

técnicas

publicaciones



ES0100271

IV Jornadas
de investigación y
desarrollo tecnológico
en gestión de
residuos radiactivos

Volumen II

. . 33 / 01

enresa

publicación técnica 08/2001

IV Jornadas
de investigación y
desarrollo tecnológico
en gestión de
residuos radiactivos

Volumen II

enresa

ENRESA
Dirección de Investigación 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-45807-2001
Octubre 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

Las presentes publicaciones técnicas recogen las principales ponencias presentadas en las IV Jornadas de I+D en Tecnología de Gestión de Residuos Radiactivos, promovidas por ENRESA y celebradas en la Universidad de Barcelona en Noviembre del año 2000.

Las ponencias corresponden tanto a las Sesiones Técnicas como a los Seminarios que tuvieron lugar y en su conjunto constituyen un documento de inestimable valor que indica el elevado nivel tecnológico alcanzado en la gestión de residuos radiactivos como resultado de una clara y continuada política de I+D, conjuntada con una intensa y fructífera colaboración internacional.

A lo largo de las ponencias de este documento puede conocerse el estado tecnológico y las capacidades desarrolladas en los distintos ámbitos de la gestión de residuos radiactivos. Los principales temas tratados incluyen: la gestión de residuos de baja y media actividad, el desmantelamiento de instalaciones nucleares, la separación y transmutación de radionucleidos de vida larga y, sobre todo, el almacenamiento geológico profundo. A través de las ponencias correspondientes a las sesiones científicas se revisan a nivel general el estado del conocimiento en las áreas citadas, con énfasis especial en los logros y desarrollos conseguidos en España. A través de los seminarios se puede profundizar en aspectos de gran relevancia dentro de la I+D en residuos radiactivos, tales como el papel de la biosfera, la modelización numérica y los laboratorios subterráneos.

Los documentos presentados en estas jornadas avalan el nivel de madurez científico y tecnológico conseguido en este campo por ENRESA y las organizaciones que con ella desarrollan su Plan de I+D, y deben constituir para la sociedad un mensaje de confianza en lo referente a las capacidades disponibles para resolver el problema de los residuos radiactivos en España en perfecta sintonía con los países más avanzados en este campo.

Finalmente, ENRESA quiere agradecer a ponentes y autores por el importante volumen de información acumulado, por el esfuerzo realizado y por la calidad conseguida.

These Technical Publications include the main papers presented during the IV R&D Symposium on Radioactive Wastes Management Technology, promoted by ENRESA and held in the Barcelona University during November 2000.

The papers correspond both to the Technical Sessions and the Seminars and they are a document of inestimable value that indicates the high technological value reached in the radioactive waste management as a result of a clear and continuous R&D politics together with an intense and productive international collaboration.

Throughout the papers of this document the technological status and the capacities developed in all different fields of the radioactive waste management are shown. The main subjects discussed include: low and medium activity wastes management, dismantling of nuclear plants, partitioning and transmutation of long life radionuclides and mainly deep geological disposal. Through the papers corresponding to the scientific sessions the state of the art in the mentioned areas is reviewed with special emphasis, as well as the achievements and developments reached in Spain. Through the seminars, many outstanding aspects of the R&D in radioactive wastes such as the biosphere role, the numerical modelling and the underground laboratories, can be studied in depth.

The documents presented in this Symposium endorse the scientific and technological maturity level reached in this field by ENRESA and the organisations that develop with ENRESA its R&D Plan and must mean for the society a confidence message in which is referred to the available capacities to solve the problem of the radioactive wastes in Spain in perfect syntony with the most advanced countries in this field.

Finally ENRESA wants to thank all the speakers and authors for the important volume of papers that were gather together and for the effort make and the quality reached.

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

Índice

Índice

VOLUMEN I

SESIONES CIENTÍFICAS. ACTIVIDADES DE GESTIÓN DE ENRESA	1
SESIÓN I: ACTIVIDAD DE GESTIÓN DE ENRESA	3
EL PLAN GENERAL DE RESIDUOS RADIATIVOS	
<i>V. Gozález. ENRESA</i>	5
PLAN DE INVESTIGACIÓN Y DESARROLLO TECNOLÓGICO DE ENRESA (1999-2003)	
<i>J. Astudillo, R. Gavela. ENRESA</i>	9
SESIÓN II: TECNOLOGÍA DEL RESIDUO, SEPARACIÓN Y TRANSMUTACIÓN	23
GESTIÓN DE LOS COMBUSTIBLES IRRADIADOS. PAPEL DE LA SEPARACIÓN Y LA TRANSMUTACIÓN	
<i>J.L. González. ENRESA.</i>	25
CARACTERIZACIÓN DE RESIDUOS DE ALTA ACTIVIDAD: PROCESOS, TECNOLOGÍAS, RESULTADOS Y MODELOS	
<i>A. Martínez-Esparza. ENRESA</i>	
<i>P. Díaz Arocas, J. Quiñones. CIEMAT</i>	
<i>J. de Pablo, I. Casas. UPC-DIQ</i>	
<i>J. Bruno, E. Cera. ENVIROS-QUANTISCI</i>	29
FÍSICO-QUÍMICA Y MECANISMOS DE RETENCIÓN DE ACTÍNIDOS, PRODUCTOS DE FISIÓN Y PRODUCTOS DE ACTIVACIÓN	
<i>J. Bruno, L. Duro. ENVIROS-QUANTISCI</i>	
<i>P. Rivas, M. García, T. Missana. CIEMAT</i>	
<i>I. Casas, J. de Pablo. UPC</i>	
<i>P. Hernán. ENRESA</i>	45
SORCIÓN Y MIGRACIÓN DE ACTÍNIDOS Y PRODUCTOS DE FISIÓN	
<i>M. García, T. Missana, P. Rivas. CIEMAT.</i>	61

ITU-ENRESA COLLABORATION ON IRRADIATED FUEL RESEARCH <i>J. P. Glatz, Hj. Matzke, V. V. Rondinella. European Commission, Joint Research Center, Institute For Transurorium Elements J. A. Serrano, J. Cobos. CIEMAT A. Martínez Esparza. ENRESA</i>	79
SEPARACIÓN MEDIANTE PROCESOS HIDROMETALÚRGICOS Y PIROMETALÚRGICOS DE RADIONUCLEIDOS DE VIDA LARGA <i>A. González de la Huebra, J. A. Suárez, G. Piña, M. Rodríguez Alcalá, J.L. Gascón, G. Espartero, P. Díoz Arosos, C. Caravaca, J. Serrano, C. González. CIEMAT Y. Castrillejo, R. Bermejo, E. Barrado. Universidad de Valladolid</i>	97
ESTUDIOS BÁSICOS DE TRANSMUTADORES DE RESIDUOS DE VIDA LARGA: MODELOS NEUTRÓNICOS <i>J.M. Martínez-Val, P.T. León, E. Mínguez, M. Perlado. UPM-ETSSI M. Piera. UNED-ETSII</i>	113
SESIÓN III: I + D DE APOYO A INSTALACIONES OPERATIVAS DE GESTIÓN DE RESIDUOS	139
LA I + D COMO APOYO A LA INNOVACIÓN Y OPTIMIZACIÓN DE LAS INSTALACIONES OPERATIVAS DE GESTIÓN DE RESIDUOS <i>P. Zuloaga Lalana, J. Antonio Gago, P. Carboneras, C. Pérez Estévez. ENRESA</i>	141
TECNOLOGÍAS DE CARACTERIZACIÓN DE RESIDUOS DE BAJA Y MEDIA ACTIVIDAD: PASADO, PRESENTE Y FUTURO <i>A. González de la Huebra, J. A. Suárez, G. Piña, M. Rodríguez. Alcalá, J. L. Gascón, G. Espartero, A. Almodóvar. CIEMAT A. Morales. ENRESA</i>	145
DURABILIDAD DE LOS SISTEMAS DE CONTENCIÓN DE HORMIGÓN DE EL CABRIL: PROGRAMAS EXPERIMENTALES Y RESULTADOS DE LOS ESTUDIOS <i>C. Andrade, J. L. Sagrero, C. Alonso, M. Castellote, J. Muñoz, I. Llorente, S. Goñi, A. Guerrero. CSIC-Instituto Torroja</i>	159
DESARROLLO DE UN PROCESO BASADO EN TECNOLOGÍA DE PLASMA PARA EL TRATAMIENTO DE RESIDUOS RADIATIVOS DE BAJA Y MEDIA ACTIVIDAD <i>J. C. Múgica, P. Aguirre. INASMET F. Álvarez-Mir, S. del Río. IBERDROLA S.A. P. Zuloaga, M. Navarro. ENRESA E. Mancebo, J. J. Díaz. IBERINCO S.A. V. Colomer. Universidad de Córdoba</i>	171
VOLUMEN II	
SESIÓN IV: ALMACENAMIENTO DEFINITIVO.	1
COMPORTAMIENTO FÍSICO DE LAS CÁPSULAS DE ALMACENAMIENTO <i>J. Martí, F. Riera, F. Mayorol. UPM-ETSIM</i>	3

SELECCIÓN DE MATERIALES PARA CONTENEDORES DE HLW	
<i>I. Azkarate, M. Insausti, V. Madina. INASMET</i>	14
COMPORTAMIENTO TERMO-HIDRO-MECÁNICO DE BARRERAS ARCILLOSAS DE INGENIERÍA: VERIFICACIÓN EN LABORATORIOS SUBTERRÁNEOS (ÄSPÖ, GRIMSEL Y MT. TERRI)	
<i>E. Alonso, A. Gens, A. Lloret. UPC-CIMNE</i>	33
LA ALTERACIÓN SUPERGÉNICA DE LA PECHBLENDA DE LA MINA FE (CIUDAD RODRIGO, SALAMANCA), COMO ANÁLOGO NATURAL DEL COMBUSTIBLE GASTADO: DISOLUCIÓN, TRANSPORTE Y RETENCIÓN DE RADIONUCLEIDOS NATURALES EN UN MEDIO FRACTURADO. (PROYECTO MATRIX I)	
<i>L. Pérez del Villar, R. Campos, P. Gómez, J.S. Cózar, J. Pardillo, B. Buil, A. Garralón, M^o J. Turrero, M. Pelayo, B. Ruiz, P. Rivas. CIEMAT</i>	
<i>D. Arcos, J. Bruno, M. Grivé. ENVIROS-QUANTISCI</i>	
<i>J. Ruiz Sánchez-Porro, F. Marín, A. Izquierdo. ENUSA</i>	
<i>G. Carretero, F. Ortuño, E. Floría, J. Suso. AITEMIN</i>	
<i>P. Hernán, J. Astudillo. ENRESA</i>	49
TESTIFICACIÓN Y MONITORIZACIÓN DE LAS AGUAS SUBTERRÁNEAS	
<i>P. Gómez, A. Garralón, M^o J. Turrero, B. Ruiz, L. Sánchez. CIEMAT</i>	
<i>C. Bajos. ENRESA</i>	87
MODELACIÓN DEL ENTORNO DE LA MINA RATONES (CÁCERES)	
<i>L. Martínez Landa, J. Carrera. UPC-DIT</i>	103
CARACTERIZACIÓN HIDROGEOLÓGICA DE MEDIOS FRACTURADOS DE BAJA PERMEABILIDAD	
<i>F. Ortuño, E. Floría, G. Carretero, J. M^o Suso. AITEMIN</i>	117
METODOLOGÍA PETROFÍSICA PARA LA CARACTERIZACIÓN FRACTOGRÁFICA E HIDROGEOLÓGICA DE LA MATRIZ ROCOSA	
<i>M. Montoto San Miguel. Universidad de Oviedo</i>	135
ESTABILIDAD DE LA BARRERA GEOLÓGICA: ESTUDIOS NEOTECTÓNICOS, SISMOTECTÓNICOS Y PALEOSISMOLÓGICOS	
<i>P. Santanach, E. Masana. UB</i>	
<i>M. Herroiz, G. de Vicente. UCM</i>	
<i>M. Lucini. ENRESA</i>	147
SESIÓN V. EVOLUCIÓN DE LA SEGURIDAD Y DE LAS INSTALACIONES DE GESTIÓN DE RESIDUOS RADIACTIVOS	157
LA EVALUACIÓN DE LA SEGURIDAD EN LA GESTIÓN DE RESIDUOS RADIACTIVOS. APROXIMACIONES INTERNACIONALES Y APROXIMACIÓN DE ENRESA	
<i>J. Alonso. ENRESA</i>	159
DESARROLLOS DE I+D DE APOYO METODOLÓGICO A LA EVALUACIÓN DE LA SEGURIDAD	
<i>F. Recreo; C. Ruiz. CIEMAT</i>	
<i>R. Bolado; E. Gallego. UPM-ETSII</i>	163

LA EVOLUCIÓN CLIMÁTICA A LARGO PLAZO Y EVALUACIÓN DE LA SEGURIDAD

A. Cortés. ENRESA	
A. Delgado, E. Reyes. CSIC	
P. Pinedo, F. Recreo. CIEMAT	
T. Torres. UPM-ETSIM	181

EL COMPORTAMIENTO DE LOS PRODUCTOS DE LA FISIÓN NATURAL EN EL MEDIO GEOLÓGICO:
IMPLICACIONES PARA LA EVALUACIÓN DEL COMPORTAMIENTO DE UN AGP Y LA OPINIÓN PÚBLICA
(PROYECTO OKLO FASE II)

L. Pérez del Villar, A. Quejido, J. S. Cózar, J. Peña, A. Garralón, P. Gómez, M. T. Crespo, M. Fernández, J. Pardillo, M. J. Gimeno, M. J. Turrero, M. Pelayo, R. Campos, B. Buil. CIEMAT	
J. Bruno, L. Duro, D. Arcos, S. Jordana, M. Grivé, J. Pon. ENVIROS-QUANTISCI	
J. Salas, C. Ayora. CSIC	
I. Pérez, I. Casas. UPC-DIQ	
M. Montoto. Universidad de Oviedo	
P. Hernán. ENRESA	193

BENTONITAS COMO ANÁLOGO NATURAL DEL CAMPO PRÓXIMO: PROYECTO BARRA-I

D. Arcos y J. Bruno. ENVIROS-QUANTISCI	
J. Linares, J. Martínez, E. Caballero, C. Jiménez. CSIC	
A.M. Fernández, M. Pelayo, M.V. Villar, P. Rivas, L. Pérez del Villar. CIEMAT	223

TRANSPORTE DE RADIONUCLEIDOS EN UN SISTEMA DE FLUJO NATURAL DEL YACIMIENTO DE URANIO
DE PALMOTTU (FINLANDIA). (PROYECTO PALMOTTU)

L. Pérez del Villar, M. J. Gimeno, J. S. Cózar, J. Peña, M.J. Turrero, M.T. Crespo, A. Yllera, E. Floría, P. Gómez, R. Campos, J. Pardillo, M. Pelayo, A. Melón, M. D. Sánchez-de Ledesma, M. García, Belén Buil. CIEMAT	
J. Bruno, E. Cera, L. Duro, M. Grivé, C. Rollin. ENVIROS-QUANTISCI	
J. Salas, C. Ayora. CSIC	
A. Delgado, E. Reyes, R. Núñez. CSIC	
P. Hernán. ENRESA	245

VOLUMEN III

SEMINARIOS TÉCNICOS	1
---------------------	---

SEMINARIO 1: COMPORTAMIENTO DE RADIONUCLEIDOS EN LA BIOSFERA Y RESTAURACIÓN AMBIENTAL	3
---------------------------------------------------------------------------------------	---

RECOMENDACIONES MÁS ACTUALES DE LA COMISIÓN INTERNACIONAL DE PROTECCIÓN RADIOLÓGICA
RELATIVA A LA EVACUACIÓN DE RESIDUOS RADIATIVOS

P. Carboneras. ENRESA	
D. Cancia. CIEMAT	5

CARACTERÍSTICAS DE LA BIOSFERA DESDE EL PUNTO DE VISTA DE LA GESTIÓN FINAL
DE LOS RESIDUOS RADIATIVOS

P. Pinedo. CIEMAT	21
-------------------	----

MODELIZACIÓN DEL TRANSPORTE DE RADIONÚCLIDOS EN LA BIOSFERA. ESTIMACIÓN DE CONSECUENCIAS RADIOLÓGICAS EN EL PÚBLICO, ANÁLISIS DE INCERTIDUMBRES	
<i>I. Simón. CIEMAT</i>	33
OBTENCIÓN DE PARÁMETROS DE TRANSFERENCIA. ESTUDIOS EXPERIMENTALES	
<i>A. Agüero. CIEMAT</i>	47
PROTECCIÓN RADIOLÓGICA EN LA INTERVENCIÓN DIRIGIDA A LA RECUPERACIÓN AMBIENTAL TRAS ACCIDENTES	
<i>J. Gutiérrez López, C. Vázquez López, C. Alonso Trueba. CIEMAT</i>	65
RESTAURACIÓN DE ANTIGUAS MINAS DE URANIO	
<i>C. Pérez Estévez. ENRESA</i> <i>F. Lozano Martínez. ENUSA</i>	85
IMPACTO DE LA MINERÍA DE URANIO EN LAS AGUAS SUBTERRÁNEAS	
<i>P. Gómez, A. Garrolón, M^o J. Turrero. CIEMAT</i>	93
SEMINARIO 2: MODELIZACIÓN NUMÉRICA Y EVALUACIÓN DE LA SEGURIDAD A LARGO PLAZO DE LAS INSTALACIONES DE GESTIÓN DE RESIDUOS	117
MODELIZACIÓN DE LOS PROCESOS DE DISOLUCIÓN/LIXIVIACIÓN DEL COMBUSTIBLE	
<i>J. Bruno, E. Cera, J. Merino. ENVIROS-QUANTISCI</i> <i>J. Quiñones. CIEMAT</i> <i>A. Martínez-Esparza. ENRESA</i>	119
MODELIZACIÓN DE LOS PROCESOS DE RETENCIÓN: SORCIÓN	
<i>L. Duro, J. Guimerà, J. Bruno. ENVIROS-QUANTISCI</i> <i>T. Missana, M. García. CIEMAT</i> <i>P. Hernán. ENRESA</i>	147
COUPLED THERMO-HYDRO-GEOCHEMICAL MODELS OF ENGINEERED CLAY BARRIERS	
<i>J. Samper, R. Juncosa, J. Delgado, L. Montenegro, V. Navarro, A. Vázquez, J. Malinera, Z. Dai</i> <i>Universidad de La Coruña-ETSI de Caminas, Canales y Puertas</i>	161
MODELOS ACOPLADOS TERMO-HIDRO-GEOQUÍMICOS: CÓDIGOS DE LA SERIE CORE (CORE ^{2D} , VISUAL-CORE, FADES-CORE, INVERSE-CORE, BIO-CORE)	
<i>J. Samper, R. Juncosa, J. Delgado, V. Navarro, L. Montenegro, Z. Dai, G. Zhang, L. Huguet, J. Molinero</i> <i>Universidad de La Coruña-ETSI de Caminas, Canales y Puertas</i>	175
MODELOS DE FLUJO Y TRANSPORTE EN LA GEOSFERA: EL CÓDIGO TRANSIN	
<i>A. Medina, A. Alcolea, J. Carrera. UPC-ETSI de Caminas, Canales y Puertas</i>	195

MODELOS DE TRANSPORTE REACTIVO: RETRASO

- C. Ayara, J. Salas, I. Benet, F. Batlle. CSIC*
M.W. Saathink, Jesús Carrera. UPC-DIT. 205

MODELIZACIÓN GEOESTADÍSTICA

- J. Jaime Gómez-Hernández, J.E. Capilla, A. Sahuquilla, E. Cassiraga, H-J Hendricks Franssen. UPV-DIMMA* 227

MODELIZACIÓN DE SUBSISTEMAS: CAMPO PRÓXIMO, CAMPO LEJANO Y BIOSFERA

- E. González. INITEC* 235

MODELIZACIÓN GLOBAL DEL SISTEMA

- J.L. Carmenzana. EMPRESARIOS AGRUPADOS* 243

MODELOS ESTADÍSTICOS DE SENSIBILIDAD E INCERTIDUMBRE: MayDay

- Ricardo Bolado. UPM*
Alejandra Alonso. NEXUSS 251

VOLUMEN IV

- SEMINARIO 3: LOS LABORATORIOS SUBTERRÁNEOS COMO CENTROS DE INVESTIGACIÓN Y VERIFICACIÓN DE TECNOLOGÍAS: PARTICIPACIÓN DE GRUPOS DE INVESTIGACIÓN ESPAÑOLES 1

EL PAPEL DE ENRESA EN LOS LABORATORIOS SUBTERRÁNEOS

- P. Hernán, J. Astudillo, C. Bajas, F. Huertas, J.C. Mayor. ENRESA* 3

ENSAYOS EN MAQUETA Y DE APOYO AL ENSAYO "IN SITU": MAQUETA FEBEX Y MAQUETA GEOQUÍMICA. PROCESOS RELEVANTES Y DIFICULTADES DE CARACTERIZACIÓN

- P. L. Martín, M.V. Villar, M. García, A. Yllera. CIEMAT* 9

PROYECTO GAM (GAs Migration): CARACTERIZACIÓN DEL FLUJO Y TRANSPORTE DE GASES EN UNA FRACTURA

- H. Romajo, J. Jódar, J. Carrera, S. Olivella, X. Sánchez. UPC-DIT*
J.C. Mayor. ENRESA 29

MIGRACIÓN DE RADIONUCLEIDOS EN FORMA DE COLOIDES: PROYECTO CRR

- T. Missana, U. Alonso, M^o J. Turrero. CIEMAT*
J. Bruno, L. Duro, J. Guimerá. ENVIROS-QUANTISCI
P. Hernán. ENRESA 47

LABORATORIO SUBTERRÁNEO DE ÄSPÖ. PROYECTO TRUE BLOCK SCALE	
<i>C. Bajas. ENRESA</i>	
<i>B. de la Cruz. CIEMAT</i>	63
PROYECTOS DE BARRERA DE INGENIERÍA EN ÄSPÖ : “PROTOTYPE”, “BACKFILL AND PLUG TEST”	
<i>A. Ledesma. UPC</i>	
<i>J. L. Fuentes. AITEMIN</i>	
<i>F. Huertas. ENRESA</i>	79
CARACTERIZACIÓN HIDRÁULICA, HIDROGEOQUÍMICA Y DEL TRANSPORTE DIFUSIVO DE RADIONUCLEIDOS EN LA FORMACIÓN ARCILLOSA DE MONT TERRI	
<i>A. M^o Fernández, A. Yllera, M. J. Turrero, J. Peña, A. Melón, M. García, M. Mingarro, A. Hernández, P. Rivas. CIEMAT</i>	
<i>P. Hernán, J. C. Mayor</i>	91
MODELIZACIÓN GEOQUÍMICA EN EL LABORATORIO SUBTERRÁNEO DE MONT TERRI	
<i>D. Arcos, J. Bruno. ENVIROS-QUANTISCI</i>	
<i>J. Peña, M^o J. Turrero, A. M^o Fernández. CIEMAT.</i>	119
PROYECTO MONT TERRI. EXCAVACIÓN DE LA NUEVA GALERÍA. TRAMO ED-B. CARACTERIZACIÓN Y CÁLCULOS GEOMECÁNICOS	
<i>M. Velasco. DM IBERIA</i>	139

Sesión IV:
Almacenamiento
definitivo

Sesión IV: Almacenamiento definitivo

COMPORTAMIENTO FÍSICO DE LAS CÁPSULAS DE ALMACENAMIENTO

Joaquín Martí, Francisco Riera y Félix Mayoral
UPM-ETSIM

Introducción

En la última etapa de su ciclo de vida, el combustible gastado de las centrales nucleares será encapsulado para su almacenamiento definitivo en un AGP (Almacenamiento Geológico Profundo). El presente artículo estudia el comportamiento físico de este tipo de cápsulas en una serie de condiciones, tanto de operación como de accidente, aunque las demandas impuestas es este último caso tienden a ser superiores a las relacionadas con la operación normal.

El trabajo aquí resumido ha sido llevado a cabo en el seno del Departamento de Ingeniería de Materiales (DIM) de la Escuela de Minas de Madrid, financiado para ello por ENRESA. Los resultados y demás documentación se presentan de forma más detallada en los diversos informes presentados por el DIM a ENRESA a lo largo del periodo 1996 a 1999. De especial interés, por constituir un resumen amplio y detallado, es la Publicación Técnica num. 06/99 de ENRESA (DIM, 1999), a la que se remite al lector interesado para obtener más información sobre los temas objeto del presente artículo.

Descripción general

Las cápsulas serán cilíndricas, con fondo y tapa planos, constituidas por acero al carbono sin alear, laminado en caliente. El cierre, llevado a cabo por soldadura, garantizará su estanqueidad, manteniendo la continuidad de la superficie externa.

Las dimensiones internas de la cápsula, relacionadas con el tamaño del combustible, son 700 mm de diámetro y 4300 mm de longitud. Los espesores constituyen el principal parámetro cuya influencia se desea analizar. Como orden de magnitud, se es-

pera adoptar un espesor para la pared cilíndrica de unos 100 mm, con un 20% adicional en la tapa y en la base (Fig. 1). Conviene notar que el estudio de espesores variables es de interés tanto como soporte al diseño inicial como para tener en cuenta la pérdida gradual de espesor mecánicamente útil a la que el deterioro químico progresivo sin duda dará lugar.

Quando no se trate de cápsulas vacías, se considerará aquí que éstas contienen un bastidor con cuatro elementos combustibles tipo PWR y un relleno de bolas de vidrio en atmósfera inerte.

Las cápsulas se colocarán en galerías horizontales a 500 m de profundidad, de sección circular, con el eje de la cápsula coincidente con el de la galería. El espacio de la galería que circunda a la cápsula estará ocupado por bentonita como material de sellado. Se supone que alrededor de la galería hay una formación geológica uniforme.

Demandas térmicas

El estudio térmico tiene como objetivo determinar las temperaturas en distintos puntos de la cápsula a lo largo de los primeros 30 años de su alojamiento en el AGP. De particular interés son los valores de temperaturas en el elemento combustible para establecer su tasa de degradación, las máximas temperaturas en la cápsula y máximos gradientes para establecer las posibles tensiones térmicamente inducidas y, por último, la distribución de la temperatura en la bentonita, cuya estabilidad es menos fiable a partir de los 100°C.

El combustible albergado en las cápsulas ha sido sometido previamente a un periodo de enfriamiento de 47 años desde su salida del reactor. La evolu-

ción de la potencia a lo largo de los siguientes 30 años es la que aparece en la tabla 1.

Aunque puede esperarse que las propiedades térmicas de la bentonita evolucionarán en cada punto con el tiempo, a efectos del presente estudio se ha considerado suficiente utilizar unas propiedades homogéneas y constantes.

El gradiente geotérmico no juega un papel importante en el estudio, ya que su presencia no altera la disipación de calor que proviene de la cápsula. En consecuencia, se comienza el análisis suponiendo una temperatura preexistente a la profundidad del almacenamiento de 30°C. Se han tomado dos valores para la conductividad del relleno de vidrio: 1 y 0,25 W/m°C.

En la modelización del problema se ha utilizado el programa de elementos finitos de propósito general ABAQUS/Standard (HKS, 1997a). Se han tenido en cuenta todos los planos de simetría: el plano horizontal de las galerías, dos planos verticales paralelos al eje de la galería (el que contiene al propio eje y el equidistante entre los ejes de dos galerías contiguas) y, dos planos verticales normales al eje de la galería (el que pasa por el centro de la cápsula y el que pasa por el centro de la bentonita comprendida entre cápsulas adyacentes de la galería). La zona local de la malla generada se puede ver en la Fig. 2; por claridad se ha suprimido la parte de la malla utilizada para representar la formación geológica hospedante.

Realizado el análisis con el valor más alto de conductividad del relleno de vidrio, la máxima temperatura en el combustible resulta ser 142°C y ocurre a los 4 años. Cuando la conductividad del relleno es 0,25 W/m°C, se obtienen temperaturas máximas en el elemento de 186°C. Las máximas temperaturas desarrolladas en la bentonita ocurren a los 11 años y su valor es de 107°C para los dos casos estudiados.

Resulta de interés observar la distribución de temperaturas superiores a 100°C en la bentonita. Con este fin se presenta la máxima extensión de la isoterma de 100°C en el interior de la bentonita (Fig. 3). El espesor de bentonita con temperaturas por encima de 100°C es de unos 6 cm en la zona central de la pared cilíndrica de la cápsula y de unos 2 cm en la zona del fondo/tapa.

Los saltos térmicos a través de la pared de la cápsula, de interés por las tensiones térmicamente inducidas que se pudieran generar, no llegan a 1°C y su efecto es por tanto despreciable.

Demandas mecánicas estáticas

Se han estudiado múltiples casos de demandas estáticas sobre la cápsula, tanto normales como excepcionales. En la presente sección se muestran algunos casos significativos. Las cargas son producto esencialmente de las presiones externas desarrolladas en el almacenamiento. Aunque también se han estudiado casos con presiones no uniformes, aquí se discutirá únicamente la posibilidad de que las compresiones externas, supuestas uniformes, produzcan el pandeo elástico o el colapso plástico de la cápsula.

Pandeo de la cápsula

Para el estudio del pandeo elástico de la cápsula se ha optado por representar sólo la mitad de la cápsula; esto suprime los modos que no admiten un plano de simetría, que son básicamente modos de torsión y resultan aquí poco relevantes. El análisis se realizó con el programa ABAQUS/Standard (HKS, 1997a). La malla utilizada se puede observar en la Fig. 4.

Con el fin de tener en cuenta la diversidad de espesores iniciales, así como la degradación progresiva del espesor estructuralmente útil, se han estudiado cápsulas con espesores de pared de 30, 40, 80, 100 y 120 mm, lo que cubre un rango amplio de espesores de interés.

Los análisis muestran que los dos primeros modos de pandeo son los mismos independientemente del espesor, aunque lógicamente varía la presión crítica a la que se activan. El primer modo de pandeo elástico se puede ver en la Fig. 5 para una cápsula de 100 mm de espesor; la presión crítica para desarrollar los dos primeros modos de pandeo en una cápsula de 100 mm de espesor es 834 y 1012 MPa respectivamente.

La dependencia de la carga crítica de pandeo con el espesor de pared aparece en la Fig. 6. Sobre el rango de espesores considerados, la carga crítica necesaria para activar el primer modo de pandeo es una función potencial del espesor, con un exponente de 2,6 aproximadamente.

Colapso plástico de la cápsula

Para modelizar el problema de colapso plástico se ha utilizado una malla axisimétrica con un plano central de simetría normal al eje de la cápsula. Se

ha utilizado la misma malla para los distintos casos analizados conservando las dimensiones internas variando simplemente el espesor.

Las máximas deformaciones plásticas, aparte de aquéllas desarrolladas en el contacto base-pared, no ocurren siempre en la misma zona de la cápsula. La Fig. 7 muestra la configuración de las deformaciones plásticas para el caso de una cápsula de 120 mm de espesor de pared. Para espesores hasta 100 mm, las máximas deformaciones ocurren en la base o tapa, en lugar de en la pared.

La progresión de las deformaciones plásticas, una vez que empiezan a aparecer, es relativamente rápida: iniciada la plastificación, pequeños incrementos de presión producen incrementos sustanciales de las deformaciones plásticas. La Fig. 8 indica las presiones necesarias para inducir deformaciones del 2% y del 10%. Puede verse que se diferencian relativamente poco y que, a pesar de las variaciones en la localización de las máximas deformaciones, se mantienen relaciones potenciales comunes entre el espesor de la cápsula y los niveles de presión necesarias para plastificarla.

Para todos los espesores de pared analizados, desde 30 a 120 mm, conservando un espesor 20% superior para la tapa y el fondo, las presiones necesarias para producir el pandeo son mayores que las requeridas para inducir el colapso plástico. Esto se puede observar en la Fig. 9, que muestra conjuntamente los valores de la presión externa necesarios para activar el primer modo de pandeo y para que las máximas deformaciones plásticas alcancen el 2%.

Las presiones requeridas para excitar el primer modo de pandeo varían aproximadamente con la potencia 2,6 del espesor, mientras las presiones necesarias para producir deformaciones plásticas del 2% sólo varían con la potencia 1,7. Esto hace presumir que, para pequeños espesores, el pandeo elástico podría ocurrir antes de alcanzar el 2% de deformación. Extrapolando las correlaciones, esta situación se daría para espesores de pared del orden del centímetro.

Demandas mecánicas dinámicas

Se ha estudiado el itinerario de las cápsulas, desde que llegan vacías a la instalación hasta que finalmente se alojan en el tubo-guía con el combustible en su interior. Así se han identificado los accidentes cuya ocurrencia produciría consecuencias potencialmente significativas para la cápsula. Por brevedad sólo se discutirán aquí dos de estos accidentes.

La publicación técnica ya mencionada (DIM, 1999) incluye otros casos de caídas de la cápsula dentro y fuera del sobreenvase, caídas de la tapa sobre la cápsula en diversas orientaciones, etc.

Impacto sobre un punzón

Para cubrir posibles accidentes de caídas de la cápsula sobre elementos pequeños y poco flexibles se ha estudiado la caída de la cápsula desde un metro de altura sobre un prisma rígido.

La velocidad de impacto tras una caída libre en estas condiciones es de 4,42 m/s. Se supone que la cápsula cae con un movimiento de traslación pura y con su eje orientado horizontalmente. El impacto ocurre contra un prisma recto, vertical y cuadrado, de 15 cm de lado, situado directamente bajo el centro de la cápsula, de forma que se maximicen las deformaciones resultantes.

La modelización geométrica cubre solamente un cuarto de la cápsula debido a las simetrías existentes. La malla generada ha sido refinada donde se prevé que sean mayores los gradientes de tensión y deformación. Se ha utilizado el programa ABAQUS/Explicit (HKS, 1997b).

La Fig. 10 muestra en perspectiva los contornos de igual deformación plástica en una cápsula de 100 mm de espesor. El máximo valor es 4,8% y la indentación producida por el punzón alcanza 7,7 mm. Como era de esperar, la zona más dañada es la de contacto cápsula-punzón; las deformaciones plásticas se concentran a lo largo del contorno exterior del punzón.

Se han estudiado asimismo los casos de cápsulas con 80 y 120 mm de espesor de pared. La variación del espesor de pared en el rango considerado tiene poco efecto sobre las deformaciones plásticas máximas, cuyos valores están comprendidos entre 4,8% y 5,2% en los tres casos analizados.

En cuanto a la indentación producida en la cápsula, un mayor espesor aumenta la masa y, por tanto, la energía de impacto; pero la resistencia aumenta más deprisa que la masa. El resultado es que la profundidad de indentación disminuye desde 9,1 mm cuando el espesor de pared es 80 mm a sólo 7,1 mm cuando alcanza 120 mm.

Impacto de vuelco

La presente sección se centra en el estudio del vuelco de una cápsula vacía y su posterior impacto

contra el suelo. La cápsula parte de la posición de equilibrio inestable, en la que está apoyada en la arista de la base, con el centro de gravedad de la cápsula en la vertical del punto de apoyo.

Se ha supuesto que no existe rozamiento entre la cápsula y el suelo con objeto de maximizar la energía de impacto. La superficie de impacto se ha considerado rígida. Se han estudiado los casos de cápsulas de 80, 100 y 120 mm de espesor de pared.

Con las hipótesis anteriores el vuelco de la cápsula genera las siguientes velocidades de impacto: 5,81 m/s es la velocidad de traslación vertical del centro de gravedad de la cápsula y 2,73 rad/s es la velocidad de giro de la cápsula alrededor del centro de gravedad. No hay velocidad de traslación horizontal del centro de gravedad. La disposición inicial de la malla es la que aparece en la Fig. 11.

Los contornos de igual deformación plástica efectiva para una cápsula de 120 mm de espesor de pared se pueden ver en la Fig. 12; el máximo valor es 1,5%. La zona más dañada es la cercana a la línea de contacto cápsula-plano, con mayores efectos en la zona de la boca, que está menos rigidizada.

De interés especial son las distorsiones remanentes en los diferentes casos estudiados. La cápsula de 100 mm de espesor sufre un acortamiento del diámetro vertical de 9,5 mm; el alargamiento del diámetro horizontal es de sólo 8 mm. Como era de esperar, en el caso de una cápsula de 80 mm de espesor, el acortamiento remanente del diámetro vertical es algo mayor que el anterior, unos 10,5 mm, y el alargamiento horizontal es de 9 mm. Para una cápsula de 120 mm, los valores correspondientes son 8,5 mm y 7,5 mm.

Conclusiones

Se han analizado diferentes demandas físicas a las que pueden verse afectadas las cápsulas de almacenamiento. Se incluyen demandas térmicas y mecánicas, tanto estáticas como dinámicas. Los estu-

dios realizados permiten establecer las siguientes conclusiones:

Las máximas temperaturas esperables en la superficie de una cápsula almacenada alcanzan 107°C y tienen lugar en la pared cilíndrica. Las tensiones térmicamente inducidas son siempre despreciables. Las temperaturas superiores a 100°C se extienden sobre un espesor de bentonita de unos 6 cm cerca de la pared cilíndrica y 2 cm en la zona de la tapa.

La aplicación de presiones externas sobre la cápsula llevaría a su colapso plástico antes que al pandeo elástico, al menos mientras el espesor útil remanente sea del orden de un centímetro o mayor. La presión requerida para el colapso aumenta con la potencia 1,7 del espesor; 103 MPa serían necesarios para causarlo en una cápsula de 100 mm de espesor.

Las caídas de una cápsula desde 1 m de altura sobre un punzón de 15 cm de lado no amenazan la estanqueidad. Sin embargo, las deformaciones plásticas inducidas son del orden del 5%; la indentación causada disminuye desde 9,1 mm con 80 mm de pared a 7,1 mm cuando el espesor crece hasta 120 mm.

El vuelco de una cápsula vacía y sin tapa produce principalmente ovalizaciones en la boca de la cápsula. En función del espesor (entre 80 y 120 mm) las deformaciones plásticas varían entre 1,5% y 2,0% y el acortamiento del diámetro de la boca se encuentra entre 8,5 y 10,5 mm.

Referencias

- DIM – Departamento de Ingeniería de Materiales (1999) "Comportamiento Físico de las Cápsulas de Almacenamiento", ENRESA, Publicación Técnica núm. 06/99.
- HKS – Hibbitt, Karlson and Sorensen, Inc (1997a) "ABAQUS/Standard Users's Manual", Versión 5.7, Pawtucket, Rhode Island.
- HKS – Hibbitt, Karlson and Sorensen, Inc (1997b) "ABAQUS/Explicit Users's Manual", Versión 5.7, Pawtucket, Rhode Island.

Tabla 1
Potencias térmicas disipadas.

Tiempo tras almacenamiento (años)	Potencia disipada (W/elemento)
0	300
1	296
3	287
8	266
13	247
18	230
23	215
30	201

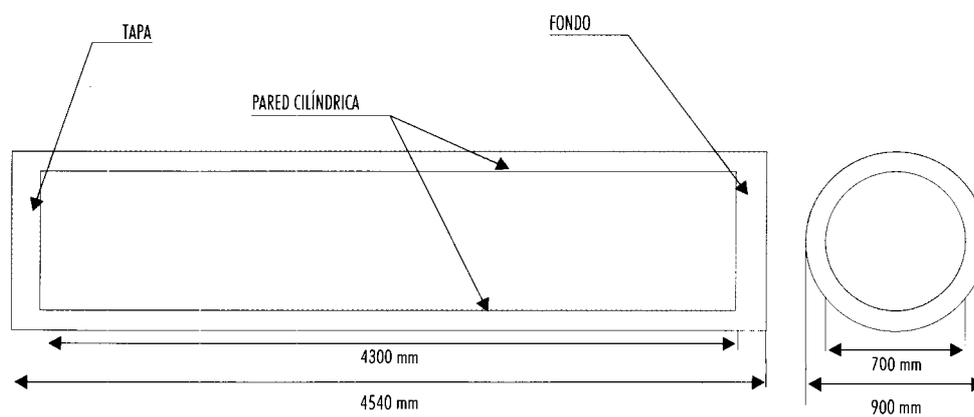


Figura 1. Esquema de la cápsula.

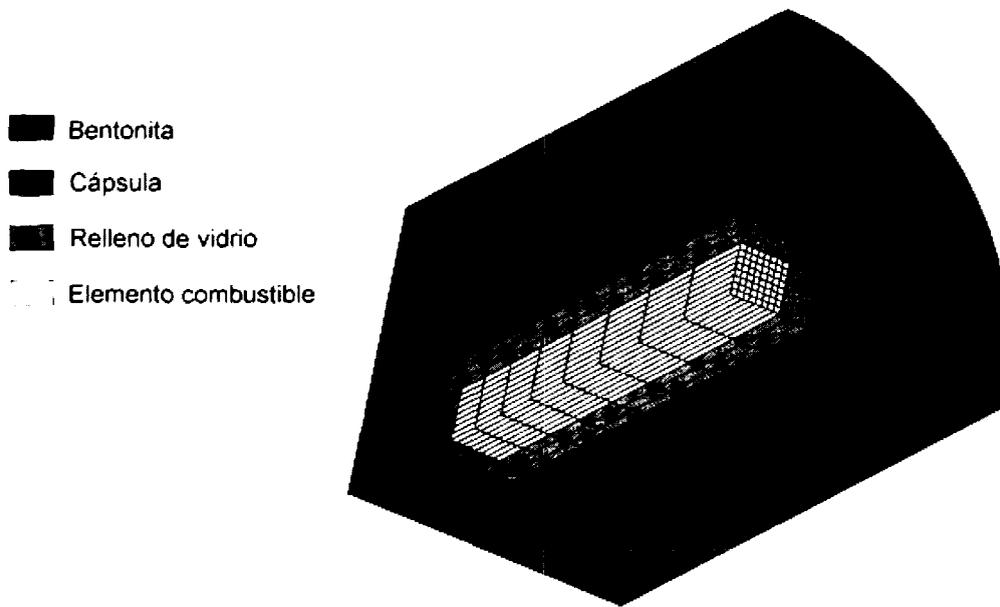


Figura 2. Estudio térmico. Detalle de la malla.

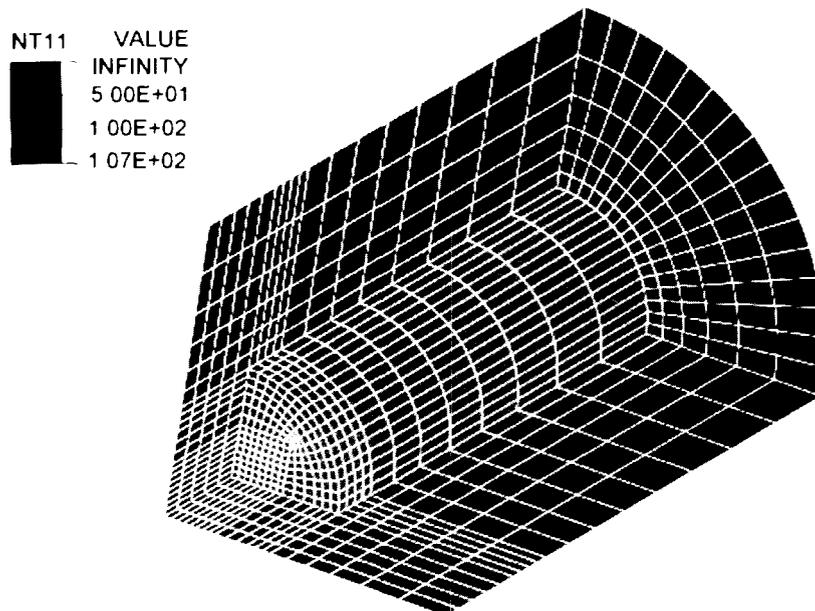


Figura 3. Bentonita a más de 100° C.

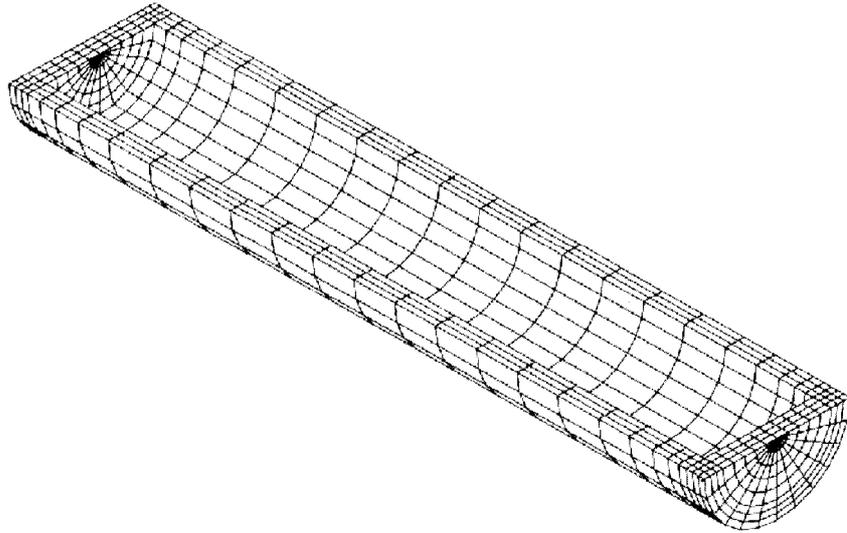


Figura 4. Malla utilizada en estudio del pandeo elástico.

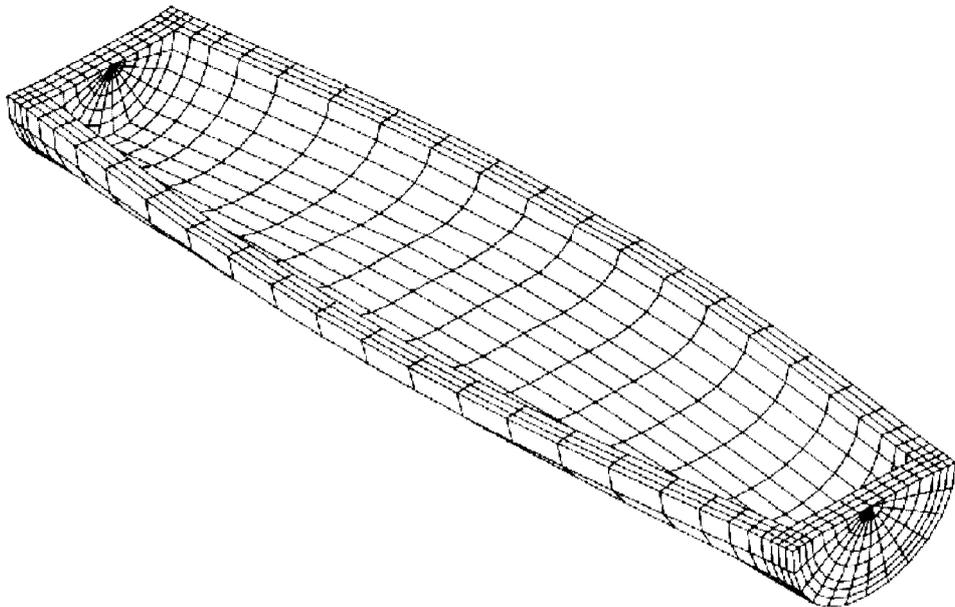


Figura 5. Primer modo de pandeo.

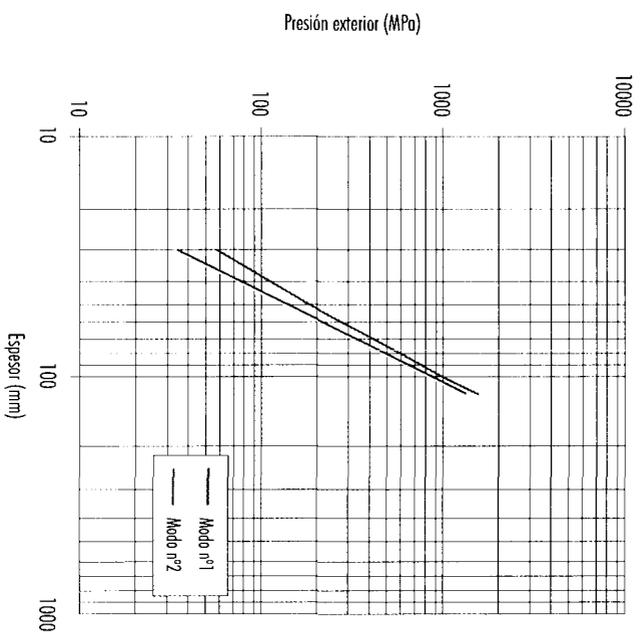


Figura 6. Cargas críticas de pondeo.

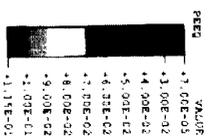


Figura 7. Deformaciones plásticas.

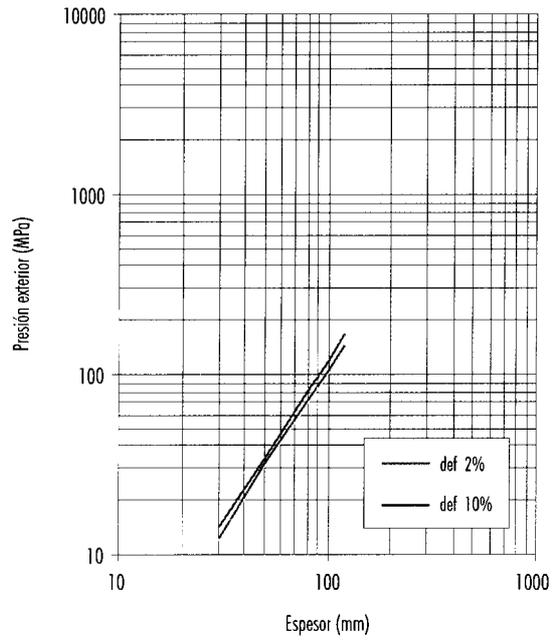


Figura 8. Presiones que producen 2% y 10% de plastificación.

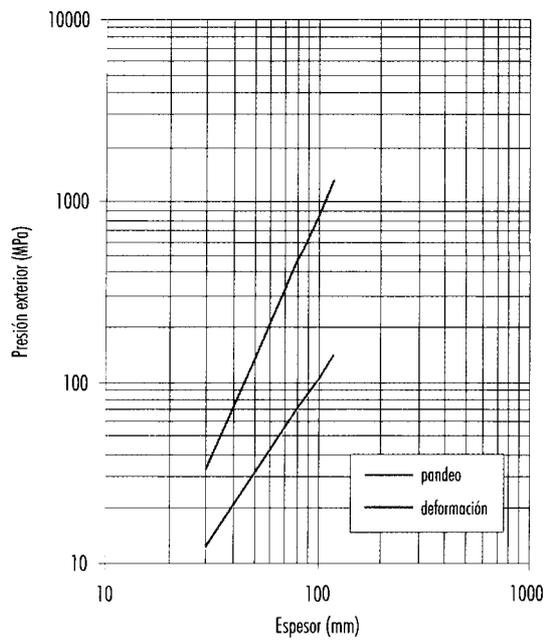


Figura 9. Espesores necesarios para evitar el pandeo y la plastificación.

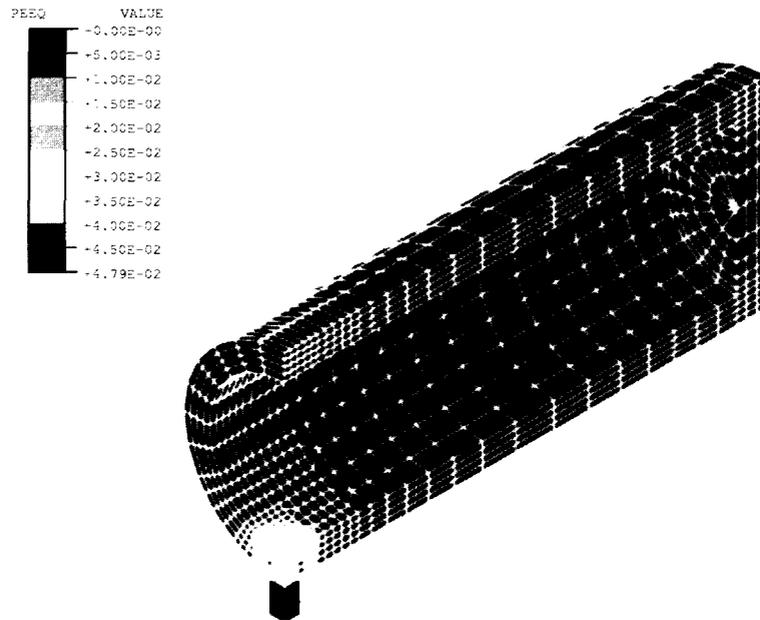


Figura 10. Deformaciones plásticas. Perspectiva.

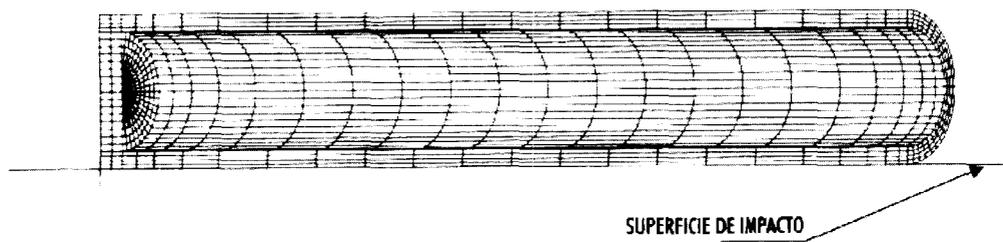


Figura 11. Disposición inicial de la cápsula.

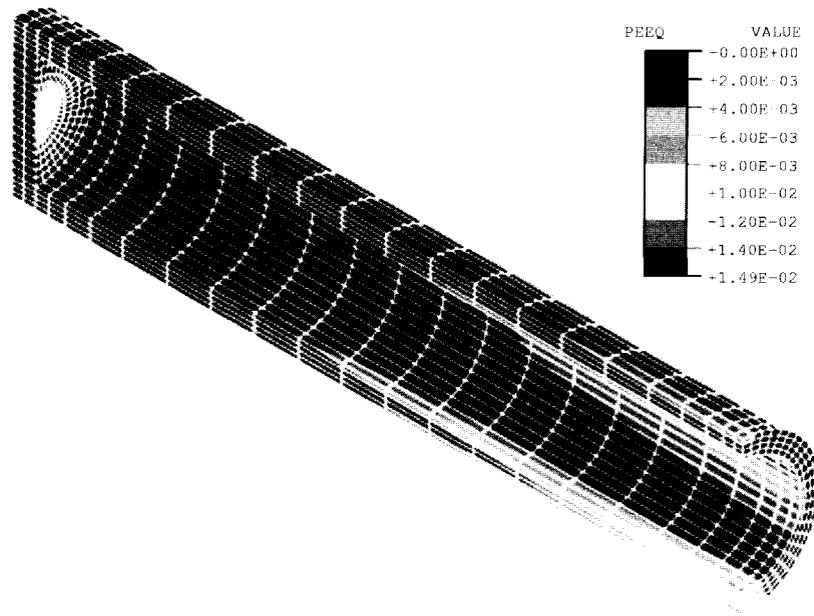


Figura 12. Deformaciones plásticas. Perspectiva.

SELECCIÓN DE MATERIALES PARA CONTENEDORES DE HLW

I. Azkarate, M. Insausti, V. Madina
INASMET

Introducción

La selección de los materiales para la fabricación de las cápsulas o contenedores metálicos en los que se van a alojar los residuos de alta actividad en una formación geológica requiere un estudio riguroso de los materiales candidatos, a los que se va a exigir un comportamiento adecuado frente a la corrosión, además de una apropiada resistencia mecánica y tenacidad. La corrosión es la principal causa de rotura prevista de las cápsulas, de ahí que, el material con el que se fabriquen y su resistencia frente a la corrosión, constituyan un aspecto de gran importancia, en orden a asegurar el tiempo de vida en servicio de la cápsula. Las cápsulas de almacenamiento, como parte fundamental del sistema multibarrera, deberán conservar su integridad estructural y su capacidad de contención durante un período de tiempo superior a 1000 años, tiempo mínimo o vida de diseño de la cápsula que debe ser suficiente para dar lugar a que la mayoría de radionucleidos de vida corta hayan decaído hasta niveles despreciables.

La corrosión se define como la destrucción o deterioro de un material, generalmente un metal, como consecuencia de la reacción con el medio que le rodea, y por lo tanto, supone una pérdida de propiedades físicas, químicas y mecánicas en el material. En el caso de la cápsula de almacenamiento, la corrosión viene determinada por factores tales como la composición química del agua subterránea de contacto, el contenido en oxígeno del medio, la composición mineralógica de la bentonita, la presencia de actividad microbiológica en el entorno, la evolución térmica del conjunto cápsula bentonita y los productos de corrosión de la cápsula, fundamentalmente. En condiciones de almacenamiento, las cápsulas pueden verse afectadas por diferentes

modos de corrosión, entre los que destacan la corrosión generalizada, la Corrosión Bajo Tensión (CBT), la corrosión por picaduras, la corrosión por solapamiento y la corrosión microbiológica, principalmente. La rotura de la cápsula por corrosión podrá deberse a un único modo de corrosión o bien como consecuencia de la suma de los distintos modos de corrosión que puedan estar activos en condiciones de almacenamiento.

Los materiales habitualmente considerados para la fabricación de las cápsulas son el acero al carbono no aleado, acero inoxidable austenítico, aleaciones base cobre, aleaciones base níquel y aleaciones base titanio. Teniendo en cuenta que en el cierre de la cápsula se va a utilizar una técnica de soldadura, se estudia también el comportamiento frente a la corrosión de uniones soldadas obtenidas por diferentes procedimientos para cada material.

Durante los últimos años INASMET ha desarrollado una extensa labor en el campo de la selección de materiales y procesos de sellado para cápsulas de residuos de alta actividad, realizando una evaluación sistemática del comportamiento de los diversos materiales candidatos, frente a los fenómenos de corrosión que pueden sufrir en los diferentes medios geológicos considerados para esta aplicación. Los resultados de estos estudios van a permitir seleccionar los materiales y las técnicas de soldadura más adecuadas para cada yacimiento, además de predecir su comportamiento en condiciones de servicio, en base a medidas de las velocidades de corrosión generalizada y a la información disponible con respecto a los fenómenos de corrosión localizada citados.

En la actualidad, y si bien se han realizado numerosos estudios del comportamiento de los materiales candidatos en diferentes medios salinos, los estu-

dios actuales se enfocan hacia un Almacenamiento Geológico Profundo (AGP), en formaciones graníticas o arcillosas. Los ensayos de corrosión que se están realizando en la actualidad contemplan dos medios diferentes: por un lado agua bentonítica-granítica, representativa del agua que puede entrar en contacto con el contenedor en el yacimiento granítico, y en segundo lugar bentonita, componente clave en el sistema de barreras múltiples previsto para un AGP en granito.

