BIC-2B). No se ha observado que la radiación condicione los fenómenos de termodifusión.

Las condiciones redox en las bentonitas tienden a disminuir frente al calentamiento, pero aumentan por el efecto de la radiación. Este aumento es especialmente remarcable en la zona próxima a la interfase acero-bentonita. El pH de las bentonitas saturadas viene condicionado por el contenido en agua de éstas, tendiendo a la acidificación cuando la cantidad de agua en la bentonita es menor. Asimismo, en el contacto bentonita-acero, en presencia del campo de radiación gamma, tiene lugar una acidificación adicional del pH.

La capacidad de cambio catiónico en las bentonitas decrece cuando están sometidas a calentamiento. Esta disminuye de 125 a 115 meq/100 g en cuatro meses. Este proceso se acelera y magnifica cuando la bentonita está sometida a irradiación. En cuatro meses la capacidad de cambio catiónico decrece de 125 a 95 meq/100 g. No se ha podido detectar ninguna variación debido a las distintas temperaturas o dosis; por tanto, la pérdida de la capacidad de cambio catiónico depende exclusivamente del tiempo de experimentación. Asimismo, existen algunas variaciones en las relaciones entre los cationes de cambio mayoritarios.

La capacidad de hinchamiento disminuye en las muestras sometidas a mayor temperatura, magnifi-

cándose dicho efecto en presencia del campo de irradiación gamma. Asimismo, las bentonitas sometidas a calentamiento presentan ligeros aumentos de la conductividad hidráulica y del módulo edométrico. Estos últimos efectos son independientes de la radiación.

Tras someterse a la radiación γ , existe un comportamiento diferencial en la generación de defectos cristalinos para la fracción de tamaño inferior a 2 μm y la fracción mayor de 80 μm . La última fracción es hasta 100 veces más sensible a la radiación. La irradiación de la bentonita hasta 10.5 MGy incrementa la concentración de defectos en un orden de magnitud, aproximadamente, respecto a las muestras únicamente calentadas. Asimismo, para una dosis constante, la tasa de dosis y la temperatura de irradiación son condiciones relevantes de cara a la concentración final de defectos. Las temperaturas elevadas tienden a disminuir la concentración final de defectos en ambas fracciones, debido a la existencia de retroreacciones entre los defectos. Finalmente, en las condiciones experimentales estudiadas la población de defectos tras la irradiación parece alcanzar un nivel de saturación. Los resultados calorimétricos sugieren que la energía acumulada por la bentonita irradiada se encuentra en el orden de los 10 J/g, valor similar a los obtenidos en rocas salinas en condiciones de irradiación parecidas.

Los estudios de corrosión realizados sobre probetas de acero al carbono calentadas y sobre probetas irradiadas y calentadas simultáneamente han mostrado que, en la bentonita en contacto con la probeta, se produce una pátina de hematites. Esto indica que las condiciones en las que ha progresado la irradiación han sido oxidantes y no reductoras. El tipo de corrosión en las probetas, (generalizada o por picadura), está ligado al grado de deposición de la bentonita sobre las mismas. También se ha observado que un mayor contenido en agua en la bentonita potencia el avance de la corrosión y que este efecto prevalece sobre el de la temperatura. El efecto diferencial de una dosis absorbida de 10.5 MGy, en cuatro meses, puede traducirse en un incremento de la corrosión generalizada de hasta un 23 %, respecto de muestras solamente calentadas durante cuatro meses. Sin embargo, debe destacarse el hecho de que se están comparando los efectos de cuatro meses de calentamiento, con los efectos superpuestos de cuatro meses de calentamiento y unos 1000 años de irradiación. Por otra parte, toda la dosis se ha suministrado en condicio-

nes oxidantes, contrariamente a lo que sucederá en un AGP.

La desgasificación de la bentonita libera CO_2 y H_2 . En las condiciones de los ensayos de irradiación, la contribución de la corrosión del acero en la producción de H_2 es baja, siendo mayoritaria la formación de H_2 por radiólisis. Asimismo se detecta un aumento del contenido de H_2 cuando la bentonita se encuentra en condiciones anóxicas.

Entre las incertidumbres que puede generar la extrapolación de estos datos experimentales a la Evaluación del Comportamiento de un AGP cabe destacar las siguientes:

Algunas de las modificaciones de los parámetros estudiados, tales como la capacidad de cambio catiónico, hinchamiento, corrosión, Eh, pH y gases radiolíticos, parecen no haber alcanzado un estado estacionario.

Asimismo, el experimento se ha desarrollado en condiciones oxidantes y de saturación en agua. No se ha considerado la fase de saturación, ni las con-

diciones reductoras esperables a largo plazo en el AGP

Por lo anteriormente expuesto, y con el ánimo de enriquecer la evaluación del comportamiento y de la seguridad de un AGP, se considera interesante realizar nuevas experiencias de irradiación. Dichas experiencias deberían incidir en las incertidumbres anteriormente mencionadas, y podrían desarrollarse a partir de las líneas de actuación siguientes:

- Verificación de los efectos de la tasa de dosis y del espectro de energía de la radiación emitida por el combustible gastado en el comportamiento de la bentonita para dosis similar a la de estos experimentos.
- Control de las condiciones de potencial redox y de saturación en agua de la bentonita durante la fase de experimentación.
- Estudio de la generación de gases en condiciones próximas a las del AGP
- Verificación del efecto de otras radiaciones ionizantes en la bentonita.