Materiales

Los materiales cuyo comportamiento frente a la corrosión está siendo evaluado son los siguientes:

- ❑ Acero al carbono no aleado, calidad S355 (UNE 36080)
- ❑ Acero inoxidable austenítico, calidad AISI 316L (ASTM A-240)
- ❑ Cobre electrolítico libre de oxígeno Cu-OF, calidad UNS C10200 (CDA 102)
- ❑ Cuproníquel Cu30Ni, calidad UNS C71500 (CDA 715)
- ❑ Hastelloy C-22, calidad UNS N06022

Los métodos de soldadura estudiados son la Soldadura por Haz de Electrones (SHE) conocida como EBW (Electron Beam Welding), Soldadura por Arco con Hilo Tubular SA-HT o FCAW (Flux Cored arc Welding) y la Soldadura por Arco Pulsado con Electrodo de Wolframio (SAP-EW) también conocida como GTAW (Gas Tungsten Arc Welding).

Caracterización química

La composición química de los materiales a estudio se recoge en la tabla 1.

Caracterización mecánica

Las propiedades mecánicas de los metales a estudio se han determinado mediante ensayos de tracción según norma ASTM A370, y mediante medidas de dureza Vickers, según norma ASTM E8M. (Tabla 2).

Medios de ensayo

Agua bentonítica-granítica

Constituye un medio representativo del agua que puede entrar en contacto con el contenedor en el

yacimiento granítico. La composición química del agua granítica se recoge en la tabla 3.

En la actualidad, y con el objeto de estudiar el efecto de la concentración de cloruros en la resistencia de los materiales candidatos frente a las diferentes formas de corrosión localizada estudiadas, se realizan ensayos con concentraciones diferentes de cloruros comprendidas entre 1.000 y 50.000 ppm.

Bentonita

La bentonita utilizada en los ensayos es una arcilla rica en silicio y aluminio con un porcentaje de humedad del 13,1% y con una cantidad importante de Bacterias SulfatoReductoras (BSR) y oxidantes. Los resultados de la caracterización microbiológica realizada sobre la bentonita a estudio se recogen en la tabla 4.

Experimental

Ensayos de corrosión en bentonita

El objetivo de estos ensayos es evaluar el comportamiento frente a la corrosión en bentonita saturada de los materiales candidatos. Se analiza el tipo o tipos de fenómenos de corrosión experimentados por los metales y se caracterizan y cuantifican los productos de corrosión generados, así como la interacción de éstos con la bentonita.

Metodología

Para la realización de los ensayos, se embuten probetas de metal en bentonita saturada con agua al 25%. La compactación de la bentonita saturada junto con las probetas de metal se realiza en una matriz de prensado, sobre la que se aplica una carga uniaxial mediante una prensa hidráulica. Se obtienen, de esta forma, unas pastillas compactas que se introducen en autoclaves. Los autoclaves se disponen en estufas a temperaturas de ensayo de 50, 75 y 100°C, durante tiempos que oscilan entre 1 y 18 meses.

Una vez finalizado el ensayo, se extraen las pastillas, realizándose, a continuación el estudio de corrosión. Se caracterizan los productos de corrosión generados mediante técnicas de microscopía óptica y electrónica de barrido (MEB), Difracción de Rayos X (DRX), espectroscopía de fotoelectrones (XPS) y cromatografía de gases. La velocidad de corrosión generalizada se determina mediante téc-

nicas gravimétricas, según norma de ensayo ASTM G31. El estudio se completa con el tratamiento matemático de los datos experimentales generados en los ensayos.

Ensayos de corrosión en agua bentonítica-granítica

Metodología: Ensayos de corrosión

Ensayo de Corrosión Bajo Tensión (CBT)

La susceptibilidad de los diferentes materiales a la CBT se evalúa mediante la técnica de ensayo conocida como SSRT (Slow Strain Rate Testing). Las probetas se tensionan a una velocidad de deformación lenta comprendida entre 10^{-4} y 10^{-7}s^{-1} , en presencia de un medio específico. La sensibilidad del material a la CBT se manifiesta, principalmente, en la aparición de grietas secundarias y en la morfología de la superficie de fractura. Los ensayos se realizan en argón, como medio inerte de referencia, y en agua bentonítica-granítica con concentraciones variables de cloruros comprendidas entre 1.000 y 50.000 ppm.

Ensayo de corrosión por solapamiento (corrosión crevice)

Para analizar esta forma de corrosión localizada, se crean cavidades o zonas solapadas en la superficie del metal mediante la unión de probetas planas de metal a dispositivos de teflón de superficie no uniforme según procedimiento de ensayo ASTM-G-78. El conjunto se introduce en un autoclave que se llena con el medio elegido, a una temperatura dada, durante tiempos de ensayo que oscilan entre 1 y 18 meses. Los ensayos se realizan en agua granítica, con concentraciones de cloruros que varían entre 1.000 y 50.000 ppm.

Ensayo de corrosión generalizada

La velocidad de corrosión generalizada, en un medio específico y a una temperatura dada, se determina mediante técnicas gravimétricas, según norma ASTM G31 y técnicas electroquímicas. En general, en la determinación de la velocidad de corrosión por técnicas gravimétricas, el valor de velocidad suele disminuir de forma significativa conforme aumenta el tiempo de ensayo, hasta llegar a un valor estacionario que es el que se toma como valor de velocidad de corrosión generalizada del metal, en el medio y temperatura considerados.

Ensayos Electroquímicos

Se realizan ensayos electroquímicos de resistencia a la polarización lineal y barridos potenciodinámicos de los diferentes materiales considerados. El medio lo constituye agua granítica con concentraciones de cloruros que oscilan entre 1.000 y 50.000 ppm.

Corrosión microbiológica

Se estudia su incidencia mediante ensayos electroquímicos en medios con presencia de bacterias. La metodología empleada para realizar este estudio consiste en la extracción de microorganismos, procedentes de la bentonita a estudio, mediante resuspensión de la muestra en tampón de extracción y su posterior inoculación, por el método de siembra en placa, en el medio de ensayo.

El estudio se completa con el análisis de las probetas ensayadas y de los productos de corrosión generados mediante diversas técnicas: microscopía óptica, microscopía electrónica de barrido (MEB), espectroscopía de fotoelectrones (XPS), espectroscopía de energía dispersada de rayos X (EDS), difracción de rayos X (DRX) y cromatografía de gases, principalmente.

Resultados y comentarios

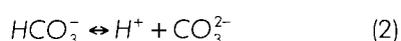
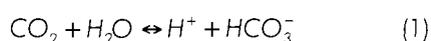
Acero al carbono S355

Corrosión en bentonita

El estudio por microscopía óptica y electrónica de barrido de las probetas de acero ensayadas en bentonita muestra un ataque por corrosión generalizada del tipo no uniforme, con una velocidad de corrosión estabilizada de $10 \mu\text{m/año}$ y una penetración máxima de $100 \mu\text{m}$, medidas ambas en ensayos de 18 meses de duración en bentonita a 75°C . Este carácter no uniforme de la corrosión se debe, fundamentalmente, a la "no homogeneidad" del electrolito que rodea a la probeta de metal, constituido por bentonita hidratada y compactada. Como resultado de esta inhomogeneidad se crean celdas de potencial, es decir, zonas con diferente potencial de corrosión en la superficie de la probeta, que conducen a un ataque menos uniforme, que el que podría observarse en un medio homogéneo, como pueda ser una solución líquida.

Los espectros DRX realizados muestran que el principal producto de corrosión generado en todas las

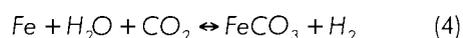
probetas de acero al carbono ensayadas en bentonita, es siderita, carbonato de hierro de fórmula molecular FeCO_3 . Los análisis XPS de los productos de corrosión analizados confirman también, que los productos de corrosión analizados están formados básicamente por carbonatos, junto a contribuciones menores de óxidos de Fe (Fe_3O_4 , y Fe_2O_3). La formación de siderita se debe a la presencia de carbonatos en la bentonita de ensayo. En la bentonita saturada el CO_2 existente puede ionizarse según las reacciones siguientes:



La siderita se genera al reaccionar con el bicarbonato, según la reacción:

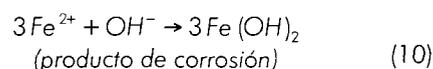
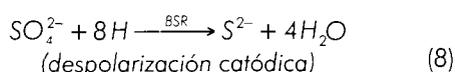
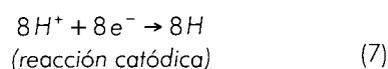
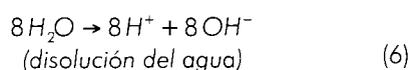
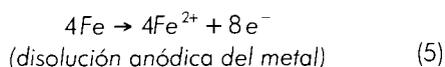


De esta forma, la reacción global queda como

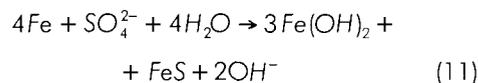


Es importante señalar que, en las condiciones de ensayo contempladas, la generación de siderita se traduce en la formación de un compuesto adherente, que pasiva y protege de forma efectiva al acero.

Los análisis por EDS de los productos de corrosión generados a la temperatura de 50°C muestran un pico significativo de azufre, indicativo de la presencia de productos de corrosión ricos en azufre. La presencia de sulfuros de hierro, unido al hecho de que en el proceso de decapado se aprecia un intenso olor a sulfhídrico es indicativo de un fenómeno de corrosión bacteriana a 50°C . La mayoría de las BSR implicadas en los fenómenos de corrosión, tienen un óptimo de crecimiento comprendido entre 10 y 50°C . Esto explica porqué en los ensayos de corrosión en bentonita se observa corrosión bacteriana a 50°C y no a las temperaturas de 75 y 100°C . Las reacciones electroquímicas, generalmente asociadas a una corrosión biológica por BSR, son las siguientes:



Combinando estas ecuaciones se llega a la siguiente reacción global:



Dado que uno de los objetivos de estos estudios de corrosión es el poder predecir o estimar el comportamiento de los metales candidatos en condiciones de almacenamiento, se realizan tratamientos matemáticos de los datos experimentales generados, sobre todo en el caso del acero al carbono. Resultan significativos los resultados obtenidos, cuando se utiliza la expresión de la velocidad de corrosión generalizada en medios húmedos, que relaciona la penetración media, obtenida a partir de la velocidad de corrosión, con la temperatura y tiempo de ensayo, mediante la siguiente ecuación:

$$\ln P_{\text{media}} = b_0 + b_1 \ln t + b_2 / T + b_3 T^2$$

donde

T = temperatura absoluta ($^\circ\text{K}$)

t = tiempo (años)

P_{media} = penetración media (μm)

b_0, b_1, b_2 y b_3 = constantes

La velocidad de corrosión generalizada, expresada en $\mu\text{m/año}$, no es otra cosa que dP_{media}/dt . A partir de los datos velocidad de corrosión generalizada del acero al carbono en bentonita, obtenidos a diferentes temperaturas y tiempos de ensayo, y mediante la resolución de esta ecuación por mínimos cuadrados, se calculan las constantes, quedando la ecuación como sigue:

$$\ln P_{\text{media}} = 39,7056 + 0,43412 \ln t - 9084,67 / T - 0,000092 T^2$$

Corrosión en agua granítica a 90°C

El acero S355 no muestra una sensibilidad clara al fenómeno de la CBT, si bien experimenta pérdida de ductilidad en los ensayos SSRT, como consecuencia de la exposición al medio granítico. En agua granítica a 90°C , el acero experimenta una velocidad de corrosión estabilizada de $6 \mu\text{m/año}$. Esta velocidad de corrosión es la que se obtiene a tiempos de ensayo "largos" para los cuales la velo-

cidad de corrosión alcanza un valor constante con el tiempo. Las uniones soldadas por los procedimientos EBW y FCAW no modifican la resistencia del acero al fenómeno de la CBT. No se observa tampoco, sensibilidad a la corrosión por picaduras u otro tipo de corrosión localizada.

Como producto de corrosión del acero en el agua granítica se genera, en todos los casos analizados, magnetita, compuesto de fórmula molecular Fe_3O_4 . Este resultado confirma lo observado por numerosos autores, en el sentido de que en medios neutros o ligeramente alcalinos, pobres en oxígeno, el producto final más estable resultante de la corrosión del acero al carbono es magnetita.

Acero inoxidable AISI 316L

Corrosión en bentonita

El análisis de las probetas de acero 316L ensayadas en bentonita saturada, muestra que este material no experimenta ataque por corrosión generalizada o localizada, en ninguna de las condiciones de ensayo, presentando las probetas ensayadas el mismo aspecto que el que tenían antes de iniciar los ensayos. La velocidad de corrosión generalizada experimentada por el acero en este medio es en todos los casos analizados inferior a $0,1 \mu\text{m/año}$.

Corrosión en agua granítica a 90°C

El acero inoxidable es resistente a la CBT en el agua granítica, no observándose pérdida de ductilidad en los ensayos SSRT efectuados. Tampoco se observa sensibilidad en el acero a la corrosión por solapamiento.

Cobre Cu-ETP

Corrosión en bentonita saturada

Este material experimenta una corrosión generalizada uniforme, con valores de velocidad de corrosión estabilizada inferiores a $1 \mu\text{m/año}$, medidos a la temperatura de 100°C . En ensayos de 18 meses de duración a 100°C , el espesor máximo de capa de corrosión es de $5 \mu\text{m}$. No se detecta corrosión microbiológica para ninguna de las condiciones de ensayo.

Corrosión en agua granítica a 90°C

No se observa en el cobre sensibilidad a la CBT en medio granítico a 90°C . Tampoco se observa pér-

didada de resistencia mecánica como consecuencia de la exposición al medio corrosivo.

Cuproníquel Cu30Ni

Corrosión en bentonita

La aleación Cu30Ni experimenta una corrosión generalizada con progresión no uniforme, con un valor máximo de penetración de $25 \mu\text{m}$, medido en probetas ensayadas durante 18 meses a 100°C . La velocidad de corrosión estabilizada a 100°C es inferior a $1 \mu\text{m/año}$. Los análisis por DRX de los productos de corrosión identifican, además de cuprita, óxidos complejos de níquel y cobre. Respecto a los análisis EDS obtenidos, la presencia de azufre en los productos de corrosión generados por la aleación a 50°C , hace que no se descarte un fenómeno de corrosión microbiológica en el material. Este aspecto debe ser evaluado más profundamente en estudios posteriores.

Corrosión en agua granítica a 90°C

En los ensayos de CBT mediante la técnica SSRT, la aleación Cu30Ni desarrolla grietas secundarias, si bien no se observa pérdida de ductilidad en el material. El análisis de la superficie de fractura revela una morfología frágil, indicativa también de sensibilidad en el material al fenómeno de la CBT.

Conclusiones preliminares

Los resultados experimentales obtenidos muestran que, si bien el acero al carbono es el metal más afectado por la corrosión generalizada, tanto en agua granítica como en bentonita saturada, las velocidades de corrosión estabilizada son suficientemente bajas, como para ser considerado un candidato válido para la fabricación de contenedores, dentro de los materiales considerados como consumibles.

El acero se muestra resistente, a fenómenos de corrosión localizada como la CBT, si bien la generación de sulfuros como consecuencia de la actividad microbiológica de las bacterias contenidas en la bentonita, debe ser evaluada en más profundidad en estudios posteriores.

En agua bentonítica-granítica el producto de corrosión mayoritario es magnetita, lo que confirma lo observado previamente en el sentido de que en aguas neutras o ligeramente alcalinas pobres en

oxígeno, el producto más estable resultante de la corrosión del acero al carbono es magnetita. En los ensayos del acero en bentonita saturada, los diferentes análisis realizados identifican a la siderita, carbonato de hierro de fórmula FeCO_3 , como componente mayoritario de los productos de corrosión formados. La formación de este compuesto se atribuye a la disolución del CO_2 existente en la bentonita, en el agua de saturación, con la consiguiente formación de bicarbonato, que en contacto con el acero forma FeCO_3 . La magnetita y la siderita forman capas adherentes que confieren pasividad al metal.

El acero inoxidable es el material que menos corrosión generalizada ha sufrido no observándose tampoco, ningún fenómeno de corrosión localizada. Constituye, por ello, un material válido para la fabricación de contenedores, dentro del modelo de los materiales resistentes a la corrosión.

Respecto al cobre y aleaciones, presentan velocidades de corrosión generalizada bajas, si bien es preciso determinar su resistencia a fenómenos de corrosión localizada como la corrosión bajo tensión, la corrosión por solapamiento y la corrosión microbiológica, fundamentalmente.

Tabla 1
Composición química de los metales a estudio. Valores obtenidos a partir de barra laminada.

Material	Composición química (% en peso)
S3355	C: 0.17%, Si: 0.40%, Mn: 1.4%, P: 0.020%, S: 0.012%, Al: 0.040%, N: 0.006%, Fe: Base
AISI 316L	C: 0.021%, Si: 0.31%, Mn: 1.3%, P: 0.029%, S: 0.002%, Cr: 17.4%, Ni: 11.5%, Mo: 2.2%, Fe: Base
HASTELLOY C-22	C: 0.003%, Si: <0.1%, Mn: 0.26%, P: <0.01%, S: <0.01%, Mo: 13.0%, W: 3.0%, Cr: 21.6%, Co: 0.95%, Fe: 2.9%, Ni: Base
Cu-ETP	Fe: <0.005%, Pb: <0.01%, Ni: <0.01%, S: 0.0015%, P: <0.01%, Cu: Base
Cu30Ni	Ni: 31.2%, Mn: 1.0%, Fe: 0.70%, Pb: <0.01%, Zn: <0.01%, S: 0.005%, P: <0.01%, C: 0.011%, Si: <0.01, Cu: Base

Tabla 2
Propiedades mecánicas de los materiales a estudio. Los ensayos de tracción se han realizado sobre probetas longitudinales al sentido de laminación, obtenidas a partir de chapa laminada.

Material	Límite elástico (MPa)	Carga máxima (MPa)	Alargamiento (%)	Dureza (Vickers)
S355	427	568	28	166 (HV10)
AISI 316L	257	565	65	155 (HV10)
HASTELLOY C-22	370	755	76	181 (HV10)
Cu-ETP	273	283	24	95 (HV5)
Cu30Ni	142	343	50	89 (HV5)

Tabla 3
Composición química del agua bentonítica-granítica utilizada en los ensayos de corrosión.

Parámetro	Composición (mg/l)
Cl ⁻	6550 ± 250
NO ₃ ⁻	110 ± 10
SO ₄ ²⁻	1500 ± 30
HCO ₃ ⁻	27 ± 5
SiO ₂	8.3 ± 0.5
Br ⁻	15 ± 1
Ca ²⁺	135 ± 10
K ⁺	20 ± 1
Mg ²⁺	600 ± 30
Na ⁺	3750 ± 100
pH	7.3

Tabla 4
Resultados de la caracterización microbiológica de la bentonita.

Grupo microbiano	Recuento (u.f.c./ g muestra)
Bacterias aerobias	9.04×10^3
Hongos	2.38×10^2
Anaerobios	7.17×10^2
Oxidadoras del azufre	6.42×10^1
Bacterias sulfato reductoras (BSR)	1.85×10^2
Ferroxidantes	1.78×10^2

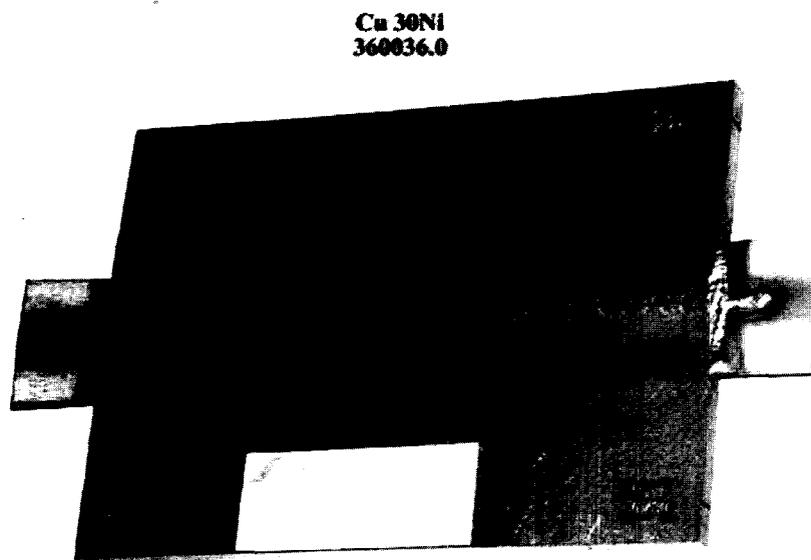


Figura 1. Chapa de aleación Cu30Ni soldada por la técnica GTAW.

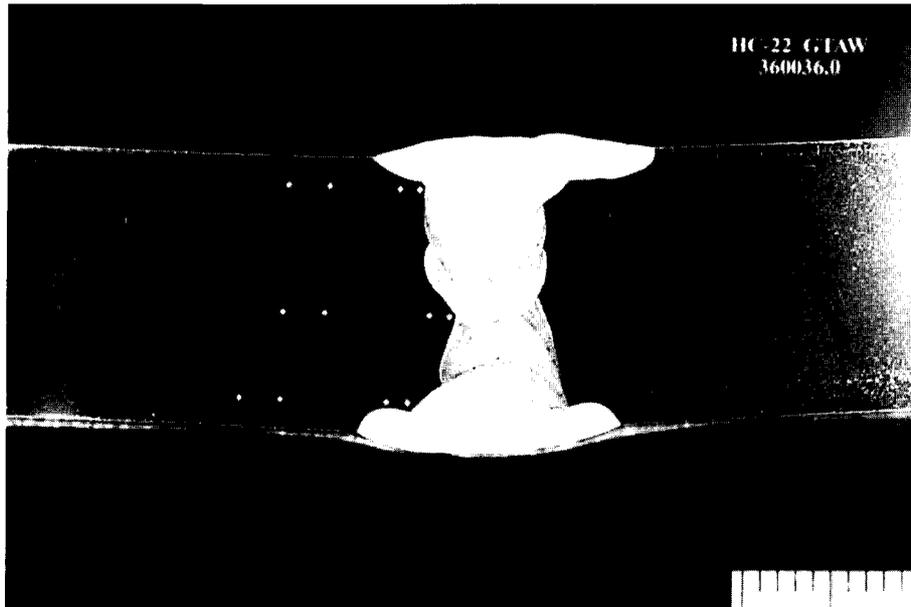


Figura 2. Probeta metalográfica mostrando soldadura GTAW en aleación HC-22. Se aprecian cadenas de microdurezas Vickers (HV) en material base y unión soldada.

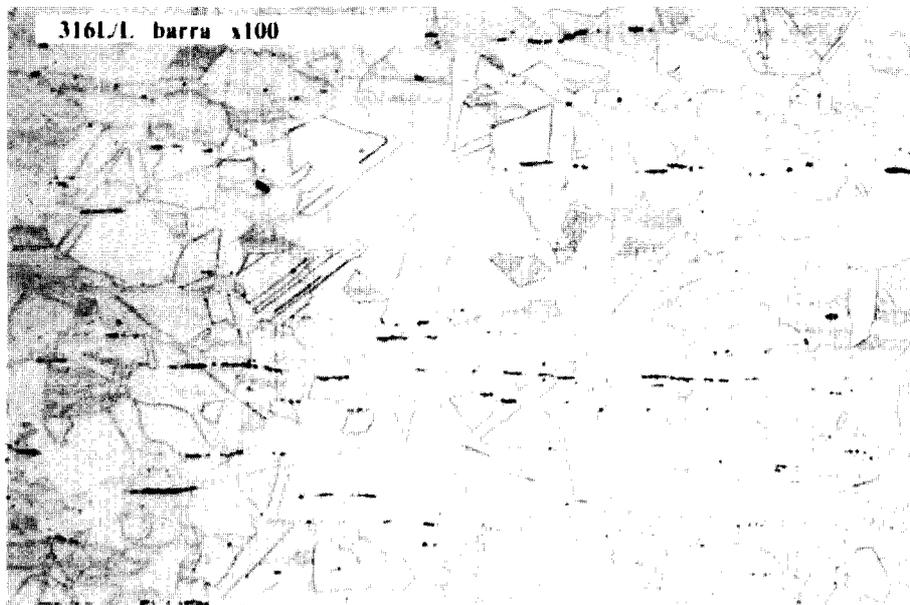


Figura 3. Microestructura de acero AISI 316L obtenida a partir de probeta longitudinal al sentido de laminación. La estructura está formada por granos de austenita, con presencia de maclas e inclusiones no metálicas, (x100).

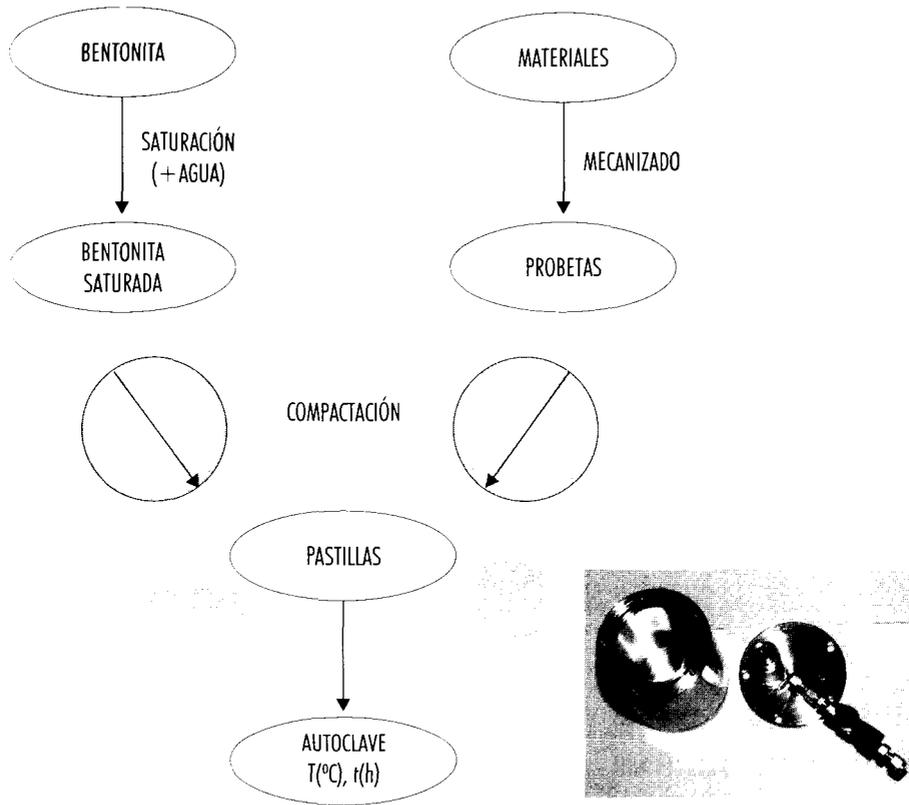


Figura 4. Esquema del proceso seguido en los ensayos. Autoclave para ensayos de corrosión.

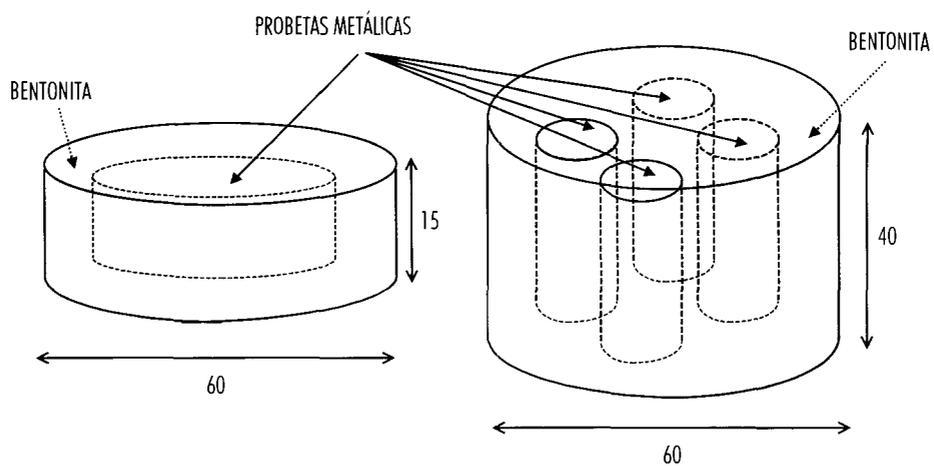


Figura 5. Probetas de metal embutidos en bentonita.

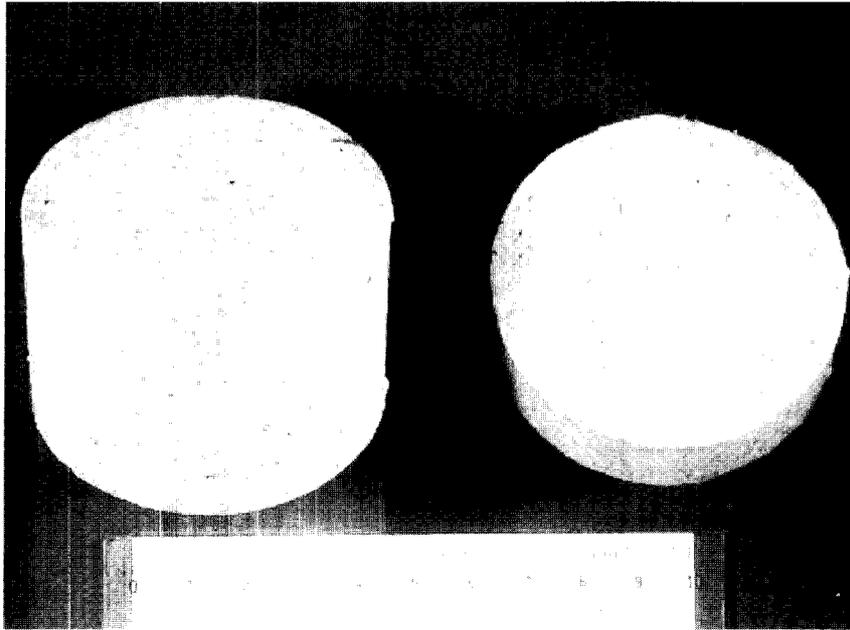


Figura 6. Pastillas de bentonita con probetas de metal en su interior, antes de ser ensayadas.

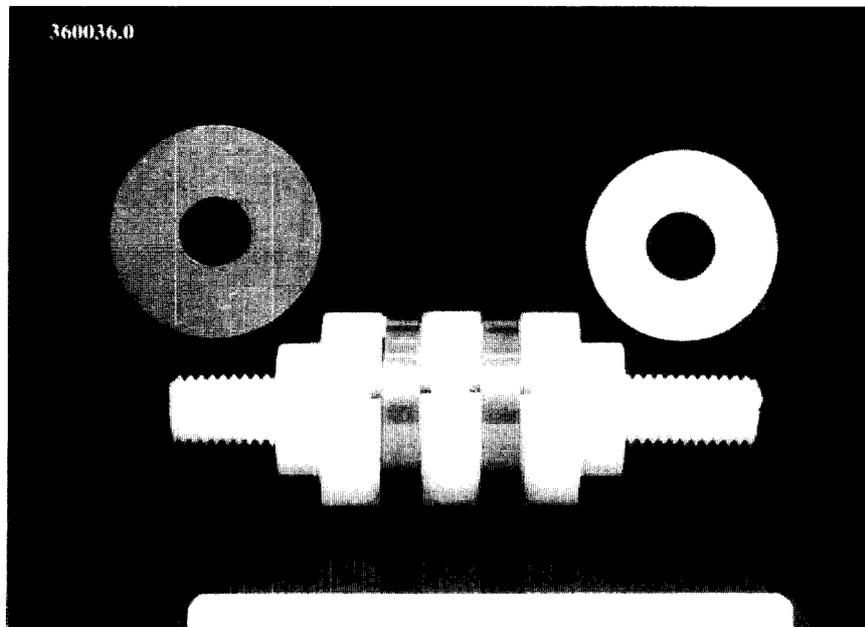


Figura 7. Probetas de metal y dispositivos de teflón utilizadas en el ensayo de corrosión por solapamiento, Norma ASTM-G-78.

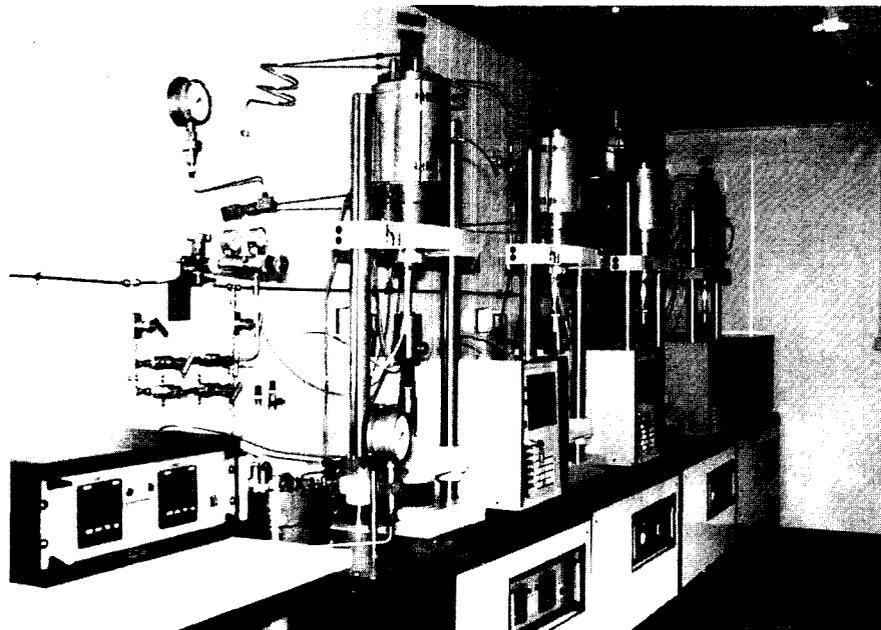


Figura 8. Máquinas de ensayo SSRT.

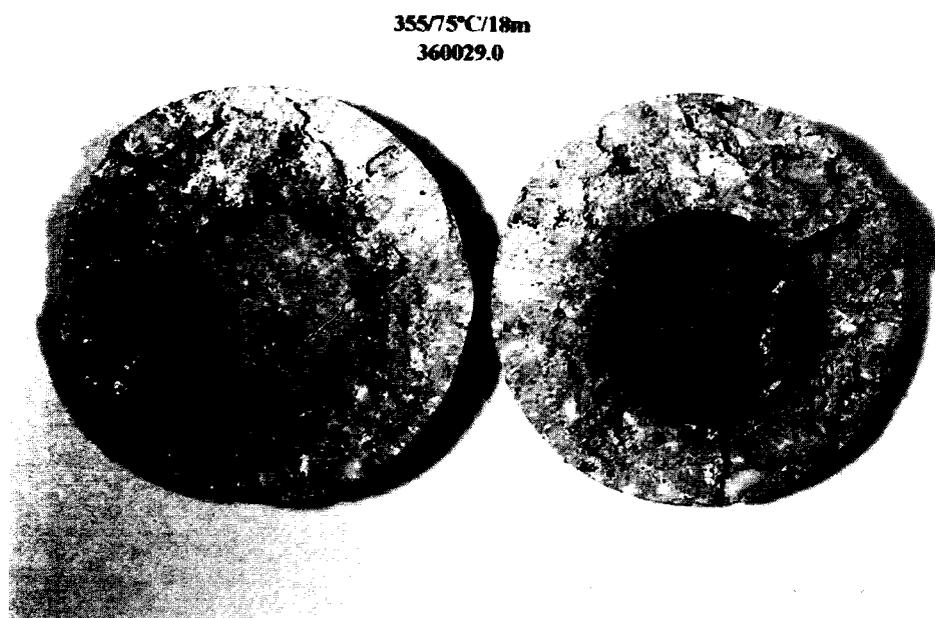


Figura 9. Pastilla de bentonita con probetas de acero S355 en su interior, tras 18 meses de ensayo a 75°C.

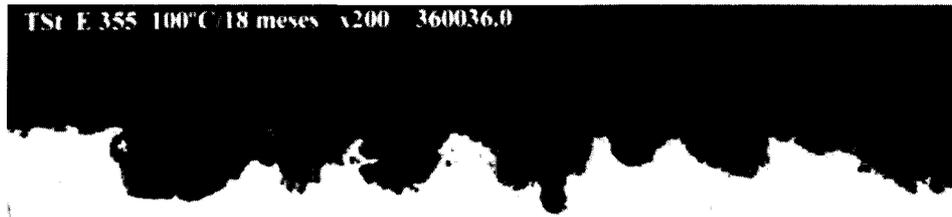


Figura 10. Micrografía óptica de superficie lateral de probeta de acero S355 ensayada durante 18 meses en bentonita saturada a 100°C. (x100)

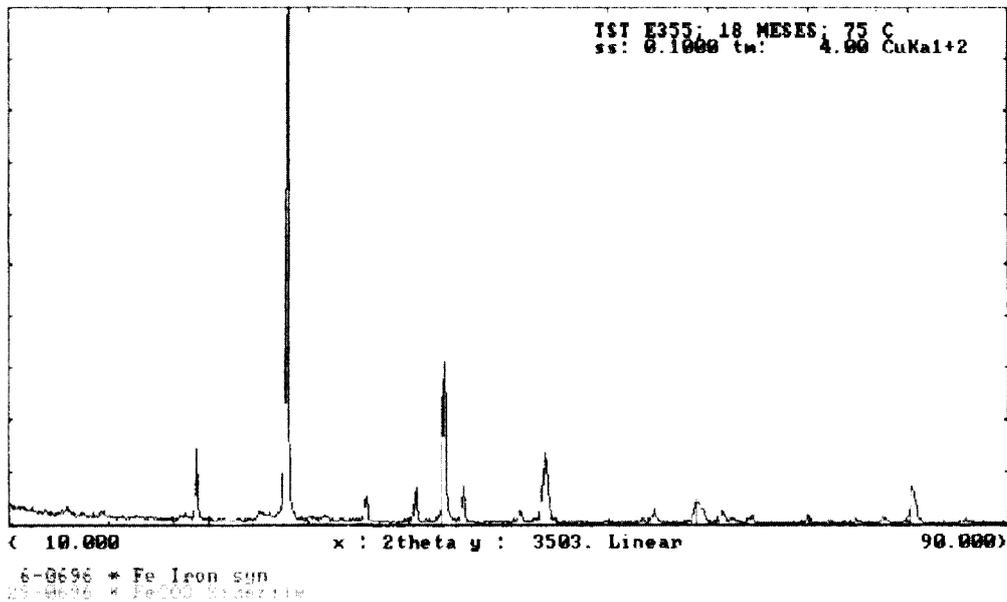


Figura 11. Espectro DRX de probeta de acero S355 ensayada durante 18 meses en bentonita saturada a 75°C.

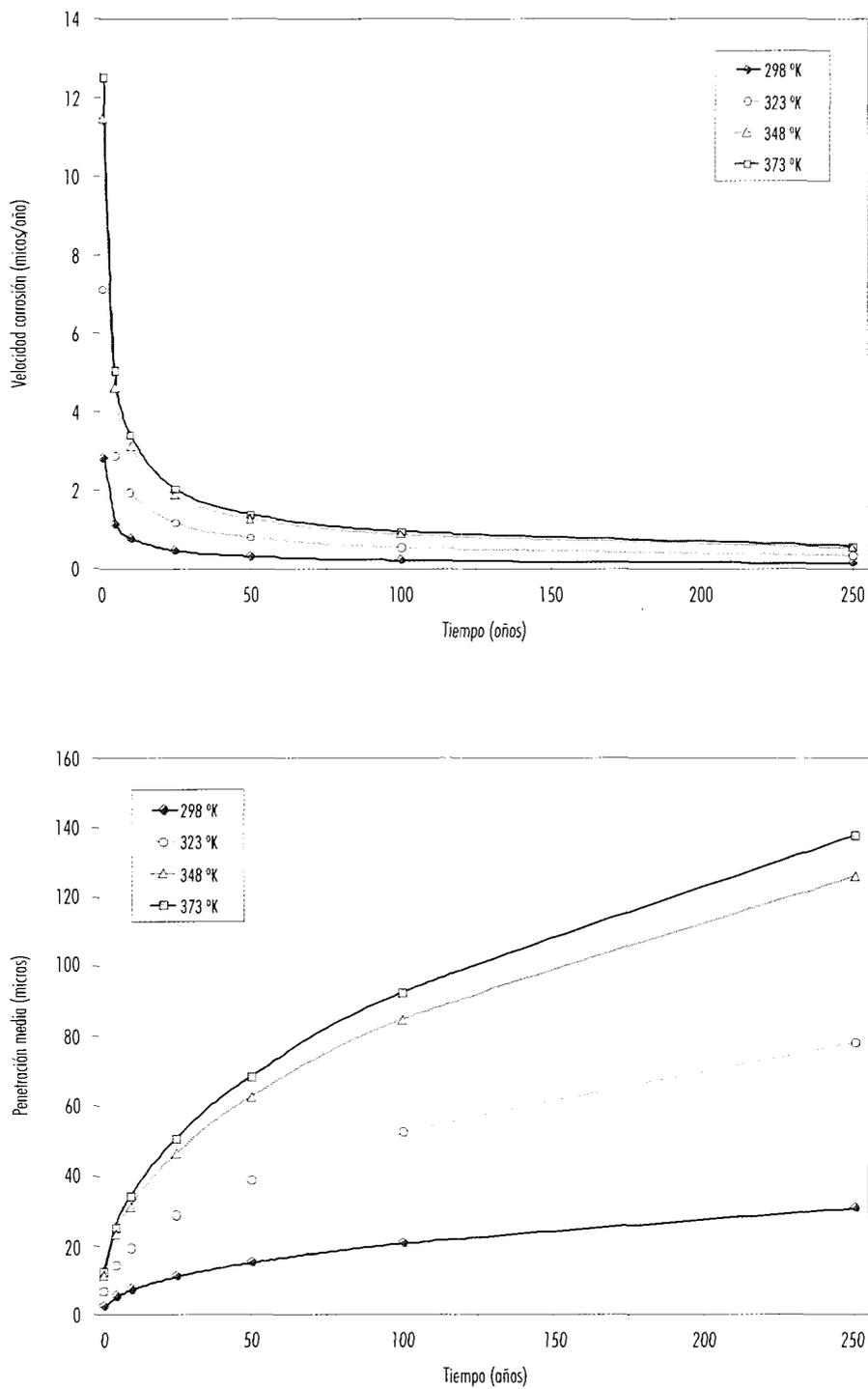


Figura 12. Estimación de la velocidad de corrosión generalizada y penetración media del acero al carbono S355, en bentonita, a tiempos "medios" de almacenamiento y a diferentes temperaturas.

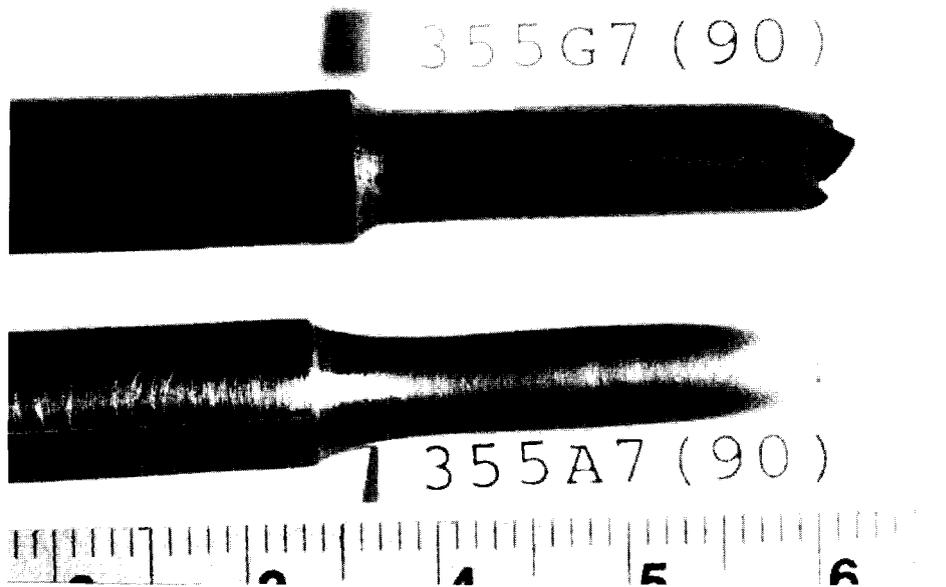


Figura 13. Probetas de acero S355 ensayadas por SSRT en argón y agua granítica 90°C, con una velocidad de deformación de $10^{-7}s^{-1}$.

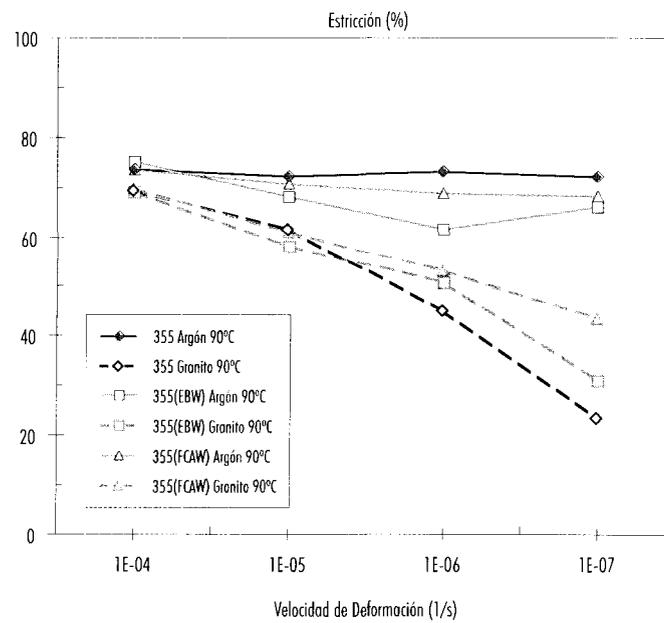


Figura 14. Resultados de estiración, en función de la velocidad de deformación, obtenidos en los ensayos SSRT del acero S355, base y soldado, en argón y agua granítica a 90°C.

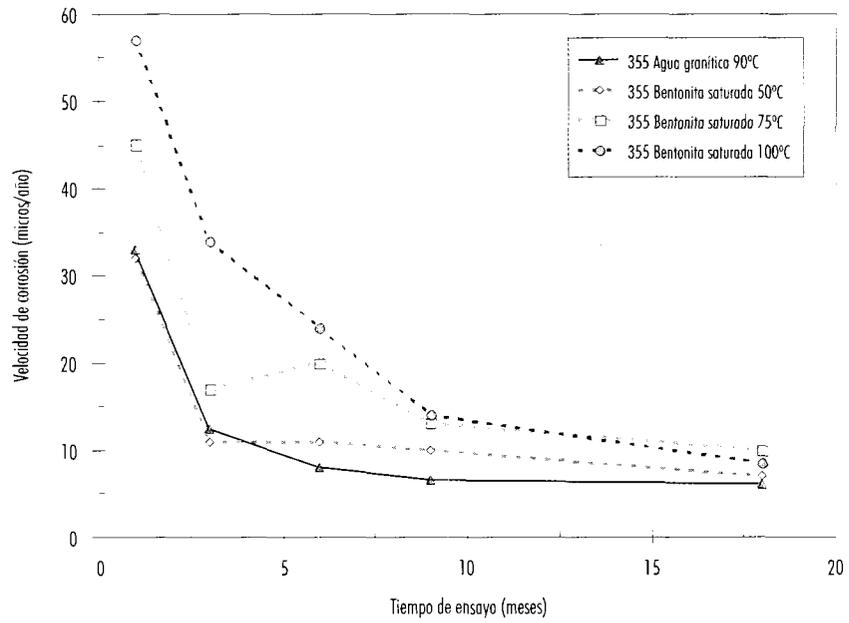


Figura 15. Velocidad de corrosión generalizada en función del tiempo de ensayo, obtenida para el acero al carbono S355 en bentonita saturada a diferentes temperaturas y en agua granítica a 90°C.

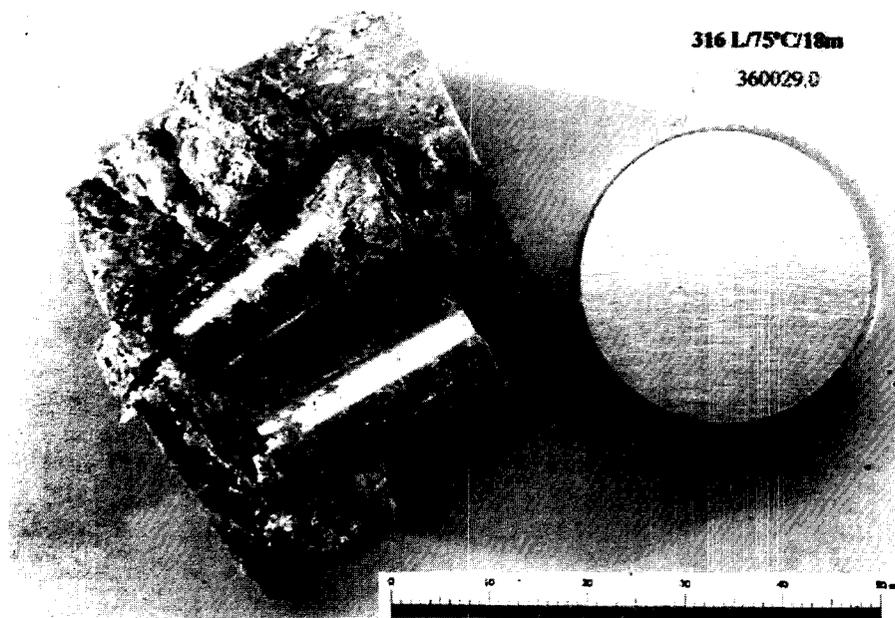


Figura 16. Probetas de acero inoxidable 316L ensayadas durante 18 meses en bentonita a 100°C.

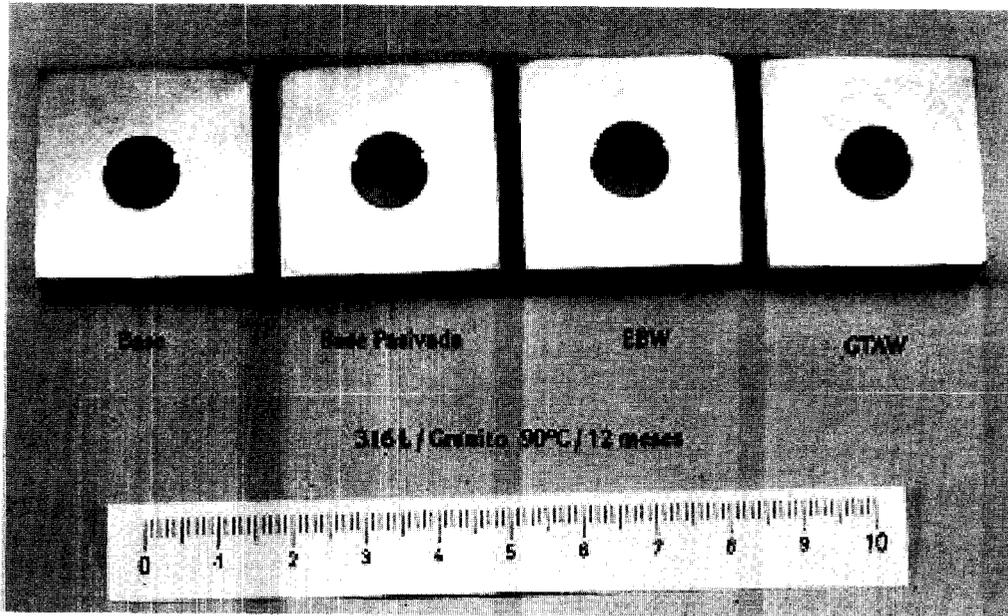


Figura 17. Probetas de acero AISI 316L, base y soldadas, tras 12 meses de ensayo de corrosión por solapamiento en agua granítica a 90°C.

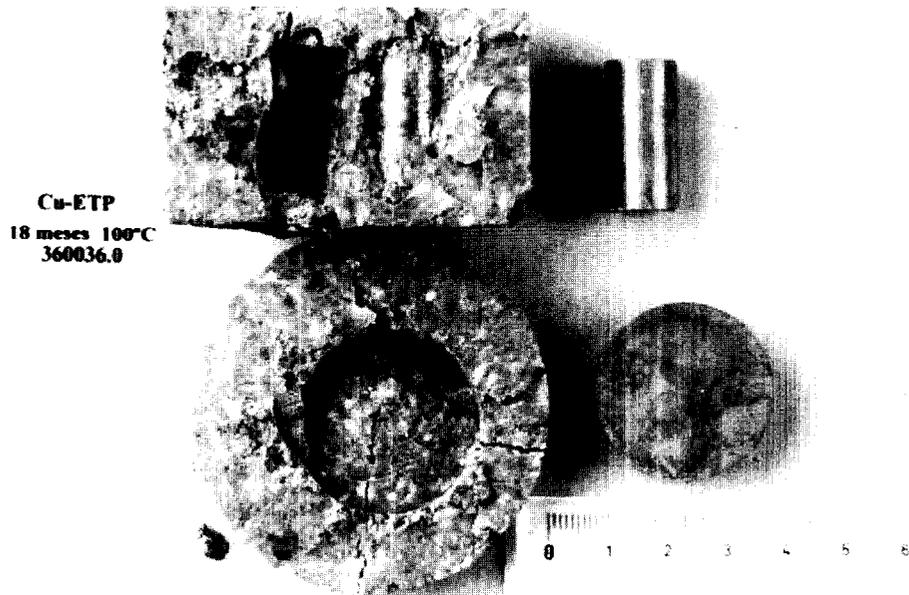


Figura 18. Probetas de Cu-ETP ensayadas durante 18 meses en bentonita saturada a 100°C.

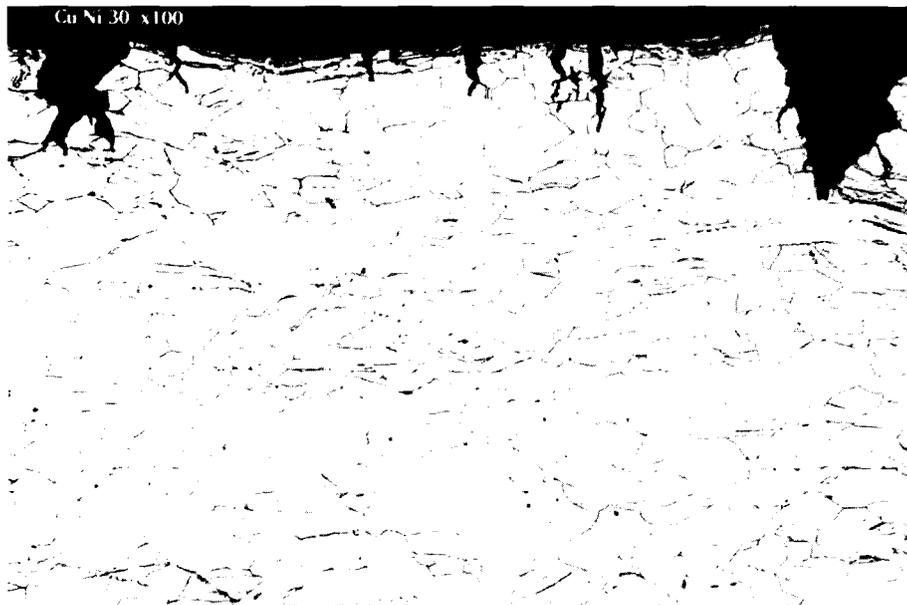


Figura 19. Micrografía óptica de superficie lateral de probeta de aleación Cu30Ni ensayada por SSRT en agua granítica a 90°C, con una velocidad de deformación de $10^{-7}s^{-1}$.



Figura 20. Micrografía SEM de superficie de fractura de probeta de aleación Cu30Ni ensayada por SSRT en agua granítica a 90°C, con una velocidad de deformación de $10^{-7}s^{-1}$.

COMPORTAMIENTO TERMO-HIDRO-MECÁNICO DE BARRERAS ARCILLOSAS DE INGENIERÍA: VERIFICACIÓN EN LABORATORIOS SUBTERRÁNEOS (ÄSPÖ, GRIMSEL Y MT. TERRI)

E. Alonso, A. Gens, A. Lloret
Departamento de Ingeniería del Terreno (UPC – CIMNE)

Resumen

El análisis del comportamiento termo-hidro-mecánico de barreras arcillosas en ensayos instrumentados a escala real en diferentes formaciones geológicas, permite estudiar la influencia de diversos factores en el desarrollo de los fenómenos que tienen lugar en las barreras de ingeniería. Los laboratorios de Äspö, Grimsel y Mt. Terri están situados en emplazamientos con muy diferente permeabilidad y composición química del agua que hidratará la barrera. Asimismo, en los experimentos se utilizarán diversas técnicas de colocación de la bentonita en el repositorio. Todo ello hace que el análisis del conjunto de datos que se obtengan permita un conocimiento más preciso de la interacción termo-hidro-mecánica entre la barrera arcillosa y medios geológicos de diferente naturaleza.

Introducción

La misión de las barreras arcillosas de ingeniería es básicamente la de contribuir a la retención de los radionucleidos. Desde un punto de vista termo-hidro-mecánico, las funciones a realizar por la barrera consisten en limitar la llegada del agua hacia los residuos, contribuir a la disipación del calor generado y ejercer de soporte mecánico de los contenedores. La bentonita compactada a una alta densidad, ha demostrado ser un material que puede cumplir con fiabilidad las funciones reseñadas.

Ligados a estas funciones se pueden considerar una serie de fenómenos termo-hidro-mecánicos que son

característicos en este tipo de barreras. Debido a los gradientes de potencial de agua se establece un flujo de agua líquida en condiciones no saturadas, cuya magnitud, de acuerdo con la ley de Darcy, estará muy condicionada por el valor de la permeabilidad saturada y no saturada de la barrera. Este movimiento del agua conlleva un transporte advectivo de aire disuelto y de calor. Por otra parte, debido a la generación de calor por el residuo radiactivo, existirá un gradiente térmico que originará un flujo de calor por conducción a través de la bentonita. El valor de este flujo de calor dependerá de la conductividad térmica de la arcilla que depende fundamentalmente de su grado de saturación (cuanto menor cantidad de aire exista en la arcilla mayor será su conductividad térmica). La cantidad de vapor existente en los poros de la barrera será función de la temperatura y de la succión del agua en la bentonita, de forma que las diferencias de temperatura y de succión en la barrera crearán gradientes de concentración de vapor que originarán un movimiento difusivo del mismo de acuerdo con la ley de Fick. La magnitud del flujo difusivo del vapor dependerá del valor de la difusividad del medio que estará controlada por la tortuosidad y la porosidad accesible al gas.

Finalmente, por efecto de los cambios de temperatura, de la disminución del volumen de poros accesibles por el gas y de la generación de gases en la zona del contenedor, pueden existir gradientes de presión de gas que originan el flujo del mismo siguiendo la ley de Darcy. El flujo de gas transporta a su vez de forma advectiva tanto vapor de agua como calor.

En la figura 1 se muestran los mecanismos de movimiento de calor y de agua (en ausencia de flujo de gas) en un caso típico de barrera arcillosa en un entorno rocoso.

La hidratación de la bentonita origina el desarrollo de deformaciones que tienden a sellar los posibles huecos situados en el interior de la barrera. Tras estas deformaciones, cuando ya no queda espacio disponible para el aumento de volumen de la arcilla, se generan presiones de hinchamiento debido al confinamiento del material, que pueden llegar a ser importantes si la densidad seca de la bentonita es alta. En la figura 2 (ENRESA, 2000) se muestra el valor de la presión de hinchamiento de la bentonita utilizada en el proyecto FEBEX.

Aunque la existencia de complejos modelos constitutivos y la potencia de los modelos numéricos permite modelar todos los fenómenos indicados, la incertidumbre asociada a algunos de los parámetros de los modelos, a las condiciones de contorno en el emplazamiento y a la exactitud de los propios modelos hace necesaria la experimentación a escala real. Por otra parte, la realización de ensayos "in situ" a escala real no sólo permite estudiar los fenómenos físicos que se desarrollan en las barreras y verificar los modelos existentes, sino que permite poner a prueba la tecnología necesaria para la excavación de las galerías, para el transporte y colocación de los contenedores y del material de sellado y para la monitorización continua de las variables físicas más relevantes.

ENRESA está participando en la ejecución de experimentos "in situ" en tres emplazamientos europeos: Grimsel y Mt. Terri (Suiza) y Aspö (Suecia), con entornos geológicos con características particulares en cada uno de ellos.

Descripción de los experimentos

Laboratorio de Grimsel

Este laboratorio está excavado en un macizo granítico en los Alpes suizos (cerca de la frontera italiana) y está gestionado por NAGRA. El granito está relativamente fracturado y atravesado por diques de lamprófido de forma que la conductividad hidráulica de la roca resulta bastante alta (del orden de 10^{-10} m/s). Entre otros ensayos, en ese laboratorio se está realizando el proyecto FEBEX. El experimento está basado en el concepto de referencia espa-

ñol en el que los contenedores metálicos se sitúan horizontalmente en galerías de 2.28 m diámetro, rodeados por una barrera de bloques de bentonita compactada a una densidad muy alta (densidad seca 1.7 g/cm³). La bentonita utilizada procede del yacimiento del cortijo de Archidona en Almería. Durante la primera fase del experimento (proyecto FEBEX I, 1994-98), se instalaron dos calentadores y desde entonces se ha registrado la evolución de gran número de parámetros físicos. La temperatura máxima se mantiene a 100°C. En la segunda fase del experimento (proyecto FEBEX II, 1999-2003) se desmantelará uno de los calentadores mientras que el segundo permanecerá funcionando. En esta fase del proyecto se extraerán gran número de muestras de bentonita que proporcionarán una información de gran valía sobre los efectos de la hidratación y el calentamiento sobre la bentonita compactada.

Información detallada sobre el proyecto FEBEX I y sus resultados puede encontrarse en el informe final del proyecto (ENRESA, 2000), asimismo los detalles de la realización del proyecto FEBEX II pueden consultarse en "Test Plan" preparado por AITEMIN (2000). En la figura 3 se muestra un esquema de la disposición de los distintos elementos del experimento y en la figura 4 se presenta una fotografía donde puede apreciarse el tamaño y disposición de los bloques de bentonita compactada.

Laboratorio de Äspö

El laboratorio se encuentra junto al mar báltico y está gestionado por SKB. El laboratorio está excavado en un granito que posee una permeabilidad algo menor a la del granito de Grimsel (conductividad hidráulica de $3 \cdot 10^{-11}$ m/s). Un aspecto importante derivado de las características del emplazamiento, es la alta salinidad del agua del macizo (agua marina).

En el laboratorio de Äspö, ENRESA participa en dos proyectos. Los dos proyectos se basan en el concepto sueco de almacenamiento. Según este concepto, los contenedores se sitúan en pozos verticales de 1.75 m de diámetro y 8 m de profundidad, espaciados entre sí una distancia de 6 m, excavados en la base de galerías horizontales de 5 m de diámetro. El proyecto "Backfill and Plug Test" consiste básicamente en el estudio del comportamiento hidromecánico del relleno de una galería horizontal. El relleno está compuesto por una mezcla de 30% de bentonita MX-80 y un 70% de granito machacado con un tamaño máximo de partículas de 2

cm. El material se extiende en capas inclinadas 35° respecto a la horizontal que se compactan mediante un equipo diseñado al efecto. En la figura 5, se muestra un esquema de una sección longitudinal de la galería. Este proyecto se inició en 1997 y está prevista su finalización en el 2002.

El segundo proyecto denominado "Prototipe repository" se desarrollará entre 1999 y el 2003 y pretende estudiar el comportamiento del sistema compuesto por unos calentadores, que simularán a los contenedores de los residuos, situados en unos pozos verticales y por unos bloques anulares de bentonita MX-80 altamente compactada (densidad seca de 1.6 g/cm^3) que rodearán a los calentadores. Entre el bloque de bentonita y la pared rocosa del pozo queda un espacio de pocos centímetros que se rellena con pequeñas pastillas de bentonita compactada. En la figura 6 se muestra un esquema de la disposición de los elementos que constituyen el experimento.

Información más detallada acerca de los dos proyectos "Backfill and Plug Test" y "Prototipe repository", puede encontrarse en UPC (1999) y SKB (1998) respectivamente.

Laboratorio de Mont Terri

El laboratorio de Mont Terri se encuentra en un túnel paralelo al de una autopista en los Alpes suizos, cerca de la frontera francesa. El laboratorio está bajo el patrocinio del Servicio Hidrológico y Geológico Nacional de Suiza y en él participan empresas gestoras de los residuos radioactivos de diversos países, entre las que se encuentra ENRESA. El laboratorio está excavado en una formación arcillosa del Mesozoico denominada Arcilla Opalinus. La característica diferencial respecto a los otros dos laboratorios subterráneos es la baja permeabilidad del material alojante. En este caso, la conductividad hidráulica de la arcilla natural (del orden de 10^{-12} a 10^{-13} m/s), es comparable a la de la bentonita compactada. Por otra parte, la salinidad del agua del macizo es muy alta.

Entre otros proyectos en Mont Terri, ENRESA participa en dos experimentos a escala real. En el experimento HE ("Heater Experiment"), se pretende estudiar el comportamiento termo-hidro-mecánico tanto del relleno de bentonita compactada como de la roca alojante, manteniendo un calentamiento artificial en condiciones saturadas. El calentador se instaló verticalmente en un pozo de 7 m de profundidad y 30 cm de diámetro. El hueco entre el

calentador y la roca se relleno con bloques de bentonita compactada. La bentonita utilizada ha sido la misma que la utilizada en el proyecto FEBEX. Dada la baja permeabilidad de la Arcilla Opalinus la saturación del relleno se realizará mediante la inyección artificial de agua. Tras la saturación del relleno, se iniciará la fase de calentamiento durante la que se mantendrá una temperatura de 100°C en el calentador durante un periodo de unos 18 meses. Este proyecto se inició en 1997 y estará financiado por la Comunidad Europea durante el periodo de Enero de 2002 a Diciembre de 2004. En la figura 7 se muestra un esquema de los elementos del experimento HE. Mayor información se puede encontrar en el "Test Plan" del experimento (AITEMIN, 1999).

El segundo experimento a escala real en Mont Terri es el del proyecto EB ("Engineered Barrier"). En este proyecto se pretende estudiar el comportamiento de un nuevo concepto para almacenamiento de los residuos en galerías horizontales, donde los contenedores reposarán sobre unos bloques de bentonita altamente compactada (del mismo tipo que los utilizados en el proyecto FEBEX) y el resto de la sección de la galería se rellenará con un granulado de bentonita que posea una granulometría que minimice el volumen de huecos del relleno. La bentonita del granulado poseerá una alta densidad seca (del orden de 2 g/cm^3) y una humedad inicial muy baja (del orden del 2%). La característica diferencial de este experimento reside en la marcada doble estructura que posee el material de relleno. En la actualidad se están realizando la excavación de la galería y las pruebas preliminares para definir las características y el proceso de fabricación y colocación del granulado de bentonita. En la figura 8 se muestra un esquema de la configuración del experimento.

Comparación entre los diversos experimentos

A modo de resumen puede decirse que los diversos emplazamientos poseen diferentes tipos de roca circundante lo que conduce a diferencias importantes en la conductividad hidráulica del macizo y en la salinidad del agua que hidratará a la bentonita.

Desde el punto de vista del material de relleno, en algunos casos la bentonita se colocará en forma de bloques, mientras que en otros la bentonita está en forma de granulado mezclada o sin mezclar con desechos de la excavación del túnel en la roca gra-

nítica. En el ensayo EB coexisten los dos tipos de presentación de la bentonita. La densidad seca del relleno y su conductividad hidráulica, pueden variar mucho según el experimento que se considere.

Finalmente, el diámetro de la excavación y la posibilidad de poder realizar la hidratación del relleno mediante la inyección artificial de agua son dos aspectos importantes de cara a determinar el tiempo de duración de la fase de hidratación de la bentonita en cada uno de los experimentos.

En la Tabla 1 se indican de forma resumida para cada uno de los experimentos considerados, los factores que se creen más relevantes de cara al comportamiento termo-hidro-mecánico de la barrera.

Consideraciones derivadas del experimento FEBEX

El ensayo FEBEX ha sido hasta ahora el que ha proporcionado mayor información sobre el comportamiento termo-hidro-mecánico de la barrera de bentonita. La experiencia recogida durante el proyecto FEBEX I permite alcanzar una serie de conclusiones, algunas de las cuales por su carácter general son de gran utilidad en la planificación y análisis del resto de los experimentos.

En el experimento FEBEX la hidratación de la barrera está poco controlada por la presencia de discontinuidades. La permeabilidad de la roca granítica es ya suficientemente alta como para que las zonas con una permeabilidad muy alta debida a la existencia de discontinuidades (como pueden ser los diques de lamprófido) tengan poca relevancia.

En la figura 9 se muestra como influye la relación entre la permeabilidad del macizo y la de la barrera en el valor del tiempo necesario para que un punto de referencia situado a 15 cm del calentador alcance la saturación. En el gráfico se presentan los resultados de cálculos realizados con la geometría del experimento FEBEX con diversas combinaciones de los valores de la permeabilidad de la roca y de la barrera. Se observa claramente como cuando la permeabilidad de la roca es más de 10 veces superior a la del material de relleno, la roca aporta todo el agua demandada por el relleno y es la permeabilidad de la barrera de bentonita la que controla la velocidad del proceso de hidratación con independencia de valor de la permeabilidad de la roca.

En el caso del experimento EB en el emplazamiento de Mont Terri, probablemente la permeabilidad del

relleno y de la roca circundante sea del mismo orden. En ese caso, la importancia de la permeabilidad en la roca puede ser relevante en la duración del proceso de hidratación. Por este motivo, a fin de acortar la duración del experimento, tiene sentido la utilización de un sistema de hidratación artificial mediante inyección de agua en el contorno de la excavación que acelere el proceso de saturación, haciéndolo independiente del flujo de agua en el macizo rocoso.

La modelización numérica del experimento HE de Mont Terri permite confirmar las consideraciones anteriores. En la figura 10 puede observarse como la evolución de la saturación en la barrera depende de forma muy importante del valor de la permeabilidad del macizo que se considere.

Desde un punto de vista básico, la investigación efectuada ha permitido valorar la importancia decisiva de algunos fenómenos físicos para poder entender el comportamiento de la barrera. El flujo de vapor juega un papel importante en el movimiento del agua en la barrera y cuestiones como el tiempo de hidratación están ligadas en la práctica (almacenamiento definitivo) a la migración del agua en fase de vapor en el entorno del área del almacenamiento. Otro aspecto interesante es el hecho de que el cambio de estructura de la bentonita durante su proceso de hidratación hace que su permeabilidad intrínseca pueda variar enormemente durante este proceso, aun en el caso de que el volumen total de poros del material permanezca constante debido al confinamiento externo. Estos aspectos se han puesto de manifiesto tanto en los ensayos de laboratorio como en los análisis numéricos de los experimentos a escala real.

Las formulaciones numéricas termo-hidro-mecánicas utilizadas permiten interpretar y reproducir con buena precisión el comportamiento medido. A modo de ejemplo, en la figura 11 se muestra la evolución de la humedad relativa medida y calculada en varios puntos situados a distintas distancias del centro de la galería en la sección central del experimento FEBEX. En la figura se aprecia una de las consecuencias de la importancia del flujo de vapor. El aumento de humedad medido durante el primer mes de 1997 se debe al movimiento hacia la zona exterior del agua en forma de vapor desde la zona del calentador donde el aumento de temperatura induce un aumento de la presión de vapor. Posteriormente, este flujo disminuye debido a que en la zona cercana al calentador se llega a un estado de equilibrio y sólo a partir de los 400 días se empieza

a notar un aumento de la humedad debido al efecto de la infiltración del agua desde las paredes de la galería.

En el marco del proyecto FEBEX se ha realizado un gran esfuerzo para caracterizar el comportamiento termo-hidro-mecánico de la bentonita mediante ensayos de laboratorio. Estos ensayos han permitido obtener los parámetros necesarios para la modelización numérica del experimento y profundizar en el conocimiento del comportamiento de la bentonita compactada a densidades altas. Uno de los muchos aspectos estudiados en el laboratorio ha sido la influencia de la salinidad del agua en la conductividad hidráulica de la bentonita. En la figura 12 se muestran los resultados de ensayos realizados en la arcilla del proyecto FEBEX con agua destilada, agua granítica y agua salina (con la misma composición que el agua obtenida por extrusión en la bentonita). La composición de cada tipo de agua se muestra en la Tabla 2.

Los resultados de los ensayos de permeabilidad realizados sobre la arcilla FEBEX ponen de manifiesto que cuando el agua tiene una salinidad baja (agua granítica) la permeabilidad es casi igual a la obtenida con el agua destilada, sin embargo, un aumento apreciable de la salinidad (agua salina) puede multiplicar a la permeabilidad por un factor que pese a la dispersión de los resultados puede estimarse que es del orden de 2 a 5. Esta dependencia tiene implicaciones importantes en los emplazamientos de Äspö y Mont Terri, donde la salinidad del agua del macizo es muy alta y difiere de la composición de la bentonita. En el caso de Äspö, además difiere de la que se añade para el amasado de la mezcla de bentonita y granulado de granito.

En la figura 13 se muestra la diferencia de permeabilidad medida en el relleno compactado del proyecto "Backfill and Plug Test" en ensayos con agua destilada (Dist.) y agua del macizo granítico (Äspö, 12 g/l de NaCl y CaCl₂ al 50%). En este caso, el aumento de permeabilidad respecto a la del agua destilada es de más de un orden de magnitud. Por tanto, los efectos de la salinidad en los cambios de conductividad hidráulica y los gradientes osmótico deben ser tenidos en cuenta en el análisis del comportamiento de las barreras en medios con salinidad alta.

Por otra parte, puede observarse como la presencia de granulado de granito en el relleno proporciona un aumento de la conductividad hidráulica de casi

cuatro órdenes de magnitud respecto a la de los bloques compactados del proyecto FEBEX.

Según los resultados de los análisis numéricos, además de la permeabilidad del agua en condiciones de saturación, algunos parámetros o propiedades de la barrera y su relación con los parámetros del medio geológico pueden hacer variar entre límites muy amplios las conclusiones de un estudio particular. De entre ellos cabe destacar el papel de la permeabilidad relativa y la forma de la curva de retención, dado que condicionan de forma muy clara el flujo de agua en condiciones no saturadas.

Las variables de tipo mecánico (en especial las tensiones en el interior de la barrera y en el macizo rocoso) son difíciles de medir y por ello es también difícil alcanzar conclusiones en cuanto a la validación de los modelos. A pesar de ello, la evolución de las presiones de hinchamiento calculadas encaja bien con las medidas realizadas hasta el momento.

En el proyecto FEBEX, la información disponible atribuye un papel menor a la existencia de discontinuidades entre bloques o espacios vacíos en la configuración inicial del almacenamiento. La expansión de la barrera parece conducir a masas homogéneas que se pueden simular bien con los modelos numéricos de medio continuo. Esta es sin embargo una conclusión preliminar que requiere más atención. Otro punto a estudiar detenidamente es el comportamiento hidro-mecánico del relleno de la parte superior de la sección en el experimento EB. La marcada doble estructura de ese relleno (agregados muy densos y con poca humedad que dejarán entre sí huecos de diámetro mucho mayor al de los huecos del interior de dichos agregados) puede jugar un papel decisivo en el proceso de saturación del material y en el desarrollo de las tensiones de hinchamiento.

Finalmente hay que señalar que el comportamiento a largo plazo de la barrera no es conocido debido a la limitación de los tiempos transcurridos en los experimentos. El comportamiento a largo plazo de los modelos termo-hidro-mecánicos bien calibrados debe ser objeto de atención en el futuro.

Conclusiones

La experiencia acumulada en el experimento FEBEX ha sido muy positiva y de gran utilidad para el análisis de los experimentos puestos en marcha en los laboratorios de Äspö y Mont Terri.

La experiencia adquirida en la fase de instalación y primeras lecturas en estos últimos experimentos revela la existencia de medios más agresivos para los sensores y la dificultad para entender los problemas de flujo en presencia de gradientes osmóticos significativos.

Los cambios de salinidad, por otra parte, conducen a cambios en la estructura de la arcilla que alteran su conductividad hidráulica y muy probablemente su comportamiento mecánico.

Los nuevos materiales de relleno utilizados (en el caso del experimento "Backfill and Plug Test" de Äspö) o por utilizar (en el caso del experimento EB de Mont Terri) requerirán de un nuevo trabajo adicional de caracterización termo-hidro-mecánica mediante ensayos de laboratorio.

Cuando los nuevos experimentos sean analizados se dispondrá de un conocimiento más preciso de la interacción termo-hidro-mecánica entre diversos tipos de barrera y medios geológicos de diferente naturaleza.

Agradecimientos

Una parte importante de la información expuesta en esta ponencia es fruto de la colaboración de un elevado número de investigadores pertenecientes a los diversos organismos que participan en los proyectos mencionados en el texto. Entre los más implicados cabe mencionar, además de ENRESA como entidad financiadora, a AITEMIN, CIEMAT y ULC.

Referencias

- ENRESA (2000). FEBEX project. Final Report. Publicación Técnica ENRESA 1/2000.
- AITEMIN (1999). HE experiment. Test Plan. Technical Note TN98-27.
- AITEMIN (2000). FEBEX project Phase II. Test Plan . Report 70-ST-H-0-4.
- UPC (1999).- Äspö "Backfill and Plug Test". Informe de la contribución de 1997 a 1999.
- SKB (1998).- Test Plan for the Prototype Repository. L.O. Dahlström. Report HRL-98-24.

Tabla 1
Características de los diversos experimentos a escala real.

Emplazamiento	Grimsel	Äspö	Mont Terri		
Roca circundante	Granito	Granito	Argilita		
Conductividad hidráulica (m/s)	$8 \cdot 10^{-11}$	$3 \cdot 10^{-11}$	$10^{-12} - 6.5 \cdot 10^{-14}$		
Tipo de agua en el macizo	Granítica	Marina	Na-Cl-SO ₄		
Sales disueltas (ppm)	63	12000	9463 – 20843		
Proyecto	FEBEX I/II	Prototype	Backfill And Plug	HE	EB
Material de relleno	Bloques de bentonita	Bloques de bentonita	Granito machacado + bentonita	Bloques de bentonita	Bloques y "pellets" de bentonita
Tipo de arcilla	Cabo de Gata	MX80	MX80	Cabo de Gata	
Densidad seca (g/cm ³)	1.6	1.67	1.6	1.6	Por determinar
Conductividad hidráulica (m/s)	$5.5 \cdot 10^{-14}$	$6.5 \cdot 10^{-14}$	$5.0 \cdot 10^{-10}$	$5.5 \cdot 10^{-14}$	
Diámetro de la excavación (m)	2.27	1.75	5.0	0.30	2.50
Tipo de saturación	Natural (posible artificial en FEBEX II)	Posible artificial	Artificial	Posible artificial	Artificial

Tabla 2
Composición del agua utilizada en los ensayos de permeabilidad en la arcilla FEBEX.

Elemento (mmol/l)	Granítica	Salina
Cl ⁻	0,37	100
SO ₄ ²⁻	0,15	15
HCO ₃ ⁻	2,36	
Mg ²⁺	0,39	15
Ca ²⁺	1,12	10
Na ⁺	0,48	80
K ⁺	0,026	

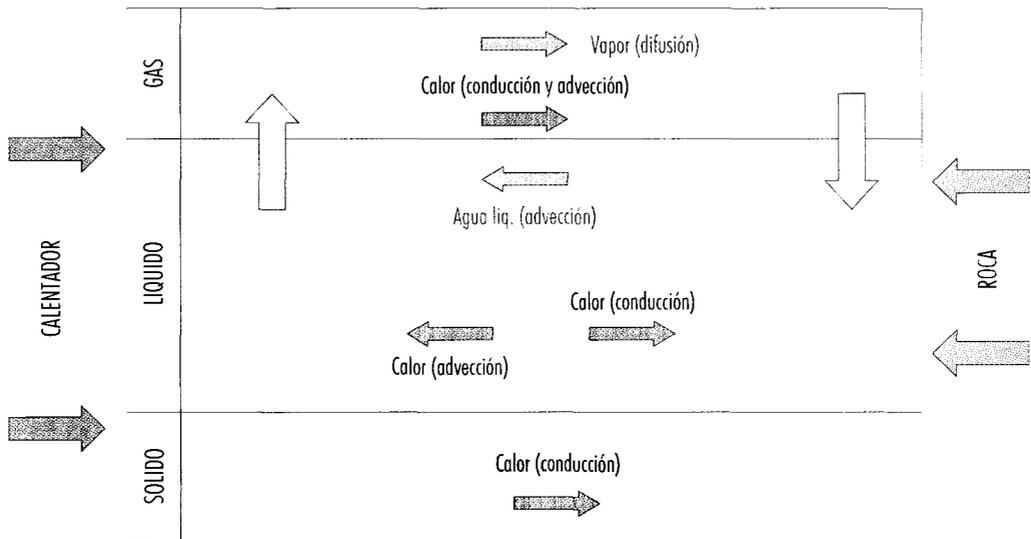


Figura 1. Mecanismos de movimiento de agua y calor en una barrera arcillosa de ingeniería.

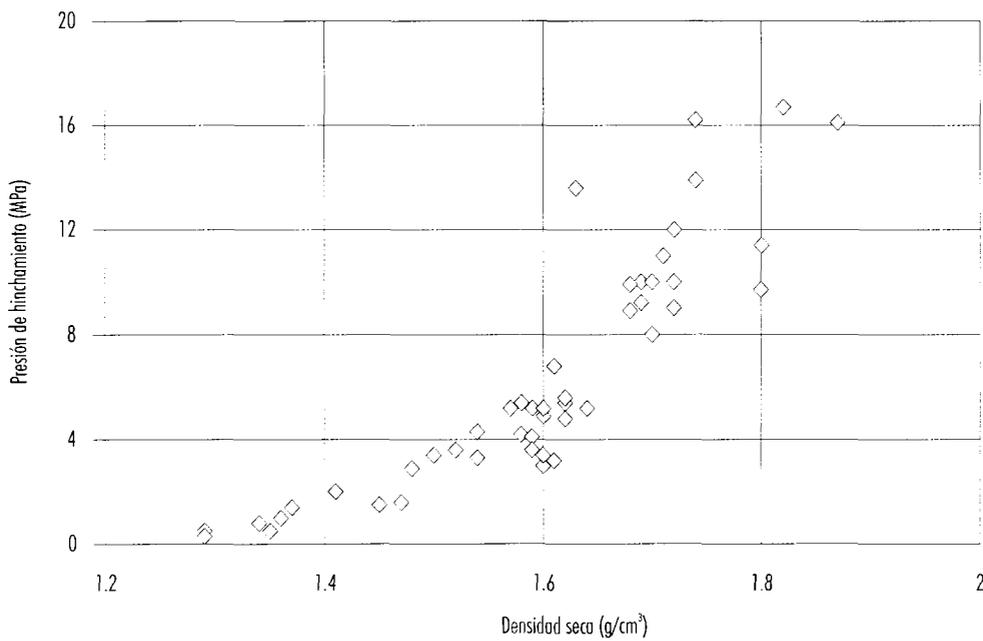


Figura 2. Presiones de hinchamiento de la bentonita utilizada en el proyecto FEBEX. (ENRESA, 2000).

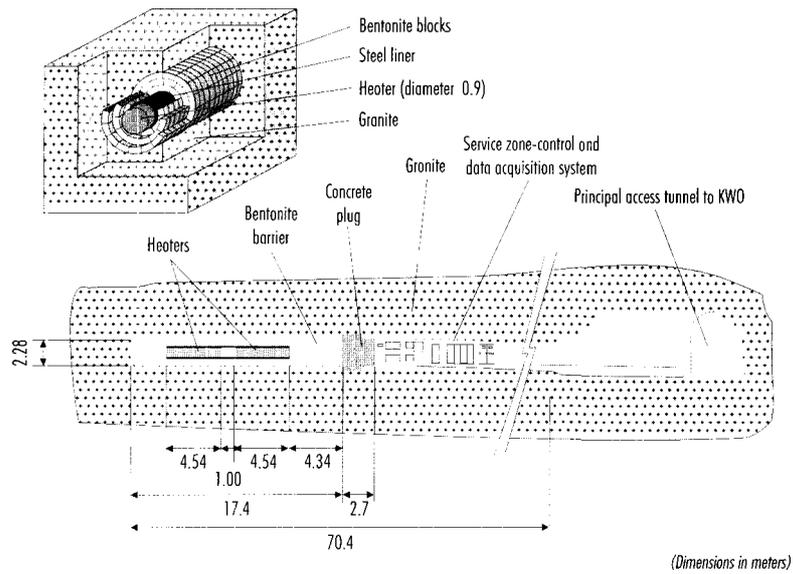


Figura 3. Esquema de los distintos elementos del proyecto FEBEX.



Figura 4. Fotografía del calentador y de los bloques de bentonita en la galería de granito de Grimsel durante el montaje de los calentadores del proyecto FEBEX.

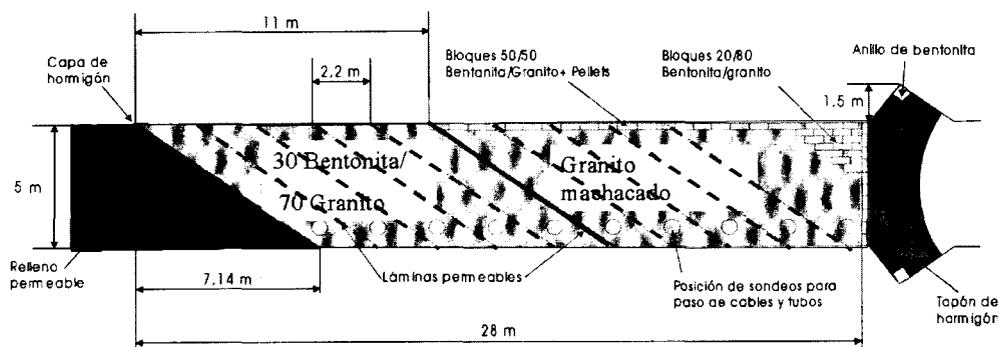


Figura 5. Sección de la galería en el proyecto "Backfill and Plug Test" en Äspö.

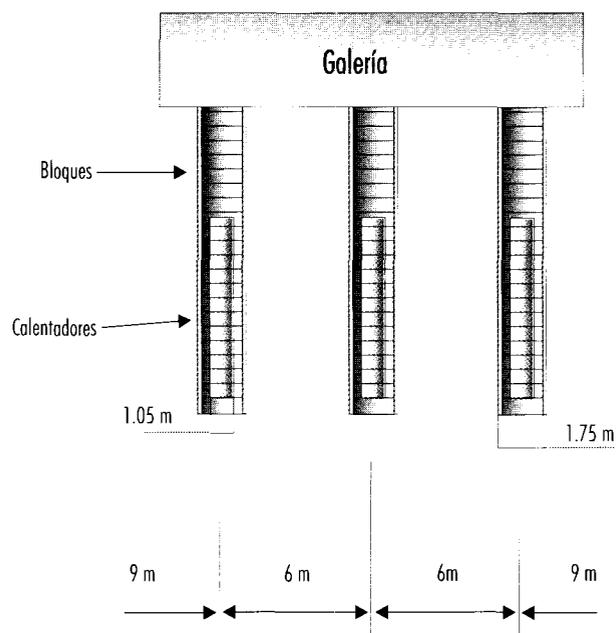


Figura 6. Sección de las pozos verticales con los calentadores en el proyecto "Prototype repository" en Äspö.

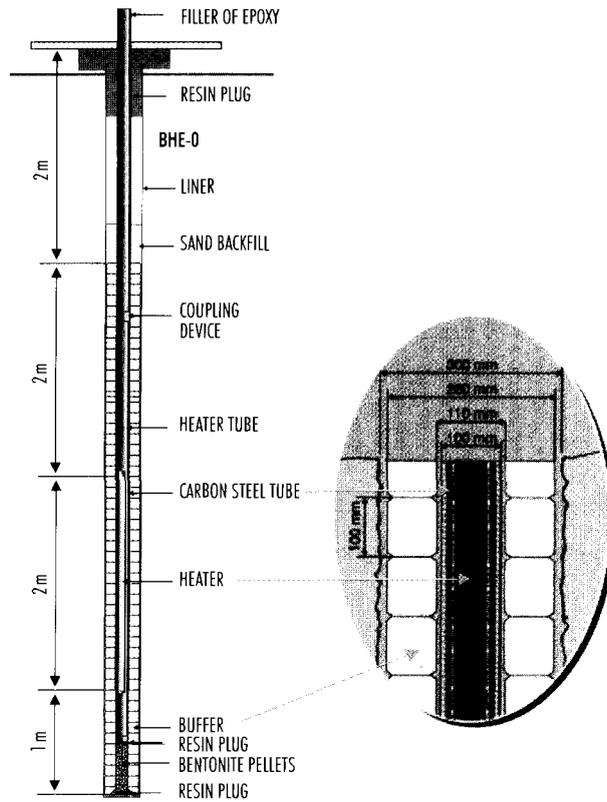


Figura 7. Esquema de las diversos componentes del experimento "Heater Experiment" (HE) en Mont Terri.

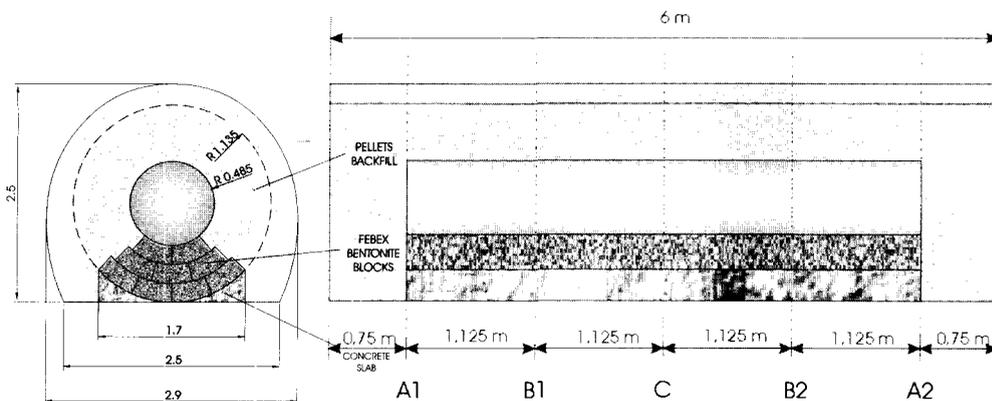


Figura 8. Esquema de los diversos componentes del experimento "Engineered Barrier" (EB) en Mont Terri.

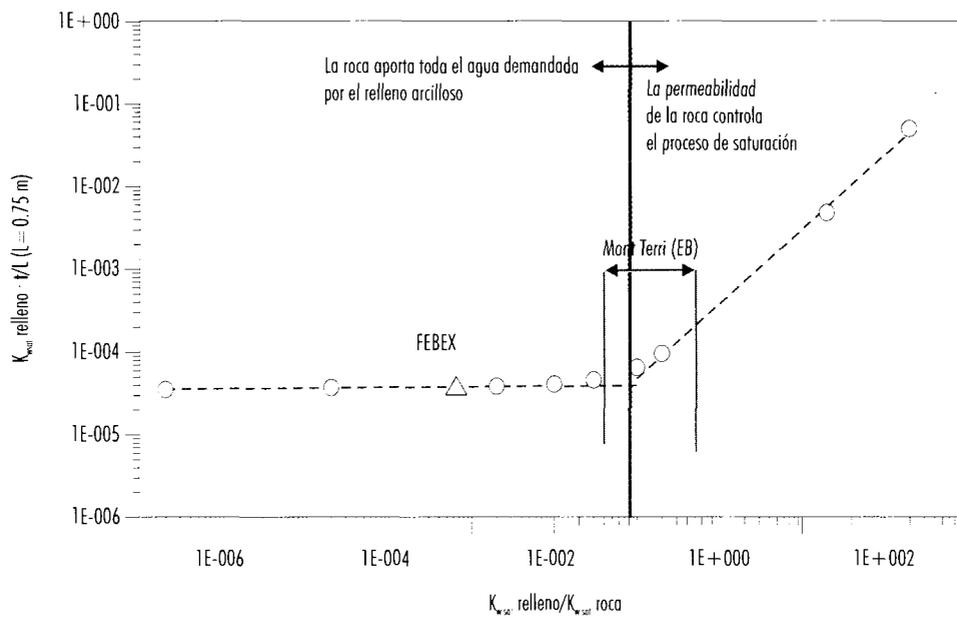


Figura 9. Efecto de la relación entre la permeabilidad de la roca y el tiempo necesario para alcanzar la saturación en un punto de referencia situado a 15 cm del calentador con la configuración del experimento FEBEX.

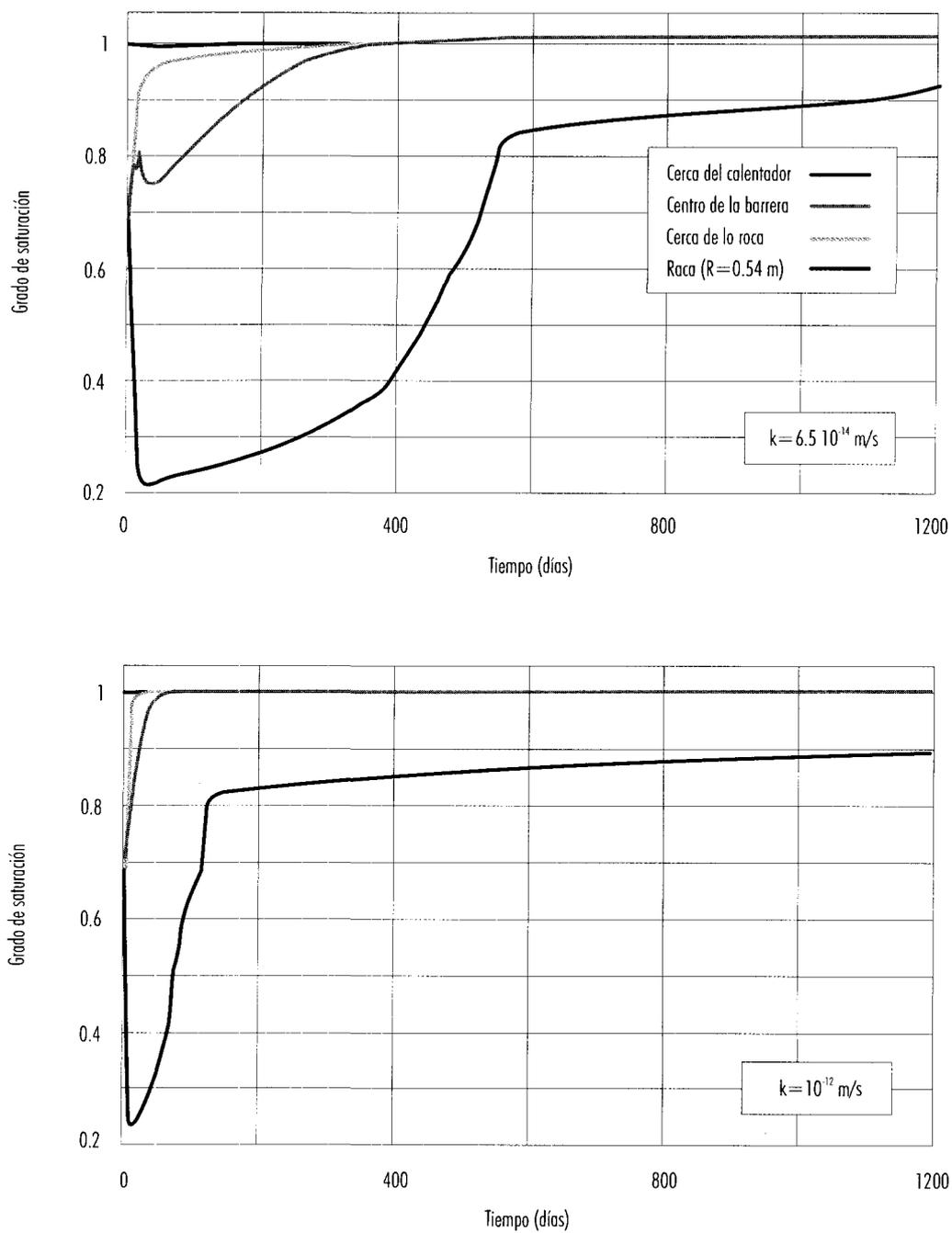


Figura 10. Evolución de la saturación calculada según dos valores de la permeabilidad atribuido a la Arcilla Opalinus en la modelización numérica del experimento HE.

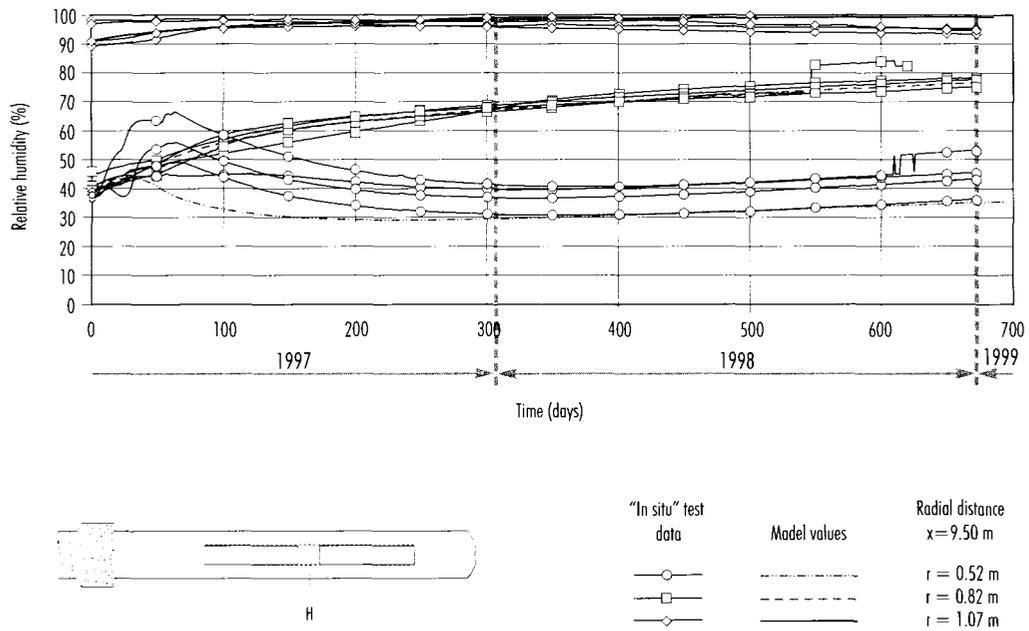


Figura 11. Evolución medida y calculada de la humedad relativa del aire en los poros de la bentonita en varios puntos de la sección central (H) del experimento FEBEX.

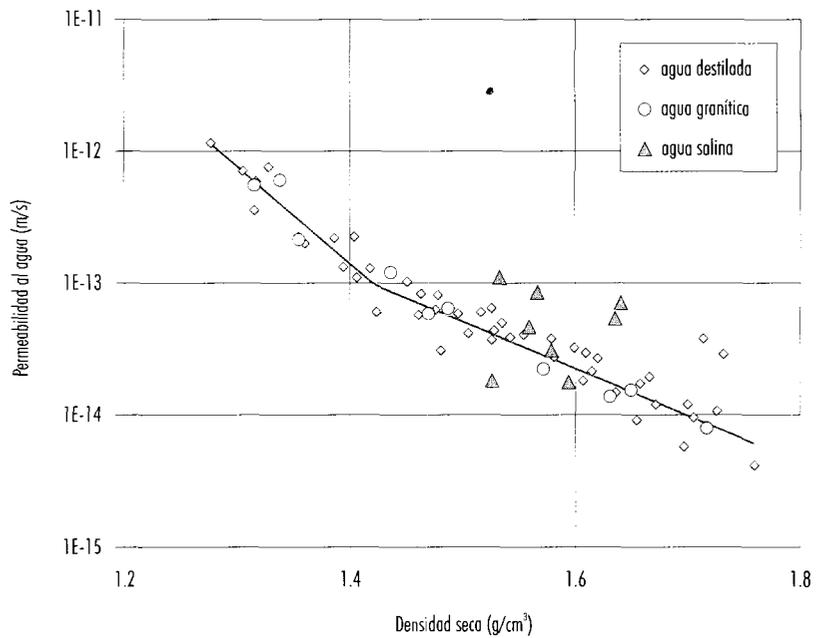


Figura 12. Variación de la permeabilidad a distintos tipos de agua de la bentonita FEBEX compactada a diversas densidades.

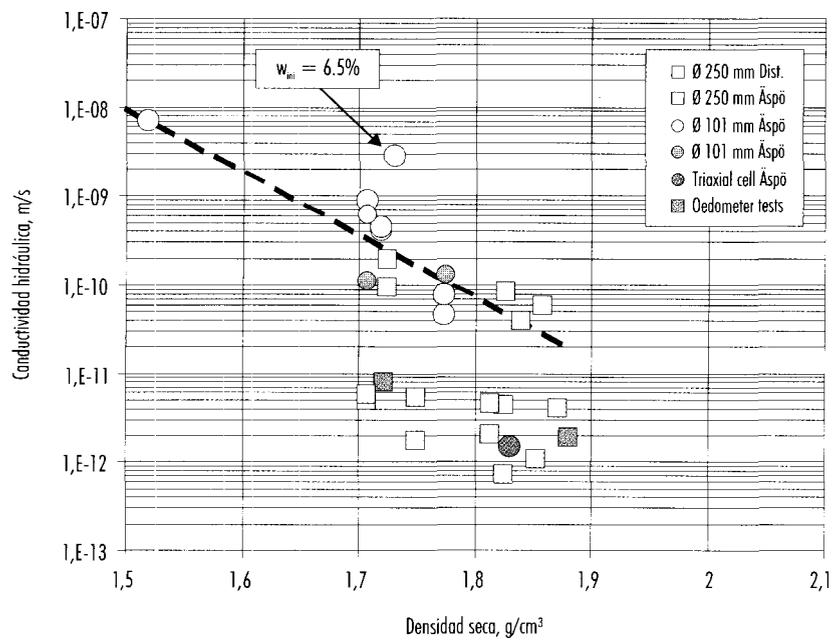


Figura 13. Variación de la conductividad hidráulica al agua destilada y al agua de Äspö para distintos valores de la densidad seca de la mezcla de bentonita MX-80 (30%) y de granulado de granito (70%) que se ha utilizado en el proyecto "Backfill and Plug Test" de Äspö.

LA ALTERACIÓN SUPERGÉNICA DE LA PECHBLENDA DE LA MINA FE (CIUDAD RODRIGO, SALAMANCA), COMO ANÁLOGO NATURAL DEL COMBUSTIBLE GASTADO: DISOLUCIÓN, TRANSPORTE Y RETENCIÓN DE RADIONUCLEIDOS NATURALES EN UN MEDIO FRACTURADO. (PROYECTO MATRIX I)

L. Pérez del Villar, R. Campos, P. Gómez, J.S. Cózar, J. Pardillo, B. Buil, A. Garralón,
M^o. J. Turrero, M. Pelayo, B. Ruiz, P. Rivas
CIEMAT

D. Arcos, J. Bruno, M. Grivé
ENVIROS-QUANTISCI

J. Ruiz Sánchez-Porro, F. Marín, A. Izquierdo
ENUSA

G. Carretero, F. Ortuño, E. Floría, J. Suso
AITEMIN

P. Hernán, J. Astudillo
ENRESA

Resumen

La mineralización uranífera encajada en la falla Boa (mina Fe, Ciudad Rodrigo), formada esencialmente por pechblenda, pirita y carbonatos, y los oxihidróxidos de Fe y minerales de la arcilla neoformados en el sitio han sido estudiados como análogos naturales del comportamiento del combustible gastado bajo condiciones extremas de oxidación y disolución y como materiales esenciales en los procesos de migración/retención que afectan al U y otros elementos traza de interés en un almacenamiento geológico profundo de residuos radiactivos de alta actividad. Para ello, el sitio se ha caracterizado desde el punto de vista geológico-estructural, hidrogeológico, hidrogeoquímico, mineralógico y geoquímico, contribuyendo así a validar la metodología seguida en la caracterización de medios fracturados como el aquí estudiado.

Aunque la perturbación minera del sitio ha impedido determinar con precisión las características hidrogeológicas e hidroquímicas originales, la mineralogía y geoquímica de los rellenos de fractura, la mineralización y las arcillas asociadas han permitido establecer su evolución geoquímica. En él existen tres zonas claramente diferenciadas: la oxidada, hasta aproximadamente 20 m de profundidad, la de tránsito redox, hasta aproximadamente 50 m de profundidad, y la reducida o estabilidad, por debajo de 50 m de profundidad.

En la zona oxidada, caracterizada por una asociación mineral típica de medios fuertemente ácidos, determinados por la oxidación masiva de la pirita, prevalecieron las condiciones fisico-químicas más apropiadas para la oxidación y disolución total de la pechblenda, así como para la casi total lixiviación del U en forma de complejos sulfatados de

uranilo En la zona de tránsito redox, caracterizada por la coexistencia de minerales oxidados, la paragénesis uranífera primaria, así como minerales de precipitación, por neutralización y cambios redox, y de sustitución metasomática, prevalecieron las condiciones fisico-químicas óptimas para la cohabitación de la pitchblende y la coprecipitación del U (VI) y el Fe (III) procedentes de la zona oxidada. En la zona reducida, caracterizada por la existencia de la paragénesis uranífera original, prevalecieron las condiciones fisico-químicas propias del campo de estabilidad del dióxido de U (pitchblende), la pirita y los carbonatos ankerítico.

Si bien las condiciones fisico-químicas de la zona de oxidación están muy lejos de cualquier supuesto geoquímico aceptable para garantizar la estabilidad del combustible gastado en un AGP, cuando las condiciones de neutralidad/alcalinidad y potencial redox se restablecen la zona de tránsito redox, se originan dos procesos geoquímicos relevantes: la cohabitación de la pitchblende, importante para la estabilidad del combustible gastado en medios reductores, y la coprecipitación del U (VI) y el Fe (III), determinante para la retención del U y otros elementos análogos en condiciones oxidantes. Las condiciones geoquímicas detectadas por debajo de los 50 m de profundidad serían suficientes para garantizar la estabilidad de un AGP, al igual que han estabilizado el yacimiento de mina Fe desde hace aproximadamente 34Ma, permitiendo así su actual explotación.

Abstract

The pitchblende-pyrite-carbonate mineralisation of the Boa-fault zone (Fe mine, Ciudad Rodrigo), as well as the secondary Fe oxyhydroxides and clay minerals in the site, have been studied as natural analogue of the nuclear spent fuel behaviour under extremely oxidative dissolution conditions. They have also been considered as relevant analogues for uranium and other interesting trace metals retention. A substantial characterisation of the site has been performed in order to reach these objectives and to validate the methodology usually applied to characterise fractured media like of the Boa-fault zone.

It has not been possible to precisely determine the original hydrogeological and hydrochemical features of the site due to the intense mining activities in the site. However, the mineralogy and geochemistry of fracture fillings, mineralisation and associated clays have allowed to establish the geochemic-

al evolution of the site. Three geochemical zones have been clearly differentiated: the oxidised zone, from the surface to approximately 20 m depth, the redox transition zone, from 20 m to 50 m depth, and the reduced zone, located below the transition zone.

The oxidised zone is characterised by the presence of the typical mineral association result of strong acid conditions, consequence of the total oxidation of pyrite. There, the appropriated physico-chemical conditions prevailed for the total oxidation and dissolution of uranium dioxide and complete mobilisation of uranium, as uranyl-sulphate aqueous complexes. The redox transition zone is characterised by the coexistence of oxidised minerals, the primary uranium paragenesis, as well as numerous secondary minerals formed by precipitation and metasomatic substitution. In this zone, the optimal physico-chemical conditions for the cohabitación of pitchblende and the co-precipitation of Fe(III)-U(VI) took place. In the reduced zone, where the primary uranium paragenesis is present, we currently find the necessary physico-chemical conditions to stabilise pitchblende, pyrite and ankeritic carbonate.

Even though the physico-chemical conditions of the oxidised zone are far from those required to guarantee spent fuel stability, once the alkalinity and reducing conditions in the transition zone are restored, two main geochemical processes take place:

- i) the cohabitación of pitchblende, an important process for the stability of the nuclear spent fuel in reducing conditions, and
- ii) the co-precipitation of the Fe(III) and U(VI) as oxyhydroxides, another relevant mechanism for the retention of uranium and other analogue metal elements under oxic conditions

Finally, the geochemical stability conditions that prevail below 50 m depth should be sufficient to stabilise a spent nuclear fuel repository, in the same way as they have been able to preserve the uranium deposit at Fe mine formed 34 My ago, which still is commercially exploitable.

Generalidades

El yacimiento de uranio de la mina Fe se localiza en la provincia de Salamanca, a unos 10 Km al noroeste de Ciudad Rodrigo y aproximadamente 20 Km de la frontera portuguesa (Fig. 1). Su explotación es a cielo abierto, por el método tradicional de corta, con un altura de bancos de 6 m (Ruiz et al., 1997). En el año 1993 comenzó la explotación del

yacimiento D, continuación del anterior al otro lado del río Águeda, con tres huecos diferenciados. En uno de éstos, el denominado H-01, se localiza la zona de fractura de la denominada falla Boa, en la que se han realizado los diferentes estudios del Proyecto Matrix I (Fig. 2). De esta zona de fractura, que se sigue fácilmente a través de los 36 m del talud descubierto para su explotación, se llegaron a obtener leyes hasta del 10 ‰ en U_3O_8 , muy superiores a la ley media del yacimiento, de 0.65 ‰.

La mineralización, que rellena fracturas y cementa brechas de falla de los materiales del Complejo Esquisto-Grauváquico (CEG), es el resultado de un proceso hidrotermal en el que se han distinguido tres fases: la primera, tras un proceso de brechificación, originó la cloritización de la roca encajante adyacente, y filoncillos de ankerita y pirita, con cantidades muy subordinadas de galena, esfalerita y calcopirita. La segunda fase, también precedida por otro proceso de brechificación, fue la más productiva en uranio, originando adularia, pirita, pechblenda, coffinita, calcita y dolomita. La tercera estuvo caracterizada por el depósito episódico y repetido de carbonatos, pirita, pechblenda y coffinita coloriformes, dando lugar a una mineralización que rellena los espacios abiertos de las brechas y fracturas (Arribas, 1985). Su edad, determinada mediante la isocrona $^{207}Pb/^{204}Pb$ "vs" $^{235}U/^{204}Pb$, es de 34.8 ± 1.6 Ma, que coincide, a su vez, con la formación y relleno de la cuenca de Ciudad Rodrigo y la fase pirenaica de la orogenia Alpina (Both et al., 1994).

Después de la formación del yacimiento, éste fue sometido a intensos procesos de erosión y oxidación supergénica, así como a la fosilización por sedimentos continentales del Eoceno, Mioceno inferior, Plioceno superior, Pleistoceno y Holoceno. La oxidación supergénica del yacimiento ha dado lugar a una gran profusión de minerales secundarios de uranio, entre los que destacan: los óxidos hidratados e hidróxidos de uranio (gummitas amarillas, iantinita y epi-iantinita), silicatos hidratados de uranilo (uranotilo alfa), fosfatos hidratados de uranilo (autunita, metaautunita, torbernita y saleita) y sulfatos de uranilo (uranopilita) (Arribas, 1962; 1975).

Analogías con un almacenamiento geológico profundo y objetivos del proyecto

Respecto a las analogías con un Almacenamiento Geológico Profundo (AGP) de Residuos Radiactivos

de Alta Actividad (RRAA) conviene decir que la idea de que los yacimientos profundos de elementos radiactivos podrían ser análogos naturales de un AGP surgió al considerar que ambos sistemas podían compararse global o parcialmente entre sí. Así, de acuerdo con los modelos conceptuales más aceptados para el AGP, además de las características de naturaleza y profundidad, un yacimiento de uranio debe reunir una serie de condiciones para que pueda considerarse como un análogo natural. Estas son:

- i) que esté encajado en materiales geológicos análogos a los que pueden servir de roca encajante del AGP;
- ii) que tenga una geometría simple;
- iii) si está encajado en rocas cristalinas, que esté además flanqueado por materiales arcillosos; y
- iv) que esté poco perturbado por labores de exploración y explotación o que tenga zonas mineralizadas sin explotar.

En este orden de ideas, el yacimiento de la mina Fe no podría considerarse como un análogo natural en el sentido estricto del concepto, ya que carece de las cuatro condiciones anteriormente mencionadas. Sin embargo, si se tiene en cuenta la anatomía detallada del modelo conceptual del AGP español, así como su previsible fisiología después de la clausura, en dicho yacimiento se pueden encontrar las siguientes analogías:

- 1) Las altas concentraciones en uranio de ciertas zonas del yacimiento se pueden considerar análogas al combustible gastado, ya que están en forma de pechblenda (UO_{2+x}), que es el componente mayoritario de los RRAA. Su grado de oxidación (x entre 2.25 y 2.66) es también similar al de dicho combustible, en condiciones de oxidación radiolítica (Shoesmith y Sunder, 1992; Casas et al., 1995; Bruno et al., 1995)
- 2) La solubilidad de la pechblenda, por interacción con las aguas subterráneas del yacimiento, con características fisicoquímicas variables desde oxidantes, ácidas y sulfatadas, hasta reductoras, alcalinas y bicarbonatadas, es otro parámetro análogo que, junto a los obtenidos en el laboratorio en condiciones más controladas, puede ser de gran utilidad para predecir el comportamiento del combustible gastado, en condiciones más o menos severas de degradación (Bruno et al., 2000).

- 3) Entre los minerales secundarios de uranio del yacimiento, originados por la alteración metéorica de la pechblenda o término fuente, algunos son muy semejantes a los formados experimentalmente al lixiviar el UO_2 y el Simfuel® (Bruno et al., 1992) o las uraninitas y pechblendas naturales (Casas et al., 1994). Además, minerales análogos o idénticos a los silicatos y fosfatos hidratados de uranio serían los que se formarían en el campo lejano de un AGP degradado, ya que las concentraciones de sílice, fosfato, calcio, hierro, etc. de las aguas subterráneas, después de interactuar con el sistema de barreras y el combustible gastado, serían suficientes como para que precipitaran dichos minerales.
- 4) La presencia de oxihidróxidos de Fe en la zona oxidada del yacimiento, semejantes a los que se formarían por la oxidación y corrosión de los contenedores de acero bajo condiciones semi-óxicas, sería otro de los aspectos análogos del sistema. La comprensión de los mecanismos de adsorción y coprecipitación de los radionucleidos naturales por o con dichos oxihidróxidos, la participación de éstos en la retención total de dichos nucleidos, así como el estudio de la reversibilidad del proceso de retención, en función del grado de envejecimiento de los oxihidróxidos de Fe, son datos que pueden ser empleados, por analogía, para modelizar el comportamiento de un AGP después de su clausura y posible degradación.
- 5) La capacidad de retención de las arcillas neoformadas en el yacimiento, parcialmente similares a las que se emplearían en la barrera de ingeniería, es otro parámetro análogo útil para los modelos de migración/retención de los radionucleidos en los campos próximo y lejano del término fuente.

De acuerdo con los elementos y procesos análogos que ofrece el yacimiento de uranio de la mina Fe, los objetivos marcados en el Proyecto Matrix I fueron esencialmente los siguientes:

- 1º) El estudio "in situ" de la oxidación y disolución de la pechblenda, como término fuente de uranio y otros elementos análogos, así como de la retención del U(VI), por precipitación de minerales secundarios, en un rango de condiciones fisico-químicas comprendido entre oxidantes-sulfatadas-ácidas y reductoras-bicarbonatadas-alcalinas.
- 2º) La determinación de las propiedades y parámetros de sorción y coprecipitación de los oxihidróxidos de Fe y arcillas neoformadas frente al uranio y otros elementos análogos, bajo las mismas condiciones fisico-químicas.
- 3º) La integración de dichos procesos en modelos de evolución del comportamiento hidrogeoquímico de un repositorio, su cuantificación y la comparación con los modelos de PA al uso, ha sido el último objetivo del proyecto.

Con estos objetivos se ha pretendido progresar en el conocimiento de:

- i) la longevidad del ambiente geoquímico en el campo próximo (p.ej. la eficiencia de las reacciones que tamponan el Eh y el pH del sistema);
- ii) la solubilidad y especiación de los radionucleidos en aguas subterráneas con diferentes características fisico-químicas;
- iii) las propiedades de sorción de los productos de corrosión de los contenedores de acero; y
- iv) los procesos irreversibles de sorción en los campos próximo y lejano.

Por último, se ha pretendido validar la metodología seguida para caracterizar medios altamente fracturados como el aquí estudiado. En consecuencia, estos últimos aspectos han sido tratados con cierta extensión en el capítulo dedicado a la metodología.

Características del sitio y modelo geoquímico conceptual

Durante la primera etapa del proyecto se analizó la documentación existente sobre la geofísica, radiometría, geología, mineralogía, geoquímica, metalogénia, labores de exploración y explotación, hidrogeología e hidrogeoquímica de la mina Fe y otros yacimientos de uranio localizados en su entorno. El análisis de esta documentación permitió:

- i) elegir el sitio concreto para la realización del proyecto: la *falla Boa* (Arnáiz et al., 1995);
- ii) plantear, en términos geométricos, la investigación mediante sondeos de la evolución en profundidad de la falla Boa (ENUSA, 1998a); y
- iii) elaborar un primer modelo conceptual del funcionamiento geoquímico de la mineralización de la citada falla (Pérez del Villar, 1998).