9. Bibliografía

9. Bibliografía

- Angel, B. R. y Vincent, W. E. J. (1978): Electron spin resonance studies of iron oxides associated with the surface of kaolins. *Clays and Clay Minerals*, 26, 263-272
- Angel, B. R., Jones, J. P. E. y Hall, P. L. (1974): Electron spin resonance studies of doped synthetic kaolinite. I. *Clay Minerals*, 10, 247-255
- ARAGOGAMMA S. A. (1985): *Servicio de esterilización por rayos gamma de Cobalto-60, única Planta Industrial en España*, 14 p, Aragogamma, S.A.
- Bonals, L. A. y Ruíz, R. (1994): *Transmissió de calor. Teoria*, 189 p, Edicions UPC
- Bruno, G., Decarreau, A., Proust, D. y Lajudie, A. (1992): Clay mineral transformations in static hydrothermal conditions within a simulated engineered barrier for nuclear waste disposal. *Appl. Clay Sci.*, 7, 169-178
- Clozel, B., Allard, T. y Muller, J. P. (1994): Nature and stability of radiation-induced defects in natural kaolinites: new results and reappraisal of published works. *Clays and Clay Minerals*, 42, 657-666
- De Cannière, P. y Noynaert, L. (1994): *The CERBERUS and Mine-By-Test Projects*. ONDRAF/NIRAS. Progress Rep. Jan.-June 1994, 234 p
- De Cannière, P., Henrion, P., Van Iseghem, P., y Volckaert, G. (1992): Radiolytic gas generation and H₂ reaction experiments at SCK/CEN (Mol). En: *Proceedings of the Workshop on Gas generation and release from radioactive waste repositories*, Aix-en-Provence, NEA-OCDE, 202-203
- Dies, J., De las Cuevas, C., Tarrasa, F., Miralles, L., Pueyo, J. J. y Santiago, J. L. (1999): The influence of irradiation temperature on the thermoluminescence response of heavily irradiated rock salt. *Radiation Protection Dosimetry*, 85, Nos. 1-4, 487-492
- Dies, J., De las Cuevas, C.; Tarrasa, F., Miralles, L. y Pueyo, J. J. (1997): *Programa de investigación para estudiar los efectos de la radiación gamma sobre las bentonitas cálcicas españolas (Fase I)*. Informe final, 94 p, UPC-UB
- Dies, J.; Ortega, X.; Tarrasa, F. y De Las Cuevas, C. (1995): *Determinación de la energía acumulada en rocas salinas fuertemente irradiadas mediante técnicas de termoluminiscencia. Aplicación a los repositorios de residuos radiactivos de alta actividad*. Publicación Técnica ENRESA 05/95, 140 p, ENRESA
- ENRESA (1995): *Almacenamiento geológico profundo de residuos radiactivos de alta actividad (AGP). Diseños conceptuales genéricos*. Publicación Técnica ENRESA, 11/95, 105 p, ENRESA
- ENRESA, (1996): *Informe Técnico: 48-1P-L-OOG-01*, 23 p, ENRESA
- ENRESA, (1997): *Evaluación del comportamiento y de la seguridad de un almacenamiento geológico profundo en granito. Marzo 1997*. Publicación Técnica ENRESA, 06/97, 179 p, ENRESA
- Eriksen, T. E., Christensen, H. y Bjergbakke, E. (1987): Hydrogen production in alpha-irradiated bentonite. *Jour. of Radioanalytical and Nuclear Chem.*, 116, 13-25
- Fattahi, M., Eglem, A., Houée-Levin, C., Ferradini, C. y Jacquier, P. (1993): Radiolyse des systèmes eau-argile. Application au stockage des déchets radioactifs. *Jour. Chym. Phys.*, 90, 767-775
- Isichenko, M. B. (1992): Percolation, statistical topography and transport in random media. *Rev. Mod. Phys.*, 64, 961-1043
- Jones, J. P. E., Angel, B. R. y Hall, P. L. (1974): Electron spin resonance studies of doped synthetic kaolinite. II. *Clay Minerals*, 10, 257-270
- Kotzer, T. G. y Kieser, T. K. (1991): Retrograde alteration of clay minerals in uranium deposits: Radiation catalyzed or simply low-temperature exchange. *Chem. Geol.*, 86, 307-321
- Linares, J.; Barahona, E.; Huertas, F.; Caballero, E.; Cuadros, J.; Huertas, J.; Jimenez de Cisneros, C.; Linares, C.; Rodríguez, J.; Martín-Vivaldi, M. T. y Civanatos, M. J. (1996): *Alteración hidrotermal de las bentonitas de Almería*. Publicación Técnica ENRESA 06/96, 151p, ENRESA
- Linares, J.; Huertas, F.; Reyes, E.; Caballero, E.; Barahona, E.; Guardiola, J. L.; Yañez, J.; Romero, E.; Delgado, A.; Rodríguez, J. y Martín-Vivaldi, M. T. (1993): *Investigación de bentonitas como materiales de sellado para almacenamientos de residuos radiactivos de alta actividad*. Publicación Técnica ENRESA 01/93, 324p, ENRESA
- McLaughlin, W. L., (1993): ESR Dosimetry. *Radiation Protection Dosimetry*, Vol. 47, Nos. 1-4, 255-262
- Meunier, A.; Proust, D.; Beaufort, D.; Lajudie, A. y Petit, J. C. (1992): Heterogeneous reactions of dioctahedral smectites in illite-smectite and kaolinite-smectite mixed-layers: applications to clay materials for engineered barriers. *Appl. Geoch.*, Suppl. Issue 1; 143-150
- Moore, D. M. y Reynolds, R. C. (1989): *X-Ray diffraction and the identification and analysis of clay minerals*. Oxford University Press, 332 p
- Muller, J. P., Clozel, B., Ildephonse, P. y Calas, G. (1992): Radiation-induced defects in kaolinites: indirect assessment of radionuclide migration in the geosphere. *Appl. Geochem.*, Suppl. Issue 1, 205-216
- Nikiforov, A. S., Kosareva, I. M. y Savushkina, M. K. (1991a): The radiation-thermal stability of aluminosilicate minerals. *Russ. Jour. Phys. Chemistry*, 65, 1169-1171
- Nikiforov, A. S., Savushkina, M. K. y Kosareva, I. M. (1991b): Adsorption of caesium on bentonite under the conditions of thermal and radiation-thermal stresses. *Russ. Jour. Phys. Chemistry*, 65, 1171-1173