El frente de explotación de la zona, intensamente fracturado, mostraba de brecha de la falla Boa, muy mineralizada, pero oxidada y lixiviada en su zona más superficial, hasta aproximadamente 24 m de profundidad, apareciendo, a partir de esa cota, los denominados óxidos negros, pirita y carbonatos, mezclados con oxihidróxidos Fe secundarios (Fig. 3). La superficie de falla es muy irregular, presentando importantes ondulaciones e incluso cambios en su orientación y buzamiento. La potencia de la brecha mineralizada es también muy variable, no sobrepasando los 50 cm. Ambas características son las que le han valido el nombre de falla Boa.

El labio levantado de la falla suele estar tapizado por una banda arcillosa de aproximadamente 10 cm de espesor y color gris oscuro, debido a la presencia de materia orgánica muy evolucionada. Inmediatamente encima de esta banda se sitúa la brecha de falla, cuya matriz está formada por una mezcla de arcillas y oxihidróxidos de Fe, con tonalidades variables entre el ocre, pardo rojizo y negro, en función del contenido en oxihidróxidos de Fe, materia orgánica y óxidos negros. A lo largo de la falla, la radiometría, medida con SPP-2, es alta, aumentando hacia las zonas más profundas, donde se encuentra la mineralización primaria parcialmente alterada. Estas características fueron las que determinaron el plan de investigación en profundidad de la falla Boa, mediante sondeos de testigo continuo, a fin de conocer su evolución y obtener muestras representativas e inalteradas del sólido y las aguas de las zonas oxidada, de tránsito redox y reducida.

Respecto al modelo conceptual del funcionamiento geoquímico de la mineralización, los datos bibliográficos, la observación detallada del frente de explotación la falla Boa, así como:

- i) la presencia de aguas muy ácidas en el hueco H-01;
- ii) la precipitación actual de sulfatos por la evaporación de dichas aguas ácidas;
- iii) la formación de sulfatos de uranilo del tipo uranopilita en épocas de sequía; y
- iv) el procedimiento químico empleado en las etapas de lixiviación estática para el beneficio del uranio (lixiviación en medio oxidante y sulfúrico), permitieron concebir un modelo conceptual muy similar al de oxidación-enriquecimiento supergénico de los yacimientos masivos o filonianos de sulfuros, salvando las particularidades mineralógicas y geoquímicas de este tipo de mineralización, rica en uranio.

Metodología de estudio y muestras

Como se ha señalado anteriormente, la alta densidad de fracturas del entorno de la falla Boa, el hecho de que el término fuente, en este caso la pechblenda, esté concentrado en fracturas, y que los procesos de disolución, transporte y retención de los radionucleidos naturales tengan lugar a lo largo de dichas discontinuidades, aconsejaron aplicar algunos métodos relativamente novedosos para la caracterización estructural del sitio. Además, para conseguir un modelo coherente del funcionamiento geoquímico del sistema, en el que se integraran los datos estructurales, mineralógicos, hidrogeológicos e hidrogeoquímicos, se han aplicado sucesivamente unas técnicas de estudio, detalladas a continuación, que han permitido también validar la metodología para caracterizar medios altamente fracturados.

En consecuencia, los métodos utilizados se tratan aquí con cierta extensión y clasificados, según la secuencia de aplicación, en métodos de:

- i) caracterización en superficie;
- ii) caracterización en profundidad;
- iii) laboratorio y
- iv) modelización geoquímica.

Métodos de caracterización en superficie

Como paso previo a la caracterización en superficie de la zona, se procedió a la limpieza y acondicionamiento del frente de explotación, con el fin de hacerlo accesible y poder desarrollar los distintos trabajos de investigación. Posteriormente se realizó un mosaico fotográfico para plasmar sobre él todos los datos necesarios para su caracterización (ENUSA, 1998a). Estos datos fueron: la cartografía litológica y radiométrica (ENUSA, 1998b); la cartografía de los lineamientos de las fracturas; las medidas de la dirección y el buzamiento de las fracturas; y el muestreo de la brecha mineralizada.

Para completar la caracterización estructural (Campos et al., 1999a), los parámetros numéricos de las fracturas se trataron convenientemente al objeto de:

- i) definir grupos de fracturas por su orientación espacial, mediante un sistema probabilístico de discriminación, utilizando el módulo ISIS del código FRACMAN de modelización geométrica de fracturas;

- ii) determinar la densidad de fracturas mediante el análisis estadístico univariante de los espaciados interfracturas, obteniéndose los valores estadísticos básicos;
- iii) estudiar la geometría de la fracturación, aplicando técnicas de análisis fractal y multifractal a la distribución de los espaciados interfractura;
- iv) modelizar la conectividad entre fracturas, simulando un modelo 3D, mediante la aplicación del modelo conceptual "Levy-Lee", que utiliza geometría fractal, y el modelo "Baecher", que asume la forma de las fracturas como rectangular o poligonal; y
- v) integrar las fracturas de la zona en el modelo cinemático admitido a escala regional (Monteserin et al., 1990) y del yacimiento (Gumiel et al., 1990; Martín-Izard et al., 1999).

Métodos de caracterización en profundidad

Dado que los métodos de caracterización en profundidad giraron alrededor de los sondeos realizados, la metodología seguida se describe de acuerdo con el orden siguiente:

Sondeos y características de la perforación

De acuerdo con la geometría de falla Boa, se programó una campaña de sondeos, con recuperación de testigo continuo, a fin de atravesar las zonas oxidada, de tránsito redox y reducida.

Se perforaron un total de 211.91 m, repartidos entre cuatro sondeos: SM-1, SM-2, SM-3 y SM-4 (Fig. 4). Se utilizó una sonda fija DIAMEC-282, con un sistema de limpieza y reciclado de agua, denominado "desilter". El agua para la perforación fue la del río Águeda, cuyas características físico-químicas eran: pH=7.1, Eh=440 mV y CE=176 uS/cm. Su composición química respondía a la de un agua sulfatada-cálcica, con contenidos en Br⁻ inferiores a 0.1 y 0.02 ppm, respectivamente (Gómez et al., 2000). Este agua fue dopada con los trazadores conservativos KI y KBr según el sondeo, de manera que, los tres primeros (SM-1, SM-2 y SM-3) se trazaron con el primer compuesto, mientras que el último (SM-4) se trazó con el segundo. Las concentraciones finales de trazador en el agua fueron 25 ppm y 30 ppm, respectivamente.

Muestreo y características físico-químicas del agua de perforación

Dadas las dificultades para medir "in situ" las características físico-químicas del agua de retorno, especialmente pH y Eh, se tomaron sistemáticamente muestras al objeto de analizarlas y establecer la historia hidroquímica de la perforación de cada sondeo. Éstas se tomaron aproximadamente cada 10 m de avance, intercalando otras cuando cambiaba ostensiblemente el color del agua de retorno. Los parámetros químicos y físico-químicos medidos en estas muestras fueron: concentración del trazador, pH, Eh y conductividad. Además, en algunas de ellas se determinaron también los elementos mayores, menores y traza (Pardillo et al., 1998).

Control litológico, mineralógico y radiométrico de los testigos

En el levantamiento de la sucesión litológica atravesada por cada uno de los sondeos se hizo especial énfasis en la naturaleza de la roca, su grado de oxidación, las zonas importantes de fractura y brecha, particularmente las de la falla Boa, la densidad de fracturas (nº de fracturas/m), y la relación geométrica entre éstas, la estratificación (S_0) y la esquistosidad principal (S_1). Así mismo, se prestó atención a la mineralogía, el grado de oxidación de los rellenos fisurales, las señales recientes de circulación de aguas y la radiometría, esta última medida con un SPP-2 apantallado con Pb. La litología, mineralogía, las fracturas, los parámetros físico-químico de las aguas de perforación, la radiometría y las diagrfías geofísicas se representaron gráficamente, al objeto de correlacionarlos entre sí. Posteriormente se realizó un reportaje fotográfico, en color, de los testigos de los cuatro sondeos (Pardillo et al., 1999).

Análisis estructural de los testigos

Este análisis consistió fundamentalmente en la descriptiva de las fracturas desde el punto de vista de su distribución, espaciados entre fracturas, densidad de fracturas, apertura de las mismas y tipo de relleno. A partir de los datos geométricos locales de la falla Boa, las características de las fracturas en su entorno más próximo, así como de las características estructurales de la región, se realizaron modelos geométricos en 2D y 3D de la evolución en profundidad de la falla Boa, para finalmente proponer un modelo compatible con la estructura del área y facilitar así la comprensión del funcionamiento hidrogeológico de la zona. Por último, se realizó el

estudio geométrico y cinemático de las fracturas y filones cortados por los sondeos, con el fin de completar y corroborar las principales familias de fracturas representadas en la zona, así como el modelo cinemático de éstas y de la falla Boa (Campos et al., 1999b).

Testificación hidráulica de los sondeos

Para la caracterización hidráulica de la falla Boa y su entorno próximo (Carretero et al., 2000 a), los sondeos fueron sometidos a los ensayos hidráulicos recogidos en la Tabla 1. Estos ensayos no pudieron realizarse en el sondeo SM-1 por haber cortado a la falla por encima de la zona saturada. En general, los ensayos se realizaron en tres tramos por sondeo: el de la falla Boa y en otros dos situados por debajo de ella. Dado que los niveles piezométricos estaban muy próximos a la zona de fractura de dicha falla, por encima de ella no pudo realizarse ensayo hidráulico alguno.

En una primera aproximación y a pie de obra, los datos procedentes de los ensayos "P" y "S" se interpretaron mediante el ajuste gráfico a curvas tipo, mientras que los procedentes de los ensayos I se interpretaron por el método de Theis, aproximación de Jacob (1947). Posteriormente, los parámetros hidráulicos derivados de la interpretación preliminar se volvieron a interpretar por el método inverso, utilizando el código MariaJ_IV.

Muestreo de los rellenos fisurales, la brecha de la falla Boa y las zonas mineralizadas adyacentes

Al objeto de estudiar los efectos de la oxidación-disolución sobre la paragénesis uranífera del sitio, así como la de retención o enriquecimiento supergénico en la zona de tránsito redox, se tomaron sistemáticamente muestras de los rellenos fisurales y de los materiales de relleno de la falla Boa y de otras fracturas mineralizadas (Pérez del Villar et al., 1999; 2000).

Muestreo de las aguas subterráneas

Antes de la toma de muestras en los tramos obturados de la falla (Gómez et al., 2000), se procedió al bombeo del agua de los mismos, procurando que el caudal fuese lo más próximo al flujo natural. Esta condición tuvo un doble objetivo:

- i) perturbar mínimamente el sistema; y
- ii) extraer al máximo el agua de perforación.

Para asegurarse que ambos objetivos estaban cubiertos, se controló el trazador en el agua, hasta una concentración inferior al 2 % de la inicial, así como los principales parámetros físico-químicos (pH, Eh, CE y O₂) hasta su estabilización, mediante la sonda HIDROLAB.

Las muestras se tomaron en una cámara de guantes y bajo atmósfera de N₂ al 99.9999 %, al objeto de minimizar la oxidación y desgasificación de las mismas, y previo filtrado por 0.45 µm. Se obtuvieron tres muestras procedentes de los tramos de la falla Boa atravesados por los sondeos SM-2, SM-3 y SM-4. Del sondeo SM-1 no se tomó muestra alguna por encontrarse la falla en la zona no saturada. De cada tramo se tomaron cuatro alícuotas de 60, 125, 250 y 1000 ml, que se envasaron en botellas de polietileno analíticamente limpias. Durante el transporte y almacenamiento de las muestras, éstas se mantuvieron a una temperatura de 4° C.

Métodos de laboratorio

Caracterización mineralógica y química de la fase sólida.

Dada la diferente naturaleza de las muestras mineralizadas, algunas de ellas arcillosas, la metodología de estudio fue diferente (Pelayo et al., 1999; Pérez del Villar et al., 1999; 2000). Así, en las muestras más consistentes, la mineralogía se determinó mediante microscopía óptica en luz transmitida y reflejada, y microscopía electrónica de barrido, acoplada a un sistema analítico de energías dispersivas de Rayos X (SEM+EDX). Ambas técnicas se han aplicado a láminas delgadas y pulidas, las cuales fueron previamente metalizadas con carbono para su estudio mediante SEM. Esta última técnica ha permitido obtener, además, numerosas imágenes electrónicas para ilustrar las características texturales de la paragénesis uranífera y de los minerales de alteración de la misma, así como analizar los minerales más interesantes para los objetivos de este proyecto.

La mineralogía de las muestras arcillosas se ha determinado mediante difracción de Rayos X, sobre la muestra total y la fracción <2 µm. Para la interpretación cualitativa de los diagramas de DRX se han empleado las tablas internacionales del ASTM, y para obtener la composición mineralógica semicuantitativa, expresada en volumen, la ecuación:

$$(I/P.R.)_1 + (I/P.R.)_2 + (I/P.R.)_3 + \dots + (I/P.R.)_n = 100$$

En la que: I: intensidad de la reflexión elegida para semicuantificar cada fase mineral; P.R. el poder reflectante de cada mineral para la reflexión elegida (Barahona, 1974; Shultz, 1964); 1,2,3...n las fase minerales identificadas y semicuantificadas en cada muestra.

La fracción $<2 \mu\text{m}$ se ha obtenido mediante suspensión y decantación, aplicando la ley de Stokes. Para su estudio por DRX se han realizado agregados orientados normales, solvatados con etilenglicol y dimetilsulfóxido y calentados a $300 \text{ }^\circ\text{C}$ y $550 \text{ }^\circ\text{C}$, durante una hora. Sobre los diagramas de DRX solvatados con etilenglicol y calentados a $550 \text{ }^\circ\text{C}$ se realizó el análisis semicuantitativo de los minerales de la arcilla, siguiendo un método similar al de la muestra total.

El material disponible de los rellenos fisurales condicionó el muestreo y, por lo tanto, su metodología de estudio. Así, el análisis mineralógico se realizó combinando las técnicas de DRX sobre muestra total y SEM+EDX.

Para la caracterización química de las muestras arcillosas y rellenos fisurales se emplearon las siguientes técnicas analíticas: espectrometría de plasma, espectrometría de plasma-masas, absorción atómica y absorción atómica Zeeman, fosforimetría cinética, espectroscopía de emisión en llama, analizador elemental Leco, y análisis térmico diferencial y termogravimétrico. Para la determinación del Fe(II), lixiviado con HCl en atmósfera inerte, se utilizó la valoración con KMnO_4 .

Los datos analíticos se trataron estadísticamente mediante:

- i) el análisis de correlación y regresión entre pares de variables, considerando el conjunto de las muestras de los tres sondeos, y
- ii) el análisis multivariante de los componentes principales (ACP).

Caracterización química del agua

El análisis químico de las muestras de agua (Gómez et al., 2000) se realizó combinando las siguientes técnicas analíticas:

- i) espectrometría de plasma de inducción acoplada, para el Al, As, Ca, Mg, Fe_{total} , Mn y Li;
- ii) espectrometría de plasma-masas, para As, Be, Bi, Cd, Ce, La, Co, Cu, Hg, I, Li, Mo, Ni, Pb, Rb, Sb, Se, Sn, Sr, Th, Ti, V, W, Y, Zn, y U;
- iii) espectrofotometría de UV-visible, para la especiación del Fe, usando el método de la fe-

rozina y/o ortofenantrolina, y para el SiO_2 , por el método del molibdato amónico;

- iv) cromatografía iónica, para los aniones Cl^- , Br^- , F^- , NO_3^- , NO_2^- , PO_4^{3-} y SO_4^{2-} ;
- v) electrodo de ión selectivo, para el I^- y NH_4^+ ;
- vi) valoración, para la determinación de la concentración en HCO_3^- , y alcalinidad, medida "in situ" y expresada como CaCO_3 ;
- vii) fosforimetría cinética y fluorimetría, para el U;
- viii) espectrometría de absorción atómica, para el K;
- ix) espectrofotometría en llama, para el Na;
- x) analizador elemental Leco, para el C_{org} ;
- xi) centelleo líquido, para el ^3H ;
- xii) espectrometría de masas, para $\delta^{18}\text{O}$, $\delta^2\text{H}$ y $\delta^{13}\text{C}$;
- xiii) método del benceno, para ^{14}C ; y
- xiv) espectrometría alfa, para α totales y ^{226}Ra .

Modelización geoquímica

Los resultados analíticos de las muestras de agua fueron inicialmente contrastados mediante balance de cargas, utilizando los cálculos de especiación generados por el código EQ3/6 (Wolery y Develer, 1992). Así mismo, se procedió a la modelización inversa de los posibles procesos de mezcla entre las aguas de los sondeos y entre éstas y el agua acumulada en la caldera del hueco H-01. Para ello se utilizó el código NETPATH (Plummer et al., 1991). El código EQ3/6 se aplicó también para simular los posibles procesos de neutralización del agua ácida de la citada caldera y obtener así aguas con composiciones químicas próximas a la determinada en la muestra del sondeo SM-4. El mismo código fue utilizado para:

- i) calcular los índices de saturación de las fases minerales de interés en las aguas analizadas;
- ii) la especiación de los principales cationes, particularmente los del uranio; y
- iii) simular los posibles pares redox responsables de los potenciales Eh medidos (Gómez et al., 2000).

Los programas de cálculo de equilibrio y representación gráfica MEDUSA (Puigdomènech, 1999) han sido utilizados para representar los diagramas de predominancia de los elementos de interés (Arcos et al., 1998).

Resultados

Geología del sitio

Dada la intensa fracturación del sitio, que la pechblenda rellena indiscriminadamente las fracturas, que las aguas meteóricas penetran fundamentalmente por las mismas, y que, por lo tanto, los procesos de interacción agua/roca tienen lugar en dichas discontinuidades estructurales. Se aconsejó hacer un estudio detallado de las fracturas, tanto en superficie como en profundidad.

Geología de superficie

El hueco H-01, en el que se encuentra la falla Boa, se sitúa aproximadamente en la intersección de un pliegue sinclinal de 1ª fase, orientado NNO-SSE, con otro anticlinal de 2ª fase, orientado ENE-OSO. Entre las numerosas fallas y fracturas del sitio destaca la falla Boa que divide al talud occidental de explotación en dos bloques, sin ocasionar distorsión alguna en la dirección y buzamiento de las superficies de estratificación y esquistosidad principal (ENUSA, 1998b). Desde el punto de vista litológico, además de los materiales terciarios discordantes (T), la brecha de la falla Boa, y los indicios de cuarzo filoniano (Q), en el sitio están representadas las filitas sericiticas (FS), las filitas bandeadas (FB) y las filitas cuarzo-sericiticas (FN) (Fig. 5). La distribución de estos materiales en ambos labios de la falla Boa sugiere que ésta es normal, con un salto inferior a 5 m (ENUSA, 1998 b). El grado de alteración de estos materiales (Fig. 6) muestra que el labio norte de la falla Boa está más alterado que el sur (ENUSA, 1998 b). La superposición de esta cartografía y la radiométrica (Fig. 7) sugiere que el labio sur de la falla fue más mineralizado que el norte, o que la intensa alteración del segundo fue la responsable de la lixiviación de la mineralización primaria, proceso que afectaría también a segmentos significativos de la brecha de la falla Boa.

El estudio de las fracturas del frente de explotación (Campos et al., 1999 a) ha permitido deducir lo siguiente:

- 1) Los mapas de fracturas, densidad de direcciones y número de intersecciones entre fracturas demuestran que el medio estudiado está intensamente fracturado, siendo la intensidad de fracturas mayor en el labio norte o hundido que en el sur o levantado de la falla Boa. Esta característica demuestra que la falla Boa ha actuado como falla normal, al menos du-

rante sus últimos movimientos, lo que puede explicar que el labio hundido de la falla sea el más afectado por la alteración meteórica y, por lo tanto, más lixiviado de uranio (Fig. 8).

- 2) La distribución de los espaciados entre fracturas es logarítmico-normal, variando su espaciado medio entre 0.35 y 0.53 m, valor que aumenta en el banco de explotación situado a 618 m de cota.
- 3) En general, la organización geométrica de las fracturas presenta una distribución multifractal, excepto en el banco 624 m, en el que la distribución es logarítmico-normal.
- 4) Teniendo en cuenta los modelos tridimensionales de la organización y distribución de las fracturas, la conectividad entre ellas aumenta ostensiblemente desde el banco más superficial (624 m) hacia los bancos más profundos (618 m y 612 m).
- 5) A pesar de que en la zona existe una amplia dispersión de las direcciones de fractura, los métodos estadísticos empleados han permitido clasificarlas en los siguientes grupos: N120°E, N60°E, N20°E y N170°E (Fig. 9).
- 6) Las fracturas observadas responden al modelo geométrico de bloques que, con orientación OSO-ENE, se configuró en la Zona Centroeuropea del Hercínico peninsular durante la tectónica tardihercínica de desgarres tensionales. Así, las fracturas orientadas N40°-70°E son desgarres senestros, paralelos a aquellos de importancia regional; las fracturas N10°-30°E son también desgarres senestros, situados a bajo ángulo con respecto a los anteriores y congruentes con la dirección general del movimiento; y las fracturas N120°E y N170°E pertenecerían a sistemas conjugados con los anteriores, pero con movimiento dextro.
- 7) Dicho modelo sería también compatible con un modelo tectónico transpresivo, que actuaría prolongadamente en la zona, dilatándose probablemente durante la orogenia Alpina. Durante esta época y bajo el mismo régimen transpresivo, las fracturas mencionadas se reactivaron como fallas en dirección dextras, al tiempo que se formaba el yacimiento de uranio (Martín-Izard et al., 1999).

Geología en profundidad

Entre los objetivos de los sondeos realizados, uno de ellos fue el de resolver, en profundidad, la evo-

lución de la falla Boa, dados los cambios de dirección y buzamiento observados en ella. Además, la información aportada por los testigos fue aprovechada para caracterizar las fracturas en profundidad, y completar y corroborar los modelos de fractura y cinemático establecidos a partir de los datos de superficie (Campos et al., 1999b). Los datos obtenidos permitieron concluir como sigue:

- 1) La falla Boa podría ser una antigua falla inversa o rampa de cabalgamiento, generada durante la orogenia Hercínica y bajo el mismo régimen compresivo N-S que generó los pliegues N-S de la segunda fase de deformación que afectó a los materiales del área. Estas rampas, caracterizadas por tener zonas más horizontales y otras más verticales, así como numerosas estructuras secundarias para disipar los esfuerzos, habrían sido reactivadas, como desgarres dextros, durante la orogenia Alpina y bajo un régimen transpresivo y sincrónico con la formación del yacimiento (Fig. 10).
- 2) Dicha interpretación geodinámica de la falla Boa ha permitido diseñar un modelo geométrico, en 2D, de su posible evolución en profundidad, para cuya confirmación sería necesario realizar un sondeo inclinado, más profundo que los anteriores (Fig. 11).
- 3) El espaciado entre fracturas y la densidad de éstas, estudiados en los sondeos SM-1 y SM-4, así como la inclinación y apertura de las mismas, estudiadas en el sondeo SM-1, muestran que:
 - i) la distribución de los espaciados entre fracturas en el labio levantado de la falla Boa es logarítmico-normal o exponencial negativa en ambos sondeos, mientras que, en el labio hundido es fractal, en el sondeo SM-1, y logarítmico-normal, en el SM-4, confirmándose así las diferencias ya establecidas a partir de los datos de superficie;
 - ii) la densidad de fracturas en el sondeo SM-1 es de 12.24 f/m, mientras que en el SM-4 es de 9.13 f/m. El espaciado medio entre fracturas es de 7.7 cm, en el sondeo SM-1, y de 10.8 cm, en el SM-4;
 - iii) en el sondeo SM-1, la distribución de la inclinación de las fracturas es probablemente del tipo logarítmico-normal en el labio hundido de la falla, mientras que, en el

labio levantado, parece ajustarse a una normal; y

- iv) en el mismo sondeo, la apertura media de las fracturas en el labio hundido de la falla Boa es de 1.5 mm, mientras que en el levantado es de 2.9 mm, siendo su distribución, en ambos bloques, exponencial negativa e hiperbólica o fractal (Fig. 12).

Mineralogía y geoquímica de los rellenos fisurales, las arcillas y la mineralización de la falla Boa y brechas adyacentes

Si bien la falla Boa y las brechas adyacentes son las más intensamente mineralizadas por pechblenda, y el objetivo principal del proyecto era estudiar "in situ" su oxidación y disolución, en un amplio rango de condiciones físico-químicas, se estimó conveniente estudiar, en primer lugar y detalladamente, los rellenos de las fracturas cortadas por los sondeos. Posteriormente se estudiaron las arcillas asociadas a la falla Boa y la mineralización encajada en dicha falla y en otras fracturas adyacentes (Pelayo et al., 1999; Pérez del Villar et al., 1999; 2000).

De acuerdo con los datos obtenidos, las características mineralógicas y geoquímicas del sistema, así como los procesos responsables de ellas se resumen como sigue:

- 1) Las características mineralógicas y geoquímicas de los rellenos de fractura, arcillas negras de la falla Boa y brechas mineralizadas de ésta y fracturas adyacentes sugieren la existencia de tres zonas mineralógica y geoquímicamente diferenciadas: la oxidada, hasta 18 ± 2 m de profundidad, la de tránsito redox, con una potencia aproximada de 32 m, y la reducida, por debajo de los 50 m de profundidad, contados desde la superficie (Fig 13).
- 2) En los rellenos fisurales de la zona oxidada, la presencia de oxihidróxidos de Fe, Fe-Mn, jarosita, productos alofánicos y caolinita es indicativa de que en el medio prevalecieron condiciones oxidantes y, al principio, lo suficientemente ácidas como para que se precipitara la jarosita y se neoformaran alofana y caolinita (Fig. 14). La acidez de estas soluciones estuvo controlada por la oxidación de la pirita y otros sulfuros de la paragénesis original, así como por la cantidad relativa de car-

bonatos respecto a la de sulfuros. Aunque las proporciones de ambos grupos de minerales es difícil de estimar, los resultados obtenidos sugieren que los sulfuros fueron más abundantes que los carbonatos.

- 3) Una vez agotados los sulfuros de la zona oxidada, las aguas de infiltración se neutralizarían rápidamente, tal y como queda demostrado por la presencia esporádica de autunita, fosfatos secundarios de tierras raras, óxidos de Ce, rodocrosita secundaria, esmectita y la neoformación, a partir de los productos alofónicos, de halloysita-metahalloysita (Fig. 15).
- 4) En la zona oxidada, los filosilicatos de los rellenos fisurales, además de controlar los elementos mayores existente en sus estructuras (Al, Mg), controlan también al Ti, mientras que los oxihidróxidos de Fe, Mn y Mn-Fe controlan al W, Ni, Co, Cu y Zn, todos ellos procedentes, principalmente, de la oxidación-disolución de los sulfuros. El Cu y Zn serían los menos retenidos por su mayor solubilidad en las condiciones ácidas que prevalecieron durante la oxidación de dichos sulfuros. Ésta sería también la razón que explicaría la baja concentración de U en dichos oxihidróxidos, así como la baja correlación entre este elemento y el Fe_2O_3 . Además, el P, procedente de la desestabilización de los fosfatos heredados, apatito y monacita, estaría controlado, fundamentalmente, por los oxihidróxidos de Fe.
- 5) Dado que en la distribución de las muestras en el espacio de los componentes principales (Fig. 16) no se observa que las más superficiales estén enriquecidas en Al_2O_3 con respecto al Fe_2O_3 , por estar mezcladas independientemente de su profundidad, esta distribución podría explicarse considerando que:
 - i) la composición mineralógica original, que no tuvo porqué ser constante; y
 - ii) que en el proceso de oxidación no sólo intervino el oxígeno de las aguas meteóricas, sino que también lo hizo eficazmente el Fe(III), al reaccionar con la piritita en zonas más profundas.En consecuencia, el hecho que el Al_2O_3 y el Fe_2O_3 estén relacionados entre sí con signo negativo parece indicar la relación inversa existente entre el contenido original en filosilicatos y minerales de Fe de las muestras, más que un enriquecimiento inverso, de uno respecto al otro y por lixiviación diferencial, durante el proceso de oxidación que afectó al sistema. Esto explicaría, además, el comportamiento geoquímico de aquellos elementos asociados a los oxihidróxidos de Fe, como el W, P, Ni, Co, Cu, Zn.
- 6) Los coeficientes de correlación entre el U y el La, Y, Ce, Zn, W, P_2O_5 , Fe_2O_3 y MnO, sugieren que el primero, además de encontrarse raramente como óxido y fosfatos del tipo autunita, se encuentra también en la estructura de la monacita y xenotima heredadas del encajante, así como adsorbido o coprecipitado en los oxihidróxidos de Fe, junto con el Zn, W, P y Mn. Aunque en los análisis EDX de estos oxihidróxidos no se ha detectado U, esto puede explicarse, al igual que para otros elementos correlacionados con el Fe_2O_3 , por estar en concentraciones inferiores al límite de detección de dicha técnica analítica.
- 7) La distribución de los elementos analizados en los rellenos fisurales muestra que el U es el único cuya concentración aumenta hacia las partes más profundas de la zona oxidada del sitio. Este hecho, que podría interpretarse como el resultado del proceso combinado de lixiviación superficial-enriquecimiento supergénico profundo, podría ser debido también a una distribución desigual de la mineralización original a lo largo de las fracturas y, muy probablemente, a que la intensidad de la lixiviación fuese disminuyendo al aumentar la profundidad, por un proceso de neutralización y reducción de las soluciones de infiltración.
- 8) Las características mineralógicas de la zona de tránsito redox ponen de manifiesto que en ella se alcanzaron valores de pH próximos a 7 y de Eh cercanos a 0. No obstante, la existencia esporádica de jarosita, así como de oxihidróxidos de Fe alóctonos, con contenidos en U superiores al límite de detección del EDX o mezclados con oxihidróxidos de U (probablemente VI) (Fig. 17), indica que la zona de tránsito redox está algo afectada por las condiciones oxidantes, ácidas y sulfatadas propias de la zona de oxidación.
- 9) La presencia de sulfuros y sulfoseleniuros secundarios de Fe, Cu, Ag y Fe, Cu, respectivamente, así como de Se nativo o selenolita, todos ellos procedentes de la oxidación de sulfuros, sulfoseleniuros y seleniuros primarios, como la claustalita, así como la neofor-

- mación de yeso (Fig. 17), corrobora que se trata de la zona de tránsito redox, en la que la neutralización de las soluciones ácidas descendentes, a valores de Eh próximos a cero o ligeramente negativos son las condiciones físico-químicas que prevalecieron, facilitando así la precipitación de dichos minerales secundarios o de enriquecimiento supergénico.
- 10) La acción oxidante del Fe (III) procedente de la zona de oxidación se pone de manifiesto por la presencia de carbonatos ankeríticos pseudomorfozados por oxihidróxidos de Fe (Fig. 17), así como por la oxidación parcial de la pirita, que suele contener U adsorbido, y de la marmatita (sulfuro de Zn y Fe), esta última íntimamente asociada a óxidos de Zn y Fe. A su vez, la acción del Fe (II), procedente también de la zona de oxidación, se pone de manifiesto por los procesos de siderización observados en los carbonatos ankeríticos.
 - 11) Por lo que se refiere a los minerales de U, el proceso más importante detectado en esta zona de transición es el de coiffinitización de la pechblenda original, debido a la alta actividad de SiO_2 en las aguas, tal y como lo confirma la precipitación de sílice coloidal e hisingerita.
 - 12) La zona reducida está caracterizada por la presencia de los minerales originales de la paragénesis filoniana, algo afectados por los procesos mineralogénicos propios de la zona de tránsito redox. Ésto es debido a que el Fe (III) y Fe (II), ambos procedentes de la zona de oxidación, pudieron penetrar, en función de la transmisividad de algunas fracturas, hasta la zona reducida o de estabilidad.
 - 13) Las características de las arcillas del afloramiento de la falla Boa han permitido definir en ella la zona oxidada, desde la cota 636 m hasta el banco de explotación a 612 m, y la de tránsito redox, desde el banco 612 m hasta el banco 606 m. La primera está caracterizada por la presencia de goethita y caolinita, y la ausencia de carbonatos ankeríticos y pirita, mientras que, la segunda, por la ausencia de goethita y la presencia de clorita, ankerita, pirita y yeso. De estos últimos, los tres primeros minerales serían heredados de la paragénesis filoniana original, mientras que el yeso sería de neoformación, por la interacción de las soluciones sulfatadas ácidas descendentes y los carbonatos.
 - 14) La zona oxidada presenta un grado de oxidación próximo a la unidad, por lo que todo el Fe está en forma de Fe(III), que habría precipitado como $\text{Fe}(\text{OH})_3$, especialmente en las zonas más profundas de la zona oxidada y concretamente en los bancos 618 y 612 m, en los que se observa un enriquecimiento en Co, Cu, Ni, Zn y U. Por lo tanto, la neutralización de las soluciones ácidas, sulfatadas, ricas en Fe (III) y en dichos elementos traza, provocaría la precipitación de los oxihidróxidos de Fe, arrastrando, por adsorción o coprecipitación, al Co, Cu, Ni, Zn y U, también procedentes de la zona oxidada.
 - 15) El grado de oxidación de la zona de tránsito redox varía entre 0.4 y 0.7, observándose como única anomalía geoquímica la del Sr, que puede explicarse por los contenidos en carbonatos de las muestras.
 - 16) Por lo que se refiere a las arcillas de la falla Boa atravesadas por los sondeos, sus características mineralógicas y geoquímicas sugieren que todas ellas se encuentran en la zona de tránsito redox. Además, el hecho de que en todas las muestras se hayan detectado pirita, carbonatos y concentraciones relativamente altas de U, particularmente en las muestras de los tres primeros sondeos, sugiere que estas arcillas fueron afectadas, al igual que las zonas de brecha, por la mineralización uranífera. Por lo tanto, en el estado actual de conocimientos, no puede descartarse ni afirmarse que parte del uranio detectado proceda del lixiviado en zonas más superficiales y retenido en las arcillas, por adsorción, al neutralizarse las soluciones ácidas. En este sentido, las únicas muestras que presentan evidencias de haber sido afectadas por soluciones ácidas son la del sondeo SM-1, con cantidades significativas de caolinita y sin clorita, y, en menor intensidad, la del sondeo SM-2, en la que ambos filosilicatos coexisten. Por último, la primera muestra es la única afectada por el metasomatismo ferroso, ya que contiene pismoesita en vez de ankerita, que es el único carbonato detectado en las muestras arcillosas de los otros tres sondeos.
 - 17) En general, todos los elementos traza, a excepción del As, se concentran en la fracción $< 2\mu\text{m}$ del material arcilloso de la falla Boa, indicando que dichos elementos forman minerales discretos, con granulometría arcilla, y/o

están retenidos, por adsorción, en los minerales arcillosos. Entre los elementos trazas concentrados hay que destacar, por su interés, el U, Ni, Ce y La.

18) Las características mineralógicas de las brechas mineralizadas de la falla Boa y fracturas adyacentes sugieren que, en general, proceden de la zona de tránsito redox, estando las del sondeo SM-1 en la parte superior, las de los sondeos SM-2 y SM-3 en las proximidades de la zona reducida, y las del sondeo SM-4, en la parte superior de esta última.

19) Las muestras del sondeo SM-1 han estado y están sometidas, en general, a la acción de aguas sulfatadas ácidas, con abundante Fe (III) y Fe (II) disueltos en ellas. La acción de estas aguas está confirmada por la caolinitización de la clorita, la disolución ocasional de la pechblenda y la transformación parcial de la pechblenda en zippeita. La acción del Fe (II) está corroborada por la transformación, a temperatura ambiente, de la ankerita en siderita (Fig. 18); y la del Fe(III), por la presencia de oxihidróxidos de Fe alóctonos con pequeñas cantidades de U, adsorbido o coprecipitado (ver Fig. 17). La neutralización y la disminución del Eh de estas aguas se corroboran al observar que, en algunas muestras, la pechblenda incipientemente alterada, mientras que en otras, está transformada parcialmente a silicatos complejos de U, del tipo coffinita (Fig. 18). Estos mismos procesos, pero con intensidad decreciente, se han detectado en:

- i) las muestras del sondeo SM-2, en las que se han observado la sideritización de la ankerita, la coffinitización parcial de la pechblenda y la oxidación parcial de la pirita esferulítica;
- ii) las del sondeo SM-3, afectadas también por la caolinitización parcial de la clorita y la sideritización de la ankerita, con la subsecuente neoformación de un mineraloide intermedio entre calcita y yeso; y
- iii) las del sondeo SM-4, en las que sólo se ha detectado la sideritización incipiente de la ankerita.

Funcionamiento hidráulico e hidrogeoquímico de la falla Boa

Dado que uno de los objetivos del proyecto era el validar las técnicas de caracterización hidrogeológica

ca e hidrogeoquímica en un sistema natural altamente fracturado y, además, muy perturbado por las labores de exploración y explotación mineras, en este apartado se dan los resultados y conclusiones sobre el funcionamiento hidráulico e hidrogeoquímico de la zona de la falla Boa, teniendo en cuenta aquellas circunstancias que, por adversas, han influido de manera decisiva en el establecimiento de un modelo hidráulico y, particularmente, hidrogeoquímico, que se apartan, en mayor o menor medida, de aquellos que prevalecieron en el sistema antes de ser perturbado por la exploración y explotación.

Funcionamiento hidráulico de la zona de la falla Boa

Los valores de transmisividad obtenidos a partir de los ensayos hidráulicos realizados en los sondeos SM-2, SM-3 y SM-4, así como los niveles estabilizados del agua, medidos en los tramos obturados: falla Boa y superiores e inferiores a ella (Carretero et al., 2000), han permitido caracterizar, desde el punto de vista hidrogeológico, la zona estudiada y establecer un modelo conceptual del funcionamiento hidráulico de la misma. Estas características se resumen así:

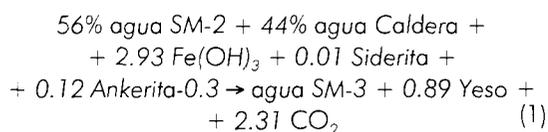
- 1) La falla Boa no es una vía preferente de circulación de agua, sino que forma parte de un sistema de fallas y fracturas que funciona, desde el punto de vista hidráulico, como un conjunto.
- 2) El funcionamiento hidráulico de dicho sistema es bastante desigual, en el sentido que puede comportarse como un medio muy poco permeable, en aquellas zonas donde las fracturas, incluida la falla Boa, son pequeñas o están rellenas por materiales arcillosos, o más permeable, donde ocurra lo contrario.
- 3) A escala local, no se observa que las fracturas asociadas a la falla Boa sean determinantes para la circulación subterránea del agua, ya que existen zonas de fractura que, sin relación aparente con dicha falla, tienen mayor o igual transmisividad hidráulica que ella.
- 4) Los trabajos de exploración e investigación minera, así como las labores de explotación, distorsionaron el funcionamiento hidrogeológico del sitio, contribuyendo, además, a dificultar el conocimiento de sus características hidrogeológicas originales. Así, los numerosos sondeos de reconocimiento conectarían siste-

mas de fractura hidráulicamente activos, de manera que la transmisividad general del sitio puede estar seriamente afectada. En definitiva, dichos sondeos actuarían como estructuras infinitamente transmisivas frente a la matriz rocosa. Además, la explotación del hueco H-01 provocó el drenaje local de la zona, bajando los niveles del agua hasta la cota observada actualmente en el fondo de la caldera del citado hueco. Por último, las voladuras efectuadas durante la explotación del sitio, así como las que se realizan actualmente para la explotación de sitios vecinos, han modificado y modifican las propiedades hidráulicas de las numerosas fracturas que afectan a la zona.

- 5) En general, de acuerdo con los gradientes hidráulicos, los flujos superficiales actuales deben ser lentos ($<0,01$ m/día) y hacia la caldera del hueco H-01, mientras que los flujos subterráneos más profundos están condicionados por el nivel de base regional, marcado por el cauce del río Agueda (Fig. 19).

Hidrogeoquímica del sistema

De acuerdo con Gómez et al. (2000), las características químicas y físico-químicas de las muestras de agua de la falla Boa (Tabla 2) permiten clasificarlos como sulfatadas-magnésico-cálcicas, siendo algo más bicarbonatadas las del sondeo SM-2. Estos datos muestran, además, un incremento de la conductividad eléctrica (CE) del agua desde el sondeo SM-2 al SM-4, asociado con una disminución de los valores de pH. Estos hechos sugieren procesos de mezcla entre el agua de la falla y la de la caldera del Hueco H-01. Este proceso de mezcla se ha modelizado teniendo en cuenta, como componentes de la mezcla, el agua del sondeo SM-2, considerada como la más representativa del sistema, y el agua de la caldera del hueco H-0. El agua resultante es la del sondeo SM-3, y la reacción obtenida mediante el código NETPATH (Plummer et al., 1991), expresada en mmol/Kg, es la siguiente (1):



En la que el término ankerita-0.3 expresa una ankerita de composición $\text{CaMg}_{0.7}\text{Fe}_{0.3}(\text{CO}_3)_2$.

Igualmente, se ha realizado una simulación del proceso de neutralización del agua ácida del Hueco H-01, usando el código EQ3/6 (Wolery y Develer,

1992), al objeto de evaluar su posible transformación hacia aguas con composiciones semejantes a las del sondeo SM-4 (2, expresada en mmol/Kg).



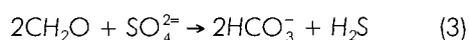
En función del contenido en aniones, el agua del sondeo SM-2 tiene una concentración en sulfatos un orden de magnitud menor que las aguas influenciadas por las de la caldera (SM-3 y SM-4) y, por el contrario, el contenido en bicarbonatos es muy superior al del resto de los sondeos (3.86 meq/l, frente a 0.89 meq/l, para el SM-3, y 0.30 meq/l, para el SM-4). Igualmente, atendiendo a la concentración en cationes, las aguas son también extremadamente diferentes, por lo que el Fe, Mn y Ni, en concentraciones superiores a las del Na y K, deben considerarse también como cationes mayoritarios en las aguas de los sondeos SM-3 y SM-4 (Fig. 20). Además de dichos elementos metálicos, destacan también los altos contenidos en Cd, Co, Zn y U, especialmente en el agua del sondeo SM-4 y de la caldera del hueco H-01, ésta última con una concentración de U superior a 100 ppm. Este valor tan excepcionalmente elevado está justificado por el U existente en el sitio y por la elevada acidez del agua. Destaca también la concentración especialmente anómala de U en el agua del sondeo SM-2, ya que, dadas sus condiciones tan reducidas (-300 mV) y el valor del pH (7.1), dicho elemento debería estar en forma de U(IV) y, por lo tanto, insolubilizado (Gómez et al., 2000).

Por lo que se refiere al ^3H y ^{14}C , el significado de las concentraciones medidas en las aguas (Tabla 3) es aparentemente contradictorio (Gómez et al., 2000). Por un lado, las concentraciones de ^3H , semejantes a las del agua de lluvia de la zona, indican que se trata de aguas recientes, posteriores a 1953, mientras que, por otro, las de ^{14}C apuntan hacia edades superiores a los 5.000 años, para el agua del sondeo SM-3. Para explicar esta contradicción se pueden argumentar dos hipótesis: la primera, considerando mezclas de aguas recientes con otras más antiguas, y la segunda, que explicaría los valores de ^{14}C , considerando procesos de interacción entre las aguas de la caldera del Hueco H-01, muy ácidas y exentas de HCO_3 disuelto, con los carbonatos de la roca. En este sentido, sería necesario, además, que los carbonatos de la roca fuesen lo suficientemente recientes como para aportar al agua las concentraciones medidas de ^{14}C . De acuerdo con los estudios mineralógicos realizados (Pérez del Villar et al., 1999; 2000), los

únicos carbonatos que parecen de formación reciente, tanto en los rellenos fisurales como en la propia mineralización de la falla Boa, son los sideríticos, cuya formación se ha interpretado por la interacción, a temperatura ambiente, entre el Fe(II), procedente de la oxidación de la pirita, y los carbonatos ankeríticos preexistentes, más antiguos y formados a temperaturas de 250°C aproximadamente (Mangas y Arribas, 1984). Durante este proceso metásomático, sería necesario, además un aporte o un intercambio de carbono rico en ^{14}C .

Para comprobar los procesos redox que controlan el Eh medido en las distintas muestras de agua, se ha aplicado el código EQ3 a las concentraciones medidas del par Fe(II)/Fe(III). Los valores de Eh así obtenidos, 138 mV (SM-2), 239 mV (SM-3), 439 mV (SM-4) y 748 mV (caldera), indican un grado de oxidación más elevado que el medido "in situ", exceptuando el correspondiente al agua de la caldera del Hueco H-01. Por lo tanto, este hecho parece indicar que el potencial redox de las aguas de la falla Boa no está únicamente controlado por el par Fe(II)/Fe(III), sino que intervienen, además, otros pares redox. En este sentido, no se descarta la posibilidad de que su potencial redox esté controlado por la oxidación de la pirita o por las diferentes especies de manganeso disueltas en ellas.

Otro factor a tener en cuenta, al menos para el agua del sondeo SM-2, la más reducida, es la alta concentración de carbono orgánico, probablemente de origen edáfico, disuelto (29.6 de TOC) en ella, el cual podría ser el responsable de los potenciales redox medidos en las aguas, ya que es capaz de regular la reducción de sulfatos a sulfuros, mediante la reacción (3).



En este caso, la materia orgánica originaría unos valores de Eh semejantes a los medidos en las aguas de los sondeos, entre -200 y -400 mV (Stumm y Morgan, 1981).

Respecto a los índices de saturación, las aguas influenciadas por las de la caldera del hueco H-01 están próximas al equilibrio con el yeso, mientras que en las aguas menos influenciadas por las de la caldera los índices de saturación de la calcita y siderita tienden al equilibrio. Las aguas de los sondeos SM-2 y SM-4 están próximas al equilibrio con la ferrihidrita $\text{Fe}(\text{OH})_3$. En lo relativo a la sílice, las aguas pueden clasificarse en dos tipos: aquellas que están en equilibrio con la cristobalita (río Agueda, SM-2 y SM-3) y las que lo están con la sílice

amorfa (SM-4 y caldera) que, por ser más ácidas, son las más susceptibles de alcanzar el equilibrio con las fases menos cristalinas de sílice.

Por lo que se refiere a la especiación de los elementos disueltos, la influencia del ión sulfato determina la especiación de los metales del agua del sondeo SM-4, en la que las especies dominantes son los complejos sulfatados (Tabla 4). Sin embargo, en el agua del sondeo SM-2, las especies dominantes son los iones libres o, en su defecto, las especies bicarbonatadas. En el caso del uranio, el U(IV) es la especie predominante en las aguas de los cuatro sondeos, siendo el U(VI) la especie mayoritaria en las de la caldera, dado su carácter oxidado (Gómez et al., 2000).

En definitiva, a modo de resumen y conclusión, la proximidad de los sondeos a la caldera del hueco H-01, así como las conexiones hidráulicas existentes entre ésta y aquellos, ha influido de manera importante en la química de las aguas estudiadas, por lo que no ha sido posible conocer la composición química de las aguas que circulan por la falla Boc.

El agua menos influenciada por la de la caldera es la del sondeo SM-2, aunque presenta rasgos indicativos de estar mezclada con el agua de perforación, tal y como indica su alta concentración en trazador (KI). La caracterización química de las aguas del sondeo SM-3 pone de manifiesto la mezcla existente entre el agua de la formación y la de la caldera, cuyas proporciones son del 56 % y 44 %, respectivamente. De igual manera, en las aguas del sondeo SM-4 se observa el proceso de neutralización sufrido por las aguas de la caldera, al interactuar con la roca, especialmente con los rellenos fisurales atravesados por dicho sondeo.

Los procesos geoquímicos más relevantes en el sistema

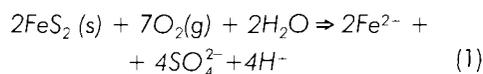
Los procesos geoquímicos más relevantes que han afectado y afectan al sistema estudiado están relacionados con los de interacción agua/roca propios de la alteración supergénica de un medio geológico rico en sulfuros, en este caso con pirita esencialmente, carbonatos y pechblenda. No obstante, dado que las características hidrogeoquímicas de las aguas subterráneas del sistema se han demostrado influenciadas por las aguas acumuladas en la caldera del hueco H-01, o contaminadas por las aguas de perforación, la aplicación de los códigos geoquímicos y termodinámicos normalmente usa-

dos para deducir dichos procesos ha resultado inútil. Por lo tanto, los procesos geoquímicos acaecidos en el sistema se han deducido a partir de las características mineralógicas y geoquímicas de los rellenos fisurales, las arcillas de falla y la mineralización uranífera, en función de las tres zonas geoquímicas establecidas: oxidada, tránsito redox 9 y reducida.

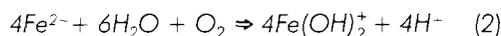
Procesos geoquímicos en la zona oxidada

La mineralogía y geoquímica de los rellenos fisurales en la zona oxidada quedarían explicadas considerando:

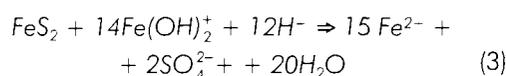
- i) la oxidación de la pirita, iniciada por el oxígeno disuelto en las aguas meteóricas, y
- ii) la proporción original de pirita/carbonatos en los rellenos, difícil de calcular, dadas las variaciones observadas de una fractura a otra y a lo largo de una misma fractura. Por lo tanto, la oxidación de la pirita, según la reacción (1), daría lugar a soluciones ácidas, sulfatadas y ricas en Fe(II)



El Fe(II), en función del Eh del medio ($> +0.8$) y la velocidad de infiltración de las aguas, se oxidaría a Fe(III), de acuerdo con la reacción (2), o migraría hacia zonas más profundas del sistema, dada su moderada solubilidad a valores de Eh $+0.8$ y -0.3 y de pH entre 3 y 6, aproximadamente (Garrels y Christ, 1965). Por lo tanto, este proceso de oxidación explicaría el pH ácido de las soluciones resultantes, así como la presencia de iones sulfato y Fe(III), este último fuertemente oxidante.



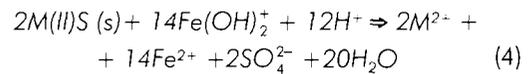
La rápida y eficiente oxidación de la pirita por el Fe(III), según la reacción (3), conlleva la formación de más iones Fe(II) y la acidificación del sistema. El Fe(II) producido seguiría la pauta de la reacción (2), retroalimentándose así el proceso de oxidación de la pirita.



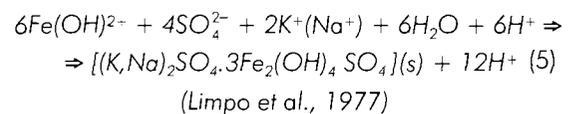
Esta reacción es cinéticamente favorable y está controlada por la formación de un complejo superficial

Fe(II)-S-S-Fe(III), resultado de la interacción entre el Fe(III) disuelto y la pirita.

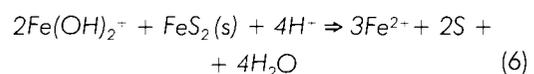
La acción oxidante del Fe(III) sobre otros sulfuros de metales divalentes (M^{2+}), como la esfalerita, galena o calcopirita, detectados también en mineralización de falla Boa, seguiría la reacción general (4), contribuyendo a la producción de más Fe(II) y a la acidificación del medio



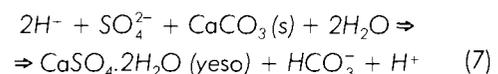
Por otra parte, en medios no tamponados, el Fe(III) permanecería en disolución hasta valores de pH < 2.5 , pudiendo precipitar como sulfatos simples hidratados durante épocas de fuerte sequía, que se disolverían en épocas húmedas. Esta es la razón por la que dichos sulfatos no se han encontrado en el sitio estudiado. Sin embargo, a valores de pH comprendidos entre 2.5 y 4.2, el Fe(III) estaría en disolución bajo la forma del complejo catiónico $\text{Fe}(\text{OH})_2^+$ (Garrels y Christ, 1965), que facilitaría la precipitación de sulfatos dobles muy insolubles del tipo jarosita (Limpo et al., 1977; Pérez del Villar et al., 1979), según la reacción (5) y acidificando también el medio. Este sulfato ha sido identificado, con relativa frecuencia, en los rellenos fisurales del sitio, siendo generalmente anterior o coetáneo con los oxihidróxidos de Fe(III) del tipo goethita.



El Fe(III) en solución podría alcanzar profundidades hasta dónde el oxígeno atmosférico no llegara, provocando también la oxidación parcial de la pirita y dando lugar a más Fe(II) y azufre elemental (6). Este elemento y pirita relativamente enriquecida en azufre, rodeada por oxihidróxidos de Fe son frecuentes en la zona de oxidación del caso estudiado.

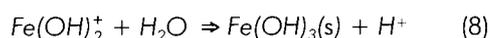


En medios tamponados, capaces de neutralizar los protones generados en (1), (3) y (4), se produciría la reacción de precipitación (7).

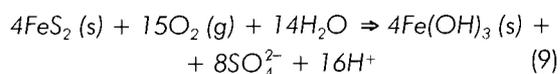


El yeso ha sido detectado en el sitio, particularmente en la parte más profunda de la zona oxidada. La disociación de ácido carbónico, en función del pH

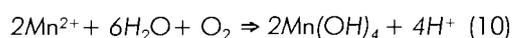
de la solución resultante, haría que las aguas evolucionaran paulatinamente hacia más bicarbonatadas, como son las del sondeo SM-2. En este tipo de soluciones, el Fe(III) se hidrolizaría para formar geles de Fe(OH)₃, los cuales, por deshidratación progresiva, darían lugar a la goethita existente en el medio. La reacción sintética de hidrolización del Fe(III) (8) provocaría de nuevo la acidificación del medio.



En definitiva, en medios tamponados, la oxidación de la pirita daría lugar a Fe(OH)₃, según (9), que es la suma de las reacciones (1), (2) y (8).



Si el medio es tamponado por carbonatos del tipo ankerítico, como ocurre en el sitio, además de yeso, quedarían libres Fe(II), que seguiría las mismas pautas ya explicadas, Mg, que quedaría en solución, y Mn(II) que, al oxidarse, precipitaría como Mn(OH)₄, acidificando también el medio (10).



En el medio ácido generado por las reacciones anteriores, los filosilicatos de los rellenos se degradarían fácilmente, dejando libres los elementos alcalinos, alcalino-térreos, Fe, Si y Al. Los dos últimos precipitarían en forma de alofana, mineraloide que se forma a partir de pH=4.8 (Parfitt y Kimble, 1989; Pérez del Villar et al., 1992), y que ha sido detectado en el sitio. Además, la coexistencia de alofana y halloysita-metahalloysita, la segunda formada a partir de la primera, sugiere que dicha transformación se produjo al neutralizarse el sistema, por un proceso de resilicificación y cuando la concentración de Si en las aguas fuese del orden de 10mg/l. Por debajo de esta concentración se favorece la formación de alofana, y por encima, la de la halloysita-metahalloysita (Parfitt et al., 1984; Parfitt y Wilson, 1985).

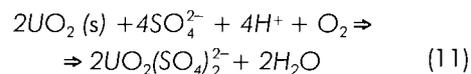
La presencia de caolinita en la parte más profunda de la zona oxidada es indicativa también de valores de pH ácidos (≈ 6) y de un sistema bien drenado, pero con nivel freático estabilizado. En estas condiciones se formaría caolinita en vez de alofana.

En dichas condiciones ácidas, los fosfatos (apatito y monacita) heredados de la roca encajante, se disolverían total o parcialmente, dejando, principalmente en el caso de la monacita, Ce(III) en disolución. Este elemento se oxidaría y precipitaría en forma de CeO₂, tal y como se ha detectado en algunos rille-

nos de fractura. Los iones fosfato liberados habrían sido adsorbidos, al menos en parte, por los oxihidróxidos de Fe, dada la alta correlación observada entre el Fe₂O₃ y el P₂O₅ (0.67).

Como el máximo interés de este trabajo está en los procesos geoquímicos que afectaron a los minerales primarios de U, como es la pechblenda, los procesos de interacción entre dicho mineral y las soluciones oxidantes, sulfatadas y ácidas se puede resumir así:

Solamente por el carácter oxidante de las soluciones, la pechblenda se sobreoxidaría e hidrataría, formándose, de manera sucesiva, parapechblenda (UC₃), coracitas o gummitas negras, gummitas rojas (fourmarierita, vandendriesscheita, clarkeita, becquerelita y shoepita) y gummitas amarillas (uranitilo fundamentalmente). Si a la capacidad oxidante de las soluciones se le añade su carácter ácido y sulfatado, el U(VI) se solubilizaría rápidamente como complejos aniónicos UO₂(SO₄)₂²⁻ y/o UO₂(SO₄)₃⁴⁻, estables a pH entre 1.5 y 4 (11). En estas condiciones, en las que coexiste una pequeña proporción del complejo UO₂²⁺, el U migraría lejos del término fuente, o precipitaría como uranopilita (sulfato de uranilo hidratado) en épocas de fuerte sequía, tal y como ocurre estacionalmente en el sistema estudiado y, en general, en la mina Fe.



En el caso de que las soluciones ricas en sulfato de uranilo alcanzasen un valor de pH>4.5, y en ausencia de otros aniones acomplejantes, el complejo UO₂(SO₄)₂²⁻ se disociaría y el ión uranilo (UO₂²⁺) se hidrolizaría, precipitando, como UO₂(OH)₂, junto con el Fe(OH)₃, cuyas condiciones de precipitación (pH>4.2) son muy semejantes. Sin embargo, el coeficiente de correlación entre este elemento y el Fe₂O₃ es de sólo 0.31, lo que sugiere que, en esta zona de oxidación, las condiciones de lixiviación del U prevalecieron sobre las de coprecipitación.

La existencia en la zona oxidada de esmectita, halloysita-metahalloysita y, muy esporádicamente, autunita, fosfatos de Ce y La y rodocrosita secundaria, sugiere que dicha zona debió de neutralizarse una vez agotada la pirita.

La presencia en las partes más profundas de la zona oxidada de sulfoseleniuros secundarios de Fe, Cu y Ag, así como de S⁰ y Se⁰ o selenolita (SeO₂), todos ellos procedentes de la oxidación de los sulfuros y seleniuros (clausthalita ha sido detectada en

el medio), sugiere que a esas profundidades comienzan los procesos típicos de la zona de tránsito redox, donde la neutralización de las soluciones, a valores de Eh cercanos a 0, son las condiciones fisicoquímicas que prevalecen, permitiendo así la precipitación de dichos minerales secundarios o de enriquecimiento supergénico.