- Van Opbroek, G. y Den Hartog, H. W. (1985): Radiation damage on NaCl: dose rate effects. *J. Phys. C: Solid State Phys.*, 18, 257-268
- Pusch, R., Karnland, O., Lajudie, A. y Decarreau, A. (1993): *MX-80 Clay exposed to high temperatures and γ radiation*. SKB TR93-03, 47p
- Pusch, R.; Karnland, O. y Sandén, T. (1996): *Final report of physical test program concerning spanish clays (saponites and bentonites)*. Publicación Técnica ENRESA 02/96, 118p, ENRESA
- Rivas, P.; Villar, M. V.; Martín, P. L.; Peres del Villar, L.; de la Cruz, B.; Cozar, J. S.; Dardaine, M. y Lajudie A. (1993): *Caracterización y validación industrial de materiales arcillosos como barrera de ingeniería*. Publicación Técnica ENRESA 05/93, 232p, ENRESA
- Spitsyn, V. I., Balukova, B. D. y Savushkina, M. K. (1982): Influence of irradiation with γ -quanta and beam of accelerated electrons on the sorption parameters of clay minerals of the montmorillonite group. *Scientific basis for nuclear waste management*, 6, 703-707
- Villar, M. V.; Cuevas, J.; Martín, P. L.; Campos, R. y Fernández, A. M. (1995): *Thermo-hydro-mechanical characterization of the spanish reference clay material for engineered barrier for granite and clay HLW repository: Laboratory and small mock up testing*. Publicación Técnica ENRESA 03/95, 251p, ENRESA
- Villar, M. V.; Martín, P. L.; Pelayo, M.; Ruiz, B.; Rivas, P.; Alonso, E.; Lloret, A.; Pintado, X.; Gens, A.; Linares, J.; Huertas, F.; Caballero, E.; Jimenez de Cisneros, C.; Obis, J.; Pérez, A. y Velasco, J. (1998): *FEBEX Full-scale engineered barriers experiment in crystalline host rock. Bentonita: origen, propiedades y fabricación de bloques*. Publicación Técnica ENRESA 04/98, 146p, ENRESA
- Wieser, A y Regulla, D. F., (1990): Ultra high level dosimetry by ESR spectroscopy of cristalline quartz and fused silicate. *Radiation Protection Dosimetry*, Vol. 34, Nos. 1-4, 291-294
- Zlobenko, E. P., Movchan, N. P., Vovk, I. F., Litovchenko, A. S. y Platinina, M. A., (1995): Studies of clays from deposits in Ukraine as barrier material for radioactive waste repositories. *5th International Conference on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation*, Vol 1, 587-859

Apéndice 1. Cronogramas

Apendice 1. Cronogramas

Nombre de tarea	diciembre 1998					enero 1999				febrero 1999				marzo 1999			abril 1999							
	30 nov	7 dic	14 dic	21 dic	28 dic	4 ene	11 ene	18 ene	25 ene	1 feb	8 feb	15 feb	22 feb	1 mar	8 mar	15 mar	22 mar	29 mar	5 abr	12 abr	19 abr	26 abr		
Irradiación BIC-2B			Irradiación BIC-2B																					
Irradiación GABIC-2B			Irradiación GABIC-2B																					
Alaninas 1,2,3			A1, A2, A3																					
Alaninas 4,5,6						A4, A5, A6																		
Alaninas 7,8,9							A7, A8, A9																	
Alaninas 10,11,12									A10, A11, A12															
Alaninas 13,14,15											A13, A14, A15													
Alaninas 16,17,18													A16, A17, A18											
Alaninas 19,20,21														A19, A20, A21										
Alaninas 22,23,24																	A22, A23, A24							
Cuarzo Q1,Q2																					Q1, Q2			
Cuarzo Q3,Q4													Q3, Q4											
Cuarzo Q5,Q6																							Q5, Q6	

Cronograma de las experiencias de irradiación (BIC-2B, GABIC-2B). A.