En definitiva, en la zona de oxidación del sistema predominaron las condiciones ácidas y sulfatadas hasta que se consumieron todos los sulfuros, principalmente la pirita, originando fundamentalmente la lixiviación del U. El Fe (III) y el Mn (IV) quedaron retenidos, al menos en parte, en forma de oxihidróxidos, mientras que el Al quedó formando mineraloides y minerales de la arcilla, como la alofana, halloysita-metahalloysita y algo de caolinita.

El papel de los oxihidróxidos de Fe y de Mn en la retención de ciertos elementos traza, alguno de ellos de interés para la predicción del comportamiento del AGP, ha quedado demostrado por los altos coeficientes de correlación observados entre los pares W-Fe₂O₃ (0.93), Cu-Fe₂O₃ (0.5), Ni-MnO (0.83) Co-MnO (0.72), Zn-MnO (0.67), Cu-MnO (0.5) y Sr-MnO (0.71), siendo el Cu y el Zn los menos retenidos por su alta solubilidad en medios sulfatados ácidos. Como ya se explicó anteriormente, algo parecido ocurrió con el U.

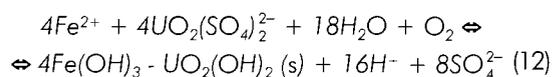
Procesos geoquímicos en la zona de tránsito redox

Esta zona está caracterizada por la coexistencia de:

- i) la paragénesis filoniana original, incipientemente alterada;
- ii) escasos minerales oxidados de precipitación;
- iii) minerales de sustitución metasomática;
- iv) minerales de precipitación por neutralización; y
- v) minerales de precipitación por cambios en las condiciones redox.

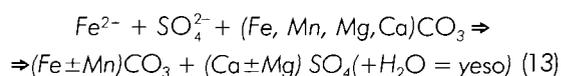
Los minerales indicativos de que la zona de tránsito está algo afectada por las condiciones oxidantes, ácidas y sulfatadas son: la jarosita, explicada al tratar la zona oxidada, y los oxihidróxidos de Fe autóctonos, y formados a partir del Fe (III) que alcanzara esta zona, débilmente ácida o neutra. En estas condiciones (pH>4.2), el U coprecipitaría con los oxihidróxidos de Fe en forma de UO₂(OH)₂, explicándose así que los primeros contengan U por encima del límite de detección del EDX, e incluso par-

tículas de oxihidróxidos de U, probablemente de U(VI), mezcladas con ellos. Otra posibilidad para explicar los fenómenos de coprecipitación observados en las muestras es considerando la acción reductora del Fe(II) existente en la zona de tránsito redox (12).



Otros compuestos de U que parecen confirmar la precipitación de este elemento son los de U, Ca, Si, Fe, S, Mn y Al, que, sin estequiometría definida, han sido detectados en algunas muestras. En estas mismas condiciones, precipitarían los sulfatos dobles de Al y Fe, del tipo alumbre o alunógenos, así como la sílice coloidal, la hisingerita, e incluso se originaría caolinita, todos ellos detectados en esta zona.

La acción del Fe(II) se pone también de manifiesto por los procesos de siderización observados en los carbonatos ankeríticos, que se originarían según la reacción general de sustitución (13):



El yeso y un mineraloide intermedio entre carbonato y yeso encontrado en el sistema se formarían como resultado de la neutralización de las aguas ácidas de infiltración, originando, además, la transformación de las aguas sulfatadas en bicarbonatadas, tal y como se explicó al tratar la zona de oxidación.

Otros procesos mineralogénicos indicativos de que en esta zona se alcanzan valores de pH cercanos a 7 es la neoformación de esmectita y corrensitita, minerales que parecen ser los últimos en formarse, ya que suelen recubrir a todos los minerales anteriormente descritos.

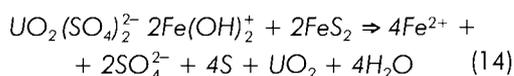
Los minerales indicativos de que en esta zona los valores de Eh son próximos a cero o ligeramente negativos son los sulfuros de Cu; Cu-Fe; Cu-Ag-Fe; Pb-Cu-Fe; Fe-Sn; los sulfoseleniuros de Fe-Cu-Ag; seleniuros de Cu y Fe; y el Se nativo o SeO₂, todos ellos secundarios y de enriquecimiento supergénico.

Por lo que se refiere a los minerales primarios de U, los procesos más importantes detectados en esta zona, son:

- i) la disolución ocasional de la pechblenda, dejando sus moldes esferulíticos rellenos por oxihidróxidos de Fe autóctonos, procedentes de la oxidación de los carbonatos ankeríticos que acompañan originalmente al citado óxido de U;

- ii) la oxidación y transformación parcial de la pechblenda en zippeita, indicando interacción entre el óxido de U y las aguas sulfatadas; y
- iii) la coffinitización de la pechblenda original, debido a la alta actividad de SiO₂ en las aguas, tal y como lo confirma la precipitación de sílice coloidal e hisingerita.

Por último, la fijación del U en la piritita incipientemente oxidada parece responder a un proceso de precipitación de U(IV), por la reducción del U(VI) que acompañaría al Fe (III) en solución (14).



En definitiva, la zona de tránsito redox del sistema se caracteriza por la neutralización de las aguas ácidas y sulfatadas procedentes de la zona oxidada, y la consecuente precipitación de aquellos elementos mayores y menores, incluido el U, afectados por los cambios de pH y Eh del medio.

Procesos geoquímicos en la zona reducida

Esta zona está caracterizada por la presencia de los minerales originales de la paragénesis filoniana original del yacimiento, algo afectadas por los procesos descritos en la zona anterior. Esto es debido a que el Fe(III) y el Fe(II) pudieron penetrar, en función de la transmisividad de algunas fracturas, hasta la zona reducida o de estabilidad del yacimiento. La Fig. 21, en la que se representan los diagramas de predominancia de las fases de Fe, U, Mn, Se y Ce en función de las condiciones de pH y Eh, se resumen los procesos geoquímicos más relevantes deducidos en el sistema.

Implicaciones para la evaluación del comportamiento de un AGP

Como se indicó en la introducción, los aspectos de mayor interés en el estudio del yacimiento de la mina Fe como análogo natural fueron:

- i) la estabilidad a largo plazo frente a la alteración/disolución de la pechblenda, como análogo de la matriz del combustible gastado;
- ii) el papel de los procesos redox en la movilización y retención de los radionucleidos naturales en discontinuidades geoquímicas;
- iii) la especiación y solubilidad de dichos radionucleidos en las aguas subterráneas; y
- iv) la identificación de los procesos de retención de los radionucleidos movilizados en el halo de alteración del yacimiento.

Por lo que se refiere al primer aspecto, las observaciones sobre la pechblenda de la mina Fe tienen diversas implicaciones para la estabilidad/alteración de la matriz del UO₂. Entre ellas, la intensa alteración oxidante y ácida observada en la zona superior del sector estudiado desestabilizó totalmente el UO₂ natural, provocando la migración casi total del U(VI). En consecuencia, estas condiciones oxidantes y la presencia de un frente descendente ácido, originado por la oxidación de la piritita en un medio no tamponado, están muy lejos cualquier supuesto geoquímico aceptable para garantizar la estabilidad de un AGP de residuos radiactivos de alta actividad. Sin embargo, cuando en la zona de tránsito redox se restablecen las condiciones de neutralidad/alcalinidad y potencial reductor, se producen fundamentalmente:

- i) la coprecipitación del U(VI) y los oxihidróxidos de Fe(III), que se discutirá más adelante al tratar los procesos de retención de los radionucleidos naturales;
- ii) la coffinitización de la pechblenda;
- iii) la estabilización de esta última.

La coffinitización a temperatura ambiente de la pechblenda, evidenciada también en otros yacimientos de U, y que se origina por la interacción entre la pechblenda y el Si(OH)₄ generado durante la alteración supergénica, es un proceso importante para la estabilidad del combustible gastado. Así, en el modelo conceptual de un AGP, no se puede descartar que, en la barrera bentonítica y en las proximidades del combustible gastado, se produzcan concentraciones relativamente altas de Si(OH)₄, lo que unido a la oxidación radiolítica del UO₂, posibilitaría la formación de coffinita (USiO₄), según la siguiente secuencia de procesos:

- i) la disolución del U(VI) de la matriz del combustible gastado, como consecuencia de su oxidación radiolítica;
- ii) su posterior reducción a U(IV); y
- iii) su precipitación como coffinita, en presencia de concentraciones relativamente altas de Si(OH)₄ o de coloides de SiO₂.

La coiffinitización de la matriz del combustible gastado conllevaría, en principio, la movilización de los radionucleidos contenidos en ella. En este sentido, es fundamental establecer los mecanismos de alteración del UO_2 para formar USiO_4 , así como la termodinámica de dicho proceso, del que cada vez se tienen más evidencias de su crítica importancia para la estabilidad del UO_2 en las condiciones de un repositorio. Las observaciones mineralógicas en la mina Fe, además de complementar la información obtenida en otros yacimientos, ponen en evidencia la necesidad de establecer, de manera experimental y fehaciente, la termodinámica y cinética de la coiffinitización de la matriz del combustible gastado (UO_2), en contacto con la bentonita de la barrera de ingeniería (Arcos et al., 1998).

Para finalizar con el análisis y discusión de este aspecto, se puede argumentar que la estabilidad del UO_2 natural y, por analogía, la del combustible gastado, se restablece cuando las condiciones de pe/pH se recuperan en la zona reducida. De esta manera se explica, por un lado, que el yacimiento de uranio de la mina Fe sea explotable a pesar de las condiciones de alteración supergénica a las que ha estado y está sometido, y por otro, que el comportamiento de la pechblenda de dicho yacimiento no contradiga ninguna de las hipótesis cualitativas y cuantitativas barajadas en los modelos de estabilidad del combustible gastado, en las condiciones de almacenamiento. Además, el reconocimiento "de visu" de óxidos secundarios mixtos de U(VI)/U(IV), como la iantinita, en zonas superficiales pero reducidas del yacimiento, está de acuerdo con los modelos termodinámicos del comportamiento del combustible gastado que ENRESA ha utilizado en sus ejercicios teóricos sobre la evaluación del comportamiento (Cera et al., 2000).

El segundo aspecto de interés en el estudio analógico del yacimiento de uranio de la mina Fe es el relacionado con el papel de los procesos redox y otras discontinuidades geoquímicas en la movilización de los radionucleidos naturales. En este sentido, a pesar de que la caracterización hidrogeoquímica de las aguas subterráneas del sistema no ha proporcionado los datos esperados, las medidas del potencial redox de las aguas han puesto de relieve el papel de la materia orgánica como posible tampón redox de dicho sistema. Así, en la parte más superficial de la mina Fe, donde la alteración supergénica es notable y en la que se produce una importante meteorización de la cobertera edáfica, se solubilizarían cantidades importantes de materia orgánica altamente reactiva, que migrarían, a tra-

vés de las fracturas, hacia zonas más profundas del sistema. Esta materia orgánica, determinada como carbono total disuelto en las aguas (Gómez et al., 2000), podría contribuir decisivamente en la capacidad reductora del sistema hidrogeoquímico de la mina, que se añadiría a las de los ciclos del Fe, Mn, S y U. Por lo tanto, parece evidente la necesidad de profundizar en este aspecto durante la próxima fase del proyecto, determinando las características de la materia orgánica, su génesis y su capacidad redox "in situ".

El comportamiento redox de ciertos elementos análogos, tales como el Se, Ce, Ni y, naturalmente, el U, tiene también implicaciones importantes para la evaluación del comportamiento de un AGP. Así, la mineralogía del sitio ha mostrado la existencia de Se^0 o selenolita en la zona de tránsito redox. Sin embargo, el cálculo termodinámico de la estabilidad de las distintas fases del Se parece indicar que la fase existente es el Se^0 . Este hecho tiene importancia para establecer los límites de solubilidad de dicho elemento, que descenderían notablemente en dichas condiciones redox, dado que, hasta el momento, se había supuesto que la formación de selenio nativo, aunque termodinámicamente favorable en dichas zonas de tránsito redox, no era posible desde el punto de vista cinético.

La existencia de óxido de Ce(IV) en la zona oxidada es compatible con lo previsto en el diagrama de predominancia de las especies de este elemento, confirmándose así los modelos que se utilizan para establecer sus límites de solubilidad en las condiciones de AGP.

Respecto al Ni, la asociación existente entre dicho elemento y el $\text{MnO}_2(\text{s})$ es de sumo interés para definir los procesos que determinan la solubilidad de dicho radionucleido en las condiciones de un repositorio, ya que, hasta el momento, no se conocía proceso geoquímico alguno que explicara satisfactoriamente las bajas concentraciones de Ni detectadas en las aguas subterráneas de sistemas geoquímicamente análogos a un repositorio.

El estado redox inducido por la oxidación de la materia orgánica también condiciona la especiación del uranio, que, según los cálculos realizados, parece estar gobernado por la transición entre una pechblenda ligeramente oxidada ($\text{U}_3\text{O}_7/\text{U}_4\text{O}_9$) y el $\text{U}(\text{OH})_4(\text{aq})$, este último como especie acuosa dominante en medio reductor.

En conclusión, los potenciales redox de las aguas subterráneas y la mineralogía de la fase sólida del sitio parecen ser compatibles con lo que podría es-

perarse al aplicar un modelo termodinámico a las condiciones redox de la mina Fe.

Respecto a los procesos de movilización y retención de radionucleidos en el halo de alteración del yacimiento, la mineralogía del sector estudiado ha puesto de manifiesto la existencia, en la parte más profunda de la zona oxidada y al comienzo de la zona de tránsito redox, de procesos de coprecipitación entre el U y el $\text{Fe}(\text{OH})_3$, confirmándose que dicha asociación va más allá de un simple proceso de sorción superficial, ya que dicha coprecipitación se manifiesta por la mezcla íntima entre el $\text{Fe}(\text{OH})_3$ y, probablemente, $\text{UO}_2(\text{OH})_2$. Dicha evidencia confirma, una vez más, las múltiples observaciones y cálculos efectuados en diversos halos de alteración redox de otros yacimientos de U (Pérez del Villar et al., 1996; Bruno et al., 1996; 2000). Por lo tanto, el proceso de coprecipitación entre el U(VI) y el $\text{Fe}(\text{OH})_3$ puede considerarse como determinante para el retardo del U en la zona de tránsito redox de un yacimiento y, por lo tanto, de un AGP.

Finalmente, otro objetivo de este proyecto fue el de validar los métodos para caracterizar, desde el punto de vista geoquímico e hidrogeológico, medios fracturados. Es evidente que un medio geológico tan perturbado por las labores mineras, como es el caso de la mina Fe, constituye un test "in extremis" para las capacidades de caracterización, como quedó demostrado a la hora de tomar muestras de agua con un mínimo grado de representatividad del sistema sin alterar. Sin embargo, las medidas "in situ" de los potenciales redox indican que las aguas tienen un carácter netamente reductor, lo que unido a la relativa estabilidad de los mismos, permite deducir que, a pesar de la contaminación del sistema por las aguas de la caldera del hueco H-01, muy ácidas y oxidantes, las medidas "in situ" captaron el carácter esencialmente reductor de las aguas del sistema. Esto afianza los desarrollos metodológicos de caracterización hidroquímica que se llevan a cabo en CIEMAT.

Respecto a la estructura y mineralogía del sistema, menos perturbadas por las labores mineras, los métodos empleados para su caracterización han permitido reconstruir, con bastante precisión, la evolución geológica y geoquímica del sistema, tanto a nivel de los componentes mayoritarios (ciclos de S, Si, O, C, P y Fe), como de los menores y traza (U, Ce, Se, Ni,...), así como la relación entre ambos. Por lo tanto, desde el punto de vista de la caracterización de un emplazamiento, la identificación y definición –a partir de la mineralogía del sitio– de los

procesos geoquímicos que influyen o pueden influir en la movilización de elementos traza de interés es fundamental para predecir cuales serían los mecanismos de retardo que tendrían lugar en dicho emplazamiento, en el supuesto que los radionucleidos contenidos en el combustible gastado fuesen liberados a la geosfera.

Agradecimientos

Los autores expresan su agradecimiento al personal de la unidad de Química del CIEMAT, especialmente a A. Quejido, M. Sánchez, M^o Dolores Sánchez de Ledesma, F. Sánchez y M^o Isabel Rucandio por las determinaciones analíticas realizadas sobre las fases sólida y líquida, objetos de este trabajo. Igualmente expresamos nuestro agradecimiento a M^o A. Simón y B. Romero (CIEMAT) por los análisis de ^{14}C , ^{13}C y ^3H en las muestras de agua; a M^o T. Crespo, por las determinaciones mediante espectrometría alfa, y A. Delgado (CSIC-Granada), por las determinaciones de $\delta^2\text{H}$ y $\delta^{18}\text{O}$ en dichas muestras. Vaya también nuestro agradecimiento para A. Méndez, J. Sánchez, F. Molinero, J.M. Durán, L. Sánchez, F. Fernández y M. A. Labajo por su colaboración en los trabajos de campo y de microscopía electrónica de barrido.

Referencias

- Arcos, D., Bruno, J., Hernán, P., Pérez del Villar, L. y Ruiz Sánchez-Porro, J. (1999).- The uranium ore of Mina Fe (Salamanca, Spain), as a analogue of radionuclide migration in a metasedimentary media. Synthesis document and preliminary results in the MATRIX project. Informes QuantiSci, 16 pp.
- Arcos, D., Borra, R., Bruno, J., Cera, E., Grivé, M., y Pón, J.(1998). Solubilidad de radionucleidos en medios arcillosos. Informe ENRESA.
- Arnáiz de Guezala, J., Arribas, A., López-Vilches, L. y Rubio, E. (1995).- Análogos Naturales. Área de Ciudad Rodrigo (Salamanca). Informes ENUSA, AURENSA.
- Arribas, A. (1962).- Mineralogía y metalogenia de los yacimientos españoles de uranio; las pizarras uraníferas de la provincia de Salamanca. *Estudios Geol.* XVIII, 155-172.
- Arribas, A. (1975).-Caracteres geológicos de los yacimientos españoles de uranio. Su importancia económica e interés en el desarrollo energético del país *Studia Geologica*, IX, 7-63.
- Arribas, A. (1985).- Origen, transporte y deposición del uranio en los yacimientos en pizarras de la provincia de Salamanca. *Estudios Geol.* 4, 301-321.

- Barahona, E. (1974).- Arcillas de ladrillería de la provincia de Granada: evolución de algunos ensayos de materias primas. Tesis Doctoral, Univ. de Granada, 398 pp.
- Both, R.A., Arribas, A., and de Saint André, B. (1994).- The origin of breccia-hosted uranium deposits in carbonaceous metasediments of the Iberian Peninsula: U-Pb geochronology and stable isotope studies of the Fe deposit, Salamanca Province, Spain. *Econ. Geol.*, 89, 584-601.
- Brookins, D.G. (1987).- Sandstone uranium deposits: analogues for SURF disposal in some sedimentary rocks. Natural Analogues in Radioactive Waste Disposal. Preprint of Symposium Proceedings CEC Brussels, 28-30th April, 2, 14pp.
- Bruno, J., Casas, I., Cera, E. and Duro, L. (1992).- Development and application of a model for the long-term alteration of UO₂ spent nuclear fuel. Test of equilibrium and kinetic mass transfer models in the Cigar Lake ore deposit. *Journal of Contaminant Hydrology*, 26, 19-26
- Bruno, J., Pablo, J. de, Duro, L., and Figuerola, E. (1995).- Experimental study and modeling of the U(VI)-Fe(OH)₃ surface precipitation/coprecipitation equilibria. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 59, 20, 4113-4123.
- Bruno, J., Duro, L., Linklater, C.M., Goldberg, J.E., Gimeno, M.J., Peña, J., Ayora, C., Delgado, J. and Casas, I. (1996).- Testing of geochemical models for trace elements mobility. En: El Berrocal Project: Characterisation and validation of natural radionuclide migration processes under real conditions on the fissured granitic environment. Vol. II (Hydrogeochemistry), Topical Report 7, 443-557 ENRESA.
- Bruno, J., Duro, L. and Grivé, M. (2000).- Abilities and limitations of the geochemical models and tools used in the modelling of the behaviour of trace metals in natural waters. Lessons learned from the BPM exercises performed up to December 1999. Informe interno (Quantisci).
- Campos, R., Ruiz, J., Pérez del Villar L. y Pardillo J. (1999a).- Caracterización de la fracturación en torno a la Falla Boa, Zona D, Mina Fe, Ciudad Rodrigo (Salamanca) CIEMAT/DIAE/54331/1/98.
- Campos, R., Pardillo, J., Durán, J.M. y Pérez del Villar, L. (1999b).- Caracterización de la fracturación en los sondeos- zona D. (Mina Fe-Ciudad Rodrigo-Salamanca) CIEMAT/DIAE/54331/4/99, 53 pp.
- Carretero, G., Ortuño, F., Floría, E y Suso, J. (2000).- Testificación hidráulica. Funcionamiento hidráulico de la Falla Boa. Informes AITEMIM, 16 pp.
- Casas I., Bruno J., Cera E., Finch R.J., and Ewing R.C. (1994).- Kinetic and thermodynamic studies of uranium minerals. Assessment of the long-term evolution of spent nuclear fuel. SKB Technical Report 94-16.
- Casas, I., Giménez, J., Martí, V., Torrero, M.E. and Pablo de, J. (1995).- Kinetic Studies of Unirradiated UO₂ Dissolution under Oxidizing Conditions in Batch and Flow Experiments. *Radiochimica Acta*, 66/67, 23-27.
- Cera, E., Merino, J. y Bruno, J. (2000).- Liberación de los radionucleidos e isótopos estables contenidos en la matriz del combustible. Modelo conceptual y modelo matemático del comportamiento del residuo. ENRESA Publicación Técnica 03/00.
- ENUSA (1998a).- Proyecto MATRIX de análogos naturales. Resumen de los trabajos efectuados hasta el 28/2/98. Informe ENUSA. 35 pp.
- ENUSA (1998b).- Proyecto MATRIX de análogos naturales. Estudio litológico y radiométrico en torno a la falla boa (talud oeste del hueco H-1 de mina D). Informe preliminar de los trabajos realizados. Informe ENUSA. 64 pp.
- Garrels, R.M. and Christ, C. (1965).- Solutions, Minerals and Equilibria. Freeman, Cooper and Company. San Francisco, 450 pp.
- Gómez, P., Garralón, A., Turrero, M^a.J., Sánchez, L., Fernández F. y Ruiz, B. (2000).- Caracterización Hidrogeoquímica de la Falla Boa (Mina Fé, Salamanca). CIEMAT/DIAE/54331/2/2000, 46 pp.
- Gumiel, P., Arnaiz de Gueza, J., Matos Dias, J.M. and Arribas, A. (1990).- Development of new multidisciplinary techniques for mineral exploration in several areas of the western of Iberian Peninsula. Vol. 2, Área de mina Fe, Nisa, Azere (Portugal).
- Jacob, C.E. (1947).- Drawdown test to determine effective radius of artesian well. *Trans. Am. Soc. Civil Eng.* 72, 1047.
- Limpo, J.L., Luis, A., Siguín, D. y Henández, A. (1977).- *Rev. Metal.* 12 (3), 123.
- Mangas, J. y Arribas, A. (1984).- Características físico-químicas de los fluidos asociados con las mineralizaciones de uranio de mina Fe (Salamanca). Congreso Internacional de Minería y Metalurgia, 7th, Barcelona. Procc. I, 435-451.
- Martín-Izard, A., Arias, D., Fernández-Rodríguez, F.J., Ruiz, J. and Arribas, A.Sr. (1999).- The Fe uranium mine, West Central Spain: an Alpine ore deposit developed in a transpressional shear zone. In Procc. of Mineral Deposits: Processes to processing. Fifth Biennial SGA Meeting and Tenth Quadrennial IAGOD Meeting, London (C. J. Stantey et la. Eds.), 1407-1410.
- Monteserín, V., Martín-Herrero, D., Albert Colomer, V., López Plaza, M. y Rodríguez Alonso, M. D. (1990).- Mapa geológico de España. E: 1/50.000, 2^o Serie. Hoja 525 (Ciudad Rodrigo). ITGE. (Madrid).
- Pardillo, J., Izquierdo, A., Marín, F., Ruiz, J. y Durán J.M. (1998).- Control litológico, geofísico y de las aguas de perforación de los sondeos del proyecto Matrix (I). CIEMAT/DIAE/54332/3, 22 pp. (Anexos I y II).

- Pardillo, J., Ruiz, J., Campos, R., Izquierdo, A. y Pérez del Villar, L. (1999).- Resumen de la litología, aguas de perforación y geofísica de los sondeos del proyecto "Matrix" (II) (Mina Fe, Ciudad Rodrigo). CIEMAT/DIAE/54331/3/99, 31 pp.
- Parfitt, R.L., Saigusa, M. and Eden, D.N. (1984).- Soil development processes in an Aqualf-Ochrept sequence from loess with admixtures of tephra, New Zealand. *J. Soil Sci.*, 35, 625-640.
- Parfitt, R.L. and Wilson, A.D. (1985).- Estimation of allophane and halloysite in three sequences of volcanic soils, New Zealand. *Catena Supp.* 7, 1-8.
- Parfitt, R.L. and Kimble, J.M. (1989).- Conditions for formation of allophane in soils. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 53, 971-977
- Pelayo, M., Pérez del Villar, L. y J. Pardillo (1999).- Estudio mineralógico y geoquímico preliminar de la mineralización de uranio encajada en la Falla Boa (Mina Fé, Ciudad Rodrigo) CIEMAT/DIAE/54331/2/99, 26 pp.
- Pérez del Villar, L. (1998).- Modelo Conceptual de funcionamiento geoquímico de la mineralización uranífera de la Falla Boa, Mina Fé (Ciudad Rodrigo, Salamanca). CIEMAT/DIAE/54331/6/98.
- Pérez del Villar, L.; Gordillo, J. y Fenoll, P. (1979).- Netrojarosita en la base de la formación Utrillas en Nuevalos (Provincia de Zaragoza). *Clay Minerals*, 14, 139-153.
- Pérez del Villar, L., Moro, M.C. and Cembranos, M.L. (1992).- Allophane in weathered zones of barite ore deposits (Vide de Alba y San Blas, Zamora, Spain): mineralogy and genesis. *Clay minerals*, 27, 309-323.
- Pérez del Villar, L., Pelayo, M., Cózar, J.S., de La Cruz, B., Pardillo, J., Rivas, P., Reyes, E., Delgado, A., Nuñez, R., Crespo, M.T., Jiménez, A., Quejido, A. and Sánchez, M. (1996).- Mineralogical and geochemical characterisation of the El Berrocal fracture fillings in relation to the migration/retention of natural radionuclides. En: El Berrocal Project: Characterisation and validation of natural radionuclide migration processes under real conditions on the fissured granitic environment. Vol. 1 (Geological Studies), Topical Report 3, 490-595 ENRESA
- Pérez del Villar, L., Cózar, J.S., Pardillo, J. y Labajo, M.A. (1999).- La mineralización de uranio encajada en la Falla Boa (Mina Fe, Ciudad Rodrigo): mineralogía y geoquímica de las muestras de los sondeos SM-1, SM-2, SM-3 y SM-4, en relación con los procesos meteóricos de oxidación. CIEMAT/DIAE/54351/9/99, 31 pp.
- Pérez del Villar, L., Cózar, J.S., Pardillo, J., Buil, B., Pelayo, M. y Labajo, M.A. (2000).- Mineralogía y geoquímica de los rellenos fisurales del Proyecto Matrix: implicaciones para los procesos de disolución, transporte y retención de los radionucleidos naturales y otros elementos análogos (mina Fe, Ciudad Rodrigo). CIEMAT/DIAE/54331/1/00, 58 pp.
- Plummer, L.N., Prestemon, E.C. and Parkhurst, D.L. (1991). An interactive code (NETPATH) for modelling NET geochemical reactions along a flow PATH. U.S. Geological Survey, Water-Resources Investigation Report 91-4078.
- Puigdomènech, I. (1998).- Hydra, Hydrochemical Equilibrium Constant Database. Data retrieval to create input files for Medusa. Student vers. 12 Oct. 98. Inorganic Chemistry, Royal Institute of Technology 100 44 Stockholm, Sweden.
- Ruiz, J., Criado, M., Carretero, S., Bordonaba, M.L. y Artieda, J. (1997).- La producción de concentrados de uranio en España. La explotación minera de ENUSA en Ciudad Rodrigo (Salamanca). *Rocas y Minerales*, 34, 66-81.
- Schultz, L. C. (1964).- Quantitative interpretation of mineralogical composition from X-Ray and chemical data for the Pierre Shale. Geological Survey of USA. Professional Paper, 591c, C1-C31.
- Shoesmith, D.W. and Sunder, S. (1992).- The prediction of nuclear fuel (UO₂) dissolution rates under waste disposal conditions. *J. of Nuclear materials*, vol. 190, 20.
- Stumm, W. and Morgan, J.J. (1981).- Aquatic chemistry. 2ª edición. John Wiley & Sons. NY
- Terzaghi, R. (1964).- Sources of error in joint surveys. *Geotechnique*, 15, 287-304.
- Wolery, T.J. and Daveler, S.A. (1992).- EQ3/6, a computer program for reaction path modelling of aqueous geochemical systems: Theoretical manual, User's guide and related documentation (v 7.0), 337 pp.

Tabla 1
Ensayos hidráulicos realizados.

Sondeo	Tramo			Tipo de ensayos	Observaciones	
	Nº	Prof. Base (m)	Prof. Techo (m)			Longitud (m)
SM-1	—	—	—	—	Sondeo prácticamente seco	
	3	46,83	36,00	10,83	P(2) y S	fallo Baa
SM-2	2	58,67	47,83	10,83	P y S	
	1	77,57	47,83	29,74	P(2)	
SM-3	2	43,83	40,00	3,83	P y S	fallo Baa
	1	51,10	39,61	11,48	P(2), S y I	fallo Baa
	3	22,47	13,64	8,83	P(2), S(2) y I	fallo Baa
SM-4	2	32,30	23,47	8,83	P	
	1	50,62	23,47	27,09	P y S	

P = Ensayo de pulso; S = Ensayo de cuchareo; I = Ensayo de inyección a caudal constante.

Tabla 2
Características químicas y físico-químicas de las aguas de los sondeos, en la que se incluyen las de las agua de perforación (río Águeda) y la Caldera del Hueco H-01.

Características	SM-2	SM-3	SM-4	Agua Perforación	Caldera zona D
Prof. pack inf(m)	45	51	31		
Prof. pack sup(m)	36	38	21		
O ₂ (mg/l)	0	0	0		
CE(μS/cm)in situ	1220	2970	6060	176	4927,5
PH in situ	7,1	6,4	4,8	7,11	2,9
Eh(mV)	-300	-90	8	440	790
HCO ₃ ⁻ (mg/l)	235	54,2	18,3	22,38	< 3
F ⁻ (mg/l)	0,34	0,11	0,12	<0,1	<0,1
I ⁻ (mg/l)	1,1	0,12	<0,02	<0,02	<0,02
Cl ⁻ (mg/l)	103	11	14,3	8,16	15,5
SO ₄ ²⁻ (mg/l)	294,3	2267	5133	55,88	4975
Br ⁻ (mg/l)	<0.1	<0.1	<0.1	<0,1	<1
NH ₄ ⁺ (mg/l)	0,39	0,19	0,93	0,14	1,14
Ca ²⁺ (mg/l)	83,3	240	503	20,13	510

Tabla 2
Características químicas y fisico-químicas de las aguas de los sondeos, en la que se incluyen las de las agua de perforación (río Águeda) y la Caldera del Hueco H-01. (Continuación)

Características	SM-2	SM-3	SM-4	Agua perforación	Caldera zona D
Mg ²⁺ (mg/l)	64,7	285	645	5,16	561,25
Na ⁺ (mg/l)	28	44,7	48	5,41	41,75
K ⁺ (mg/l)	3,4	3,5	7,8	2,69	7,72
Fe ²⁺ (μg/l)	4667	171000	297000	<50	4075
Fe ³⁺ (μg/l)	100	1500	2333	<50	5975
TOCmgC/l	29,6	5,1	11,4	2,21	1,4
SiO ₂ (mg/l)	22,7	21,3	40,1	5,75	107,75
Li ⁺ (mg/l)	0,06	0,12	0,6	0,01	0,89
U (μg/l)	272	48,7	51,3	4,88	102250
Al (mg/l)	<0,05	0,07	21,3	<0,05	67
As (μg/l)	7,9	18,7	16,3		
Cd (μg/l)	<30	47	197	<1	130
Co (μg/l)	<50	70	3000	<0,05	3,75
Ni (μg/l)	53	843	9100	<10	7850
Sr (μg/l)	310	1467	2667	0,07	2,02
V (μg/l)	<50	<50	360		
Zn (μg/l)	1013	8700	8133		
Mn (mg/l)	1,27	20,7	171,7	<0,03	96,75
²²⁶ Ra(Bq/m ³)	710	5670	23100		
²⁴¹ Am(Bq/m ³)	7440		91300		
δO ¹⁸	-7.01	-7.29	-2.03		
δH ²	-47.89	-49.44	-25.01		
Balance (%)	4.0	-6.5	-6.4	2	-14.2

Tabla 3
Concentraciones de ³H y ¹⁴C en las aguas de los sondeos.

Sondeos	³ H (U.T.)	¹⁴ C (p.m.c.)
SM-2	2.639	58.02
SM-3	4.814	37.84
SM-4	3.872	

Tabla 4
Especiación, en %, de los elementos metálicos en las aguas de los sondeos. Se han considerado únicamente aquellas especies cuya concentración era, al menos en alguna ocasión, superior al 5%.

Especies	SM-2	SM-3	SM-4	Caldera	Agueda
$Al(OH)_4^-$		22.75			
$Al(OH)_2^+$		10.28			
$Al(OH)_3(aq)$		7.69			
$AlSO_4^+$			20.9	44.96	
$Al(SO_4)_2^-$			17.19	36.38	
Al (III)			8.8	18.62	
$Al_13O_4(OH)_{24}^{7+}$		50.44	50.32		
Cd^{++}		100	100	100	
$Co_2(OH)_3^+$		87.05	2.23		
Co^{++}		12.85	97.35	99.57	
Fe (II)	70.1	65.88	60.58	60.36	
$FeSO_4(aq)$	10.17	32.49	39.39	39.63	
$FeHCO_3^+$	15.78	1.55			
Mn (II)	80.53	60.52	53.86	53.62	
$MnSO_4(aq)$	15.39	39.32	46.13	46.36	
Ni (II)	89.51	72.4	67.44	67.09	
$NiSO_4(aq)$	10.49	27.6	32.56	32.91	
$U(OH)_4(aq)$	100	100	99.79	9.02E+02	
$UO_2SO_4(aq)$				66.08	
UO_2^{2+}				18.05	
$UO_2(SO_4)_2^{2-}$				14.15	
$UO_2(OH)_2(aq)$					72.06
$UO_2(CO_3)_2^{2-}$					18.08
$UO_2CO_3(aq)$					6.08
Fe(III)				66.49	
$Fe(OH)_2^+$	22.24	61.36	98.43	1935	
$Fe(OH)_3(aq)$	77.35	38.6	1.46		
$FeSO_4^+$				10.47	

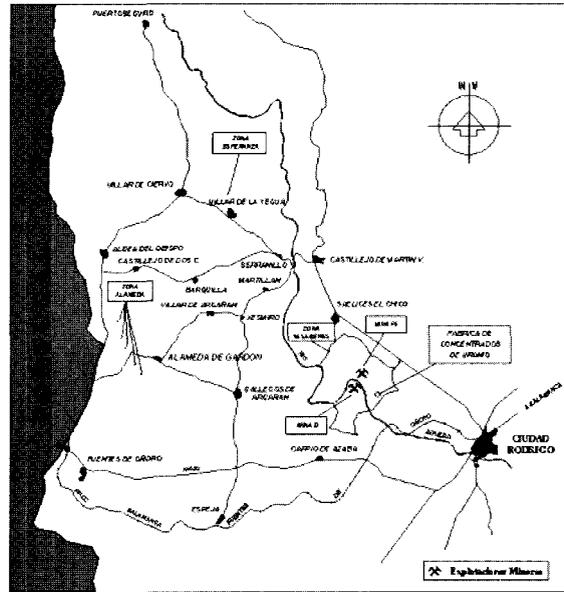


Figura 1. Mapa de situación.

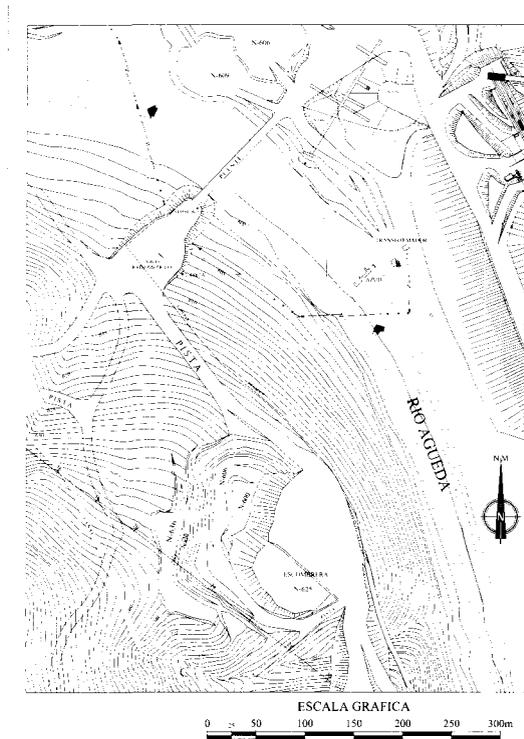


Figura 2. Situación de la mina D Huerco H-01.

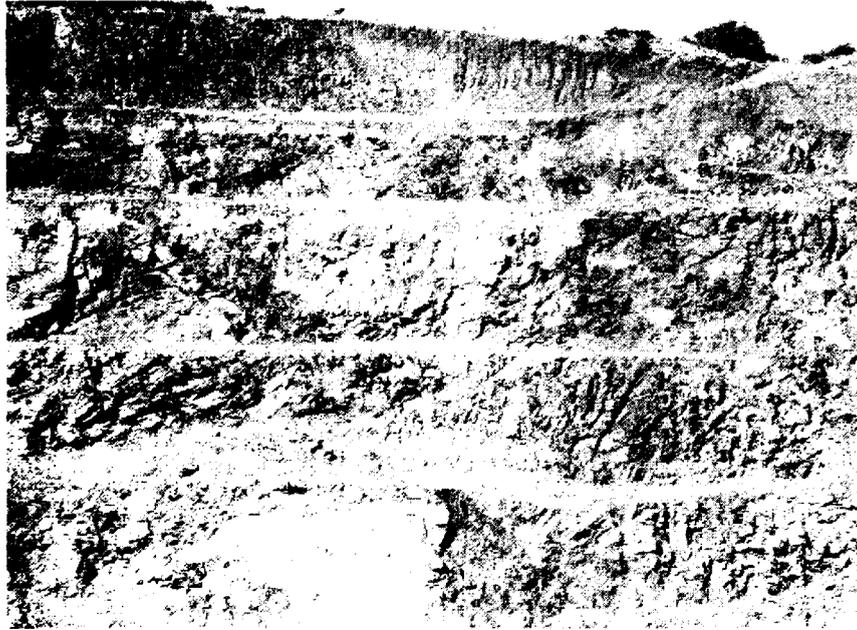


Figura 3. Frente de explotación del Huevo H-01, donde se observa la traza de la falla Baa.

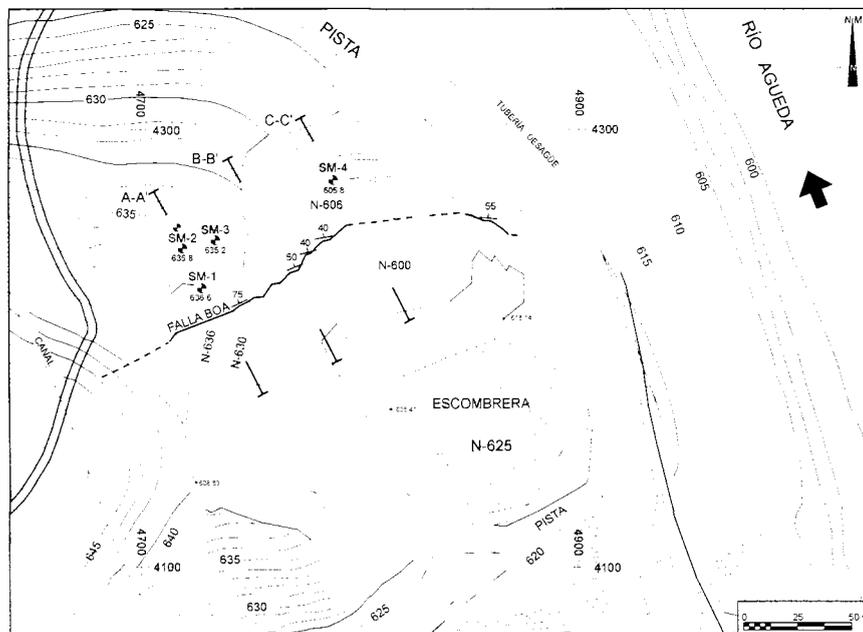


Figura 4. Situación de las sondeas en relación a la falla Baa.

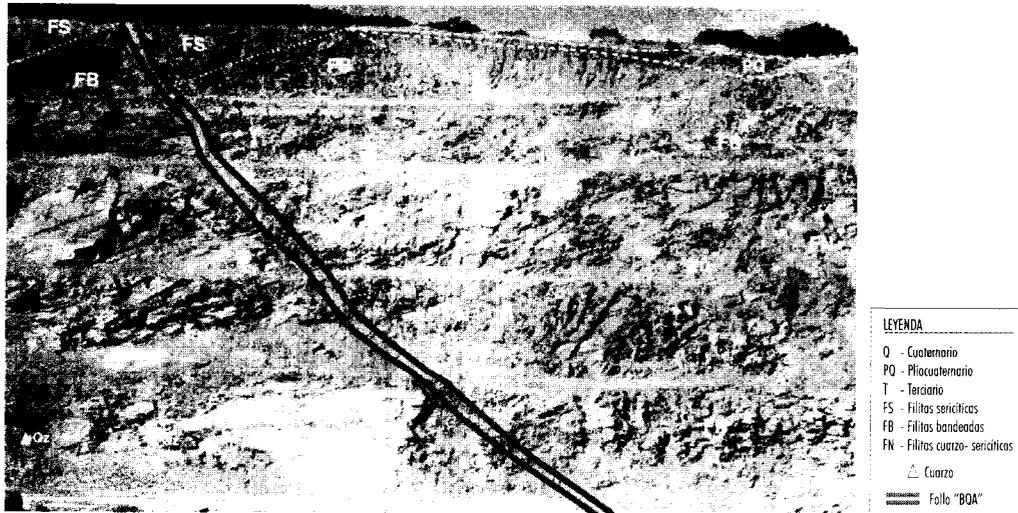


Figura 5. Cartografía litológica del frente de explotación del Hueco H-01.

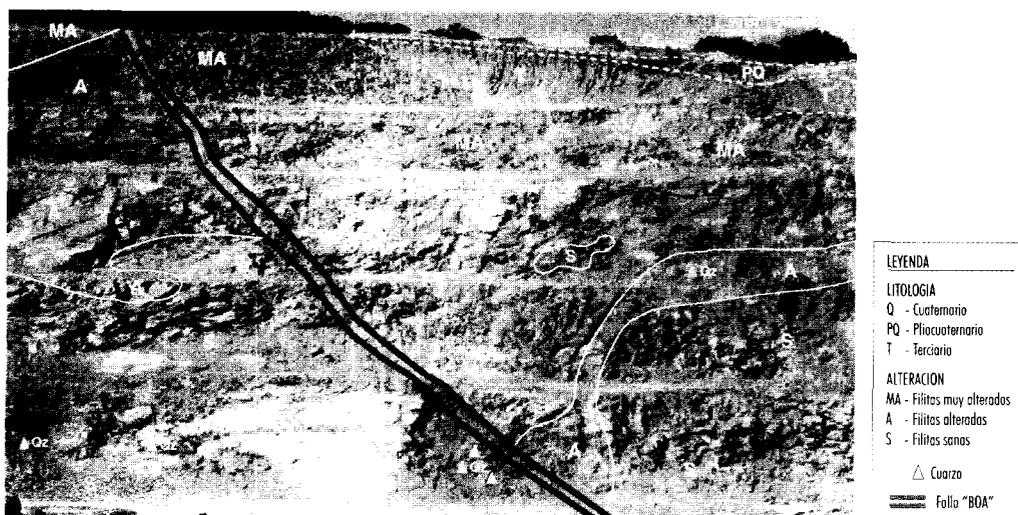


Figura 6. Cartografía de los grados de alteración de los materiales del frente de explotación del Hueco H-01.

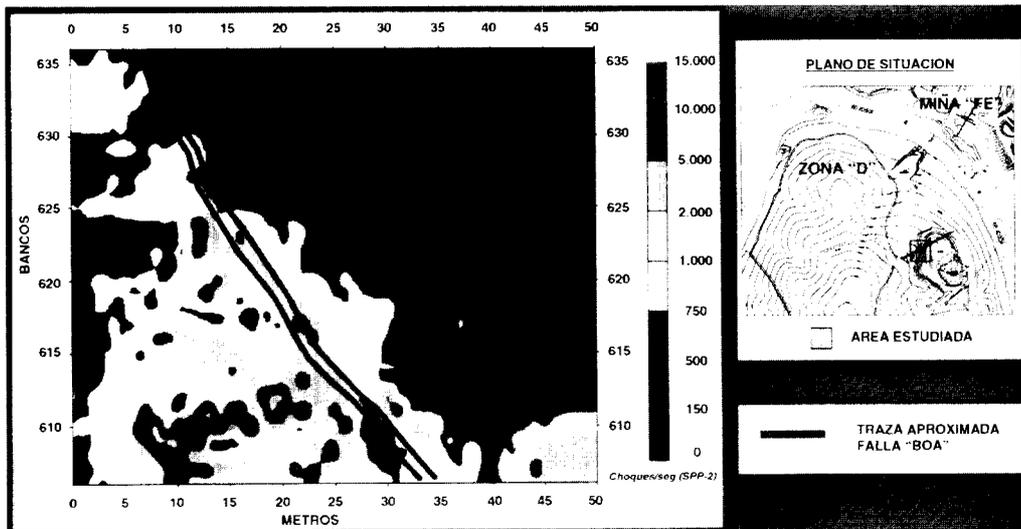


Figura 7. Cartografía radiométrica del frente de explotación del Heco H-07.



Figura 8. Proyección de las trazas de las fracturas sobre un plano horizontal de cota 619 m.

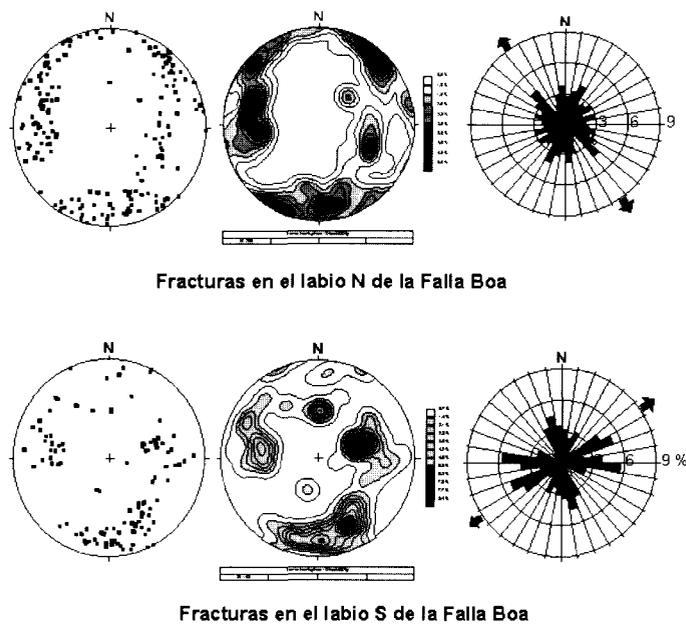


Figura 9. Proyección de las fracturas del frente de explotación del hueco H-01.

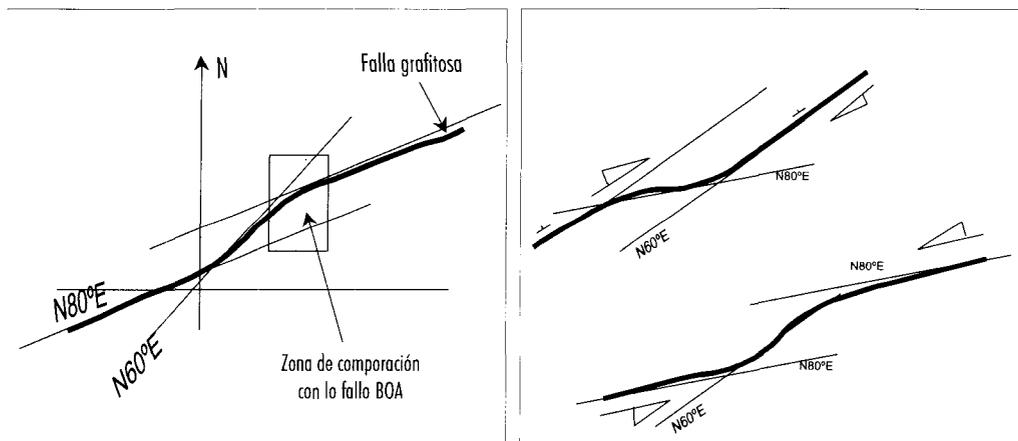


Figura 10. Modelo explicativo de los cambios de dirección de la fallo Boa.

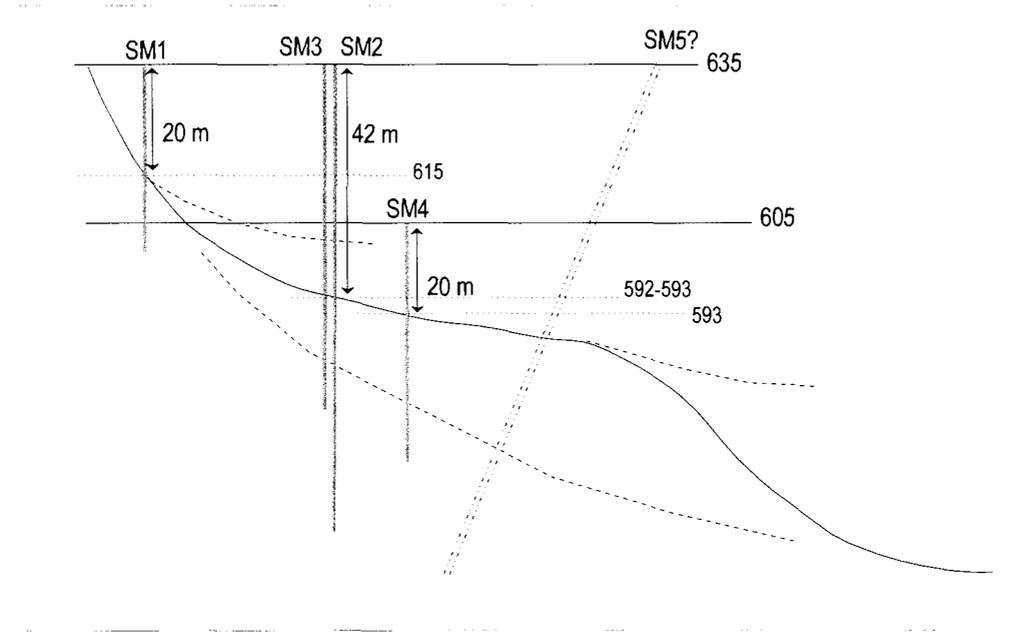


Figura 11. Modelo en 2D de la posible evolución en profundidad de la falla Baa.

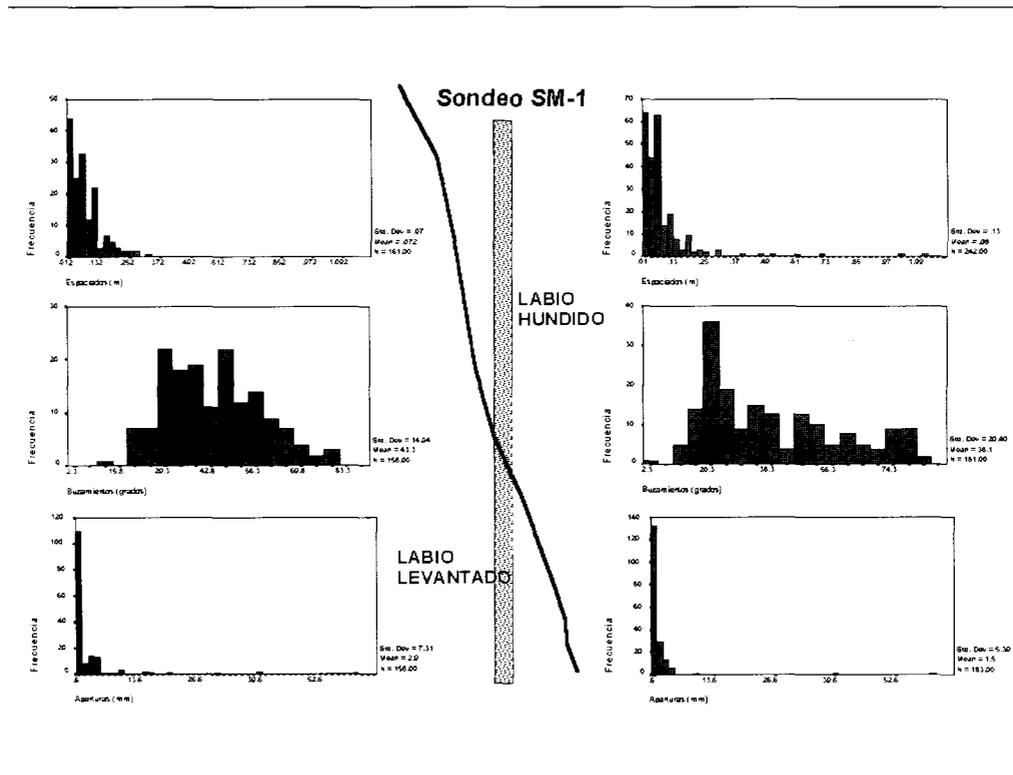


Figura 12. Distribución de los espaciados, buzamientos y aperturas de las fracturas en los dos labios de la falla Baa.

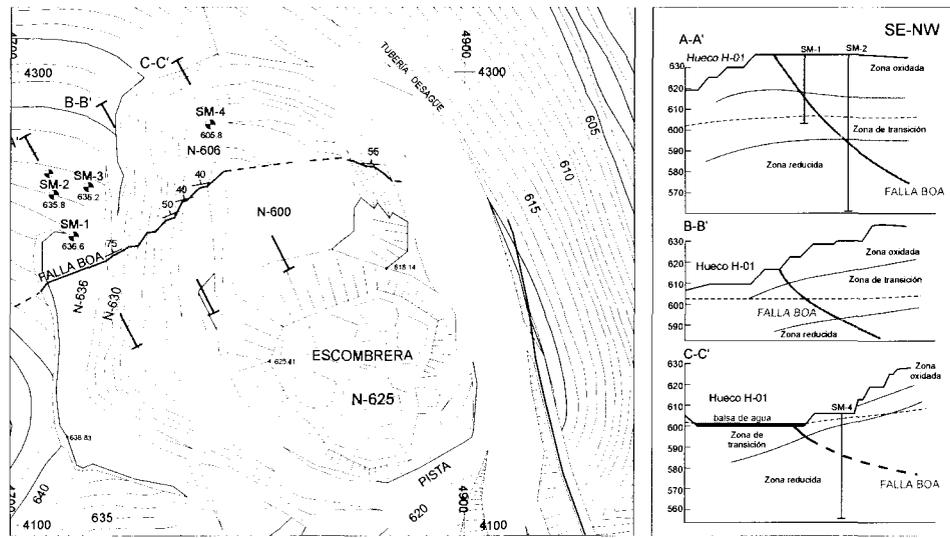


Figura 13. Plano del Hueco H-01 en el que están señaladas las sondas, la falla Boa y los perfiles geológicos. Perfiles de las tres zonas geoquímicas.

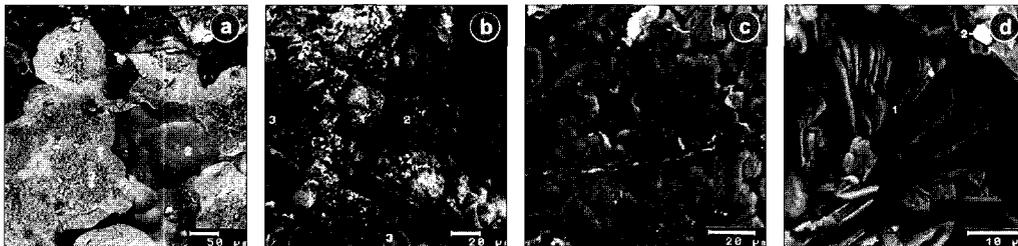


Figura 14. Minerales formados en la zona oxidada en medio ácido: a) jarosita tapizada por goethita; b) oxihidróxidos de Fe y Mn con Ni, Co, Ba; c) productos alofónicos; d) caolinita idiomorfa con textura en libro.

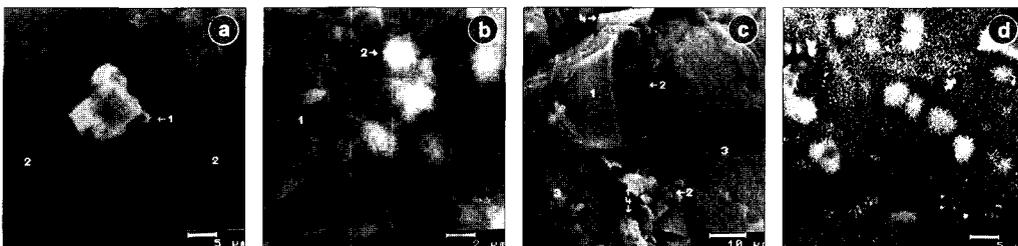


Figura 15. Minerales neoformados en la zona oxidada, una vez restablecida la neutralidad: a) autunita; b) óxidos de Ce sobre oxihidróxidos de Fe; c) Rodocrosita sobre óxidos de Mn; d) Hallosyto formada a partir de productos alofónicos.