Nombre de tarea	1998												1999												
	sep	oct	nov	dic	ene	feb	mar	abr	may	jun	jul	ago	sep	oct	nov	dic	ene	feb	mar	abr	may	jun	jul	ago	sep
Construcción sistema de irradiación																									
Puesta a punto sistema de irradiación																									
Determinación de la dosis recibida por las muestras																									
Realización experimento BIC-2A																									
Realización experimento GABIC-2A																									
Realización experimento BIC-2B																									
Realización experimento GABIC-2B																									
Análisis de muestras																									

Cronograma de las experiencias de irradiación (BIC-2B, GABIC-2B). B.

Apéndice 2. Publicaciones realizadas

Apendice 2. Publicaciones realizadas

La realización de este programa de investigación ha conllevado la publicación de los siguientes artículos, ponencias y monografías de investigación

Artículos Internacionales

Dies, J.; De Las Cuevas, C.; Tarrasa, F.; Miralles, L.; Pueyo, J. J. y Santiago, J. L. (1999): Thermoluminescence response of heavily irradiated calcic bentonite. *Radiation Protection Dosimetry*, 85, 481-486

Artículos Nacionales y Ponencias a Congresos

Dies, J.; De Las Cuevas, C.; Tarrasa, F.; Miralles, L.; Pueyo, J. J. y Santiago, J. L. (1997): Estudios preliminares de los efectos de la radiación gamma sobre las bentonitas cálcicas españolas. *XXIII Reunión Anual de la Sociedad Nuclear Española*. Resúmenes de Ponencias, 118-121, Senda Editorial, S.A.

Dies, J.; De Las Cuevas, C.; Tarrasa, F.; Miralles, L.; Pueyo, J. J. y Huertas, F. (1998): Diseño, construcción y puesta a punto de un sistema experimental para la irradiación gamma de bentonitas cálcicas españolas sometidas a un gradiente térmico próxi-

mo al de un AGP. *XXIV Reunión Anual de la Sociedad Nuclear Española*. Ponencias, Sesión 21, 11-21, Senda Editorial, S. A.

Dies, J.; De Las Cuevas, C.; Tarrasa, F.; Miralles, L. y Pueyo, J. J. (1998): Efectos de la radiación gamma sobre el material de relleno y sellado de un almacén de residuos radiactivos de alta actividad. *Segones Jornades Tècniques sobre Energia*. Comunicacions, 51-59, Enginyers Industrials de Catalunya, Associació-Col.legi

Documentos científico-técnicos restringidos

Dies, J.; De Las Cuevas, C.; Tarrasa, F.; Miralles, L. y Pueyo, J. J. (1997): Programa de investigación para estudiar los efectos de la radiación gamma sobre las bentonitas cálcicas españolas (Fase 1). 94 p

Conferencias invitadas

Dies, J.; De Las Cuevas, C.; Tarrasa, F.; Miralles, L. y Pueyo, J. J. (1999): Almacenamiento geológico profundo de residuos de alta actividad. *III^{es} Jornades Mediambientals*, Escola Tècnica Superior d'Enginyeria Industrial de Barcelona, 7 Mayo 1999.

PUBLICACIONES TÉCNICAS

1991

- 01 REVISIÓN SOBRE LOS MODELOS NUMÉRICOS RELACIONADOS CON EL ALMACENAMIENTO DE RESIDUOS RADIACTIVOS.
- 02 REVISIÓN SOBRE LOS MODELOS NUMÉRICOS RELACIONADO CON EL ALMACENAMIENTO DE RESIDUOS RADIACTIVOS. ANEXO 1. Guía de códigos aplicables.
- 03 PRELIMINARY SOLUBILITY STUDIES OF URANIUM DIOXIDE UNDER THE CONDITIONS EXPECTED IN A SALINE REPOSITORY.
- 04 GEOESTADÍSTICA PARA EL ANÁLISIS DE RIESGOS. Una introducción a la Geostatística no paramétrica.
- 05 SITUACIONES SINÓPTICAS Y CAMPOS DE VIENTOS ASOCIADOS EN "EL CABRIL".
- 06 PARAMETERS, METHODOLOGIES AND PRIORITIES OF SITE SELECTION FOR RADIOACTIVE WASTE DISPOSAL IN ROCK SALT FORMATIONS.

1992

- 01 STATE OF THE ART REPORT: DISPOSAL OF RADIOACTIVE WASTE IN DEEP ARGILLACEOUS FORMATIONS.
- 02 ESTUDIO DE LA INFILTRACIÓN A TRAVÉS DE LA COBERTERA DE LA FUA.
- 03 SPANISH PARTICIPATION IN THE INTERNATIONAL INTRAVAL PROJECT.
- 04 CARACTERIZACIÓN DE ESMECTITAS MAGNÉSICAS DE LA CUENCA DE MADRID COMO MATERIALES DE SELLADO. Ensayos de alteración hidrotermal.
- 05 SOLUBILITY STUDIES OF URANIUM DIOXIDE UNDER THE CONDITIONS EXPECTED IN A SALINE REPOSITORY. Phase II
- 06 REVISIÓN DE MÉTODOS GEOFÍSICOS APLICABLES AL ESTUDIO Y CARACTERIZACIÓN DE EMPLAZAMIENTOS PARA ALMACENAMIENTO DE RESIDUOS RADIACTIVOS DE ALTA ACTIVIDAD EN GRANITOS, SALES Y ARCILLAS.
- 07 COEFICIENTES DE DISTRIBUCIÓN ENTRE RADIONUCLEIDOS.
- 08 CONTRIBUTION BY CTN-UPM TO THE PSACON LEVEL-5 EXERCISE.
- 09 DESARROLLO DE UN MODELO DE RESUSPENSIÓN DE SUELOS CONTAMINADOS. APLICACIÓN AL ÁREA DE PALOMARES.
- 10 ESTUDIO DEL CÓDIGO FFSM PARA CAMPO LEJANO. IMPLANTACIÓN EN VAX.
- 11 LA EVALUACIÓN DE LA SEGURIDAD DE LOS SISTEMAS DE ALMACENAMIENTO DE RESIDUOS RADIACTIVOS. UTILIZACIÓN DE MÉTODOS PROBABILISTAS.
- 12 METODOLOGÍA CANADIENSE DE EVALUACIÓN DE LA SEGURIDAD DE LOS ALMACENAMIENTOS DE RESIDUOS RADIACTIVOS.
- 13 DESCRIPCIÓN DE LA BASE DE DATOS WALKER.

1993

- 01 INVESTIGACIÓN DE BENTONITAS COMO MATERIALES DE SELLADO PARA ALMACENAMIENTO DE RESIDUOS RADIACTIVOS DE ALTA ACTIVIDAD. ZONA DE CABO DE GATA, ALMERÍA.
- 02 TEMPERATURA DISTRIBUTION IN A HYPOTHETICAL SPENT NUCLEAR FUEL REPOSITORY IN A SALT DOME.
- 03 ANÁLISIS DEL CONTENIDO EN AGUA EN FORMACIONES SALINAS. Su aplicación al almacenamiento de residuos radiactivos
- 04 SPANISH PARTICIPATION IN THE HAW PROJECT. Laboratory Investigations on Gamma Irradiation Effects in Rock Salt.
- 05 CARACTERIZACIÓN Y VALIDACIÓN INDUSTRIAL DE MATERIALES ARCILLOSOS COMO BARRERA DE INGENIERÍA.

- 06 CHEMISTRY OF URANIUM IN BRINES RELATED TO THE SPENT FUEL DISPOSAL IN A SALT REPOSITORY (I).
- 07 SIMULACIÓN TÉRMICA DEL ALMACENAMIENTO EN GALERÍA-TSS.
- 08 PROGRAMAS COMPLEMENTARIOS PARA EL ANÁLISIS ESTOCÁSTICO DEL TRANSPORTE DE RADIONUCLEIDOS.
- 09 PROGRAMAS PARA EL CÁLCULO DE PERMEABILIDADES DE BLOQUE.
- 10 METHODS AND RESULTS OF THE INVESTIGATION OF THE THERMOMECHANICAL BEHAVIOUR OF ROCK SALT WITH REGARD TO THE FINAL DISPOSAL OF HIGH-LEVEL RADIOACTIVE WASTES.

1994

- 01 MODELO CONCEPTUAL DE FUNCIONAMIENTO DE LOS ECOSISTEMAS EN EL ENTORNO DE LA FÁBRICA DE URANIO DE ANDÚJAR.
- 02 CORROSION OF CANDIDATE MATERIALS FOR CANISTER APPLICATIONS IN ROCK SALT FORMATIONS.
- 03 STOCHASTIC MODELING OF GROUNDWATER TRAVEL TIMES
- 04 THE DISPOSAL OF HIGH LEVEL RADIOACTIVE WASTE IN ARGILLACEOUS HOST ROCKS. Identification of parameters, constraints and geological assessment priorities.
- 05 EL OESTE DE EUROPA Y LA PENÍNSULA IBÉRICA DESDE HACE -120.000 AÑOS HASTA EL PRESENTE. Isostasia glaciár, paleogeografías y paleotemperaturas.
- 06 ECOLOGÍA EN LOS SISTEMAS ACUÁTICOS EN EL ENTORNO DE EL CABRIL.
- 07 ALMACENAMIENTO GEOLÓGICO PROFUNDO DE RESIDUOS RADIACTIVOS DE ALTA ACTIVIDAD (AGP). Conceptos preliminares de referencia.
- 08 UNIDADES MÓVILES PARA CARACTERIZACIÓN HIDROGEOQUÍMICA
- 09 EXPERIENCIAS PRELIMINARES DE MIGRACIÓN DE RADIONUCLEIDOS CON MATERIALES GRANÍTICOS. EL BERROCAL, ESPAÑA.
- 10 ESTUDIOS DE Desequilibrios isotópicos de series radiactivas naturales en un ambiente granítico: PLUTÓN DE EL BERROCAL (TOLEDO).
- 11 RELACION ENTRE PARAMETROS GEOFÍSICOS E HIDROGEOLOGICOS. Una revisión de literatura.
- 12 DISEÑO Y CONSTRUCCIÓN DE LA COBERTURA MULTICAPA DEL DIQUE DE ESTÉRILES DE LA FÁBRICA DE URANIO DE ANDÚJAR.