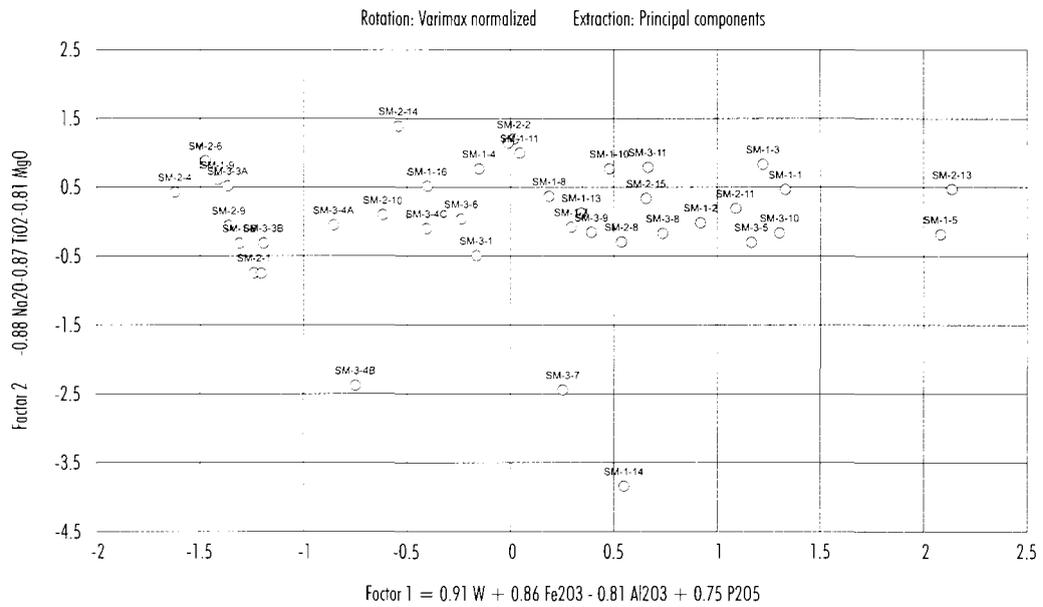


Figura 16. Distribución de las muestras de la zona oxidada en el espacio de los componentes principales elegidas.

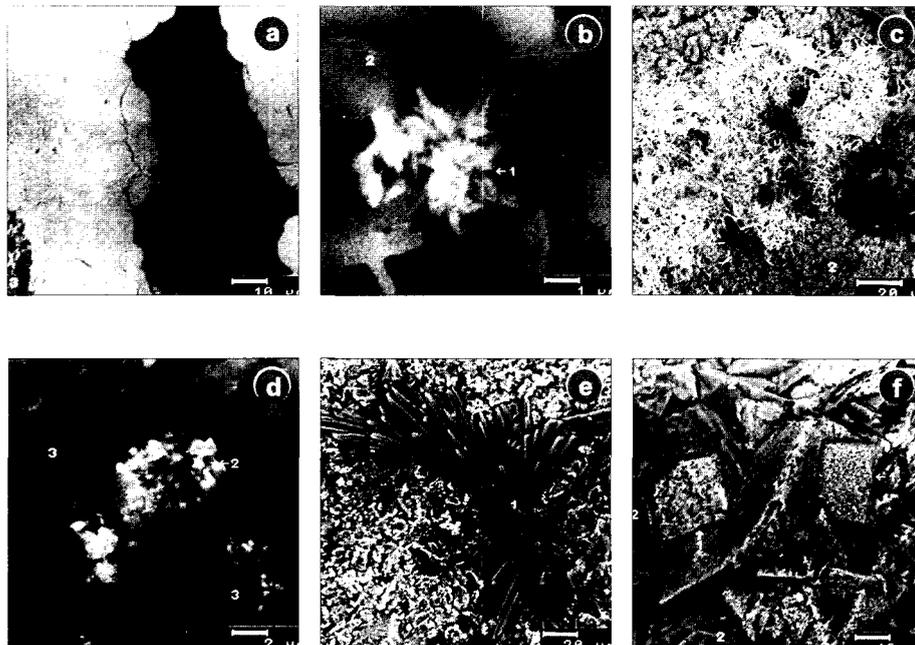


Figura 17. Minerales neofarmados en la zona de tránsito redox por cambios en las condiciones redox, neutralización y metasomatismo:
 a) Coprecipitación de hidróxidos de Fe alóctonos y oxihidróxidos de U (VI); b) Sulfoseleniuras secundarias de Fe y Cu;
 c) Selenio nativo o selenita; d) Sulfuros secundarios de Cu, Fe y Ag; e) Haz de cristales aciculares de yeso;
 f) Oxihidróxidos de Fe pseudomorfizando a cristales idiomorfos de ankerita.

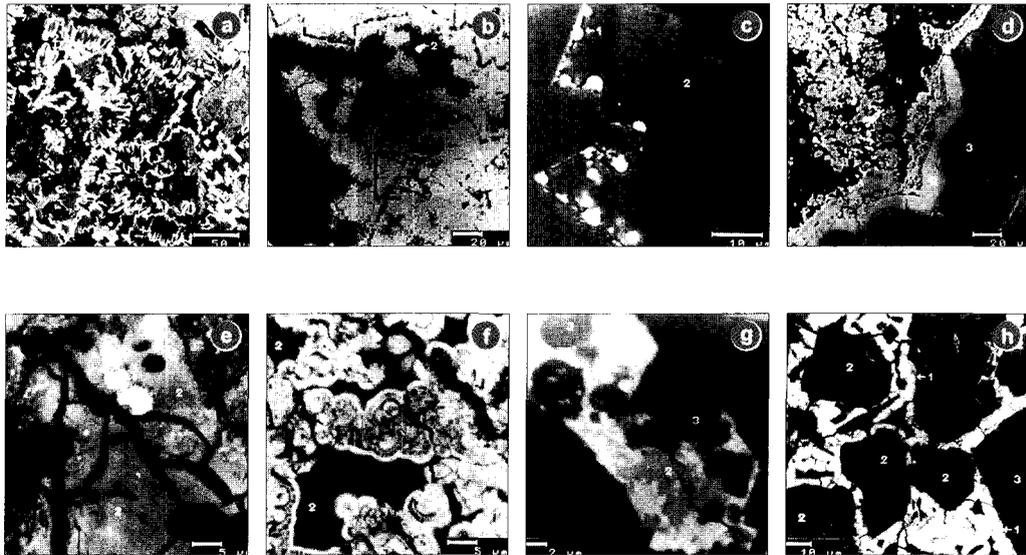


Figura 18. Transformaciones mineralógicas en la zona de tránsito redox: a) coarctización de la clorita, con liberación de oxihidróxidos de Fe; b) oxihidróxidos de Fe pseudomorfizando carbonatos y disolución de los festones de pechblenda esterulítica que tapizaba las caras de los cristales de dichos carbonatos; c) ídem a la anterior, pero en la que se conservan los esterulitos de pechblenda; d) transformación metasomática de los carbonatos ankeríticos en siderita; e) transformación casi total de la pechblenda en zippeita; f) transformación de los esterulitos de pechblenda en compuestos complejos de U, Fe, S, P, Si, Al; g) transformación casi total de la pechblenda en pirita; h) pechblenda inalterada cementando fragmentos de pirita.

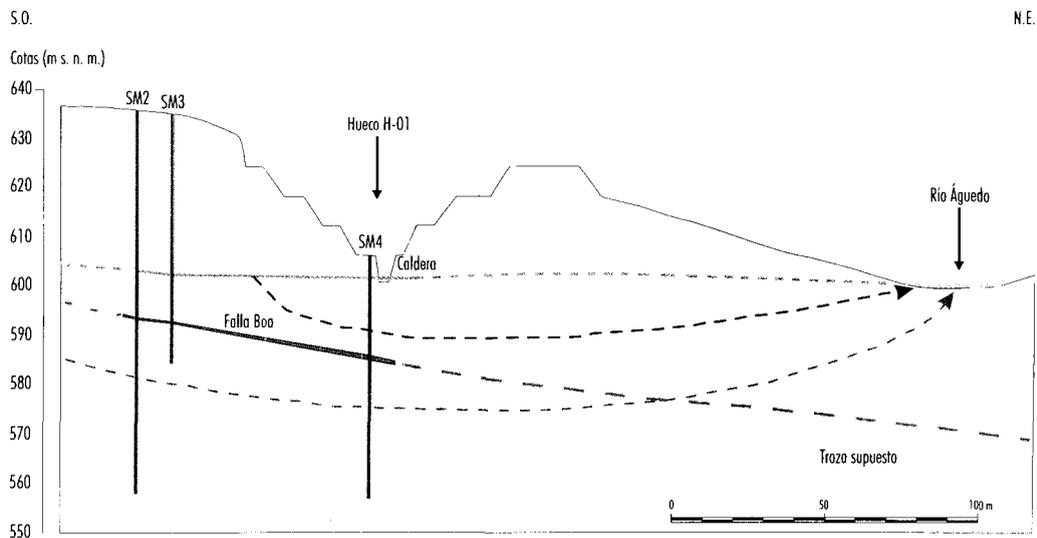


Figura 19. Esquema hidrogeológico de lo zona de la fallo Boa.

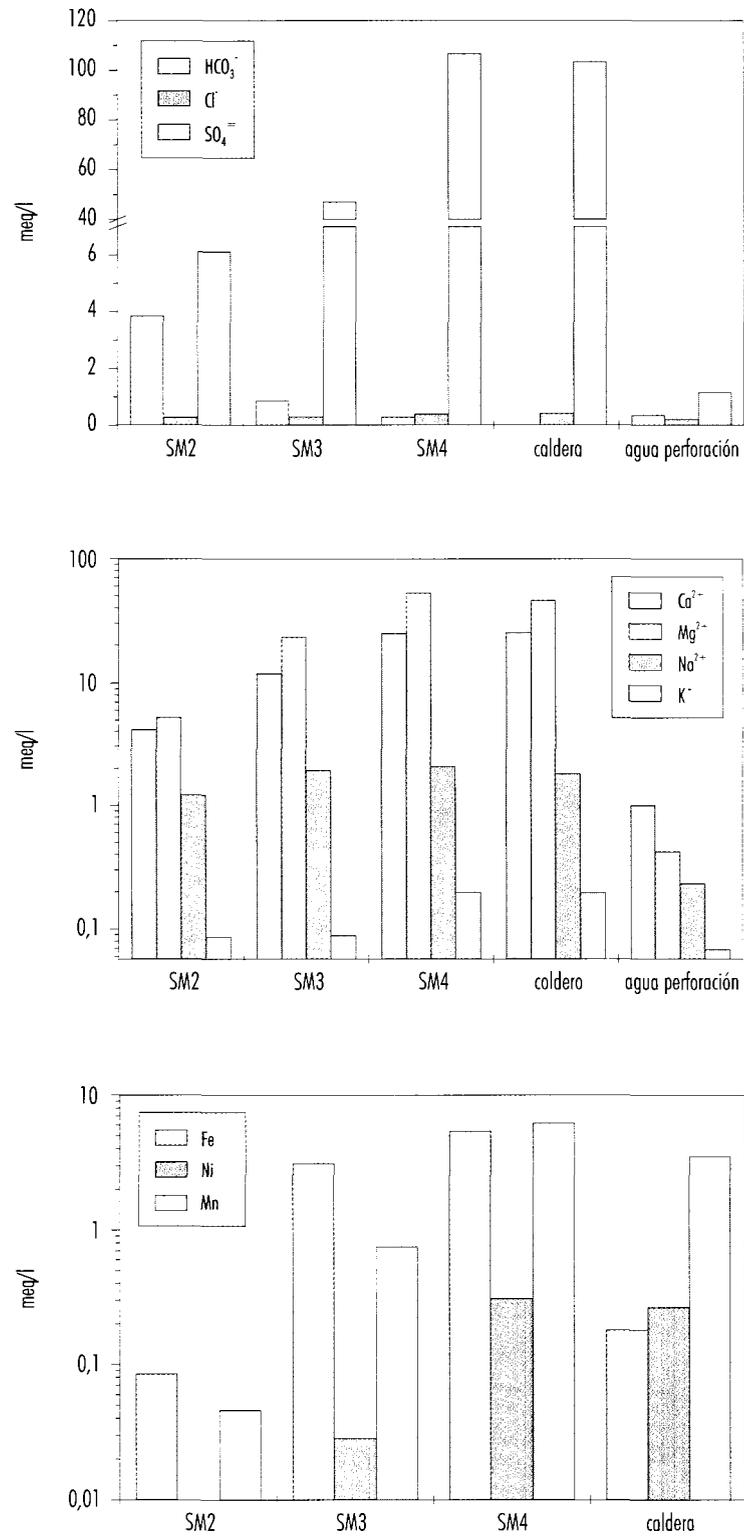


Figura 20. Diagramas de barras de los contenidos en aniones y cationes de las aguas del sistema de la falla Baa.

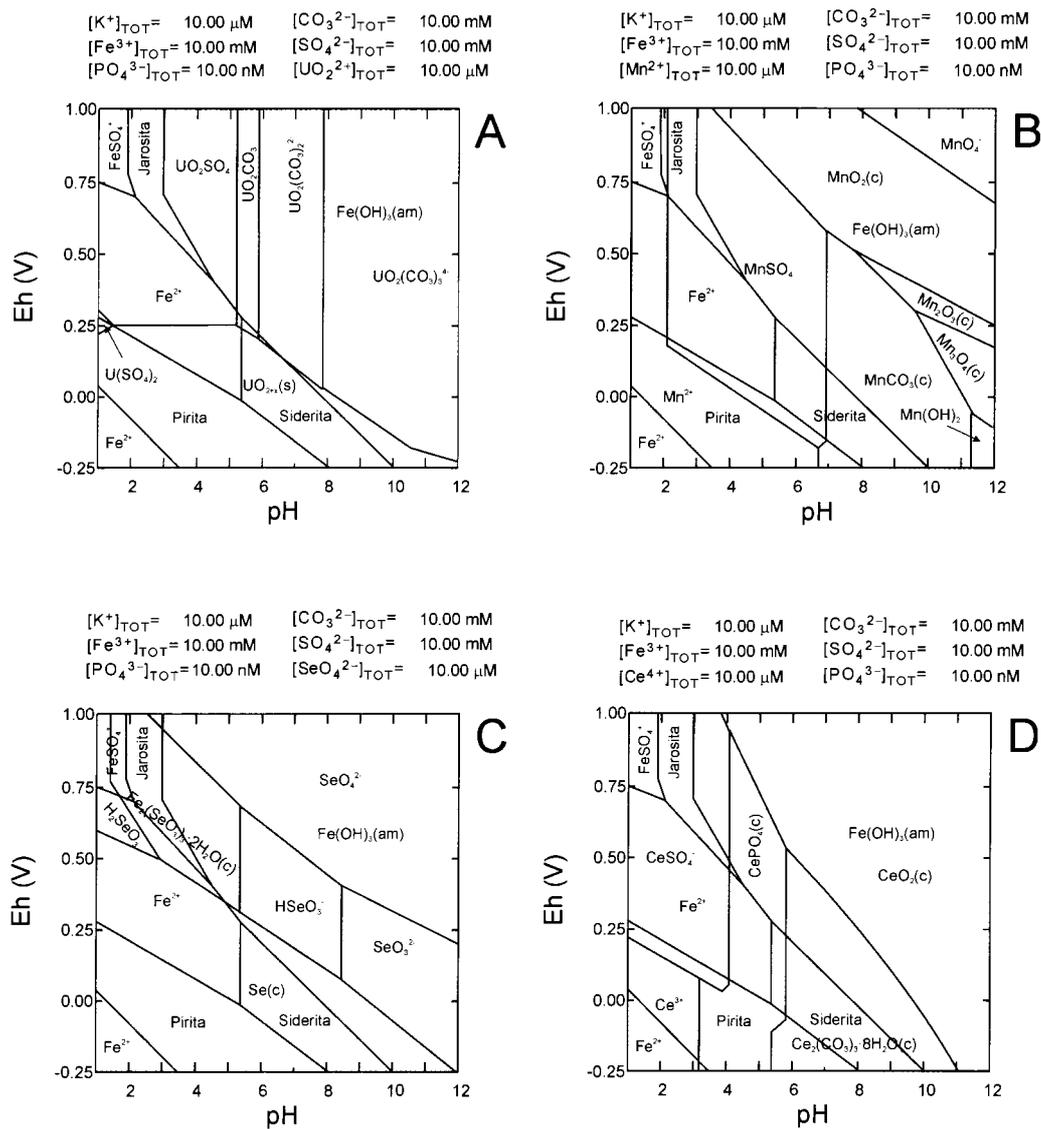


Figura 21. Diagramas de predominancia de las especies de U, Mn, Se y Ce, en los que se resumen los procesos geoquímicos más relevantes del sistema estudiado.

TESTIFICACIÓN Y MONITORIZACIÓN DE LAS AGUAS SUBTERRÁNEAS

Paloma Gómez, Antonio Garralón, María Jesús Turrero, Benigno Ruiz, Lorenzo Sánchez
CIEMAT

Carmen Bajos
ENRESA

Introducción

En el presente trabajo se referencia la metodología empleada para la realización de estudios hidrogeoquímicos en medios de baja permeabilidad.

La geoquímica del agua subterránea es un factor importante en la evaluación de cualquier instalación de almacenamiento de residuos radiactivos. El número de reacciones químicas que pueden producirse en el agua subterránea (disolución-precipitación, formación de complejos, reacciones redox) es elevadísimo, e influyen de forma sustancial en el comportamiento de los distintos radionucleidos en los procesos de migración, ya que condicionan la forma química de las especies disueltas. Por todo ello, es necesario tener un conocimiento lo más elevado posible de los posibles procesos que tienen lugar en el medio.

ENRESA en colaboración con CIEMAT ha desarrollado un importante conjunto de tecnologías y desarrollos en este campo, con el fin de realizar una evaluación lo más exhaustiva posible de estos procesos, que son aplicables a otros ámbitos medioambientales.

Selección de los sondeos

La elección de la ubicación de los sondeos se ha de realizar atendiendo a múltiples factores, como son su interés desde el punto de vista estructural, hidrológico, geoquímico, mineralógico, e hidrogeoquímico. El realizar una correcta selección de la ubicación de los sondeos, permitirá posteriormente que la obtención de resultados permita plantear un modelo válido para el funcionamiento hidrogeoquímico de la zona objeto de estudio.

Selección de las zonas a muestrear

La primera etapa consiste en la realización del sondeo en la zona de estudio. La ubicación de éste se selecciona en función de lo que se desee estudiar, generalmente las fracturas presentes en el medio, al ser estas las zonas por donde se produce la mayor circulación de agua, y por ello definir la hidrogeoquímica del sistema.

El levantamiento litológico de la columna de testigo y los perfiles geofísicos e hidrogeoquímicos obtenidos de los sondeos permiten seleccionar las zonas de fractura idóneas para ser muestreadas con el objeto de realizar el estudio hidrogeoquímico. Las zonas seleccionadas han de tener una circulación de agua lo suficientemente alta como para poder obtener muestras en periodos de tiempo razonablemente cortos, sin forzar los flujos naturales; y que por tanto correspondan a aguas lo más representativas posible de la zona muestreada. Interesa por otra parte, que el tramo seleccionado sea lo suficientemente largo como para poder trabajar con volúmenes de agua aceptables, pero sin exceder en dimensiones que ocasione que el tramo corte varias fracturas de interés y carácter diferenciado.

Una vez seleccionadas las zonas preferentes de muestreo de aguas se procede a su aislamiento mediante obturadores con el objeto de evitar la mezcla vertical de aguas. Se procede a la limpieza del tramo aislado, mediante bombeo. El criterio establecido para considerar que se ha limpiado el tramo es cuando las medidas de trazador disuelto en el agua extraída del tramo, se encuentra en una concentración inferior al 2% de la inicial.

En la Figura 1 se ha representado la instrumentación utilizada en un sondeo. En la figura se repre-

senta el aislado de 3 tramos, mediante un sistema de 2 obturadores (un tramo localizado en la parte inferior del sondeo, aislado por medio del obturador inferior, el segundo tramo está localizado entre los dos obturadores, y el último tramo corresponde al comprendido entre el obturador superior y la superficie). En cada tramo se instalan 3 líneas de tuberías que se emplean para:

- a) el inflado de obturadores,
- b) para medir la presión y
- c) para la obtención de muestras de agua.

Durante los bombeos de extracción de agua se mide de forma continua la presión de cada tramo obturado con el objeto de obtener información sobre las conectividades entre fracturas y transmisividades de cada tramo. La medida de presión sirve de control para verificar el aislamiento de los distintos tramos.

El bombeo de las zonas obturadas se procura hacer a un caudal lo más próximo posible al flujo natural con el fin de perturbar mínimamente el sistema.

Controles hidrogeoquímicos en la perforación de los sondeos

Durante la perforación de los sondeos se emplean diferentes lubricantes o refrigerantes de las coronas perforadoras. En los estudios de sistemas de baja permeabilidad interesa alterar lo menos posible las condiciones del sistema, por lo que el empleo de arcillas lubricantes se intenta evitar en la mayor medida posible. Para la refrigeración de las coronas se emplea circulación de agua a lo largo del sondeo. Puesto que este agua, al entrar en contacto con la del sistema modificará las condiciones fisicoquímicas, será necesario una vez finalizada la perforación, realizar bombeos con el fin de extraer la mayor cantidad posible de agua alterada por la perforación. Para minimizar y controlar la perturbación producida en el agua subterránea por la perforación de sondeos se adoptan las siguientes medidas:

- a) Selección de un agua para la perforación de características químicas semejantes a la de la zona de estudio. Hay que considerar también que su situación permita el fácil abastecimiento y que su volumen permita garantizar su utilización en todos los sondeos a perforar.
- b) La utilización de trazadores en las aguas de perforación constituye una buena herramienta

para evaluar la presencia de agua de perforación en los sondeos y para una primera información sobre los flujos preferentes del agua subterránea.

Los trazadores han de ser seleccionados de acuerdo con las características siguientes:

- El trazador no debe ser un componente natural del agua de la formación. Si existe, su concentración debe ser inferior a los límites de detección de la técnica analítica empleada.
- Los trazadores han de ser conservativos.
- La concentración de trazador debe de ser fácilmente medible en campo, mediante técnicas analíticas de manejo sencillo.

Unidad Móvil

Para la realización de trabajos de análisis químico a pie de sondeo, se dispone de la unidad móvil de caracterización hidrogeoquímica, una unidad móvil que dispone de las técnicas necesarias para poder realizar los muestreos y posteriores análisis en las condiciones más fiables posibles. Para ello dispone, entre otros equipos de un cromatógrafo iónico con el que se puede realizar el análisis de los aniones y cationes mayoritarios, un valorador automático, para la determinación de la alcalinidad, dos espectrofotómetros, uno de ellos portátil, para análisis de diversas especies como sílice, hierro, aluminio y boro, entre otros. Asimismo consta de un sistema de destilación de agua por medio de resinas intercambiadoras, que permite la producción de agua destilada con calidad analítica.

Dadas las características propias de las zonas de muestreo, no es extraño que la localización de los sondeos sean de difícil acceso. Por ello se requiere que la unidad móvil disponga de una serie de características que le permitan el desplazarse por todo tipo de terrenos y que sea al mismo tiempo lo más autónoma posible en lo referente a su funcionamiento como laboratorio .

Métodos de bombeo

Para la extracción del agua de los tramos instrumentados se emplean distintos tipos de bomba. Es una parte fundamental en la caracterización de un agua, puesto que un muestreo realizado en malas condiciones dará lugar a la obtención de una muestra alterada. El caso más claro de alteración

de muestras se obtiene con muestreos realizados con bombas de vacío, lo que origina la desgasificación del agua y por ello, la obtención de datos inexactos de pH, alcalinidad, contenido en hierro o sulfuros. Por ello, se recomienda evitar el uso de este tipo de bombas para el muestreo de aguas subterráneas. Entre los métodos de bombeo, se puede realizar por medio de compresión con gas (gas-lifting) o mediante bombas eléctricas. En el primer caso, es el método que actualmente se emplea en instrumentaciones permanentes. El funcionamiento de este tipo de bombeo es el siguiente:

Se introduce gas a una presión regulada, generalmente nitrógeno, en el sondeo que se desea muestrear, en dirección a una cámara, que se encuentra llena de agua del sondeo a muestrear. Por efecto de la presión, el agua presente en la cámara se descarga por medio de una válvula unidireccional hacia la superficie, donde se puede recoger. El proceso se repite en cuanto la cámara se ha recargado de agua.

Entre las bombas empleadas se puede mencionar la bomba Bennett, que funciona por medio de un sistema de compresión de gas, aunque este no llega nunca a entrar en contacto con el agua a muestrear, por lo que es posible utilizar como proveedor de gas la propia atmósfera.

Con la bomba Bennett es posible realizar muestreos a profundidades superiores a los 800 m, durante intervalos de tiempo de varios días. Suministra un caudal de agua a pulsos.

La bomba Grundfos es otro modelo de bomba. Es una bomba eléctrica, que presenta como ventaja que el caudal puede ser regulado en función de las necesidades del trabajo a realizar. Permite un alto caudal de agua, y su funcionamiento es posible a lo largo de largos periodos de tiempo.

Muestreo y análisis

El muestreo del agua ha de realizarse cuando se cumplan una serie de condiciones, como que los parámetros físico-químicos que se controlan por la sonda hidroquímica se encuentren estabilizados, que la concentración de trazador empleado durante la perforación se encuentre por debajo de un valor preestablecido y que se considere como despreciable (generalmente, inferior al 2% de la concentración inicial). Un muestreo no realizado en las condiciones adecuadas invalida todos los estudios realizados posteriormente, por lo que es de suma importancia el tener un control exhaustivo de las condiciones de trabajo.

Medidas in situ

Durante el muestreo del agua se realiza un control en continuo por medio de una sonda hidroquímica de los parámetros fisicoquímicos del agua más relevantes.

Con esta sonda se puede medir en tiempo real la evolución de los parámetros según se procede a realizar el muestreo, lo que permite, entre otras cosas, evaluar las condiciones de muestreo y determinar el momento idóneo para realizarlo. De la misma forma, permite el control del muestreo y la evaluación de posibles incidencias, como pueden ser la parada de un bombeo, o la contaminación procedente de otra fuente. Los parámetros que se determinan son el potencial redox, la conductividad iónica, el pH, la temperatura y el oxígeno disuelto.

Posteriormente al control de los parámetros fisicoquímicos mediante una sonda, la muestra bombeada se hace circular por la cámara de guantes, que permite la realización del muestreo en condiciones anóxicas, lo que elimina la posibilidad de alterar la muestra por medio del oxígeno atmosférico.

Para preservar las muestras se realiza el almacenamiento de éstas en condiciones específicas, en función de lo que se desee analizar. Así, para estabilizar el contenido de hierro en las aguas y evitar la posible oxidación del Fe^{2+} disuelto a Fe^{3+} se añade una pequeña cantidad de HCl que estabiliza esta especie y evita su oxidación y posterior precipitación que falsearía los datos obtenidos.

De igual forma, se realiza el análisis "in situ" de aquellos elementos más susceptibles de verse alterados por causa del transporte y almacenaje de la muestra. En particular, la determinación de la alcalinidad, ha de realizarse en un plazo no superior a dos horas posteriores a su bombeo, puesto que se pueden originar variaciones en la concentración presente en la muestra, por efecto de procesos de desgasificación o precipitación.

Muestreo y caracterización del agua de lluvia

El agua de lluvia es, en principio, el término inicial de la evolución de las aguas subterráneas. Aunque su composición para una determinada posición geográfica y para un periodo de tiempo corto debe ser bastante constante, puede presentar algunas variaciones de composición química e isotópica de carácter estacional o accidental, que puede ser uti-

lizado como término de referencia en el análisis de mezcla de aguas, tiempos de reacción, flujo subterráneo etc.

Con el fin de conocer la composición química e isotópica del agua de lluvia en la zona y las variaciones estacionales, se mantiene una estación meteorológica que permita la recogida del agua de lluvia y suministre los datos meteorológicos básicos necesarios para el análisis hidrológico.

Muestreo de aguas subterráneas

Para realizar el muestreo se emplea una cámara de guantes portátil, purgada con N_2 de pureza superior a 99.9995% al menos tres veces previo a cada muestreo, con el fin de evitar toda posible contaminación con oxígeno atmosférico. Previo a la entrada del agua en la cámara de guantes se filtra por medio de un filtro GELMAN de $0,45 \mu m$.

En el muestreo de aguas subterráneas se realiza el siguiente procedimiento:

1. Calibración de los electrodos, previamente a cada muestreo, con los patrones correspondientes, y teniendo en cuenta las condiciones de temperatura y presión.
2. Medida de los parámetros pH, Eh, temperatura y conductividad, mediante la sonda HIDROLAB que permite la medida de parámetros físico-químicos bien sea en continuo, adaptando una celda de flujo en la que los sensores quedan inmersos, bien sea sumergiendo directamente la sonda en el punto de agua superficial que se quiera caracterizar. La sonda consta de un electrodo de pH, un electrodo de Pt para el control del Eh, un electrodo de referencia de calomelanos, una sonda de temperatura PT100, un electrodo de conductividad y un electrodo de oxígeno disuelto, todo ello conectado a un monitor con data-logger programable para la adquisición de datos.
3. Control en continuo de los parámetros físico-químicos del agua extraída hasta estabilización. Estas medidas se realizan con la sonda HIDROLAB.
4. Muestreo de alícuotas de agua para análisis. Este muestreo se realiza en una cámara de guantes portátil de la casa Aldrich a pie de los sondeos en la galería, en atmósfera de N_2 del 99,9999% de pureza. En principio, el disposi-

tivo de muestreo pretende minimizar la oxidación y desgasificación de la muestra.

5. Filtrado por $0.45 \mu m$
6. Recogida de alícuotas en botes de polietileno de 60, 125, 250 o 1000 ml, previamente lavados con HNO_3 y aclarados 10 veces con agua MilliQ. Estos botes son transportados hasta la zona de estudio llenos de agua desionizada para evitar posible contaminaciones con partículas de polvo. En el momento del muestreo los botes se enjuagan tres veces con el agua a muestrear.
7. Acidificación de los botes utilizados para el muestreo en función del constituyente que se vaya a determinar:
 - Para análisis de cationes, elementos traza, y uranio, se acidifican con ácido nítrico hasta un pH inferior a 1.5.
 - Para la determinación de amonio, se acidifican con ácido sulfúrico hasta un pH inferior a 1.5.
 - Para la especiación de hierro y análisis de carbono orgánico disuelto, se acidifican con ácido clorhídrico ultrapuro hasta un pH inferior a 1.5.

Los botes sin acidular se conservarán para la determinación de aniones: Cl^- , Br^- , I^- , F^- , NO_2^- , NO_3^- , SO_4^{2-} y PO_4^{3-} .

Se toman alícuotas para la determinación del contenido en tritio, ^{18}O y 2H , sin acidular.

8. Todas las muestras se transportan y se mantienen a $4^\circ C$ hasta su análisis en los laboratorios del CIEMAT.

Muestreo y análisis de isótopos

El muestreo para los análisis de isótopos requiere una metodología aparte de la citada anteriormente para el análisis químico. En el caso de los isótopos ^{18}O , 2H y 3H , no se requiere una mecánica diferenciada del resto, pero para el análisis de ^{13}C y ^{14}C es necesario realizar un muestreo diferente del convencional.

Es necesario obtener una considerable cantidad de carbono total para realizar el análisis isotópico de ^{13}C y ^{14}C , hasta de 1 g de carbono elemental por muestra por lo que el volumen de líquido a recoger variará en función de la concentración en carbonatos que presente el agua.

Para la determinación de ^{14}C se toman muestras de agua del orden de los 50 l., procurando evitar todo posible contacto con la atmosfera, con el fin de restringir contaminaciones de carbono reciente que podrían falsear los datos y se procede a la precipitación del HCO_3^- mediante la utilización de $\text{BaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, NaOH y $\text{SO}_4\text{Fe} \cdot 7\text{H}_2\text{O}$. Posteriormente, el análisis isotópico de ^{13}C y ^{14}C se realiza mediante espectrometría de masas.

Muestreo en sondeos con instrumentación WestBay

La instrumentación para sondeos WestBay presenta como característica principal la posibilidad de realizar la toma de muestras mediante un muestreador específico en el mismo tramo, lo que elimina la posibilidad de contaminación por contacto con el material durante el bombeo del agua hasta la superficie que puede darse en otros tipos de instrumentación. Además, permite la recogida de la muestra en las condiciones de presión existentes en el tramo, lo que es ideal para el análisis de los gases disueltos en el agua.

Como limitación presenta el escaso volumen de agua que se puede recoger en cada muestreo, lo que restringe los análisis que se pueden realizar.

Técnicas analíticas

Las técnicas de análisis utilizadas para la caracterización de las muestras de agua son las siguientes:

- ❑ Las determinaciones de elementos traza y ciertos cationes como Al, As, Ca, Mg, Fe, Mn, Li, se llevan a cabo por ICP-OES.
- ❑ Con la técnica de ICP-MS, de mayor sensibilidad, se analizan otros elementos traza tales como As, Be, Bi, Cd, Ce, Co, Cu, Hg, I, La, Li, Mo, Ni, Pb, Rb, Sb, Se, Sn, Sr, Th, Ti, V, W, Y Zn y U.
- ❑ La espectrofotometría UV-Visible permite la especiación del hierro por el método de la ferrozina y/o ortofenantrolina y la determinación de la sílice por el método del molibdato amónico.
- ❑ Los principales aniones (Cl^- , Br^- , F^- , NO_3^- , NO_2^- , PO_4^{3-} , SO_4^{2-}) se analizan por cromatografía iónica.
- ❑ I^- , S^{2-} , requieren la técnica de los electrodos de ion selectivo.

- ❑ La alcalinidad (expresada como carbonato cálcico) y la concentración de HCO_3^- se determina por valoración.
- ❑ El U se analiza mediante fluorimetría.
- ❑ El Na y K se realiza por espectrometría de absorción atómica.
- ❑ La determinación de NH_4^+ se realiza mediante electrodo selectivo.
- ❑ La concentración de carbono orgánico total se determina mediante un analizador LECO de carbono orgánico.
- ❑ ^3H mediante contadores de centelleo líquido.
- ❑ El análisis isotópico de ^2H y ^{18}O se realiza mediante espectrometría de masas.

Las determinaciones químicas de los iones sensibles se realizan "in situ", inmediatamente después de la toma la muestra, como el análisis de la alcalinidad (expresada como CaCO_3) que se realiza por valoración potenciométrica con un valorador automático.

Representatividad de las muestras

Los resultados analíticos de los muestreos se someten a evaluación de acuerdo con criterios de representatividad y de calidad analítica del agua. El balance de cargas es posiblemente el criterio más discriminante, ya que engloba los posibles errores realizados durante los muestreos así como los errores de análisis de las diferentes técnicas analíticas. Para calcularlo se emplean los iones mayoritarios en la siguiente ecuación:

$$\text{Balance} = [(\sum \text{cationes} + \sum \text{aniones}) / (\sum \text{cationes} - \sum \text{aniones})] \cdot 100$$

Se considera un margen de error permitido del $\pm 10\%$, a partir del cual se descartan las muestras, por considerar que corresponden a muestras que presentan algún tipo de error. Errores inferiores al 2% se consideran inevitables, en gran medida por los propios errores analíticos de las técnicas empleadas.

Metodologías específicas

La metodología explicada hasta ahora permite realizar muestreos para la determinación de los parámetros mas habituales como son las propiedades fisicoquímicas, aniones, cationes y elementos traza. Sin embargo, es necesario el uso de metodologías específicas para el muestreo de gases nobles, como

^3He , ^4He , Ne, Ar, Kr y Xe en las aguas subterráneas, o de isótopos como ^{14}C y ^{13}C .

El muestreo para el análisis de estos elementos conlleva el uso de precauciones extremas con el objeto de evitar posibles contaminaciones. Así, en el caso del análisis de gases nobles se emplean muestreadores de cobre con cierres por medio de mordazas de acero inoxidable. Estos isótopos permiten el establecimiento de las condiciones de recarga de las aguas, como la altitud, o la temperatura a la que se produjo.

Interpretación de resultados

Uso de códigos informáticos

En los sistemas geoquímicos presenta un interés principal la interacción agua-roca. A consecuencia de las propiedades del agua, se producen procesos de disolución de los diferentes minerales constitutivos de una roca, al mismo tiempo que se pueden originar fenómenos de precipitación de nuevas fases minerales, lo que conlleva una variación tanto en la composición química como de las propiedades físicas y químicas de la roca. Asimismo, por la movilidad del agua dentro de estos sistemas se produce un transporte de solutos que contribuye a la transformación del medio. El interés desde el punto de vista de la seguridad nuclear y protección radiológica de la realización de este tipo de estudios y de la utilización de modelos hidrogeoquímicos que simulan el comportamiento de los elementos radiactivos en la geosfera, es evidente, ya que las aguas subterráneas son el principal agente movilizador de radionucleidos en medios naturales y uno de los principales en el transporte de contaminantes desde las colas de minería hasta la biosfera.

Una forma de estudiar todos estos procesos, es la utilización de los denominados códigos de modelización hidrogeoquímica. Estos códigos permiten realizar simulaciones con la composición química de aguas con el fin de obtener los índices de saturación de fases minerales, lo que se define como una medida del grado de proximidad al equilibrio termodinámico entre un determinado mineral y el agua objeto de estudio.

Los modelos geoquímicos han sido diseñados con el propósito de interpretar las reacciones que tienen lugar entre soluciones acuosas que se encuentran en contacto con diferentes fases minerales, en cualquier tipo de sistema en que se produzca una inte-

racción agua-roca. Dada la gran variedad de sistemas que existen, ha de considerarse un amplio número de parámetros para poder definir la mayor cantidad posible de ellos, desde la temperatura y presión, pasando por los datos termodinámicos del mayor número posible de minerales, hasta los factores necesarios para la calcular la actividad iónica de cada especie presente en disolución.

A la hora de considerar la validez de un determinado código, no se ha de examinar únicamente la base teórica en que se fundamenta para su funcionamiento, sino también en la precisión de los datos termodinámicos empleados en su base de datos, dado que el código nunca podrá dar mayor precisión que la de los datos utilizados.

Desde el momento del desarrollo de los primeros modelos geoquímicos, se han diferenciado en dos diferentes grupos. En primer lugar se encuentran aquellos que se centran en la simulación de las condiciones de equilibrio en que se encuentra un agua determinada, evaluando la proximidad a estados de saturación de diferentes fases minerales y considerando la especiación de los iones presentes en disolución acuosa. A este grupo de modelos se los denomina de "equilibrio químico" o "estáticos". El otro grupo a considerar es aquel que simula los procesos de disolución, precipitación, intercambio iónico, que pueden tener lugar durante la transformación de un agua determinada en otra de composición diferente. Son los modelos denominados de "evolución" o "dinámicos". Dentro de éste tipo de códigos a su vez se puede subdividir en dos tipos diferenciados, por un lado se encuentran aquellos que consideran una modelización directa, en donde se considera la evolución y se predice la composición del agua si se supone que se producen determinadas reacciones, y la modelización inversa, en la que se considera la transferencia que se ha producido de elementos a partir de un término fuente, considerando los posibles procesos de disolución y precipitación a partir de datos químicos e isotópicos.

Dentro del primer grupo de códigos "estáticos" se encuentra el código EQ3NR, el cual forma parte de un conjunto de códigos de ordenador diseñado por Thomas Wolery, con bases de datos asociadas para su empleo en la modelización de los procesos geoquímicos que tienen lugar entre soluciones acuosas y suelos, roca o residuos sólidos. Su uso se centra en cálculos de especiación de disoluciones, cálculos de índices de saturación de minerales, y de control por especies minerales de alguno de los iones

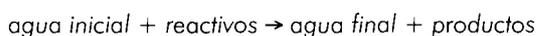
presentes en disolución. Es posible manejar tanto aguas diluidas como las que presentan una elevada fuerza iónica, en función del formalismo que se emplee, ya sea las ecuaciones de Pitzer para soluciones concentradas o un formalismo de Debye-Hückel extendido para los sistemas más diluidos. Las bases de datos empleadas son de las más amplias de su clase, incluyendo tanto gran número de especies orgánicas como inorgánicas.

En este grupo de modelos, los denominados "dinámicos", podemos clasificar al código EQ6 como de evolución directa, y al código NETPATH como de evolución inversa. El código EQ6, perteneciente al conjunto de códigos diseñados por Wolery, permite la modelización de diferentes tipos de procesos, entre los que se incluye la simulación de procesos de disolución y precipitación de minerales, lixiviado de residuos e incorporación de metales pesados en minerales secundarios. Además es posible crear y evaluar modelos que incluyen los efectos del equilibrio químico y cinética. Emplea las mismas bases de datos que EQ3NR.

Se define como modelización dinámica inversa a la que se realiza cuando se calcula la transferencia de masa que se produce entre un agua de partida y un agua final, a partir de los datos de composición química e isotópica. NETPATH se desarrolló con el propósito de interpretar reacciones globales geoquímicas de balance de masas, entre las aguas iniciales y finales de un camino de flujo.

Con este programa se desarrollan modelos en los que se considera el proceso por el cual un agua inicial al reaccionar con determinadas fases da lugar a otro agua con una determinada composición más otras fases como producto final. Su empleo está básicamente centrado en la investigación de reacciones químicas a lo largo de la evolución geoquímica de un sistema acuoso, presentando una opción para realizar modelizaciones de la evolución de los isótopos de C, S, y Sr en el sistema, así como cálculos de las edades de las aguas mediante datación de ^{14}C . Permite además el trabajar con estados redox de las especies.

El planteamiento seguido en este tipo de códigos es del tipo:



en donde la composición del agua inicial y final están determinados previamente por métodos analíticos. La cuestión en estos casos es que suele haber varias soluciones a esta reacción, lo que señalaría la opción de diferentes modelos posibles. Existen

varias restricciones que reducen el número de opciones posibles, al ser necesario tenerlas en consideración

- La estabilidad de los sólidos
- Los valores termodinámicos
- Los contenidos isotópicos
- Las cantidades de los reactivos que intervienen

Ha de tenerse en cuenta que a la hora de realizar un balance de masas se considera a los elementos totales, por lo que los datos expresados como especies se han de transformar en valores para el elemento total.

PHREEQE (Parkhurst, Plummer y Thorstenson, 1980) Y PHRQPITZ (Plummer et al. 1988) son dos códigos que realizan tanto cálculos de especiación y solubilidad, como de caminos de reacción, englobándose dentro de los códigos de "Evolución directa". La diferencia en PHRQPITZ se basa en el empleo de las ecuaciones de Pitzer para el cálculo de los coeficientes de actividad. Ambos han sido desarrollados por el US Geological Survey, y están escritos en FORTRAN. Ninguno de los dos posee una base de datos propia, PHREEQE emplea la del WATEQ y PHRQPITZ usa la base de datos de Harvie, Moller y Weare ampliada.

Cálculo de índices de saturación y especiación

Cuando se realiza un análisis de composición de aguas de sistemas en los que existe interacción agua-roca, presenta un interés fundamental el conocimiento de qué fases minerales se encuentran en estado sobre o subsaturado con respecto a la composición química del agua. Esto facilita información sobre el posible origen y evolución del agua. Para realizar estos cálculos el código geoquímico emplea el valor de los índices de saturación, los cuales se pueden calcular con la siguiente ecuación:

$$IS = \log (Q/K)$$

Donde Q corresponde al producto de actividades de las especies componentes de la fase mineral estudiada, y K es el valor de la constante equilibrio para una reacción de disolución. Cuando un valor sea positivo indicará que la correspondiente fase mineral se encuentra en estado de sobresaturación, si el valor es negativo subsaturación y si es cercano a cero, señalará una situación cercana al equilibrio. Los valores así obtenidos ha de tenerse en cuenta de todas formas que están basados en parámetros termodinámicos, no considerándose factores cinéti-

cos, por lo que serán indicativos exclusivamente de una tendencia del sistema, que no representa necesariamente la evolución de éste.

El empleo de los índices de saturación permite el cálculo de aguas de composición en estado de equilibrio con determinadas fases minerales. Para ello se incluye la restricción de que una fase mineral controla la concentración de las especies en disolución que se encuentren en equilibrio con ella. De igual forma, con los códigos dinámicos es posible realizar cálculos de procesos de disolución y precipitación de fases minerales considerando mecanismos controlados cinéticamente.

La especiación química es un método muy útil para dividir las concentraciones totales de un elemento en sus correspondientes actividades iónicas específicas. La determinación de la contribución de las actividades iónicas específicas de cada especie a la concentración total de un determinado elemento, así como el cálculo del producto de actividad iónica, son dos factores determinantes sin los cuales no es posible el cálculo y la comparación de las solubilidades de los minerales implicados dentro de un sistema.

Los coeficientes de actividad son función de la composición de la disolución, temperatura y presión. Para calcularlos existen diferentes ecuaciones, empleándose en este caso una ecuación extendida de Debye-Huckel, en la que se considera que los coeficientes de actividad son función de la fuerza iónica:

$$\log \gamma = -(A_\gamma z_i I^{1/2} / (1 + aB_\gamma I^{1/2})) + BI$$

Si se retira de la ecuación el término BI, se obtiene una ecuación clásica de Debye-Huckel. El término a corresponde al diámetro de la especie iónica, A_γ y B_γ son los parámetros de Debye-Huckel, B un parámetro específico de esta ecuación, I la fuerza iónica y z la carga eléctrica de la especie. Para el cálculo de la fuerza iónica se emplea la siguiente ecuación:

$$I = 1/2 \sum m_s z_s^2$$

donde m_s corresponde a la concentración molar de las especies implicadas. Por su parte, para el cálculo del coeficiente de actividad para especies neutras, se emplea la siguiente definición:

$$\log \gamma = BI$$

Generalmente, para especies polares este término se considera igual a cero (Garrels, 1967). Con este modelo no se considera la composición de la disolución, hecho que es perfectamente asumible para

disoluciones diluidas, que no alcanzan valores de concentración del orden de 1 molar, lo que generalmente es válido para un amplio abanico de aguas de sistemas naturales.

La constante de equilibrio K se define en función de la condición de equilibrio de la reacción:

$$\Delta G_r^0 = -RT \ln K$$

ó

$$\Delta G_r^0 = -2.303RT \log K$$

Para calcular Q se requiere conocer la especiación de los componentes presentes en disolución, así como el correspondiente valor de sus respectivas actividades. La constante de equilibrio de la reacción (K) se obtiene de las bases de datos disponibles en éstos códigos informáticos.

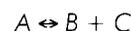
$$\log Q_i = b_{ij} \log a_i + \sum b_{sj} \log a_s$$

Donde a_i representa el valor de la actividad termodinámica de cada especie implicada en la reacción. Se diferencia entre las especies disociadas (a_s) y las neutras (a_i). El valor de b denota el número de moles implicados en la reacción de la especie.

$$a_s = m_s \gamma_s$$

Donde γ es el coeficiente de actividad y m la concentración molar de la especie en cuestión.

Cada equilibrio mineral se puede representar por una ecuación de acción de masas de las especies implicadas en la disociación. Para una reacción como la siguiente:



La relación correspondiente sería:

$$K_A = (a_B a_C) / (a_A)$$

K es la constante de equilibrio de la reacción y a_i representa la actividad termodinámica de cada especie, que se encuentra relacionada a la concentración molar.

Por tanto, para poder calcular el índice de saturación de un mineral en un sistema acuoso, deberemos conocer la especiación de dicho sistema y las correspondientes actividades para cada especie implicada en la reacción.

Estudios isotópicos

Al estudiar un sistema es posible encontrar diferentes modelos de balance de masa que expliquen el comportamiento del agua subterránea. Una vía para el refinamiento de los modelos es mediante el

uso de los datos disponibles referentes a isótopos estables, puesto que cualquier modelo válido ha de justificar no solamente la evolución química de los iones mayoritarios sino también la composición isotópica de las aguas.

El estudio isotópico en las aguas de una región facilitan una información complementaria a la obtenida por medio de la hidroquímica e hidrogeología. Por un lado, el estudio de isótopos estables como ^{18}O y ^2H puede facilitar información de las áreas de recarga, la existencia de procesos de evaporación, e incluso, asociado con el estudio de los isótopos radiactivos, estudios paleoclimáticos.

Los isótopos radiactivos, como ^3H y ^{14}C , facilitan información de los tiempos de residencia de las aguas en el sistema. El uso del tritio se restringe a aguas con edades no superiores a 50 años, fecha en la que se produjeron las primeras pruebas term nucleares, y que originaron un incremento dramático en la atmósfera de éste isótopo. Por su parte, el uso del ^{14}C se puede extender para aguas con antigüedades superiores a 25.000 años. Desafortunadamente, el uso de la básica ecuación del tiempo de semidesintegración de un radioisótopo no es directamente aplicable al trabajar con este isótopo, al existir interacciones entre la roca y el agua disuelta que pueden modificar la relación isotópica en el agua. Es por ello que se requiere realizar ciertas correcciones teniendo en consideración los posibles procesos que puede haber sufrido el agua desde su entrada en el sistema. Una de estas correcciones corresponde al formalismo de Eichinger, en la que utilizando el valor de ^{13}C obtenido, y los conocidos de las fases que interactúan con el agua, como el CO_2 atmosférico o el CaCO_3 presente en la roca, se puede realizar una corrección de la correspondiente edad del agua.

El isótopo radiactivo ^{14}C se genera naturalmente en la atmósfera, entrando en el sistema de aguas subterráneas en el área de recarga. La concentración de ^{14}C en la atmósfera se ha mantenido prácticamente constante hasta fechas recientes. Puesto que se conoce el tiempo de semidesintegración de éste isótopo (5730 años), es posible calcular la edad del agua a partir del contenido en éste isótopo, siempre y cuando el decaimiento radiactivo haya sido la única causa de la disminución de éste en el agua:

$$Edad = (5730/\ln 2) \ln(A_0/A)$$

Siendo A la concentración de ^{14}C de la muestra y A_0 es la concentración inicial de ^{14}C en el sistema

de aguas subterráneas cuando se produce la recarga. Sin embargo si se producen reacciones geoquímicas que involucren ganancia o pérdida de C de la solución, debe de modificarse la ecuación para poder considerar esa transferencia.

$$Edad = (5730/\ln 2) \ln (A_{nd}/A)$$

Donde A_{nd} corresponde a la concentración resultante de las reacciones químicas, sin considerar los cambios originados por el decaimiento radiactivo. Este valor se obtiene por medio de diferentes formalismos, como el mencionado anteriormente de Eichinger.

Una vez realizados todos los muestreos y los posteriores análisis, la siguiente etapa será la del estudio e interpretación de los datos. Para ello se requiere del uso de diferentes metodologías de estudio, como es el empleo de modelos informáticos, estudios estadísticos, o análisis de diagramas ión-ión, así como el apoyo de otro tipo de estudios como son los hidrogeológicos, mineralógicos o estructurales. Todo ello conjugado, nos permitirá el poder definir un modelo de funcionamiento geoquímico del sistema estudiado. Este modelo a su vez es la herramienta que permitirá el realizar predicciones a corto y a largo plazo del funcionamiento del sistema.

Conclusiones

El control y estudio geoquímico de las aguas requiere de una metodología muy definida, en la que se ha de poner especial énfasis en el control de las condiciones de muestreo y análisis, dada la multitud de variables implicadas.

Por la misma razón es necesario el uso de herramientas de estudio muy potentes como son los códigos geoquímicos y la estadística para el estudio del sistema. Dada la multitud de procesos susceptibles de producirse en un medio natural, es necesario poseer un amplio conocimiento químico con el objeto de realizar los estudios pertinentes.

Bibliografía

- Garrels, R.M. (1967). Genesis of some groundwaters from igneous rocks. *Researches in Geochemistry* 2, John Wiley and sons, N.Y., 405-420.
- Eichinger, L.A., (1983). A contribution to the interpretation of ^{14}C groundwater ages considering the example

- of a partially confined sandstone aquifer. *Radiocarbon*, 25, 347-356.
- Langmuir, D. (1997). *Aqueous environmental geochemistry*. Prentice-Hall. Upper Saddle River, N.J.
- Parkhurst, D.L., Thorsterson, D.C., y Plummer, L.N., (1980). PHREEQE. A computer program for geochemical calculations: US Geological Survey Water Resources Investigations 80-96.
- Plummer, L.N, Prestemon, E. C, y Parkhurst, D.L. (1991). An interactive code (NETPATH) for modelling NET geochemical reactions along a flow PATH. U.S. Geological Survey, Water-Resources Investigation Report 91-4078.
- Wolery, T.J. y Daveler, S.A. (1992). EQ6, a computer program for reaction path modelling of aqueous geochemical systems: Theoretical manual, User's guide and related documentation (v7.0) 337pp.
- Wolery, T.J. (1983). EQ3NR, a computer program for geochemical aqueous speciation-solubility calculations: Theoretical manual, User's guide and related documentation (v7.0) 246pp.

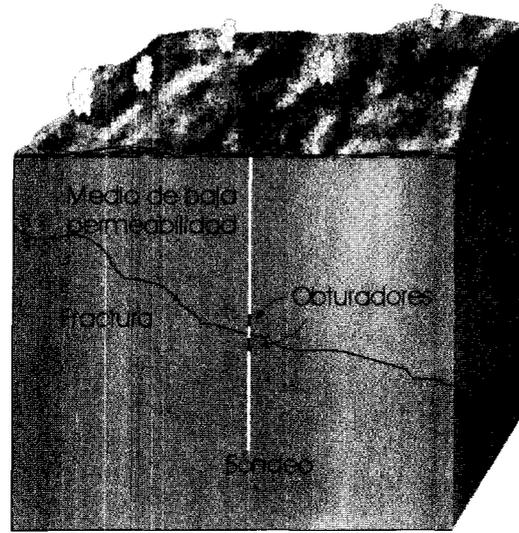


Figura 1. Ejemplo de un sondeo en un medio de baja permeabilidad. El sondeo corta una fractura que es el elemento del medio que presenta mayor conductividad hidráulica y por ello se selecciona para ser aislada y posteriormente, analizar el agua que circule por ella.

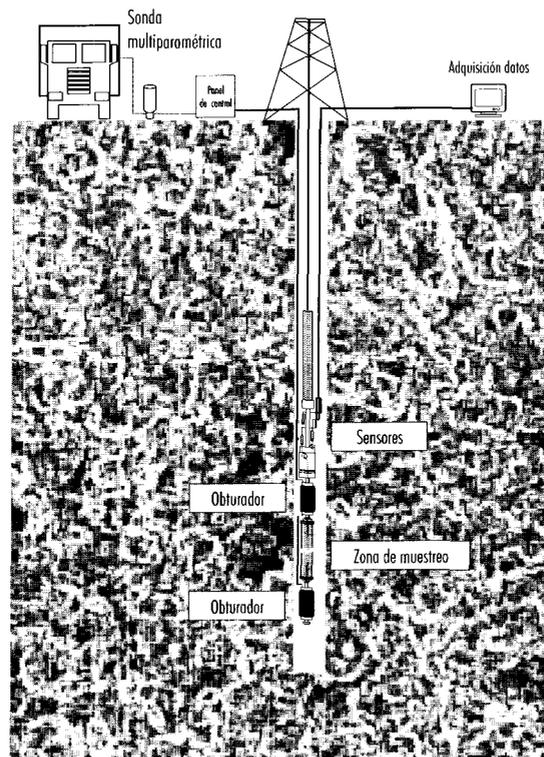


Figura 2. Ejemplo de instrumentación de sondeos empleada (Aitemin-CIEMAT).

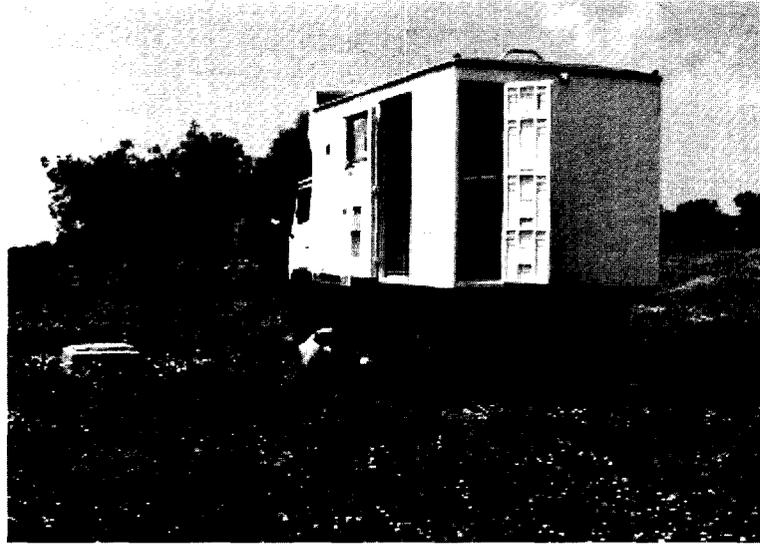


Figura 3. La unidad móvil de caracterización hidrogeoquímica.



Figura 4. Instalación del sistema de obturadores en las zonas más representativas del sondeo.

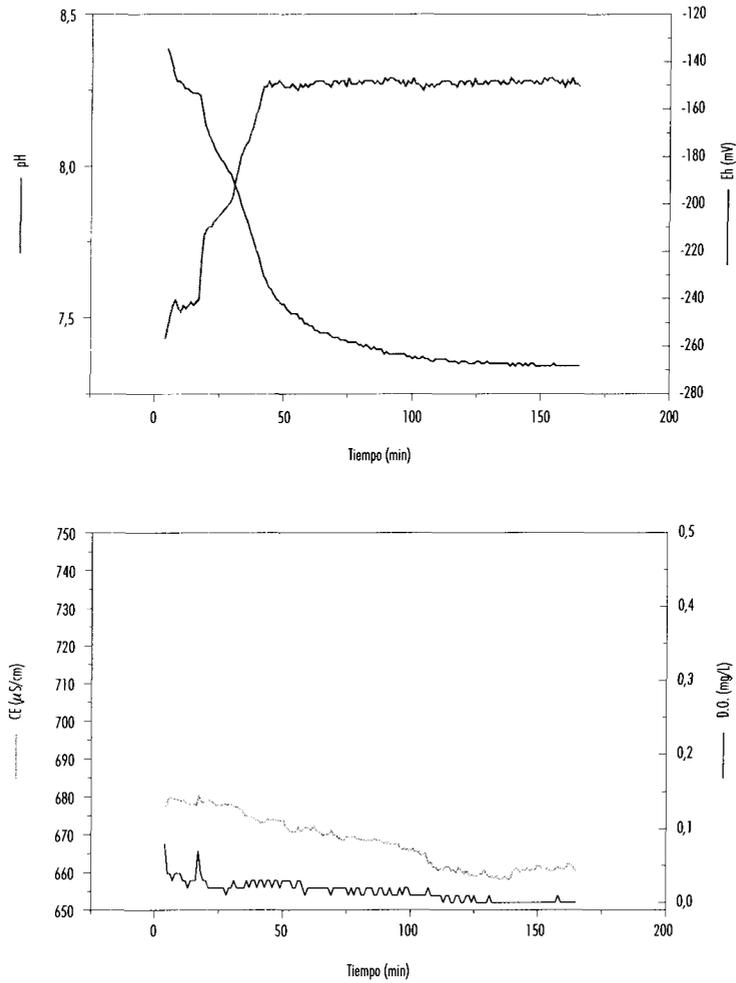


Figura 5. Ejemplo de la evolución de los valores de Eh, pH, CE y DO durante un muestreo. Se observa la tendencia final de los valores a alcanzar la estabilidad, lo que indica la idoneidad de condiciones para la realización del muestreo.