1995

- 01 DETERMINACIÓN DEL MÓDULO DE ELASTICIDAD DE FORMACIONES ARCILLOSAS PROFUNDAS.
- 02 UO₂ LEACHING AND RADIONUCLIDE RELEASE MODELLING UNDER HIGH AND LOW IONIC STRENGTH SOLUTION AND OXIDATION CONDITIONS.
- 03 THERMO-HYDRO-MECHANICAL CHARACTERIZATION OF THE SPANISH REFERENCE CLAY MATERIAL FOR ENGINEERED BARRIER FOR GRANITE AND CLAY HLW REPOSITORY: LABORATORY AND SMALL MOCK UP TESTING.
- 04 DOCUMENTO DE SÍNTESIS DE LA ASISTENCIA GEOTÉCNICA AL DISEÑO AGP-ARCILLA. Concepto de referencia.
- 05 DETERMINACIÓN DE LA ENERGÍA ACUMULADA EN LAS ROCAS SALINAS FUERTEMENTE IRRADIADAS MEDIANTE TÉCNICAS DE TERMOLUMINISCENCIA. Aplicación al análisis de repositorios de residuos radiactivos de alta actividad.
- 06 PREDICCIÓN DE FENÓMENOS DE TRANSPORTE EN CAMPO PRÓXIMO Y LEJANO. Interacción en fases sólidos.

- 07 ASPECTOS RELACIONADOS CON LA PROTECCIÓN RADIOLÓGICA DURANTE EL DESMANTELAMIENTO Y CLAUSURA DE LA FÁBRICA DE ANDÚJAR.
- 08 ANALYSIS OF GAS GENERATION MECHANISMS IN UNDERGROUND RADIOACTIVE WASTE REPOSITORIES. (Pegase Project).
- 09 ENSAYOS DE LIXIVIACIÓN DE EMISORES BETA PUROS DE LARGA VIDA.
- 10 2º PLAN DE I+D. DESARROLLOS METODOLÓGICOS, TECNOLÓGICOS, INSTRUMENTALES Y NUMÉRICOS EN LA GESTIÓN DE RESIDUOS RADIACTIVOS.
- 11 PROYECTO AGP-ALMACENAMIENTO GEOLÓGICO PROFUNDO. FASE 2.
- 12 IN SITU INVESTIGATION OF THE LONG-TERM SEALING SYSTEM AS COMPONENT OF DAM CONSTRUCTION (DAM PROJECT). Numerical simulator: Code-Bright.

1996

- 01 DESARROLLO DE UN PROGRAMA INFORMÁTICO PARA EL ASESORAMIENTO DE LA OPERACIÓN DE FOCOS EMISORES DE CONTAMINANTES GASEOSOS.
- 02 FINAL REPORT OF PHYSICAL TEST PROGRAM CONCERNING SPANISH CLAYS (SAPONITES AND BENTONITES).
- 03 APORTACIONES AL CONOCIMIENTO DE LA EVOLUCIÓN PALEOCLIMÁTICA Y PALEOAMBIENTAL EN LA PENÍNSULA IBÉRICA DURANTE LOS DOS ÚLTIMOS MILLONES DE AÑOS A PARTIR DEL ESTUDIO DE TRAVERTINOS Y ESPELEOTEMAS.
- 04 MÉTODOS GEOESTADÍSTICOS PARA LA INTEGRACIÓN DE INFORMACIÓN.
- 05 ESTUDIO DE LONGEVIDAD EN BENTONITAS: ESTABILIDAD HIDROTÉRMAL DE SAPONITAS.
- 06 ALTERACIÓN HIDROTÉRMAL DE LAS BENTONITAS DE ALMERÍA.
- 07 MAYDAY. UN CÓDIGO PARA REALIZAR ANÁLISIS DE INCERTIDUMBRE Y SENSIBILIDAD. Manuales.