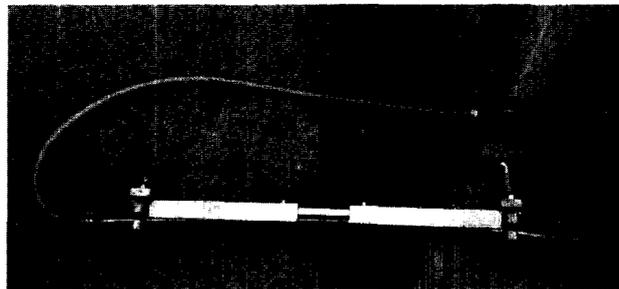


Figura 6. Muestreador para gases nobles. Esta botella está diseñada específicamente para este tipo de muestreos, con el objeto de evitar la pérdida de las gases nobles presentes en disolución en las aguas subterráneas. Para ello, dada la elevada fugacidad de estos gases se emplea un entubamiento de cobre, que se cierra por medio de mordazas de acero inoxidable.

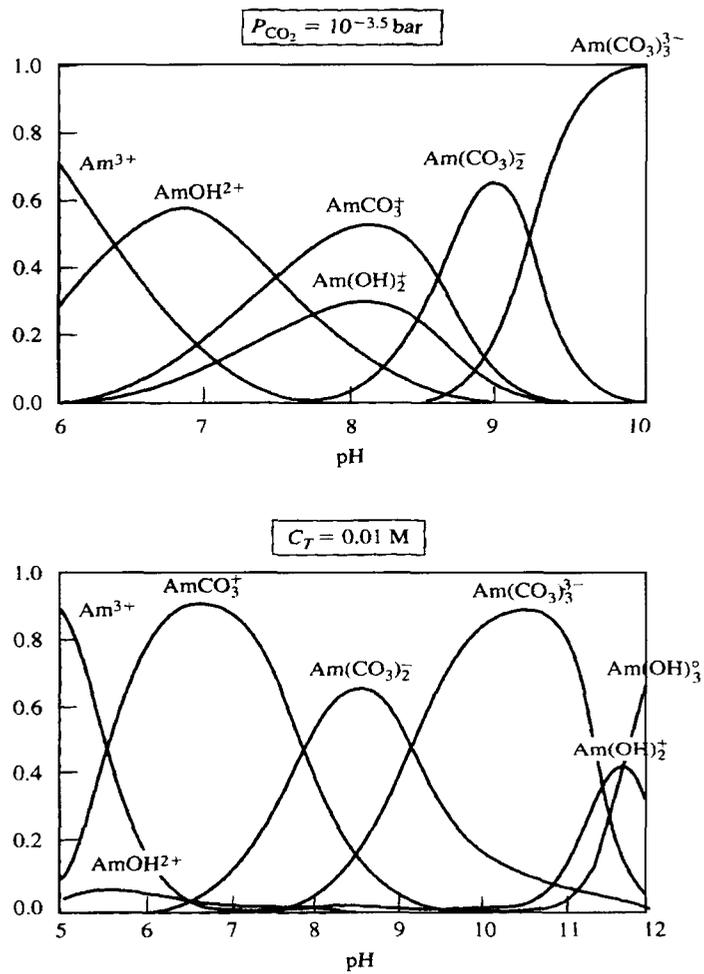


Figura 7. Variación de la especiación en función del pH para el plutonio. El empleo y uso de los códigos geoquímicos para evaluar las condiciones y efectos de la especiación en un sistema, es una herramienta idónea.

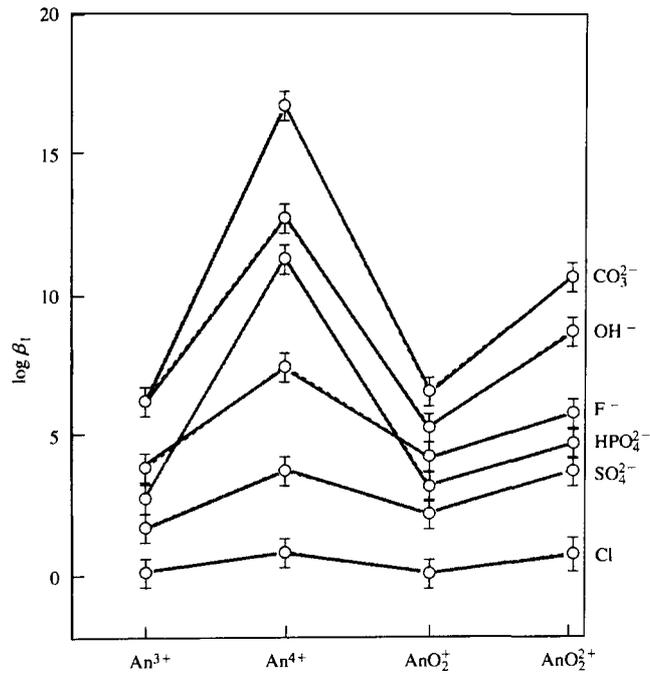


Figura 8. La presencia de diferentes ligandos modifica el comportamiento de los radionucleidos. Al igual que con la especiación, por medio de los códigos geoquímicos es posible estudiar la influencia de éstos en un sistema con la suficiente rapidez. En la figura se representan las constantes de formación de complejos (1:1) para actinidos (An) y se observa cómo éstos varían en función de la predominancia de uno u otro tipo de ligando (Longmuir, 1997).

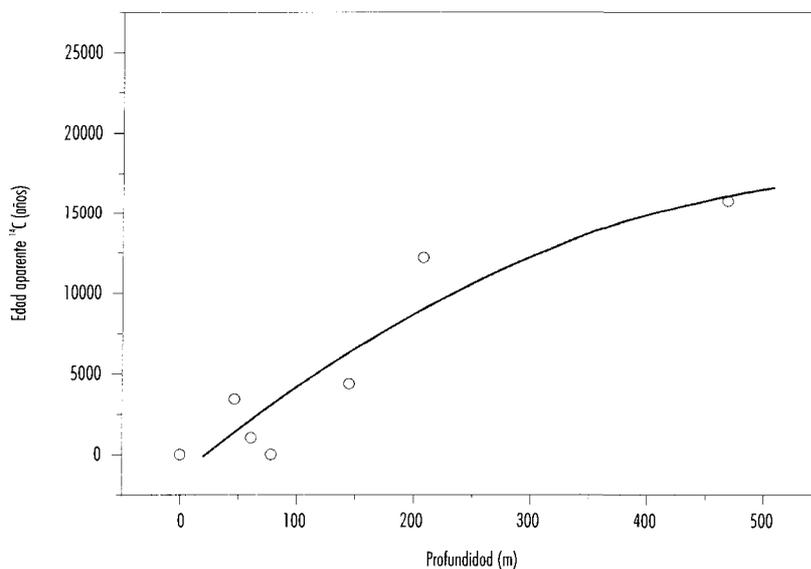


Figura 9. Determinación de tiempos de residencia y temperaturas de recarga de las aguas subterráneas por medio del estudio de radioisótopos. Estos estudios a su vez, permiten el establecimiento de las condiciones de equilibrio químico basado en la dotación de las aguas, puesto que permiten establecer una evolución temporal de la composición química de las aguas.

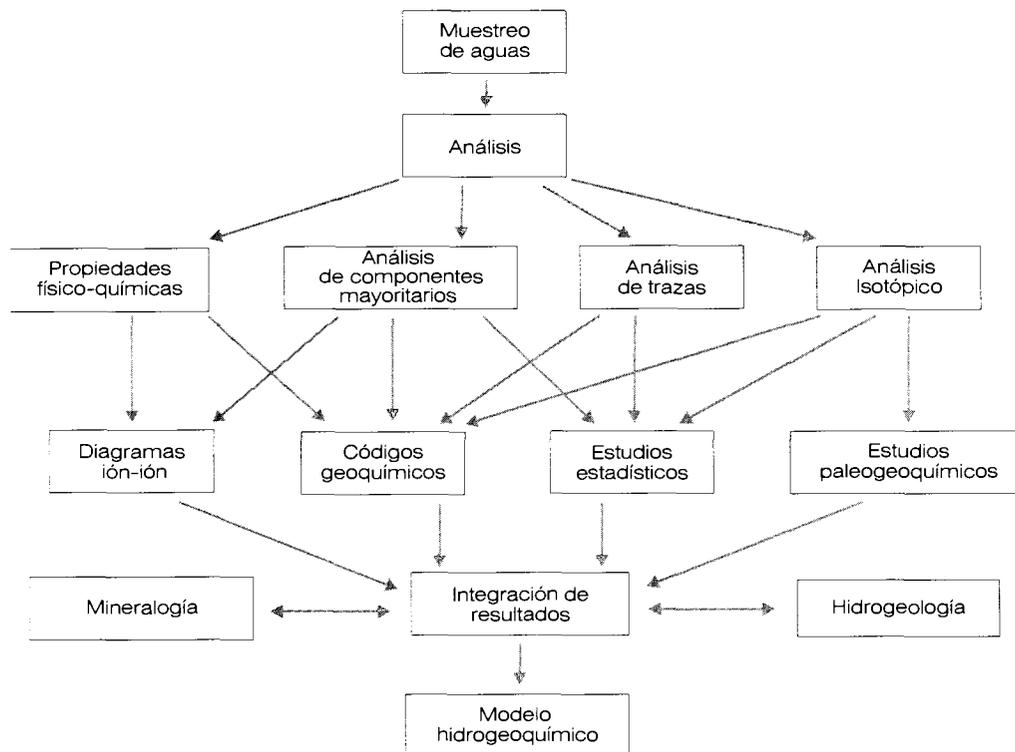


Figura 10. Esquema de la metodología aplicada en la interpretación y desarrollo de un modelo hidrogeoquímico.

MODELACIÓN DEL ENTORNO DE LA MINA RATONES (CÁCERES)

Lurdes Martínez Landa, Jesús Carrera
UPC-DIT

Resumen

Este trabajo forma parte de un proyecto para la restauración de antiguas minas de uranio, en particular la Mina Ratones (Cáceres), que por sus especiales características se ha tomado como referencia de control del programa de restauración. Como estudios complementarios se incluyen geología, geofísica, hidrogeoquímica e hidrogeología, con el objetivo de conocer la incidencia de los trabajos de restauración en las aguas subterráneas asociadas a la Mina. Este estudio será de utilidad de cara a comprender el funcionamiento de otras minas similares, aportando criterios para mejorar las actividades de restauración ambiental actual y futuras.

En ese artículo se presenta la caracterización hidrogeológica del conjunto de la mina. Como primer paso debe conocerse su posición con respecto al sistema regional de flujo, es decir, si está afectada por flujos regionales o si simplemente circulan a su través flujos locales. Para dar respuesta a este problema se utilizó un modelo tridimensional de flujo de escala regional, en el que se introdujeron como datos la topografía (modelo digital del terreno), la recarga, el inventario de puntos de agua (como puntos de nivel conocido) y la geología (las distintas formaciones geológicas así como sus rasgos geológicos principales), entre otros.

Este modelo ha servido como base para los modelos locales del entorno de la mina, que serán los que nos proporcionen respuestas a preguntas tales como ¿de dónde viene el agua que recarga la mina?, ¿cuál es su zona de descarga? Para ello, y a lo largo del desarrollo del proyecto, se han ido realizando toda una serie de estudios complementarios que nos ayudan a configurar los modelos conceptuales a partir de los que se construyan los numéricos.

Los modelos locales (entorno de la mina) se construyen como una matriz rocosa en la que se incluyen, de forma discreta, las fracturas hidráulicamente más importantes. Además, se han incluido la mina (como un hueco), los sondeos y la topografía. Una vez representada la geometría se le asignan los parámetros a cada material (obtenidos de los ensayos hidráulicos realizados previamente), la anisotropía, la disminución de conductividad con la profundidad, etc. Por último, se procede a la calibración del modelo.

Como resultados podemos decir que, la circulación de las aguas a través de la mina es puramente local. Esta se encuentra físicamente situada en la zona de cabecera del arroyo Maderos, muy próxima a su cauce. Este arroyo tiene un marcado control estructural, discurriendo prácticamente durante todo su curso encajado en fracturas. Una de esas fracturas es la que favorece las descargas de la mina al arroyo.

Introducción

Este trabajo se enmarca dentro de las actividades previstas para la restauración de la antigua mina de uranio mina Ratones. Con el fin de determinar los efectos hidráulicos de las instalaciones de la mina en su entorno inmediato y los efectos causados por la restauración. Se han llevado a cabo toda una serie de estudios (hidrogeológicos, hidrogeoquímicos, geofísicos, etc.), que se interpretan conjuntamente utilizando modelos tridimensionales que recogen las características del entorno de la mina.

La modelación a escala local requiere de un conocimiento del flujo a escala regional y en el entorno de la mina para poder controlar las condiciones de

contorno del modelo local. Con este objetivo se desarrolló, inicialmente, un modelo tridimensional regional en el que se tuvieron en cuenta datos tales como la topografía, geología, climatología, etc. (Martínez-Landa et al, 1998).

Una vez establecidas las condiciones de contorno, se han de identificar las principales estructuras implicadas en el sistema de flujo de la mina, ya que es por ellas por las que circulará más rápido la mayor cantidad del agua que atraviesa la mina, por lo cual serán los caminos preferentes que comuniquen los posibles contaminantes con la biosfera. Por esta razón, éstas son las estructuras más importantes que es necesario tener en cuenta, de forma explícita, en el modelo hidrogeológico del entorno de la mina. El resto de las estructuras del granito, se tratarán de forma conjunta con la matriz, representándolos con parámetros hidráulicos equivalentes (matriz + fracturas menores).

El proceso de identificación de estas estructuras es complejo, para ello se disponen de datos obtenidos del uso de diferentes técnicas, cada una de las cuales proporciona información de distintos aspectos del medio. Estas técnicas son:

- ❑ Geofísica; tanto en sondeo como en superficie.
- ❑ Geología estructural; en superficie y en los testigos de los sondeos.
- ❑ Registros termométricos de las columnas de agua de los sondeos.
- ❑ Análisis químicos del agua (en tramos de sondeos aislados con obturadores, mina, arroyo, charcas...), y de la roca.
- ❑ Ensayos hidráulicos, en sondeo único y de interferencia entre sondeos.

Del estudio conjunto de la información aportada por cada una de ellas se identifican las estructuras principales para el flujo en el entorno de la mina.

Con esta geometría se construye el modelo, representando a la matriz con elementos tridimensionales, a las fracturas con elementos bidimensionales y a los sondeos con unidimensionales.

Los parámetros hidráulicos de las diferentes estructuras y de la matriz se han obtenido de las diferentes campañas de ensayos hidráulicos realizadas. De los ensayos de pulso se han obtenido los parámetros de la matriz, y de los de interferencia los del resto de las estructuras (diques sanos y alterados, y fracturas). Estos parámetros se introducen en el modelo como información previa y se procede a su calibración.

Situación geológica

De acuerdo con la subdivisión en zonas del Macizo Hespérico de la Península Ibérica (Julivert et al, 1972), el granito de Albalá se sitúa en el sector meridional de la Zona Centroibérica, más concretamente en el sector occidental del complejo plutónico de Montánchez (área GR-11 del proyecto AFA). El plutón de Albalá es el más tardío de todo el complejo. Desarrolla en el encajante una aureola de metamorfismo de contacto con una extensión media de 1.5 km bastante uniforme, salvo en el contacto oriental, cerca de Albalá, donde este granito se encuentra en contacto con otros granitos.

Existen numerosas fracturas y diques en el plutón. No obstante, puede reseñarse que las estructuras más penetrativas de este cuerpo ígneo son los diques y fracturas de dirección NNE-SSO que se formaron en la etapa tardimagmática (Figura 1).

La litología del entorno próximo de Mina Ratones está representada por las distintas aureolas que componen el plutón, que del exterior al núcleo son:

- ❑ Granito de grano medio a grueso con megacristales.
- ❑ Granito tipo Cabeza Gorda: leucogranito de grano medio con fenocristales.
- ❑ Granito tipo Millares: granito equigranular de grano medio.
- ❑ Granito tipo Perdices: leucogranito con placas de biotita.

Se considera que las diferentes asociaciones químicas podrían corresponder a diferenciados procedentes de un mismo protolito por tasas de fusión distintas (Pérez Estaún y Escuder, 1998).

Estas unidades están atravesadas por toda una serie de diques:

- a) *Diques de pórfidos graníticos.* Se han cartografiado 5 diques de pórfidos graníticos, en el plutón de Albalá, con extensión kilométrica. Espacialmente están restringidos a la parte central del plutón. La orientación de estos diques va de N10E a N25E, con buzamientos de unos 80° y una potencia comprendida entre 1 y 1.4 metros. A escala de afloramiento presentan contactos netos con el encajante granítico, sin evidencias de rejuegos importantes posteriores que ocasionarían su brechificación.
- b) *Diques de cuarzo.* Dentro de este tipo se distinguen entre filones de cuarzo con turmalina

y filones de cuarzo con apatito, y mineralizaciones de cuarzo asociadas.

- ❑ *Filones de cuarzo con turmalina.* Pueden llevar o no sulfuros, estos últimos son de mayor envergadura (potencias decimétricas a centimétricas), y frecuentemente brechificados por cataclisis posterior.
- ❑ *Filones de cuarzo con apatito y mineralizaciones de uranio asociadas.* Se emplazan en la etapa postmagmática. Son geometrías cartográficas, a veces en relevo, con direcciones constantes en torno a N10-30E. Son cuerpos tabulares de espesor métrico y continuidad hectométrica a kilométrica.

Obtención de parámetros hidráulicos

Con el fin de caracterizar el entorno de la mina, se planificó y realizó una serie de ensayos hidráulicos (Ortuño et al, 1999). Se comenzó con ensayos en sondeo único, para caracterizar el entorno próximo al mismo, identificando las zonas más transmisivas. Posteriormente se realizaron tres ensayos de interferencia, distribuidos en el espacio con el objetivo de caracterizar las estructuras que se creían más importantes. Así, se realizaron (Figura 2):

- ❑ *Ensayo norte.* Objetivo, caracterizar el filón explotado aguas arriba de la mina, para obtener los parámetros hidráulicos de un filón sin afectación por las labores mineras, ni por la circulación de las aguas que atraviesan la mina.
- ❑ *Ensayo este.* Objetivo, caracterizar la falla Norte. Tras nueve días de bombeo (SR3-1) no se obtuvo ninguna respuesta en el punto de observación (SR2-1), separado 190 metros del bombeo.
- ❑ *Ensayo sur.* Situado aguas abajo de la mina, con el objetivo de caracterizar la falla Sur. Esta es la zona más propicia para la realización de ensayos de interferencia por la proximidad de varios sondeos, proporcionando diversos puntos de observación que respondieron claramente al bombeo.

De la interpretación de todos estos ensayos se han obtenido los parámetros hidráulicos de los materiales (matriz, fracturas), introducidos en los modelos numéricos. Todos y cada uno de los ensayos han sido interpretados con el código MARIAJ-IV (Carbognani et al, 1997). Esta interpretación se realiza pun-

to a punto. Es decir, cada punto de observación se calibra por separado, lo que resulta un factor limitante a la hora de representar la heterogeneidad, tan marcada en este tipo de medios. Por este motivo se ha realizado una segunda interpretación del ensayo Sur (debido a que ha sido el que mejores resultados ha proporcionado), utilizando un modelo numérico tridimensional que representa los rasgos estructurales característicos del volumen rocoso involucrado en el ensayo, es decir, la heterogeneidad.

Modelación del entorno de la mina

Modelo conceptual

La mina se sitúa en la cabecera de la cuenca del arroyo Maderos, muy próxima a su cauce. Este arroyo tiene un marcado control estructural, discutiendo prácticamente durante todo su recorrido encajado en fracturas. En la zona de descarga de la mina, éste se encaja en la falla Sur, favoreciendo su descarga.

El granito está cubierto por una capa superficial (lehm) producto de su propia alteración *in situ*. En la zona de la mina se le supone un espesor aproximado de un metro, haciéndose más potente en el cauce del arroyo, debido a la alteración superficial que presenta la banda de cizalla en la que éste se encaja (falla Sur).

La capa de lehm juega un papel importante, ya que debido a su mayor conductividad hidráulica favorece el flujo subsuperficial drenando rápidamente el agua de la lluvia. Durante un período seco descienden los niveles y se seca, dejando de verse fluir el agua por el arroyo, pero no por la capa de lehm acumulada en su cauce, por lo que se mantiene un flujo subsuperficial. Esta hipótesis se ve reforzada por los flujos ascendentes medidos en el tramo del sondeo SR4 que corta a la falla Sur (surgente todo el año), y porque la "charca de la tortuga" (especie de pocito excavado muy próximo al cauce) no se seca en todo el año.

Los filones explotados representan una zona de transmisividad y coeficiente de almacenamiento muy grandes, actuando como grandes drenes. El agua que entra en la mina, parece descargar hacia el arroyo a favor de los propios filones, y de la banda de fracturación que los engloba. Esto se observa claramente en el tramo dos del sondeo SR1 que, a pesar de no cortar directamente el hueco de la

mina, corta al filón 27 bastante cerca de ésta, aguas abajo. Su respuesta hidráulica a las diferentes perturbaciones, así como su química, es idéntica a la de la mina (representada por el Pozo Maestro).

En resumen, la mina actúa drenando las aguas de la zona norte, como si fuera una prolongación del arroyo al que posteriormente descarga. La falla Sur favorece su descarga al arroyo.

Modelo numérico

El primer paso para la realización de un modelo numérico es la creación de un modelo conceptual que represente el sistema real, lo cual ha sido el objeto del apartado anterior. El modelo conceptual se expresa por medio de ecuaciones que forman las bases del modelo numérico.

Para que un modelo pueda reproducir la realidad, debe tener en cuenta los procesos más relevantes, con una estructura adecuada. Dado que no es posible modelar todos y cada uno de los procesos que tienen lugar en un sistema real, se debe recurrir a simplificaciones que permitan representar razonablemente su variabilidad espacial y temporal.

El código utilizado para la calibración del modelo presentado en este informe es la versión III de TRANSIN (Galarza et al, 1996). Dicho código permite la calibración automática de los parámetros hidráulicos, resolviendo el problema inverso para las ecuaciones de flujo y transporte. Estas pueden ser lineales o no lineales, en una, dos o tres dimensiones, usando elementos finitos para la discretización espacial y diferencias finitas ponderadas para la discretización temporal. El problema inverso consiste en la estimación de los parámetros del modelo a partir de la respuesta del sistema y de una adecuada información previa de los parámetros.

Todos los parámetros del modelo (transmisividad, conductividad hidráulica, coeficiente de almacenamiento, recarga, nivel y caudal prescritos en los contornos, goteos, dispersión, difusión, retardo, desintegración radioactiva, porosidad, concentración externa en fuentes o sumideros), pueden variar arbitrariamente en el espacio y/o en el tiempo.

Geometría

Dentro del término "geometría" se engloban todas aquellas estructuras físicas consideradas relevantes y que se quieren introducir de forma explícita en el modelo numérico. De esta forma nos aseguramos

que se respeten tanto su forma como su posición geográfica.

En este modelo se ha efectuado una diferenciación de materiales, entendiendo como material a las zonas con propiedades hidráulicas diferentes a las que se asignan, por tanto, distintos parámetros hidráulicos. Así tenemos diferenciados la matriz y las bandas de cizalla (zonas de mayor fracturación alrededor de las estructuras principales, filones y falla Sur). Se ha introducido el arroyo Maderos, así como la capa superficial del lehm.

Los filones se representan como planos bidimensionales (también la mina) con una banda alrededor (Figura 3), que representa una zona de mayor conductividad hidráulica que la matriz granítica debido a la presencia de todo un cortejo de fracturas que acompañan a los filones. Lo mismo ocurre con la zona de cizalla de la Falla Sur, representada también como otra zona de diferente conductividad hidráulica en el modelo (Figura 3).

El ancho de estas bandas ha quedado definido por:

- El tramo SR1-1, ya que este sondeo atraviesa el filón 27 y este tramo se encuentra situado en la banda del filón 27.
- En el caso de la cizalla Sur, el ancho se ha medido en el testigo del sondeo, ya que el sondeo SR4 atraviesa por completo la zona de cizalla (Figura 3).

En la figura 3, además de las grandes estructuras ya mencionadas, se muestran otras como la llamada Falla E-W, cartografiadas en superficie y claramente identificables por otro tipo de medios (geofísica, química), que también han sido incluidas en el modelo.

Existen también otras estructuras sin una realidad física como tal, es decir, no son puramente un plano de fractura como se representan en el modelo (fractura S10), sino que surgen de la necesidad de simplificar la realidad. La fractura S10, que como su nombre indica corta al sondeo S10, representa una serie de posibles estructuras que se intersectan, estableciendo una conexión entre los sondeos S10 y el tramo 1 del SR4 (Figura 4).

Materiales

Se entiende por materiales a las zonas con propiedades hidráulicas diferentes, a las que asignamos distintos parámetros hidráulicos. En este caso, aún siendo todo el volumen a modelar de un único ma-

terial geológico (granito), su estructura lo marca con propiedades hidráulicas distintas.

Así, se han distinguido tres materiales (Figura 5):

- *Bandas de cizalla.* Zonas de mayor conductividad hidráulica debido a la mayor densidad de fracturación del granito.
- *Matriz rocosa del entorno de la mina.* Matriz del dominio en el que se tiene mayor cantidad de información, por lo que se han podido identificar mayor número de estructuras hidráulicamente importantes, con lo que la conductividad hidráulica que se le asigna es menor.
- *Matriz rocosa exterior al entorno de la mina.* Al pertenecer todo el dominio a un mismo sustrato geológico, sería esperable que esta zona tuviera una conductividad similar a la de la matriz del entorno de la mina. Pero, al no tener mucha información, no se han identificado tantas estructuras como en las inmediaciones de la mina. Por lo tanto la conductividad equivalente (que es la que calibra el modelo) debería ser mayor.

Condiciones de contorno

Para poder introducir al modelo unos contornos en los que se puedan inferir los valores de las condiciones de contorno, se ha llegado hasta la divisoria de aguas de la cuenca del Arroyo Maderos, debido al desconocimiento del funcionamiento hidráulico de otras estructuras más próximas al entorno de la mina.

El contorno superior del modelo (Figura 6) reproduce la topografía, basándonos en un Modelo Digital del Terreno (asignando la cota topográfica a cada nudo). En esta zona se introduce una recarga, o caudal por unidad de superficie, al acuífero.

En esta capa también hay una zona de descarga de pie de monte (Figura 6), así como una serie de arroyos en los que el caudal que entra o sale es proporcional a la diferencia de niveles entre arroyo y acuífero.

Los contornos en la vertical se han tomado de la siguiente forma. Al tratarse de una cuenca hidrográfica, en principio se le ha asignado unos contornos de caudal nulo (divisoria de aguas). Pero este efecto no abarca toda la potencia del modelo, dado que la cuenca es relativamente pequeña, con una topografía no muy marcada, y se halla al Norte de la cuenca del Ayuela (topográficamente más baja), río del cual es tributario. Por ello, el contorno de

caudal nulo se ha situado hasta una profundidad de 200 m (Figura 7). A partir de esta profundidad y hasta el fondo del modelo, incluyendo la capa inferior, se le han asignado una condición de nivel fijo. Estos niveles se han obtenido del modelo regional (Martínez-Landa et al, 1998).

Discretización

Previamente a la calibración se ha de proceder a la discretización espacial del dominio a modelar. Además, ha de elegirse una discretización temporal adecuada. Como este modelo se calibra en régimen estacionario, nos vamos a referir únicamente a la discretización espacial, que consiste en definir una malla de elementos finitos que se utilizará posteriormente en el código numérico.

La malla generada para este modelo presenta su parte más refinada en la zona de la mina, aumentando el tamaño de los elementos hacia los contornos del modelo (Figura 8).

Tratamiento de la conductividad hidráulica

En la mayoría de las formaciones geológicas, la permeabilidad tiende a disminuir con la profundidad, ya que la alteración del medio es siempre mayor en superficie y disminuye verticalmente. Aunque esta afirmación parece obvia, su comprobación es difícil debido a la heterogeneidad de los medios geológicos: las conductividades hidráulicas de zonas fracturadas a 1000 m de profundidad pueden ser varios órdenes de magnitud mayores que zonas de roca sana a 100 m. En este sentido existen pocos trabajos bibliográficos que relacionen la conductividad con la profundidad. Stober (1997), recopiló información de ensayos de testificación hidráulica en granitos a diferentes profundidades, y efectuó la correlación de los dos parámetros de la forma:

$$\log P = m \cdot \log K + b$$

Siendo:

P: profundidad

K: conductividad hidráulica

tomando como valores, $m = -0.149$ y $b = 0.946$.

La formulación anterior de Stober (1997), no puede introducirse por igual en toda la potencia del modelo numérico, ya que en superficie o para profundidades de escasos metros las conductividades hidráulicas resultan excesivamente elevadas, mientras que para una profundidad de 2000 metros, la reducción de la permeabilidad es excesiva. A partir

cierta profundidad el valor de K tiende a ser constante, ya que se igualan las presiones litostáticas, produciendo una disminución de la porosidad. Véase como ejemplo la tabla 1.

De esta manera, la ecuación de Stober (1997), se ha utilizado tan sólo para un determinado rango de profundidades, e introduciendo, para la zona más superficial y la más profunda del modelo, valores de conductividad constantes como se indica en la Figura 9.

En el modelo regional realizado para esta misma zona (Martínez-Landa et al., 1998), se obtuvo una relación de la disminución de las conductividades con la profundidad para los granitos, permaneciendo constante el valor superficial hasta los 100 m, variando posteriormente según la relación de Stober con la profundidad. En el caso del modelo local, al encontrarnos en una zona muy especial del Plutón de Albalá, debido a su elevado índice de fracturación, no se puede tomar como referencia la misma relación que en el modelo regional. Tomando como base los datos de la caracterización hidráulica del sondeo SR5, suponiendo que es representativo de la singularidad de esta zona en cuanto a su elevada conductividad hidráulica hasta profundidades de 200 m (Figura 10), se ha obtenido una relación de disminución de la conductividad en profundidad característica de esta zona.

Calibración

A lo largo del proceso de calibración se va ampliando el conocimiento del funcionamiento del medio, siendo muy comunes los cambios en los modelos conceptuales, para reajustar algunos detalles que salen a la luz en esta etapa de la modelación. En el caso concreto que nos ocupa, de los sondeos utilizados como puntos de observación, se conocen con cierta precisión los perforados específicamente para el proyecto Ratones (SR). Como ya se ha comentado en apartados anteriores, existen otros sondeos que se perforaron para la prospección de la mina (S). En estos últimos hay una gran incertidumbre en cuanto a las estructuras que cortan y su longitud. Sin embargo, se ha logrado obtener con bastante fiabilidad, la longitud de estos sondeos. El caso del sondeo S5, cuya longitud es de 160 m, según diferentes fuentes (mapas, informes) debería cortar el hueco de la mina. Para corroborar o desechar esta hipótesis se realizaron dos modelos conceptuales, uno en el que el sondeo corta el hueco de la mina y otro en el que corta al Filón 27' cerca de la explotación. El resultado pue-

de verse en la figura 11, en la que se observa que si el sondeo cortara realmente al hueco de la mina, su respuesta a los bombeos quedaría totalmente amortiguada por esta.

Otro de los problemas con que es frecuente encontrarse en este tipo de modelos, es el de la posición de los puntos de observación en el modelo. Esto es debido a que sólo se han introducido como tramos (elementos unidimensionales), el S10 y el S5. Estos dos últimos debido a su gran longitud (entre 100 y 160 m) que crean un cortocircuito entre las estructuras que atraviesan que es importante reproducir. Hay sondeos que no se han introducido con elementos unidimensionales, debido a que sus tramos son muy cortos y ello obliga a un refinamiento de la malla que aumentaría mucho el coste en cuanto a tiempo de cálculo. Esto en principio no es ningún problema si se sitúan los puntos de observación adecuadamente, es decir, en el corte de los tramos con las estructuras que atraviesan (SR1-2 en el Filón 27, SR1-3 en la fractura SR1-3, etc.). No obstante hay algún tramo que se encuentra en la matriz, o en la banda de cizalla (sin ninguna estructura importante en particular); estos son los puntos más conflictivos en cuanto a su posición, debiendo moverlos a lo largo del sondeo hasta llegar a su mejor ajuste.

Por último, cabe señalar, que en principio la banda de cizalla que engloba a la Falla Sur se ha tratado igual que la de los filones (Figura 3), ya que se realizó una calibración por separado de ambas zonas, es decir, se tomaron como dos zonas distintas en el modelo y, quizá debido a los pocos puntos de observación situados en estas zonas, o a que se sitúan en el cruce entre ambas, no se han visto diferencias apreciables, por lo que por simplicidad se ha optado por calibrarlas conjuntamente.

Discusión y resultados

Los resultados de la calibración son aceptables, desde un punto de vista del ajuste de los niveles observados, de los parámetros calculados, del balance de masas y del esquema de flujo subterráneo del sistema.

En la figura 12 se muestra la distribución de los errores en los niveles calculados. Los errores representan la diferencia entre el nivel medido menos el calculado, con lo cual los errores positivos indican que el modelo está calculando niveles menores que los medidos y viceversa.

Se puede observar la existencia de dos zonas donde el modelo no es capaz de reproducir los niveles, al norte de la falla Norte y en la zona exterior a al entorno de la mina). Esto es debido a la falta, o mala calidad de los datos. Pero en el entorno de la mina, el modelo reproduce muy bien los datos medidos.

En la figura 13 se muestran los resultados obtenidos en la zona de la mina, ya que en el resto del modelo, los ajustes no son realistas, debido a la falta de información del dominio. Así, se puede ver cómo la mina drena hacia el arroyo Maderos el agua que se recarga en la cabecera de la cuenca, en superficie. En la sección b-b', se presenta un corte del modelo por el filón 27, que pasa por varios puntos de observación, y que corta a estructuras como la falla Norte y la falla Sur, en la que se encuentra encajado el arroyo Maderos. En esta sección se observa el hueco de la mina, en el que se ha marcado el Pozo Maestro (P.M.), como una zona de igual nivel. También se ve que la mina está situada en una zona de descarga, los flujos son ascendentes, y descargan al arroyo. Hay que tener en cuenta que el modelo se ha calibrado con los datos medidos en septiembre del 98. En esta época no circula agua por el arroyo, a pesar de lo cual la zona sigue siendo de descarga, circulando el agua por la zona alterada.

Conclusiones

En este trabajo se ha presentado la metodología de construcción de un modelo tridimensional de flujo para el entorno de una mina situada en un granito. Para esto se han utilizado los modelos tridimensionales mixtos, que representan a la matriz como un medio poroso equivalente, en la que se incluyen los rasgos estructurales más importantes. En este caso, dichos rasgos estructurales son los filones, las fallas, y sobre todo la mina.

La dificultad de este tipo de modelos estriba en la identificación de las estructuras, ya que se necesita una gran cantidad de datos. Por ello, se ha tenido que diferenciar entre dos zonas de matriz, ya que para buscar condiciones de contorno coherentes el dominio del modelo se ha hecho muy grande, con lo cual fuera del entorno de la mina no se disponen de datos suficientes como para identificar estructuras, estando englobadas en la matriz. Dado que es previsible que en dicha zona existan estructuras análogas a las que se han caracterizado en la zona de la mina, la conductividad del medio poroso equivalente las incluye. Como consecuencia, la conductividad

hidráulica de este dominio exterior es mayor que la del entorno de la mina. Precisamente, en la actualidad estamos estudiando la posibilidad de utilizar datos geofísicos para hacer esta extrapolación.

Para la asignación de parámetros a cada estructura del modelo, es necesario realizar ensayos hidráulicos. Los ensayos de interferencia, bombear en un punto y observar las respuestas en los demás, son los que mayor información dan acerca de las estructuras que se sitúan entre los puntos. Los ensayos de sondeo único solo aportan información del entorno inmediato del punto ensayado, con lo cual la información que se obtiene de ellos es menor.

En este tipo de modelos también se tiene en cuenta la anisotropía, y la disminución de la conductividad hidráulica con la profundidad.

Agradecimientos

El proyecto Ratones está financiado por ENRESA. Los autores agradecen su colaboración a todas aquellas personas que han cooperado en el desarrollo del proyecto.

Referencias

- Carbonell, J.A.; A. Pérez-Paricio y J. Carrera. (1997): "MARIAJ_IV: Programa de calibración automática de ensayos de bombeo. Modelos analíticos y numéricos para medios 2-D y 3-D". E.T.S. Ingenieros de Caminos de Barcelona, Universitat Politècnica de Catalunya.
- Galarza, G.; A. Medina, y J. Carrera. (1996): "TRANSIN III: Fortran code for solving the coupled non-linear flow and transport inverse problem". ETSECCPB, UPC. El Berrocal Project, TOPICAL REPORT 7. ENRESA Jul-96.
- Martínez-Landa, L.; F. Ortuño y K. Bitzer (1998): "Modelo hidrogeológico regional de Mina Ratones". Preparado para ENRESA. 63pp. 10-UPC-IF-01.
- Martínez-Landa, L.; L. Vives y A. Marcuello (1999): "Modelo hidrogeológico local". Preparado para ENRESA. 71pp. 10-UPC-IF-02.
- Ortuño, F.; E. Floría; G. Carretero, y J. Suso. (1999): "Caracterización hidráulica de Mina Ratones". 10-AIT-IA-04, grupo de hidrogeología de AITEMIN, Toleco.
- Pérez Estaún, A., y J. Escuder. (1998): "Fracturación en Mina Ratones". Informe Final 1: Estructura. 10-CJA-IF-01. CSIC-IJA, Instituto de Ciencias de la Tierra, Barcelona.
- Stober, I. (1997): "Ergebnisse geohydraulischer und hydrochemischer Untersuchungen im Kristallinen Grundgebirge des Schwarzwaldes und seiner Randgebiete". Tübingen.

Tabla I
Variación de la conductividad hidráulica en profundidad (Stober, 1997). Obsérvese que el valor para 10 metros es excesivo.

Profundidad (m)	Conductividad hidráulica (m/s)
10	$43 \cdot 10^{-2}$
100	$8.4 \cdot 10^{-8}$
1000	$1.6 \cdot 10^{-14}$

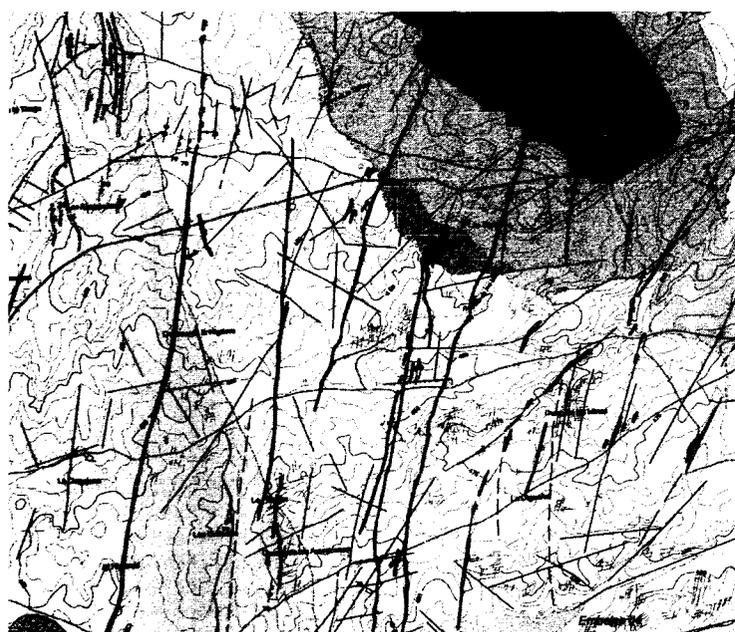


Figura 1. Encuadre geológico del entorno de la mina Raton. A pesar de la diferenciación entre los diferentes tipos de granito que forman las aureolas del plutón, este se ha tratado como un solo material, ya que no presentan diferencias texturales como para tener diferentes comportamientos hidráulicos. Lo más importante de la geología son los diferentes tipos de estructuras (diques, filones...), que se muestran en la figura.

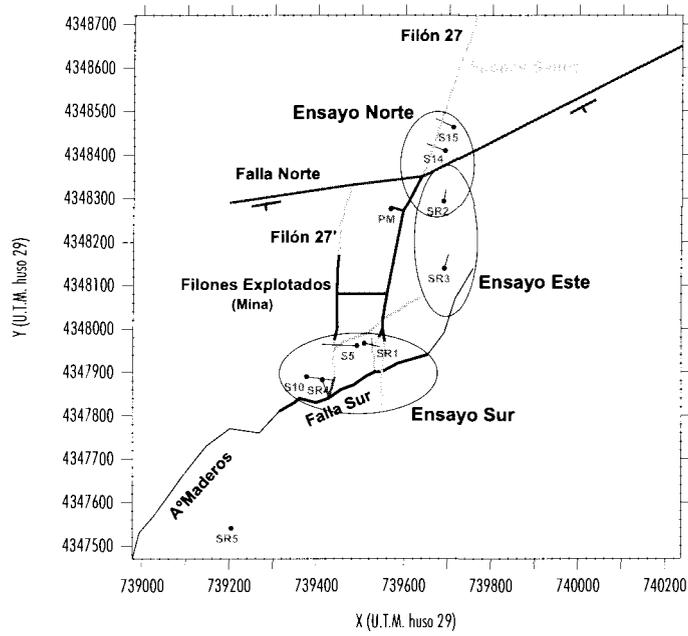


Figura 2. Situación de los sondeos y de los ensayos de interferencia realizados. Los sondeos están proyectados en planta.

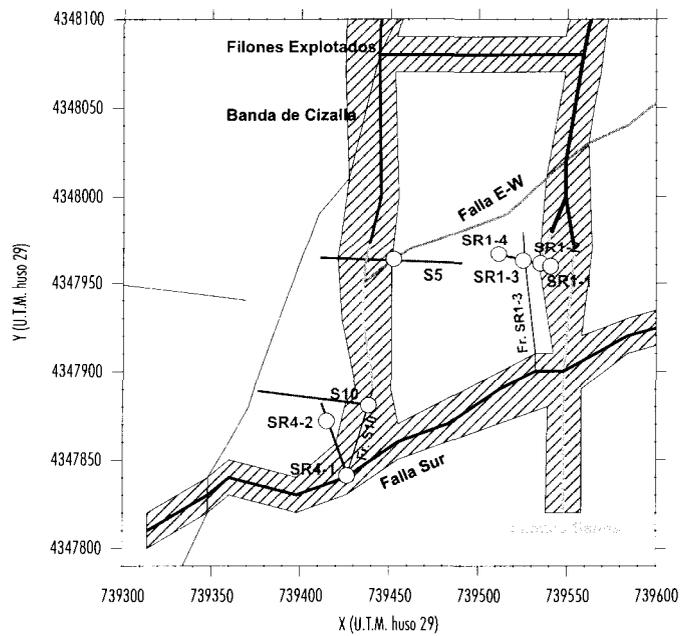


Figura 3. Detalle de la geometría de la parte sur de la mina y del corte de los filones con el arroyo Maderos (falla Sur).

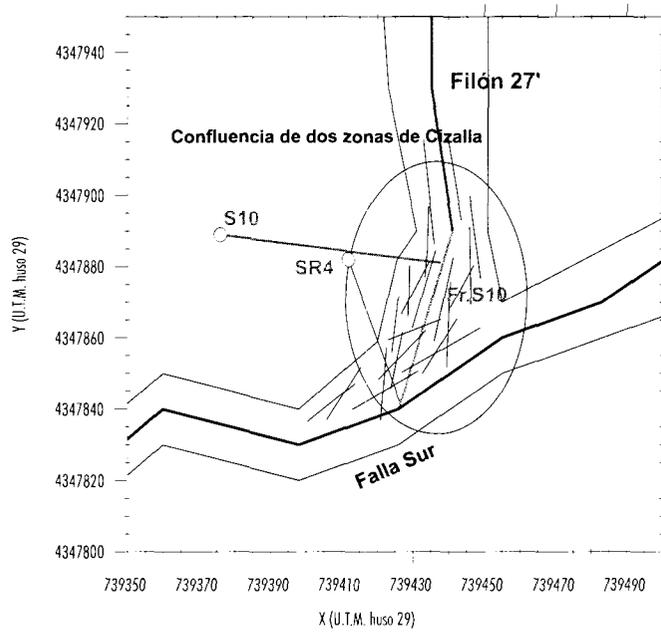


Figura 4. Esquema de la conceptualización de la fractura S10 como simplificación de intersecciones de fracturas menores dentro de las zonas de cizalla de la falla Sur y del filón 27'.

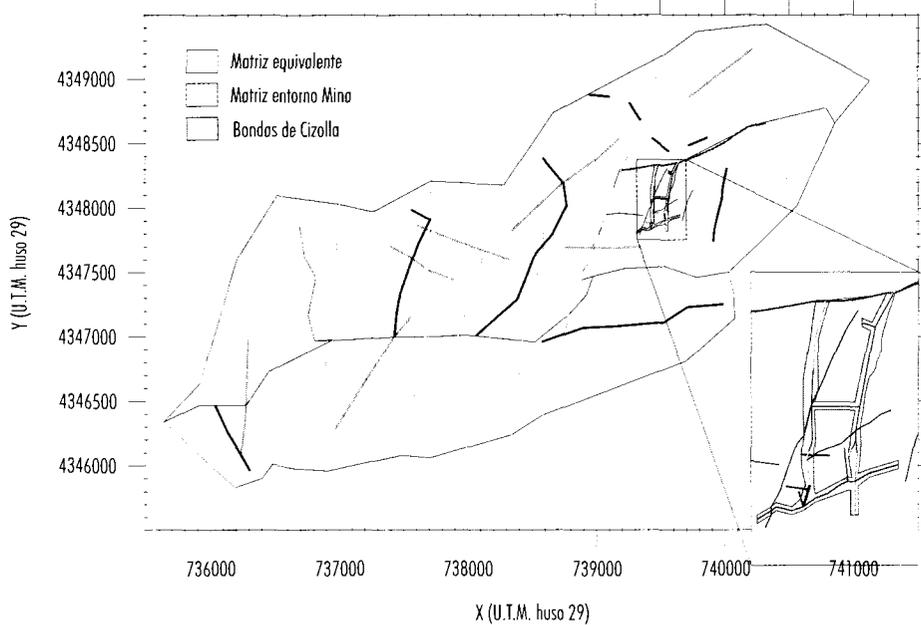


Figura 5. Materiales diferenciados en el modelo.

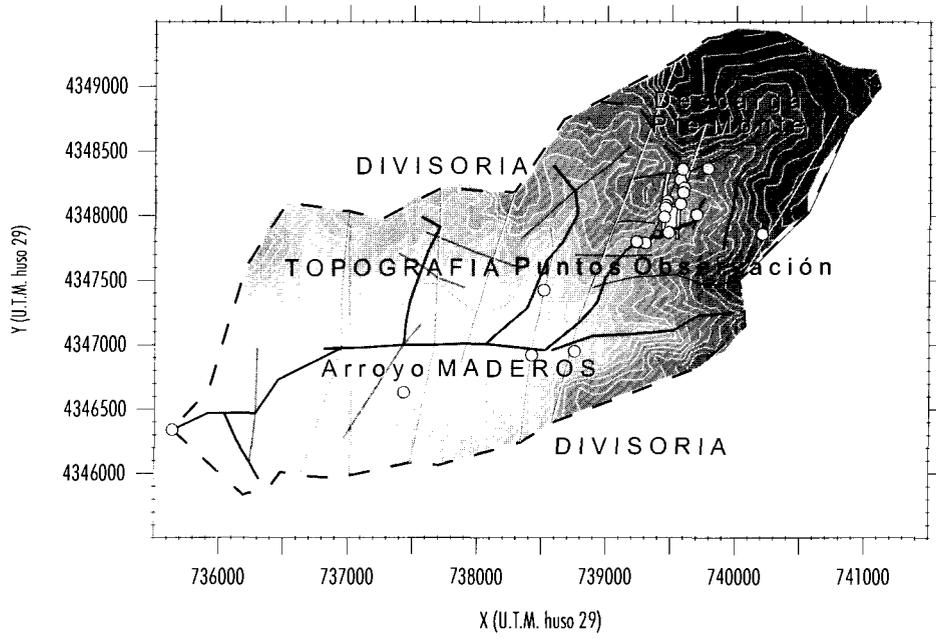


Figura 6. Esquema de las condiciones de contorno.

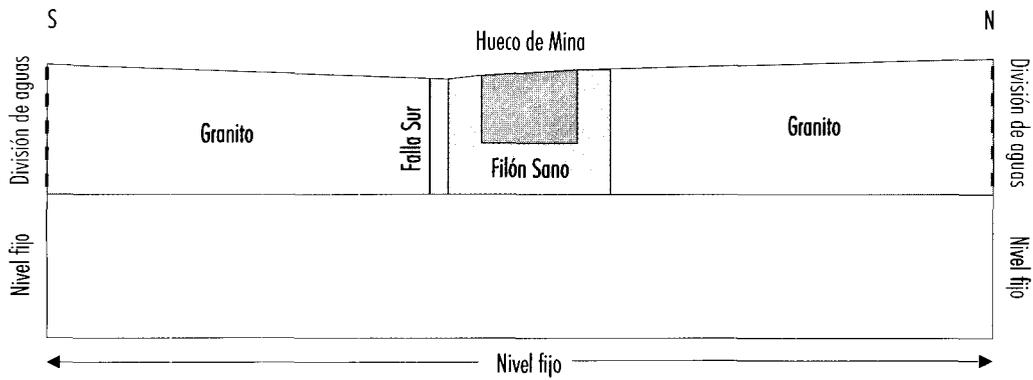


Figura 7. Condiciones de contorno en la vertical del modelo. La condición de divisoria de aguas solo llega hasta unos 200 metros de profundidad, imponiéndose nivel fijo en el resto del modelo (obtenido del modelo regional).

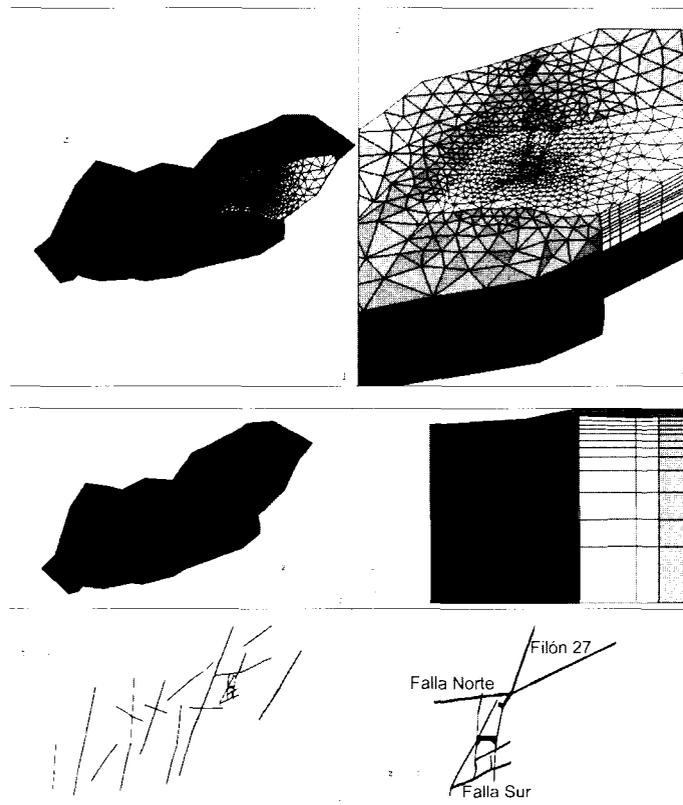


Figura 8. Arriba: generación de una malla tridimensional de elementos finitos, en la que se observa cómo la zona de la mina (la zona de interés en este modelo), es la más discretizada, aumentando el tamaño de los elementos hacia los contornos. En azul la matriz exterior al entorno de la mina, en naranja la zona de interés (entorno de la mina), y en verde las bandas de cizalla de los filones y la falla Sur. En la imagen inferior se muestran algunas detalles de las estructuras representadas en el entorno de la mina (malla en planta, detalle del perfil de la malla, vista de las fracturas en planta y estructuras del entorno de la mina).

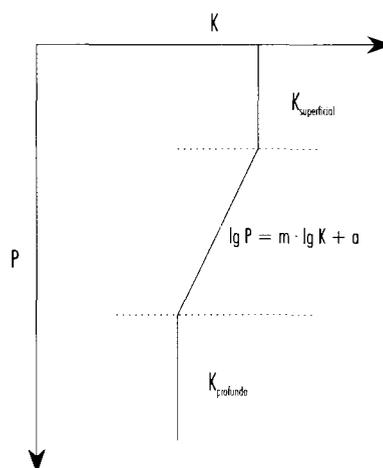


Figura 9. Esquema de variación vertical de la conductividad hidráulica en el modelo.

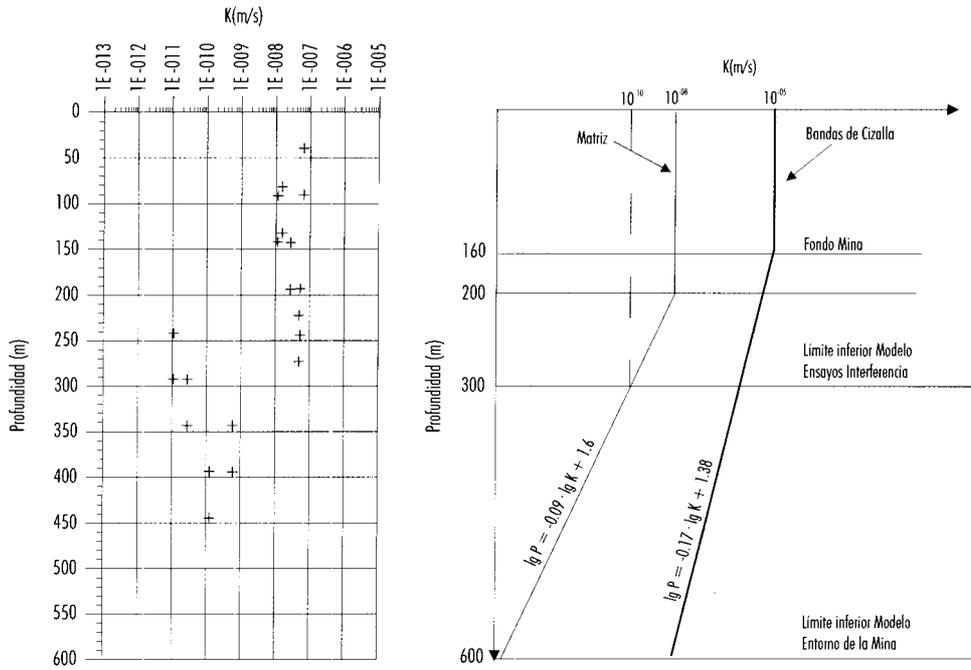


Figura 10. Disminución de la conductividad hidráulica con la profundidad obtenida a partir de los datos de conductividad obtenidas en el SR5 durante su testificación hidráulica. En la figura se muestra la relación de disminución de K , basado en la de Stober, para la matriz granítica. A su derecha se muestra la relación de K con la profundidad para las bandas de cizalla, obtenidas a partir de los datos del tramo 1 del sondeo SR1, tomado como referencia para esta zona.

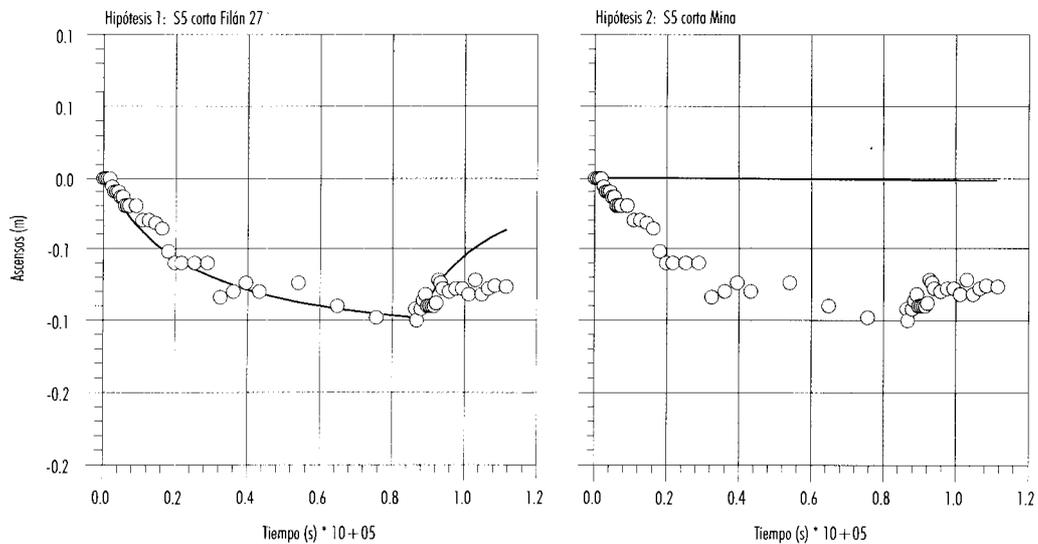


Figura 11. Comparación entre las respuestas a un bambeo en el sondeo SS, suponiendo que corta al hueco de la mina (derecha) y suponiendo que corta al Filón 27' cerca del hueco de la mina (izquierda).

CARACTERIZACIÓN HIDROGEOLÓGICA DE MEDIOS FRACTURADOS DE BAJA PERMEABILIDAD

F. Ortuño, E. Floría, G. Carretero y J.M^o Suso
Departamento de Medio Ambiente, Área de Hidrogeología (AITEMIN)

Resumen

La caracterización hidrogeológica de medios fracturados de baja permeabilidad requiere unos métodos y técnicas de trabajo diferentes de los utilizados en las formaciones más permeables que, hasta hace poco, constituían el punto de atención preferente –casi exclusivo– de la mayor parte de los estudios hidrogeológicos. El interés que han suscitado, de forma relativamente reciente, las formaciones de baja permeabilidad como posibles áreas para emplazamiento de residuos potencialmente contaminantes ha hecho que haya sido necesario desarrollar técnicas específicas orientadas a su caracterización desde el punto de vista hidrogeológico. Una de las principales peculiaridades de los ensayos hidráulicos realizados en este tipo de formaciones radica en la necesariamente pequeña cantidad de agua implicada en los mismos que condiciona tanto el volumen de roca a la que afectan - y por tanto la interpretación de los resultados - como su forma de realización. Así, dentro de la hidrogeología, ha surgido un nuevo campo que requiere un equipamiento específico y una alta especialización.