1997

- 01 CONSIDERACIÓN DEL CAMBIO MEDIOAMBIENTAL EN LA EVALUACIÓN DE LA SEGURIDAD. ESCENARIOS CLIMÁTICOS A LARGO PLAZO EN LA PENÍNSULA IBÉRICA.
- 02 METODOLOGÍA DE EVALUACIÓN DE RIESGO SÍSMICO EN SEGMENTOS DE FALLA.
- 03 DETERMINACIÓN DE RADIONUCLEIDOS PRESENTES EN EL INVENTARIO DE REFERENCIA DEL CENTRO DE ALMACENAMIENTO DE EL CABRIL.
- 04 ALMACENAMIENTO DEFINITIVO DE RESIDUOS DE RADIATIVIDAD ALTA. Caracterización y comportamiento a largo plazo de las combustibles nucleares irradiados (I).
- 05 METODOLOGÍA DE ANÁLISIS DE LA BIOSFERA EN LA EVALUACIÓN DE ALMACENAMIENTOS GEOLÓGICOS PROFUNDOS DE RESIDUOS RADIACTIVOS DE ALTA ACTIVIDAD ESPECÍFICA.
- 06 EVALUACIÓN DEL COMPORTAMIENTO Y DE LA SEGURIDAD DE UN ALMACENAMIENTO GEOLÓGICO PROFUNDO EN GRANITO. Marzo 1997
- 07 SÍNTESIS TECTOESTRATIGRÁFICA DEL MACIZO HESPÉRICO. VOLUMEN I.
- 08 3ºS JORNADAS DE I+D Y TECNOLOGÍAS DE GESTIÓN DE RESIDUOS RADIACTIVOS. Pósters descriptivos de los proyectos de I+D y evaluación de la seguridad a largo plazo.
- 09 FEBEX. ETAPA PREOPERACIONAL. INFORME DE SÍNTESIS.

- 10 METODOLOGÍA DE GENERACIÓN DE ESCENARIOS PARA LA EVALUACIÓN DEL COMPORTAMIENTO DE LOS ALMACENAMIENTOS DE RESIDUOS RADIACTIVOS.
- 11 MANUAL DE CESARR V.2. Código para la evaluación de seguridad de un almacenamiento superficial de residuos radiactivos de baja y media actividad.

1998

- 01 FEBEX. PRE-OPERATIONAL STAGE. SUMMARY REPORT.
- 02 PERFORMANCE ASSESSMENT OF A DEEP GEOLOGICAL REPOSITORY IN GRANITE. March 1997.
- 03 FEBEX. DISEÑO FINAL Y MONTAJE DEL ENSAYO "IN SITU" EN GRIMSEL.
- 04 FEBEX. BENTONITA: ORIGEN, PROPIEDADES Y FABRICACIÓN DE BLOQUES.
- 05 FEBEX. BENTONITE: ORIGIN, PROPERTIES AND FABRICATION OF BLOCKS.
- 06 TERCERAS JORNADAS DE I+D Y TECNOLOGÍAS DE GESTIÓN DE RESIDUOS RADIACTIVOS. 24-29 Noviembre, 1997. Volumen I
- 07 TERCERAS JORNADAS DE I+D Y TECNOLOGÍAS DE GESTIÓN DE RESIDUOS RADIACTIVOS. 24-29 Noviembre, 1997. Volumen II
- 08 MODELIZACIÓN Y SIMULACIÓN DE BARRERAS CAPILARES.
- 09 FEBEX. PREOPERATIONAL THERMO-HYDRO-MECHANICAL (THM) MODELLING OF THE "IN SITU" TEST.
- 10 FEBEX. PREOPERATIONAL THERMO-HYDRO-MECHANICAL (THM) MODELLING OF THE "MOCK UP" TEST.
- 11 DISOLUCIÓN DEL $UO_2(s)$ EN CONDICIONES REDUCTORAS Y OXIDANTES.
- 12 FEBEX. FINAL DESIGN AND INSTALLATION OF THE "IN SITU" TEST AT GRIMSEL.

1999

- 01 MATERIALES ALTERNATIVOS DE LA CÁPSULA DE ALMACENAMIENTO DE RESIDUOS RADIACTIVOS DE ALTA ACTIVIDAD.
- 02 INTRAVAL PROJECT PHASE 2: STOCHASTIC ANALYSIS OF RADIONUCLIDES TRAVEL TIMES AT THE WASTE ISOLATION PILOT PLANT (WIPP), IN NEW MEXICO (U.S.A.).
- 03 EVALUACIÓN DEL COMPORTAMIENTO Y DE LA SEGURIDAD DE UN ALMACENAMIENTO PROFUNDO EN ARCILLA. Febrero 1999.
- 04 ESTUDIOS DE CORROSIÓN DE MATERIALES METÁLICOS PARA CÁPSULAS DE ALMACENAMIENTO DE RESIDUOS DE ALTA ACTIVIDAD.
- 05 MANUAL DEL USUARIO DEL PROGRAMA VISUAL BALAN V. 1.0. CODIGO INTERACTIVO PARA LA REALIZACIÓN DE BALANCES HIDROLÓGICOS Y LA ESTIMACIÓN DE LA REGARGA.
- 06 COMPORTAMIENTO FÍSICO DE LAS CÁPSULAS DE ALMACENAMIENTO.
- 07 PARTICIPACIÓN DEL CIEMAT EN ESTUDIOS DE RADIOECOLOGÍA EN ECOSISTEMAS MARINOS EUROPEOS.
- 08 PLAN DE INVESTIGACIÓN Y DESARROLLO TECNOLÓGICO PARA LA GESTIÓN DE RESIDUOS RADIACTIVOS 1999-2003. OCTUBRE 1999.
- 09 ESTRATIGRAFÍA BIOMOLECULAR. LA RACEMIZACIÓN/EPIMERIZACIÓN DE AMINOACIDOS COMO HERRAMIENTA GEOCRONOLÓGICA Y PALEOTERMOMÉTRICA.
- 10 CATSIUS CLAY PROJECT. Calculation and testing of behaviour of unsaturated clay as barrier in radioactive waste repositories. STAGE 1: VERIFICATION EXERCISES.
- 11 CATSIUS CLAY PROJECT. Calculation and testing of behaviour of unsaturated clay as barrier in radioactive waste repositories. STAGE 2: VALIDATION EXERCISES AT LABORATORY SCALE.

- 12 CATSIUS CLAY PROJECT. Calculation and testing of behaviour of unsaturated clay as barrier in radioactive waste repositories. STAGE 3: VALIDATION EXERCISES AT LARGE "IN SITU" SCALE.

2000

- 01 FEBEX PROJECT. FULL-SCALE ENGINEERED BARRIERS EXPERIMENT FOR A DEEP GEOLOGICAL REPOSITORY FOR HIGH LEVEL RADIOACTIVE WASTE IN CRYSTALLINE HOST ROCK. FINAL REPORT.
- 02 CALCULO DE LA GENERACIÓN DE PRODUCTOS RADIOLÍTICOS EN AGUA POR RADIACIÓN α . DETERMINACIÓN DE LA VELOCIDAD DE ALTERACIÓN DE LA MATRIZ DEL COMBUSTIBLE NUCLEAR GASTADO.
- 03 LIBERACIÓN DE RADIONUCLEIDOS E ISÓTOPOS ESTABLES CONTENIDOS EN LA MATRIZ DEL COMBUSTIBLE. MODELO CONCEPTUAL Y MODELO MATEMÁTICO DEL COMPORTAMIENTO DEL RESIDUO.
- 04 DESARROLLO DE UN MODELO GEOQUÍMICO DE CAMPO PRÓXIMO.
- 05 ESTUDIOS DE DISOLUCIÓN DE ANÁLOGOS NATURALES DE COMBUSTIBLE NUCLEAR IRRADIADO Y DE FASES DE (U)VI-SILICIO REPRESENTATIVAS DE UN PROCESO DE ALTERACIÓN OXIDATIVA.
- 06 CORE2D. A CODE FOR NON-ISOTHERMAL WATER FLOW AND REACTIVE SOLUTE TRANSPORT. USERS MANUAL VERSION 2.
- 07 ANÁLOGOS ARQUEOLÓGICOS E INDUSTRIALES PARA ALMACENAMIENTOS PROFUNDOS: ESTUDIO DE PIEZAS ARQUEOLÓGICAS METÁLICAS.
- 08 PLAN DE INVESTIGACIÓN Y DESARROLLO TECNOLÓGICO PARA LA GESTIÓN DE RESIDUOS RADIACTIVOS 1999-2003. REVISIÓN 2000.
- 09 IV JORNADAS DE INVESTIGACIÓN Y DESARROLLO TECNOLÓGICO EN GESTIÓN DE RESIDUOS RADIACTIVOS. POSTERS DIVULGATIVOS.
- 10 IV JORNADAS DE INVESTIGACIÓN Y DESARROLLO TECNOLÓGICO EN GESTIÓN DE RESIDUOS RADIACTIVOS. POSTERS TÉCNICOS.

PUBLICACIONES NO PERIÓDICAS

1992

PONENCIAS E INFORMES, 1988-1991.

SEGUNDO PLAN DE I+D, 1991-1995. TOMOS I, II Y III.

SECOND RESEARCH AND DEVELOPMENT PLAN, 1991-1995, VOLUME I.

1993

SEGUNDO PLAN DE I+D. INFORME ANUAL 1992.

PRIMERAS JORNADAS DE I+D EN LA GESTIÓN DE RESIDUOS RADIACTIVOS. TOMOS I Y II.

1994

SEGUNDO PLAN I+D 1991-1995. INFORME ANUAL 1993.

1995

TERCER PLAN DE I+D 1995-1999.

SEGUNDAS JORNADAS DE I+D. EN LA GESTIÓN DE RESIDUOS RADIACTIVOS. TOMOS I Y II.

1996

EL BERROCAL PROJECT. VOLUME I. GEOLOGICAL STUDIES.

EL BERROCAL PROJECT. VOLUME II. HYDROGEOCHEMISTRY.

EL BERROCAL PROJECT. VOLUME III. LABORATORY MIGRATION TESTS AND IN SITU TRACER TEST.

EL BERROCAL PROJECT. VOLUME IV. HYDROGEOLOGICAL MODELLING AND CODE DEVELOPMENT.

**Programa de investigación
para estudiar los efectos
de la radiación gamma
en bentonitas cálcicas
españolas**

PUBLICACIÓN TÉCNICA 11/2000

Para más información, dirigirse a:

enresa

Unidad de Soportes de la Comunicación
C/ Emilio Vargas, 7
28043 MADRID

<http://www.enresa.es>

Noviembre 2000