En general, la caracterización hidrogeológica de los medios fracturados de baja permeabilidad implica: la obtención de los parámetros de transmisividad y coeficiente de almacenamiento de las fracturas (o estructuras tectónicas) más significativas y del conjunto de la masa rocosa; y el establecimiento de la distribución piezométrica tanto en sentido horizontal como en profundidad. Para ello es imprescindible la realización de ensayos hidráulicos en secciones aisladas de sondeos perforados al efecto.

El plan de restauración de antiguas minas de uranio llevado a cabo por Enresa, ha permitido seguir avanzando en la puesta a punto de las técnicas de

caracterización hidrogeológica y de los equipos necesarios para su aplicación. En concreto, con el fin de estudiar el funcionamiento hidrogeológico de Mina Ratones (Albalá, Cáceres) y evaluar el potencial impacto de las antiguas labores mineras y los efectos del plan de restauración, se ha llevado a cabo la caracterización desde el punto de vista hidráulico del macizo rocoso del entorno de la mina. Con este objeto se ha realizado en cinco sondeos, con profundidades comprendidas entre 70 y 500 m, una serie de ensayos de pulso, cuchareo (*slug*) e inyección de agua en secciones variables de sondeos aisladas entre obturadores. También se han realizado ensayos de interferencia entre sondeos y ensayos de transporte.

El trabajo realizado ha permitido hacer una evaluación y análisis crítico de las metodologías utilizadas, especialmente en lo que respecta a la instrumentación de sondeo y de superficie utilizada para la realización de los ensayos, los métodos de realización, y los sistemas de interpretación de los resultados. La utilización de un equipo de tipo *wire line* con capacidad de trabajo en sondeos de hasta 500 m de profundidad y la utilización de sensores de presión con conectores submarinos, ha permitido agilizar la testificación aumentando la fiabilidad de los resultados obtenidos.

Los reducidos volúmenes de agua implicados en este tipo de ensayos hacen necesario un conocimiento preciso de las características –y especialmente de la elasticidad– de los equipos con los que son efectuados. Con este fin se ha montado un laboratorio para caracterizar los distintos componentes de la instrumentación empleada para la testificación hidrogeológica de sondeos. El elemento central del laboratorio está constituido por un tubo de acero de 5,5 m de longitud y 114,3 x 92,0 mm

de diámetro con capacidad para resistir presiones de hasta 100 bar, y subdividido en tres cámaras independientes. El tubo cuenta con sensores de presión y temperatura, bombas de inyección de agua y un sistema autónomo de adquisición de datos.

Se ha probado los principales componentes del equipo de testificación: obturadores, tuberías de poliamida y de PVC y válvulas que permiten la inyección o extracción de agua del tramo de sondeo que se pretende caracterizar. Los ensayos de laboratorio llevados a cabo hasta el momento han estado encaminados a estimar la compresibilidad y las pérdidas de carga de los equipos, así como su comportamiento bajo presión. En concreto se ha estimado los tiempos y volúmenes de agua necesarios para el sellado de los obturadores, la compresibilidad de los equipos, las pérdidas de carga a través de sus diferentes componentes, y la influencia del aire atrapado y las variaciones de temperatura en las presiones registradas.

Introducción

La caracterización de medios fracturados de baja permeabilidad requiere el uso de técnicas específicas que todavía están hoy en día en fase de diseño y desarrollo. Estas técnicas difieren en gran parte de las que se realizan clásicamente en los acuíferos porosos muy permeables.

El presente trabajo se centra en las metodologías de realización e interpretación de los ensayos hidráulicos que deben realizarse en un medio fracturado y de baja permeabilidad. Dentro de la metodología de caracterización hidráulica, los ensayos hidráulicos se realizan con el fin de obtener los parámetros que caracterizan el medio desde el punto de vista de la circulación del agua. Estos parámetros, que son básicamente la transmisividad, el coeficiente de almacenamiento y el nivel piezométrico, son parte fundamental de cualquier estudio hidrogeológico, ya que aportan datos para la elaboración de modelos conceptuales y numéricos que reflejan el funcionamiento hidrogeológico de la zona de estudio y permiten conocer cómo, por dónde y porqué se mueve el agua y lo que ella transporta.

La caracterización hidráulica persigue por tanto de manera general la obtención de los parámetros hidráulicos del medio, aunque también incide en los principales parámetros que condicionan el transporte de solutos en las aguas subterráneas. Si el medio geológico es fracturado, estos parámetros

deben obtenerse tanto para las estructuras geológicas más significativas como para la matriz rocosa.

Este trabajo refleja la experiencia acumulada por AITEMIN en la caracterización hidráulica del macizo rocoso del entorno de "Mina Ratones" (Albalá, Cáceres) dentro del plan de restauración de antiguas minas de uranio llevado a cabo por ENRESA. La realización e interpretación de cerca de un centenar de ensayos de testificación hidráulica en diversos sondeos, su evaluación posterior y el análisis crítico de las metodologías utilizadas, especialmente en lo que respecta a la instrumentación de sondeo y de superficie, los sistemas de interpretación y los resultados, ha permitido avanzar en la puesta a punto de las técnicas de caracterización hidrogeológica y de los equipos necesarios para su aplicación.

Metodología de caracterización

La metodología genérica que se sigue para la caracterización hidrogeológica de una determinada zona está condicionada por los objetivos y alcance de la investigación que se realiza. Frecuentemente consta de un primer estudio general, de escala regional, y otro más concreto, que se efectúa a escala local en el área de trabajo.

El estudio hidrogeológico general persigue el establecimiento de un modelo conceptual del flujo del agua subterránea a escala regional y sirve de base para la planificación de los trabajos de caracterización posteriores. Implica, entre otros, la recopilación y análisis de los datos cartográficos, lito-estructurales, meteorológicos, hidrológicos e hidrogeológicos existentes, la realización de un inventario de puntos de agua, y el establecimiento y seguimiento de una red de observación piezométrica y de control hidroquímico.

La caracterización detallada hace necesario el control de niveles y caudales en puntos de agua próximos a la zona de estudio y la realización de ensayos de flujo y de transporte en sondeos. Se analiza previamente la información existente, tanto a escala local (geología, geometría de las principales estructuras tectónicas, niveles del agua en sondeos y pozos, meteorología, etc) como a escala de sondeo (columna, testigos, perfiles geofísicos, etc), para establecer hipótesis preliminares de funcionamiento y modelos conceptuales.

A partir de este punto, la estrategia de caracterización hidráulica se basa comúnmente en el paso de una escala de observación detallada a otra que en-

globa zonas más amplias, es decir, ejecutando primero la testificación hidráulica de sondeos y después los ensayos entre sondeos, tanto de flujo como de transporte. Para efectuar la caracterización hidráulica de sondeos individuales éste se aísla en tramos independientes mediante obturadores inflables, y se realiza en cada uno de ellos diferentes ensayos para medir rangos de transmisividad creciente: ensayos de pulso y de cuchareo (*slug*) para transmisividades de bajas a moderadas, y ensayos de inyección o extracción con nivel o caudal constante para transmisividades de moderadas a altas (Hsieh et al., 1983; Grisak et al. 1985; Carrera et al., 1987; Carrera et al., 1992; Ortuño et al., 1995a). Adicionalmente se aprovechan como ensayos de caracterización hidráulica los trabajos de limpieza que se efectúan al acabar la perforación y los bombeos para toma de muestras de agua.

Parámetros hidráulicos del medio

Los principales parámetros hidráulicos que definen el medio acuífero son principalmente la transmisividad y el coeficiente de almacenamiento, aunque los ensayos hidráulicos además permiten la determinación de otros parámetros y la identificación del régimen de flujo. La obtención del nivel piezométrico en diferentes puntos es también importante para caracterizar el sistema hidráulico.

Transmisividad y conductividad hidráulica

Los ensayos hidráulicos permiten medir la transmisividad T , definida como la capacidad de un acuífero para transmitir agua. La conductividad hidráulica K describe las propiedades conductivas del material del acuífero. Esta última se calcula como la transmisividad estimada en los ensayos dividida por el espesor saturado del tramo de acuífero ensayado. En medios fracturados este espesor resulta difícil de definir, tomándose idealmente como tal la apertura de las fracturas conductivas. Dado que no es nada fácil identificar y tener información de cuáles son estas fracturas, sus aperturas, geometría y rellenos, se toma entonces como espesor la longitud del intervalo de test. La conductividad hidráulica que se deriva en ensayos realizados en medios fracturados se debe tomar entonces como una "conductividad hidráulica equivalente" del tramo ensayado.

Se considera un medio fracturado aquel por el que el agua circula preferentemente a través de estruc-

turas tectónicas o fracturas discretas embebidas en una matriz de conductividad hidráulica más baja. Cada una de estas fracturas puede tener una transmisividad diferente a las del resto. La transmisividad global de un sondeo puede considerarse como la suma de las transmisividades de las diferentes fracturas que corta (Shapiro & Hsieh, 1998). Pero la transmisividad es un parámetro logarítmico, por lo que una sola fractura altamente conductiva llega a enmascarar todo el resto de información del sondeo.

Coeficiente de almacenamiento y coeficiente de almacenamiento específico

El análisis de ensayos hidráulicos usando soluciones que derivan de la ecuación de flujo permite estimar también el valor del coeficiente de almacenamiento S de la formación. Este parámetro adimensional, inicialmente definido para acuíferos confinados, es el volumen de fluido necesario por unidad de área de acuífero para elevar su nivel una unidad. El coeficiente de almacenamiento específico S_s se puede calcular como el coeficiente de almacenamiento S obtenido dividido entre la longitud del tramo ensayado, aunque ésta afirmación sólo es válida estrictamente si el medio es homogéneo y poroso.

El coeficiente de almacenamiento S está controlado por dos términos (Jacob, 1940): la compresibilidad de la roca y las propiedades del fluido. Pero en un medio fracturado, y suponiendo una única fractura, la definición del coeficiente de almacenamiento incluye los términos del espesor de la fractura y de su rigidez (Doe & Osnes, 1985). En un medio poroso la compresibilidad de la roca es mucho más pequeña que la del fluido, pero en un medio fracturado, que cuenta normalmente con pequeños volúmenes de agua, la componente de la rigidez de la fractura puede ser el dominante. Los coeficientes de almacenamiento en medios fracturados suelen ser por ello más bajos que en los medios porosos.

Régimen de flujo e identificación de efectos

Los ensayos hidráulicos de larga duración permiten identificar tres periodos temporales asociados al volumen de roca que es progresivamente afectado (Vomvoris & Frieg, 1992). Durante el primer periodo pueden verse los efectos provocados por el equipo de testificación y por el propio sondeo y su

alteración. Durante el periodo intermedio es identificable el modelo de flujo, básico para una correcta interpretación del ensayo. Para tiempos largos normalmente son identificables bordes de nivel constante o impermeables.

Un ensayo hidráulico se efectúa introduciendo un equipo de testificación en el sondeo para perturbar el medio añadiendo (o extrayendo) un volumen de agua, observando su respuesta en el tiempo. El propio sondeo y el equipo que se utiliza para efectuar la perturbación también constituyen reservorios de fluido y tienen capacidad para almacenar agua, dando lugar a lo que se conoce como almacenamiento en sondeo Sw. En algunos casos esta capacidad de almacenamiento del sondeo y del equipo puede enmascarar la respuesta del acuífero, sobre todo en ensayos en los que se implica muy poco volumen de agua y la transmisividad del medio es muy baja, por lo que es importante identificarla correctamente.

La identificación del modelo de flujo es el primer paso para la interpretación de ensayos hidráulicos ya que la interpretación de un ensayo bajo una hipótesis equivocada puede llevar a errores de varios órdenes de magnitud en la estimación de la transmisividad. El modelo de flujo que se establece durante la realización de un ensayo —lineal, radial o esférico— está relacionado con la geometría del medio (Agarwall, 1980; Horne, 1990). El flujo lineal es unidimensional, y se asimila a que el sondeo corta un conducto de radio constante, que no varía a medida que éste se aleja del sondeo, o en el que el flujo está restringido a canales. El flujo radial es bidimensional, respondiendo al enfoque clásico de flujo cilíndrico, en el que el área afectada por el ensayo crece proporcional a la distancia a medida que uno se aleja del sondeo. El flujo esférico es tridimensional, y en él el área afectada crece proporcional al cuadrado de la distancia. Estos modelos de flujo están relacionados con lo que se conoce como "dimensión del régimen de flujo" (Barker, 1988).

La continuidad espacial de un acuífero está limitada normalmente por bordes. Clásicamente se consideran en el análisis de ensayos hidráulicos dos tipos de bordes: los de nivel constante y los impermeables (ver por ej. Custodio y Llamas, 1983). Un borde impermeable puede darse cuando el acuífero es intersectado en alguna dirección por otro material de permeabilidad contrastada mucho menor, o bien cuando una fractura se cierra lateralmente. Un borde de nivel constante puede ser una intersección a cierta distancia de una fractura con otra altamen-

te conductiva, o bien un cambio lateral a una zona de transmisividad mucho más alta. La identificación de estos bordes está teóricamente bien definida aunque, en la práctica, comúnmente se presentan numerosas dificultades.

Nivel piezométrico

El nivel piezométrico es la presión a la que se encuentra el agua en un punto del acuífero. Se expresa normalmente en metros sobre el nivel del mar, tomándose la densidad del agua casi siempre como constante y sin variaciones ni por composición química ni por temperatura, aunque esto debe ser tenido en cuenta en acuíferos salinos, en zonas de gradiente geotérmico anormalmente alto o para elevadas profundidades.

En medios fracturados, cada una de las fracturas que corta un sondeo puede tener un nivel piezométrico diferente. Esto provoca, una vez realizada una perforación, la existencia de flujos verticales si ésta permanece abierta: el sondeo actúa entonces como un conducto en el que entra el agua por unas fracturas y sale por otras, dependiendo de la diferencia de gradientes y de su transmisividad. El caudal de agua que entra y sale de las fracturas puede llegar a implicar volúmenes importantes de agua (Guyonet et al., 1993), siendo la caracterización hidroquímica posterior de alguna de estas fracturas poco menos que imposible.

Tipos de ensayos e interpretación

A grandes rasgos se pueden diferenciar dos tipos de ensayos hidráulicos: los de flujo, mediante los cuales se obtienen los parámetros que rigen el movimiento del agua en el reservorio, y los de transporte, que proporcionan información del movimiento de solutos en el sistema hidrológico. Dentro de los ensayos de flujo pueden efectuarse varias clasificaciones dependiendo de las características del ensayo, de su duración o del número de sondeos afectados. La herramienta más comúnmente utilizada en hidrogeología han sido los ensayos de bombeo a caudal constante. Pero en medios de baja permeabilidad, los caudales aportados por la formación son tan bajos que es necesario efectuar otro tipo de ensayos más específicos, como son los de pulso o los de cuchareo. Un resumen de los tipos de ensayos utilizados en la caracterización hidráulica de estos medios y sus principales características puede observarse en la Tabla

1, mientras que la Tabla 2 muestra las referencias y los códigos numéricos que se utilizan habitualmente para su interpretación.

Ensayos de pulso y de cuchareo (*slug*)

Ambos ensayos permiten obtener la transmisividad T del entorno del sondeo cuando ésta es baja o muy baja. La determinación del coeficiente de almacenamiento S mediante estos ensayos se considera poco fiable. Consisten en variar bruscamente la presión en el sondeo (o en un tramo aislado) y medir cómo se recupera ésta en el tiempo. Los ensayos de pulso involucran muy poco volumen de agua (cm^3) y son adecuados para medir transmisividades muy bajas (10^{-11} a 10^{-8} m^2/s), mientras que en los ensayos de cuchareo el volumen de agua involucrado es mayor (dm^3), y su rango de medida idóneo es para transmisividades más altas (10^{-9} a $5 \cdot 10^{-7}$ m^2/s). En los ensayos de cuchareo el tramo aislado del sondeo permanece abierto (en comunicación con la superficie) y la recuperación de niveles se produce por una tubería. En los pulsos el tramo de ensayo permanece cerrado durante la recuperación y su ejecución requiere una instrumentación más compleja.

Los ensayos de pulso y de cuchareo (Figura 1) se interpretan inicialmente mediante el ajuste de la evolución de niveles registrada a las curvas tipo de Cooper et al. (1967) o Bredehoeft & Papadopoulos (1980), suponiendo una inyección de volumen de agua instantánea. Aunque esta metodología está desarrollada para medios homogéneos e isótropos y flujo radial, también es aplicable para la determinación de la transmisividad en medios heterogéneos y de flujo no radial, ya que los valores de T obtenidos no se desvían más de un orden de magnitud (Shapiro & Hsieh, 1998). El almacenamiento en sondeo S_w que se utiliza para la interpretación en los ensayos de pulso es el que se mide durante su realización (volumen real de agua inyectado dividido por la sobrepresión máxima producida), mientras que para los ensayos de cuchareo es la superficie de la tubería por donde se produce la recuperación de niveles. Los ensayos se interpretan posteriormente con ajuste automático por método inverso (Carbonell et al., 1997), suponiéndose en este caso que la inyección de agua no es instantánea sino finita, reproduciéndose así el ensayo en su totalidad (inyección y recuperación), siendo el resultado mucho más robusto.

El almacenamiento en sondeo S_w influye en el tiempo necesario para recuperar el ascenso o descenso

de nivel provocado inicialmente en los ensayos de pulso. Como S_w participa de dos términos, la compresibilidad del agua del tramo de ensayo más la del propio equipo de testificación S_{we} , la elasticidad del equipo que se utilice influye en el límite inferior de testificación. Cuanto más rígido es el equipo menor es el almacenamiento en sondeo, acortándose los tiempos de recuperación en ensayos de pulso. Con los equipos actuales se estima que el límite inferior de transmisividad que se puede medir está entorno a 10^{-11} m^2/s . No obstante, y suponiendo que los equipos fueran completamente incompresibles, el límite vendría entonces definido por el volumen de agua del tramo de test multiplicado por la compresibilidad del agua ($4.6 \cdot 10^{-6}$ m^{-1}). Suponiendo un ensayo que se efectuara en un tramo de 10 m de un sondeo de 101 mm de diámetro, la menor transmisividad que se podría deducir de un ensayo de pulso después de 4 horas de recuperación estaría cercana a 10^{-12} m^2/s .

Ensayos de caudal constante

El ensayo consiste en extraer (o inyectar) del sondeo, o de una porción aislada del mismo, cierto volumen de agua con un caudal constante, midiendo la variación de niveles que se produce durante y después de que cese la extracción. El ensayo puede efectuarse observando también la respuesta que se produce en sondeos cercanos, llamándose entonces "ensayos de interferencia". Este tipo de ensayo es particularmente interesante porque su desarrollo numérico y análisis está ampliamente documentado, y permite estimar efectos de almacenamiento en sondeo, identificar el régimen de flujo, los parámetros del acuífero y bordes cercanos.

En los ensayos de caudal constante (Figura 2) el primer paso para la interpretación consiste en identificar correctamente el modelo de flujo, evaluando los efectos de corto alcance (almacenamiento en sondeo, piel), el tipo de régimen de flujo (lineal, radial o esférico) y la presencia de bordes o contornos para escoger el modelo conceptual correcto del ensayo y fijar las hipótesis de interpretación. Para ello se utiliza el gráfico diagnóstico log-log (ver por ej. Custodio y Llamas, 1983) y la sensibilidad de la derivada del descenso respecto al tiempo (Bourdet et al., 1989; Spane & Wurster, 1993).

Se obtienen después los parámetros del acuífero T y S del periodo transitorio del ensayo por ajuste de rectas con el método de Jacob (Cooper & Jacob, 1946). El método puede ser utilizado incluso cuan-

do el acuífero es heterogéneo, en la mayoría de los casos, obteniéndose buenas aproximaciones (Meier et al., 1998). La recuperación de los bombeos se puede evaluar con el método de ajuste de rectas de Horner (1951). Posteriormente se interpreta el ensayo por método inverso (Carbonell et al., 1997) con las hipótesis conceptuales identificadas. Los ensayos de interferencia se interpretan con la misma metodología, pero evaluando primero los puntos de observación separadamente uno a uno, y efectuando después la interpretación conjunta. Esta interpretación es particularmente interesante en medios heterogéneos para obtener tanto los valores de transmisividad efectiva T_{eff} (la que controla el flujo natural en condiciones de gradiente uniforme), como las conectividades entre diferentes sondeos, ya que éstas dependen principalmente del valor del coeficiente de almacenamiento S (Schad & Teutsch, 1994; Meier et al., 1998).

Cuando existen evidencias de que el flujo puede corresponder a un modelo de fractura, el ensayo se puede interpretar también mediante modelos numéricos (Carbonell et al., 1997) obteniéndose entonces tanto los parámetros de la matriz granítica (K y S_s) como de la fractura (T y S).

Ensayos de nivel constante

Consisten en inyectar un volumen de agua en un sondeo o en una zona aislada del mismo manteniendo el nivel piezométrico constante, y registrando las variaciones de caudal que se producen en el tiempo. Su desarrollo numérico es similar al de los ensayos de caudal constante, aunque manteniendo para el periodo transitorio el ascenso constante. Permiten medir un amplio rango de transmisividades, dependiendo del tipo de instrumentación utilizado, y afectan normalmente a un solo sondeo. Presentan la ventaja de ser ensayos relativamente rápidos y no tener efectos de almacenamiento en sondeo, aunque tienen el inconveniente de que su ejecución es compleja y que cualquier pequeña alteración del nivel impide evaluarlos correctamente. Los ensayos de nivel constante se interpretan en su fase transitoria con ajuste de rectas por el método de Jacob & Lohman (1952), y en la estacionaria por Thiem (1906).

Ensayos de trazadores

Los ensayos de trazadores se utilizan para caracterizar los procesos de transferencia de masa en el me-

dio acuífero, con independencia de la escala de trabajo, y permiten conocer mejor la geometría del medio. Consisten en inyectar en uno o varios sondeos, o en zonas aisladas de los mismos, uno o más solutos con una concentración conocida, midiendo en éstos y en otros puntos la variación de la concentración con el tiempo. Los ensayos de trazadores presentan una amplia variedad de tipologías dependiendo del medio, sus características, tipo de flujo, situación de los sondeos, tiempo disponible, análisis químicos, objetivos, etc.

Su interpretación requiere comúnmente del conocimiento detallado de la ejecución del ensayo. La interpretación puede no ser única, ya que se basa en diversas hipótesis preliminares, y los resultados pueden llegar incluso a no ser comparables. En medios fracturados el transporte de solutos se realiza en su mayoría por diques o fracturas, pero éstos están tan sólo caracterizados puntualmente en sondeos. El conocimiento de la geometría del sistema mediante la geología estructural y los estudios geofísicos es también muy importante y condiciona las hipótesis conceptuales.

La interpretación de ensayos de trazadores en medios fracturados se realiza comúnmente por métodos numéricos (Galarza et al., 1996), aunque se pueden realizar aproximaciones a los parámetros de transporte en flujo convergente bajo la hipótesis de que el medio es homogéneo e isótropo. Para ello se puede utilizar el ajuste a curvas tipo siguiendo la metodología de Carrera & Walters (1985) que permite obtener, entre otras cosas, los parámetros de dispersividad longitudinal α_L , porosidad ϕ (en realidad el producto de ϕ por el espesor de acuífero) y el número de Peclet N , que relaciona el flujo advectivo y el dispersivo.

Equipamiento e instrumentación de sondeos

La posibilidad de instrumentar un sondeo aislándolo en pequeñas secciones mediante obturadores de caucho permite la obtención de datos en toda su vertical (Figura 3) con el objetivo de conocer el funcionamiento tridimensional del sistema.

Cada una de las tareas concretas de caracterización hidráulica requiere la preparación e introducción de instrumental específico dentro del sondeo para aislar secciones, lo que se denomina comúnmente "instrumentar un sondeo". Su diseño y elaboración pueden llegar a ser altamente complejos debido principal-

mente al escaso diámetro que suelen tener, por distintos motivos, los sondeos perforados con este fin. El tipo de instrumentación depende básicamente del ensayo que se pretende realizar. Se diferencian de manera genérica cuatro tipos según su finalidad:

- 1) para la realización de ensayos de testificación en sondeo único;
- 2) para muestreos hidroquímicos y bombeos;
- 3) para medida de niveles piezométricos; y
- 4) para ensayos de transporte.

La instrumentación desarrollada por AITEMIN para la testificación hidráulica en sondeo único (Figura 4) se basa en Rogers et al. (1993), e incorpora las recomendaciones de Carrera (1991), Carrera et al. (1992) y Ortuño et al. (1995b). Las líneas generales son de una instrumentación de tipo *wire line*, apta hasta 500 m de profundidad, versátil (permite medir un amplio rango de permeabilidades con diferentes ensayos), precisa, y con un control del ensayo siempre en tiempo real. Las innovaciones respecto a instrumentaciones anteriores son, básicamente, la utilización de conectores y cable submarinos para las conexiones eléctricas en profundidad y el uso de válvulas de mayor diámetro y menor pérdida de carga.

La instrumentación para medir tan sólo niveles piezométricos en tramos aislados es común cuando se deja el sondeo por largos periodos de tiempo sin ninguna actividad o bien para analizar respuestas en los ensayos hidráulicos de interferencia. La instrumentación para bombear agua de una zona aislada del mismo se efectúa con el objetivo del muestreo hidroquímico de una fractura o en los ensayos de interferencia, y presenta como novedades respecto a instrumentaciones anteriores el reducido volumen de almacenamiento de la tubería y la creación de una atmósfera anóxica dentro de la misma para evitar contaminaciones por el aire de la superficie y mantener los niveles redox del agua. Los ensayos de transporte requieren una instrumentación compleja, tanto en sondeo como en superficie, por lo que el tipo de equipamiento requerido es altamente específico y depende del diseño del ensayo, pudiendo llegar a ser muy variable y a tener distintos grados de complicación.

Ensayos de laboratorio de la instrumentación de sondeos

El conocimiento preciso del propio equipo de caracterización hidráulica resulta de gran importancia

en la realización de ensayos en medios de muy baja permeabilidad. Por ejemplo, los obturadores, elementos inflables utilizados para aislar partes de un sondeo, no son elementos rígidos sino que se llegan a comprimir ligeramente aumentando la capacidad de almacenamiento en sondeo, lo cual es importante en los ensayos de tipo pulso. En este tipo de ensayos, donde se produce la inyección o extracción instantánea de un pequeño volumen de agua, se comprime tanto el agua del sondeo entre los obturadores como la propia instrumentación.

El conocimiento de la compresibilidad y elasticidad de obturadores y de tuberías, las pérdidas de carga, el efecto del aire atrapado y de las variaciones de temperatura hacen necesario el estudio en condiciones controladas en laboratorio de los componentes de la instrumentación. Con este fin Aitemin ha instalado un laboratorio que tiene como componente principal un tubo de acero inoxidable de 5.547 m de longitud y diámetro 114.3 x 92.0 mm (propiedad del CIEMAT), capaz de soportar presiones en su interior de hasta 100 bar, simulando las presiones que se pueden alcanzar en un sondeo a 1000 m de profundidad. El tubo tiene la posibilidad de subdividirse en tres cámaras aisladas, con accesos para entrada y salida de agua, en las que se controla de forma continua presión y temperatura. A continuación se describen los principales ensayos realizados hasta el momento sobre la instrumentación desarrollada por AITEMIN y los resultados obtenidos.

Obturadores

Los obturadores son los elementos más importantes de la instrumentación, por lo que es necesario conocerlos bien. Los ensayos de laboratorio han permitido obtener las curvas características de su variación de diámetro y acortamiento (un lado del obturador es deslizante mientras que el otro es fijo) en función del volumen de agua introducido y de la presión de hinchado. Estas curvas son útiles para obtener con exactitud los volúmenes o las presiones de inflado para un determinado diámetro de sondeo, y también para cuantificar con exactitud la longitud de la sección de sondeo obturada dado que se conoce con precisión el acortamiento producido.

El efecto de deslizamiento del obturador (conocido como *creeping* [Roberts et al., 1999], relajación o reajuste de la goma a las paredes del sondeo) que se produce inmediatamente después de la obturación se recupera en un 95% a los 10 minutos, en

un 97% a los 20 minutos, y al 100% en 90 minutos (Figura 5). Se puede afirmar que en la mayoría de los casos una espera en campo después de la obturación de 10 a 20 minutos antes de realizar un ensayo es suficiente para asegurar que los cambios de presión no son debidos a efectos secundarios de la obturación. Pero si la permeabilidad del medio es extremadamente baja conviene esperar un mínimo de 45 a 90 minutos antes de efectuar un ensayo hidráulico, siempre y cuando se tenga identificada la tendencia natural del nivel del tramo a ensayar.

Compresibilidad y pérdidas de carga de componentes del equipo

El valor del almacenamiento o deformabilidad del equipo Swe de un solo obturador inflado con agua es de $4 \cdot 10^{-8}$ m² y constante. El valor del coeficiente para el mismo obturador inflado con aire resulta en $6 \cdot 10^{-8}$ m², ligeramente superior al ser el aire más compresible que el agua, sin que se hayan observado diferencias del parámetro en ensayos de inyección y en ensayos de extracción.

El valor de deformabilidad Swe para una instrumentación formada por 2 obturadores inflados con aire y separados por 1.5 m de tubería de PVC resulta en aproximadamente $4 \cdot 10^{-7}$ m². Este parámetro es equivalente a la compresibilidad de unos 100 l de agua, que es aproximadamente el volumen de un tramo de ensayo unos 12 m de longitud en un sondeo de 101 mm de diámetro.

Dado que también forman parte de la instrumentación las poliamidas y la tubería de PVC, utilizada para unir los obturadores entre sí, se han medido también los valores del almacenamiento o deformabilidad de estos elementos y sus pérdidas de carga. Los valores dependen del tipo y marca de poliamida o de tubería, y de su diámetro y espesor, y son específicos para cada caso.

Aire atrapado en el equipo y en los sensores de presión

El aire atrapado en el equipo de testificación de sondeo y la burbuja que queda en algunos casos en la toma de los sensores de presión produce algunos efectos anómalos en determinadas mediciones.

El efecto del aire atrapado en el equipo influye, sobre todo, en el almacenamiento en sondeo Sw, dado que el aire es mucho más compresible que el agua y que el equipo. Los valores de Sw con una

burbuja de aire en la instrumentación de un 1% y a bajas presiones (< 10 bar) pueden ser entre dos y tres órdenes de magnitud superiores a los esperados. Estos valores tienden a disminuir a medida que la profundidad del ensayo es mayor y aumenta la presión, ya que el tamaño de la burbuja también disminuye. Este efecto se ha llegado a simular numéricamente, siendo los resultados obtenidos muy coincidentes con los datos experimentales. El efecto de la burbuja de aire en la instrumentación puede llegar por tanto a ser crítico en ensayos hidráulicos realizados a profundidades menores de 100 m.

El efecto de la burbuja de aire en la toma de los sensores de presión de la instrumentación produce una anomalía en las lecturas de los sensores que puede interpretarse como un *offset*. Este efecto se atenúa cuando la presión supera los 5 - 10 bar. Aunque esto puede ser corregido calibrando los sensores con su correspondiente burbuja cada vez que se desciende en un sondeo la instrumentación, resulta aconsejable suprimirla para ahorrar tiempo en la testificación y ganar fiabilidad en las medidas llevando los sensores en los propios tramos de medida, aunque esto complique la instrumentación al obligar a realizar pasos eléctricos por los obturadores. La burbuja de aire en los sensores podría producir errores en las lecturas que se traducen a errores en la estimación del coeficiente de almacenamiento S de la formación en la interpretación de ensayos.

Efectos de variación de temperatura

Los efectos térmicos en ensayos de laboratorio son importantes, ya que las variaciones térmicas ambientales se traducen en variaciones de temperatura en el tubo y consecuentemente de la presión. Se dispone de una sonda de temperatura en el interior del tubo para monitorizar este parámetro. Para ensayos de laboratorio cortos, éstos pueden considerarse como efectuados a temperatura constante. Sin embargo en ensayos de media o larga duración las variaciones de temperatura provocan cambios de presión constituyendo un factor añadido de incertidumbre, llegando a ser éstas de 0.4 a 1.6 bar por grado.

No obstante, en los ensayos hidráulicos efectuados en sondeos los efectos térmicos durante su realización pueden considerarse despreciables, ya que la temperatura del agua en el acuífero a partir de escasas profundidades (20 m) es casi constante durante los tiempos de ensayo. Sin embargo, dado

que algunos tipos de ensayos se basan en la inyección de agua en la zona de test, las variaciones de temperatura pueden ser inducidas por la inyección de agua más fría o más caliente que la del acuífero. Este efecto puede llegar a ser crítico en los medios de baja permeabilidad, ya que pequeñas variaciones de temperatura implican grandes variaciones de presión al ser el agua un fluido poco compresible. Variaciones de uno o dos grados del agua durante la recuperación de un ensayo de pulso pueden llegar incluso a invalidar el propio ensayo (Grisak et al, 1985).

Caracterización piezométrica

La caracterización piezométrica se realiza mediante la elaboración de hidrogramas y piezometrías de la zona de estudio. Por ello, la testificación hidráulica persigue, además de los parámetros del medio, la obtención de los niveles piezométricos en diferentes puntos del acuífero y su variación con el tiempo.

En un sistema de flujo tridimensional la caracterización piezométrica es compleja, ya que requiere la integración de datos del nivel piezométrico en los diferentes puntos del espacio, pudiendo además variar el nivel con el tiempo. La metodología genérica que se sigue en la elaboración de piezometrías e hidrogramas en medios fracturados es igual que la que se utiliza en medios porosos, y consiste en:

- 1) la elaboración de hidrogramas;
- 2) el análisis por sondeos de los niveles piezométricos obtenidos en tramos aislados a diferentes profundidades;
- 3) la elaboración de perfiles piezométricos verticales del terreno, y, por último,
- 4) la realización de secciones horizontales a diferentes cotas para reflejar la evolución piezométrica en profundidad.

El análisis de toda esta información permite la evaluación de flujos verticales, tanto ascendentes como descendentes, y determinar las posibles zonas de recarga y descarga de la zona de estudio, aunque también se pueden llegar a estimar algunos parámetros del acuífero. La Figura 6 muestra un ejemplo de un perfil piezométrico elaborado a partir de datos obtenidos en diferentes sondeos.

Los niveles piezométricos se expresan comúnmente como metros sobre el nivel del mar (m s.n.m.). El nivel piezométrico medido en un tramo de sondeo

aislado con obturadores se asigna normalmente a la profundidad de su punto medio, siendo el error cometido con esta aproximación menor cuanto más corto sea el tramo aislado.

Conclusiones

Las metodologías que se utilizan en la caracterización hidráulica de medios fracturados son diferentes a las que se usan en medios homogéneos, aunque presentan algunas similitudes. El hecho de tener que caracterizar zonas de sondeos con fracturas altamente transmisivas y zonas donde prácticamente sólo existe matriz de baja o muy baja conductividad hidráulica hace que sea necesario un equipamiento específico capaz de realizar diversos ensayos que cubran un gran rango de valores. El tipo de ensayos que se realizan en un solo sondeo son de pulso, de cuchareo y de inyección o extracción con caudal o nivel constantes, ofreciendo buenos resultados. Para ensayos entre varios sondeos, los de extracción con caudal constante son los que proporcionan más información acerca de las características del medio y la conectividad entre las distintas estructuras tectónicas.

Las peculiaridades del medio fracturado hacen que algunos parámetros obtenidos en ensayos hidráulicos deban ser tomados con precaución, sobre todo si las hipótesis de interpretación son para un medio homogéneo. En los ensayos de pulso y de cuchareo la fiabilidad de la transmisividad que se obtiene es alta, mientras que el coeficiente de almacenamiento es el parámetro más sensible al régimen de flujo y a otros efectos siendo muy poco fiable. La interpretación de este tipo de ensayos con método inverso permite la reproducción en su totalidad, no tan sólo de la fase de recuperación sino incluyendo también la de inyección, siendo el resultado mucho más robusto, sobre todo para transmisividades moderadas o cuando la fase de inyección es larga. Los ensayos a caudal constante permiten obtener información adicional en medios fracturados sobre el régimen del flujo, las características de las fracturas testificadas y la conectividad entre sondeos y estructuras tectónicas.

La utilización de equipamiento capaz de aislar un sondeo en tramos individualizados con obturadores proporciona información tridimensional del sistema, ya que permite obtener transmisividades y niveles piezométricos en la vertical de todo el sondeo. El conocimiento preciso del propio equipo de testificación es importante en los ensayos que se realizan

en medios de muy baja permeabilidad, dado que involucran volúmenes muy pequeños de agua por lo que es conveniente realizar ensayos controlados en laboratorio sobre la elasticidad de los componentes y las pérdidas de carga. Se ha comprobado que la compresibilidad de un obturador inflado con aire es superior a la del mismo obturador inflado con agua ($6 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2$ y $4 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2$), siendo el valor constante con la presión y sin que varíe en ensayos de inyección o de extracción. Para configuraciones de equipo con dos obturadores separados por 1.5 m de tubería de PVC los valores de compresibilidad obtenidos en laboratorio ($4 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2$) equivalen al almacenamiento que tiene un volumen de agua de unos 100 l (unos 12 m de longitud de tramo de sondeo de 101 mm de diámetro).

La existencia de aire atrapado en la instrumentación es importante en los ensayos que se efectúen a escasas profundidades (menores a 100 m), sobretudo en los ensayos de pulso, dado que puede hacer que el almacenamiento en sondeo S_w llegue a aumentar incluso órdenes de magnitud. La burbuja de aire también puede afectar a los sensores de presión, produciendo efectos que se traducen sobre todo en errores de estimación del coeficiente de almacenamiento S de la formación, obligando además a calibrar los sensores continuamente con su correspondiente burbuja. Por otra parte, se ha estimado en ensayos de laboratorio que el efecto de deslizamiento del obturador (*creeping*) o reajuste de la goma a las paredes del sondeo que se produce inmediatamente después de la obturación se recupera en un 95% a los 10 minutos, y al 100% en 90 minutos.

El límite inferior de transmisividad que es posible medir viene determinado por las características del equipo, de manera que cuanto menor es su elasticidad el límite disminuye al hacerlo también el almacenamiento en sondeo S_w . Los equipos con obturadores hinchables de caucho permiten medir transmisividades de hasta $10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ en ensayos de 4 horas de duración, pero aunque los equipos fueran completamente rígidos sería prácticamente imposible medir transmisividades inferiores a $10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ en ensayos de pulso con 4 horas de recuperación, siendo la longitud del tramo de ensayo de 10 metros.

Referencias

- Agarwall (1980): "A new method to account for producing time effects when drawdown type curves are used to analyze pressure build-up and other test data". Soc.Pet.Eng., SPE paper 9289. SPE-AIME meeting, Dallas, Texas. Sept. pp. 21-24.
- Barker, J. (1988): "A generalized radial-flow model for pumping tests in fractured rocks". British Geological Survey. Wallingford, Oxfordshire, ox10 8BB, U.K. 55 pp.
- Bredehoeft, J.D. & Papadopoulos, S.S. (1980): "A method for determining hydraulic properties of tight formations". Water Resources Research vol. 16(1), pp. 233-238.
- Bourdet, D.; Ayoub, J.A. & Pirard, Y.M. (1989): "Use of Pressure Derivative in Well-Test Interpretation". Soc. of Petroleum Engineers. SPE Formation Evaluation, pp 293-302.
- Carbonell, J.A.; Perez-Paricio, A. & Carrera, J. (1997): "MARIAJ_IV: Programa de calibración automática de ensayos de bombeo. Modelos analíticos y numéricos para medios 2D y 3D". E.T.S.E.C.C.P.B., UPC, Barcelona.
- Carrera et al, (1987): "Hidrogeología de rocas fracturadas poco permeables". IV Simposio Nacional de Hidrogeología. Palma de Mallorca, Hidrogeología y Recursos Hidráulicos, vol. XII, pp. 99-129.
- Carrera, J. (1991): "Nota técnica sobre los ensayos a realizar durante la perforación de los sondeos de El Berrocal". E.T.S.E.C.C.P.B., Universitat Politècnica de Catalunya. Barcelona, no publicado.
- Carrera, J. & Walters, G. (1985). "Theoretical developments regarding simulation and analysis of convergent-flow tracer tests". Sandia National Laboratories, 136 pp.
- Carrera, J.; Samper, J.; Vives, L. & Guimera, J. (1992). "Ensayos de pulso: una revisión sobre su realización e interpretación". V Simposio de Hidrogeología, Alicante. AHES.DPA. pp. 463-481.
- Cooper, H.H. Jr., & Jacob, C.E. (1946): "A generalized graphical method for evaluating formation constants and summarizing well-field history". Am. Geophys. Union Trans., vol. 27 no. 4, pp. 526-534.
- Cooper, H.H.; Bredehoeft, J.D. & Papadopoulos, I.S. (1967): "Response of a finite-diameter well to an instantaneous charge of water". Water Resources Research, vol. 3, n° 1, págs. 263-269.
- Custodio, E. & Llamas, J.R. (1983): "Hidrología subterránea". 2º Ed. Tomos I y II. Ed. Omega, Barcelona. 2350 pp.
- Doe, T.W. & Osnes, J.D. (1985): "Interpretation of fracture geometry from well test". International Symposium on Fundamentals of rock joints, September 15-20 1985, Bjorkliden, Sweden.
- Galarza, G., Medina A. & Carrera J. (1996): "TRANSIN III: Fortran code for solving the coupled non-linear flow and transport inverse problem". ETSECCPB, UPC (Barcelona). El Berrocal Project, Topical Report 17. ENRESA, Julio 1996

- Grisak, G.E.; Pickens, J.F.; Avis, J.D.; Belanger, D.W.; Thury, M.A. & Schneider, A. (1985): "Principles of hydrogeologic investigations at depth in crystalline rock". In "Proceedings Hydrogeology of rocks of Low Permeability", part 1, Mem. Int. Assoc. Hydrol., vol. 17, pp. 52-72, International Association of Hydrogeologists, Tuscon, Arizona.
- Guyonet, D.; Rivera, A.; Loew, S.; Correa, N. & Jaquet, O. (1993): "Analysis and synthesis of fluid logging data from wellenberg boreholes SB1, SB3, SB4 and SB6". National Cooperative for the Disposal of Nuclear Waste NAGRA. NAGRA Technical Report NTB 92-01. January 15th. Switzerland.
- Horne, R.N. (1990): "Modern Well Test Analysis". Petroway, Inc., Palo Alto, California.
- Horner, D.R. (1951): "Pressure build-up in wells". Third World Petr. Congress. E.J. Brill, Leiden II, pp 503-521.
- Hsieh, B.A.; Neuman, S.P. & Simpson, E.S. (1983): "Pressure testing of fracture rocks. A methodology, employing 3D crosshole test". N.U.R.E.G./CR-3213 RW Topical Report. Dept. Hydrogeology and Water Resources, Univ. Arizona.
- Jacob, C.E. (1940): "On the flow of water in an elastic artesian aquifer". Trans.Amer.Geophys.Union. pt. 2, pp. 574-586.
- Jacob, C.E. & Lohman, S.W. (1952): "Nonsteady flow to a well of constant drawdown in an extensive aquifer". Trans.Amer.Geophys.Union. vol. 33, (4) pp. 559-569.
- Meier, P.M.; Carrera, J. & Sanchez-Vila, X. (1998): "An evaluation of Jacob's method for the interpretation of pumping tests in heterogeneous formations". Water Resources Research, vol. 34, n° 5, pp 1011-1025.
- Ortuño, F.; Floría, E.; Guimerà, J. & Vives, L. (1995,a): "Avances en las técnicas de ensayos hidráulicos en medios fracturados de baja permeabilidad". VI Simposio de Hidrogeología y Recursos Hidráulicos. Asociación Española de Hidrogeología Subterránea, 23-27 de octubre-1995, Sevilla.
- Ortuño, F.; Floría, E. & Lomba, L. (1995,b): "Avances en las técnicas de ensayos hidráulicos en medios de baja permeabilidad. 1.- Ensayos hidráulicos en el sondeo S-17 de la estación de El Berrocal". CIEMA/IMA/51C63/15/95, CIEMAT, Madrid. 51 pp.
- Roberts R.M., Beauheim R.L & Domski P.S. (1999) "Hydraulic testing of Salado Formation evaporites at the waste isolation pilot plant site: final report". Sandia National Laboratories, Sandia Report SAND98-2537, California.
- Rogers, S.F.; Holmes, D.C.; Ward, R.S. & Bailey, D.E. (1993): El Berrocal Project. Progress report August 1992 - January 1993". Fluid Processes Group, B.G.S., NERC. Report no: FP80FB / DOC4-A-A.
- Schad, H. & Teutsch, S. (1994): "Effects of the investigation scale on pumping test results in heterogeneous porous aquifers". J. Hydrol., 159, pp 61-77.
- Shapiro, A.M. & Hsieh, P. (1998): "How Good are Estimates of Transmissivity from Slug Tests in Fractured Rocks?". Groundwater, Vol. 36, no. 1.
- Spang, F.A. & Wurstner, S.K. (1993): "DERIV: A Computer Program for Calculating Pressure Derivatives for Use in Hydraulic Test Analysis". Ground Water, vol. 31, no 5, pp. 814-822.
- Thiem, G. (1906): "Hydrologische Methoden". Gebhardt, Leipzig.
- Vomvoris, S. & Frieg, B. (1992): "Interpretation of cross-hole hydraulic tests and pilot fluid logging test for selected boreholes within the BK-Site", Nagra NTB 91-09, Nagra, Wettingen, Switzerland.

Agradecimientos

El presente trabajo se ha efectuado con la financiación de ENRESA (Empresa Nacional de Residuos S.A.). Para la realización de los trabajos AITEMIN ha contado con la colaboración del resto de los equipos participantes en el Proyecto Mina Ratones. Hay que destacar la ayuda prestada en campo especialmente por el personal del CIEMAT (Centro de Investigaciones Energéticas, Medio Ambientales y Tecnológicas, Instituto de Medio Ambiente, Madrid), de la UPC (Universitat Politècnica de Catalunya, Departamento de Ingeniería del Terreno, Barcelona), y del CSIC (Consejo de Investigaciones Científicas, Instituto Jaume Almera, Barcelona), los cuales también han colaborado en la interpretación de los datos. Por otra parte, en buena medida los trabajos han sido posibles gracias a los medios materiales del CIEMAT puestos a disposición de AITEMIN tanto para la realización de los ensayos hidráulicos en campo como para los ensayos de laboratorio.

Tabla 1
Principales tipos de ensayos hidráulicos.

Tipo de ensayo	Escala	Información obtenida	Intervalo de medida de T (m ² /s) ⁽¹⁾	Ventajas	Inconvenientes
Pulso	Sondeo (cm)	T	10 ⁻¹¹ a 10 ⁻⁸	Permite medir valores de T muy bajos	Instrumentación de sondeo compleja
Cuchareo	Sondeo (dm)	T	10 ⁻⁹ a 5*10 ⁻⁷	Fácil de efectuar	Sensible a pérdidas de carga en la instrumentación
Caudal constante	Sondeo (m) y local	T, S, régimen de flujo y bordes	10 ⁻⁸ a 10 ⁻⁵	Buen desarrollo numérico. Permite estimar muchos parámetros y efectos	Difícil de ejecutar si el caudal a mantener es muy bajo
Nivel constante	Sondeo (m)	T	10 ⁻⁸ a 10 ⁻⁵	Ensayo rápido	Difícil de ejecutar
Trazadores	Local (m, dm y hm)	Porosidad, dispersión, difusión, etc.	—	Proporciona información sobre el transporte de solutos	Ejecución e interpretación complejas

⁽¹⁾ Los intervalos de medida de la transmisividad son orientativos, ya que dependen del tipo de instrumentación de sondeo que se utilice para la caracterización.

Tabla 2
Métodos de interpretación de ensayos hidráulicos.

Tipo de ensayo	Métodos de interpretación	
Pulso	Inyección instantánea	Bredehoeft & Papadopoulos (1980)
	Inyección finita	MariaJ_IV (Carbonell et al., 1997)
Cuchareo	Inyección instantánea	Bredehoeft & Papadopoulos (1980)
	Inyección finita	MariaJ_IV (Carbonell et al., 1997)
Caudal constante	Identificación del régimen de flujo	Gráfico log-log, Horne (1990) y Spang & Wurster (1993)
	Interpretación preliminar	Cooper & Jacob (1946) y Horner (1951)
	Método inverso	MariaJ_IV (Carbonell et al., 1997)
	Modelo numérico con fractura	MariaJ_IV (Carbonell et al., 1997)
Nivel constante	Fase en régimen transitorio	Jacob & Lohman (1952)
	Fase en régimen estacionario	Thiem (1906)
Trazadores	Parámetros preliminares	Carrera & Walters (1985)
	Modelos numéricos	Transin_III (Galarza et al., 1996)

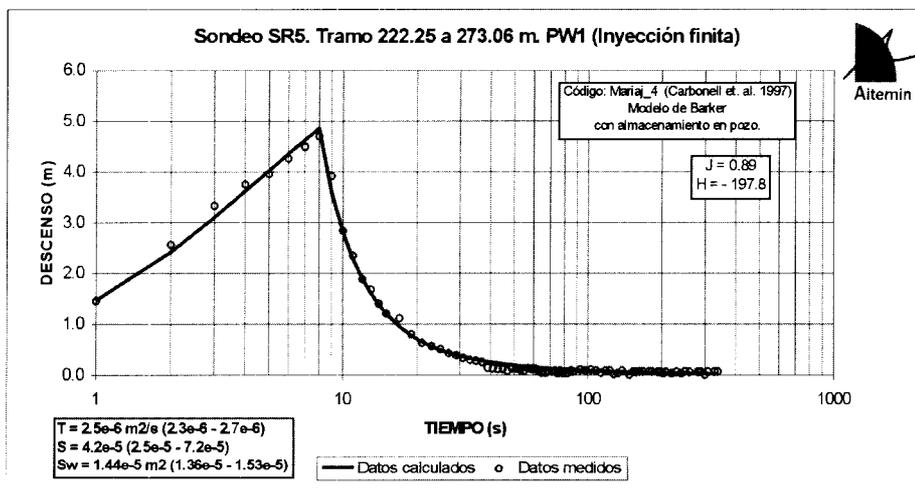
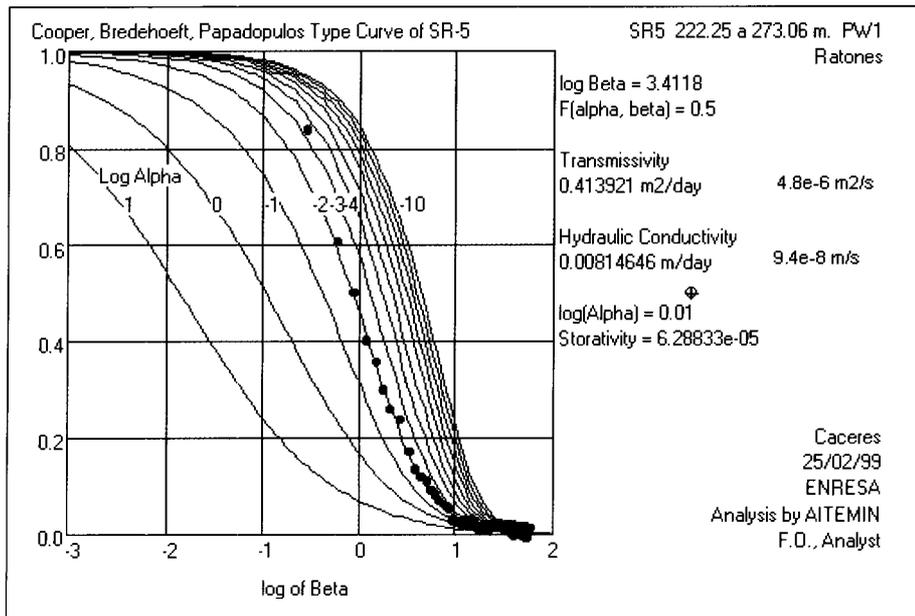
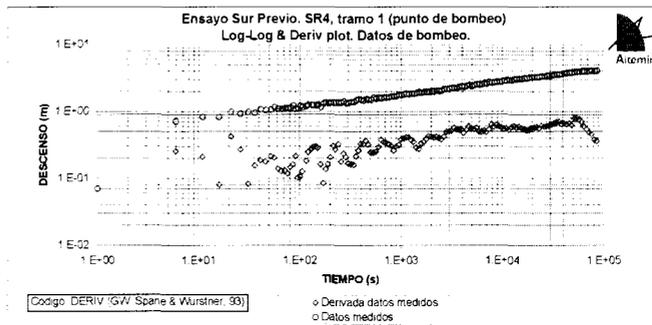
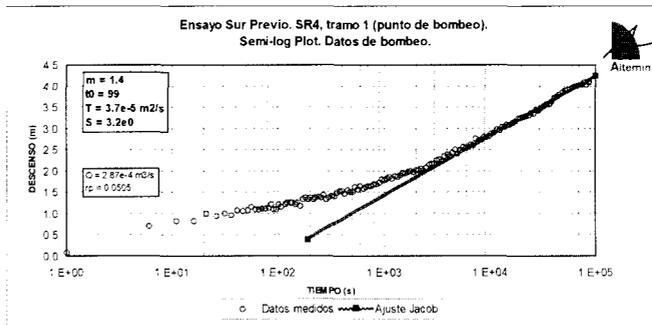


Figura 1. Interpretación de un ensayo de pulso mediante ajuste a curvas tipo (arriba, Cooper et al, 1967, suponiendo inyección puntual) y mediante método inverso (abajo, Carbonell et al, 1997, suponiendo inyección finita). El ajuste a curvas tipo representa una buena aproximación inicial a los parámetros del medio, pero el método inverso permite reproducir el ensayo en su totalidad, incluyendo además de la fase de recuperación la de inyección, siendo el resultado más robusto.

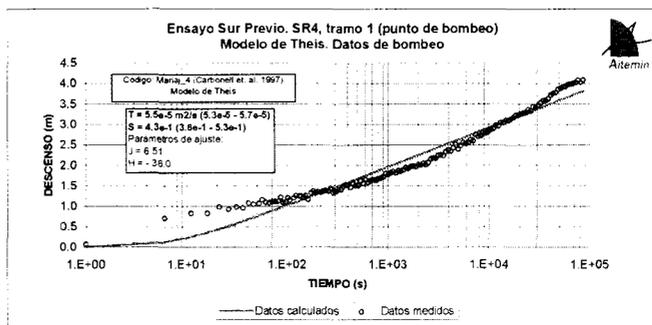
- 1) Gráfico log-log y derivada.
 - Identificación de almacenamiento en sondeo.
 - Identificación del régimen de flujo.
 - Identificación de bordes.



- 2) Método de Jacob (Cooper & Jacob, 1946):
 - Obtención de parámetros.



- 3) Método inverso (Carbonell et al., 1997):
 - Obtención de parámetros.
 - Verificación de hipótesis.



- 4) Modelo numérico con fractura (Carbonell et al., 1997):
 - Verificación de hipótesis de fractura.
 - Obtención de parámetros de la fractura.
 - Obtención de parámetros de la matriz.

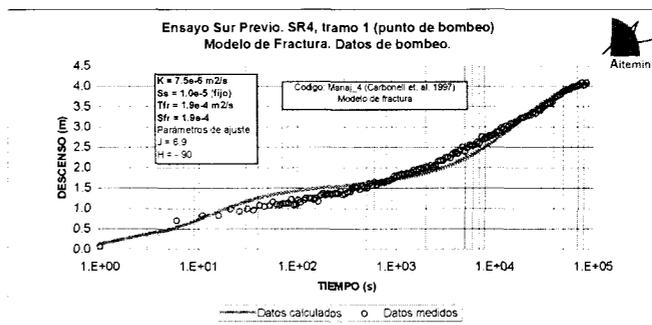


Figura 2. Metodología de interpretación de un ensayo de bombeo a caudal constante en un medio fracturado. El gráfico log-log y la derivada del descenso respecto al tiempo permiten establecer las hipótesis iniciales de interpretación. El método de Jacob es una buena aproximación a los parámetros del acuífero, incluso si el medio es heterogéneo en la mayoría de los casos. El método inverso permite verificar las hipótesis de interpretación y obtener parámetros, considerando incluso la existencia de una fractura en el medio.

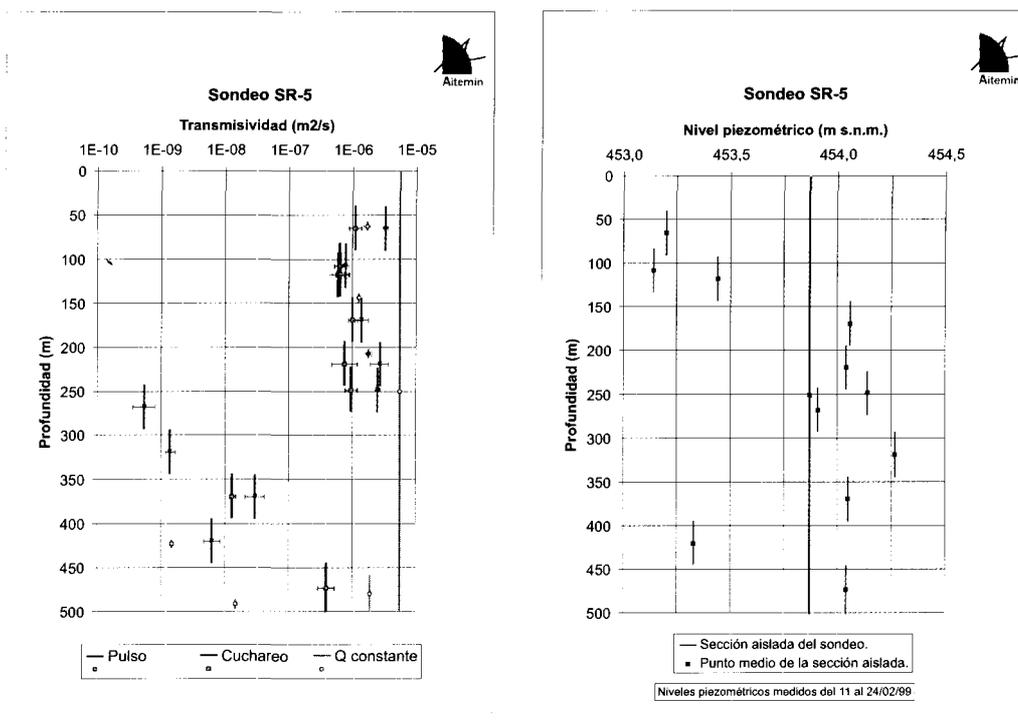


Figura 3. Parámetros hidráulicos obtenidos en la vertical de un sondeo. A la izquierda se muestran las transmisividades por tramos obtenidas mediante ensayos de pulso, cuchareo y caudal constante, y a la derecha los niveles piezométricos para cada tramo. Obsérvese que la transmisividad de toda el sondeo es la suma de las transmisividades de cada uno de sus tramos, y que el nivel a sondeo abierto es una media ponderada por la transmisividad de los niveles de sus tramos.

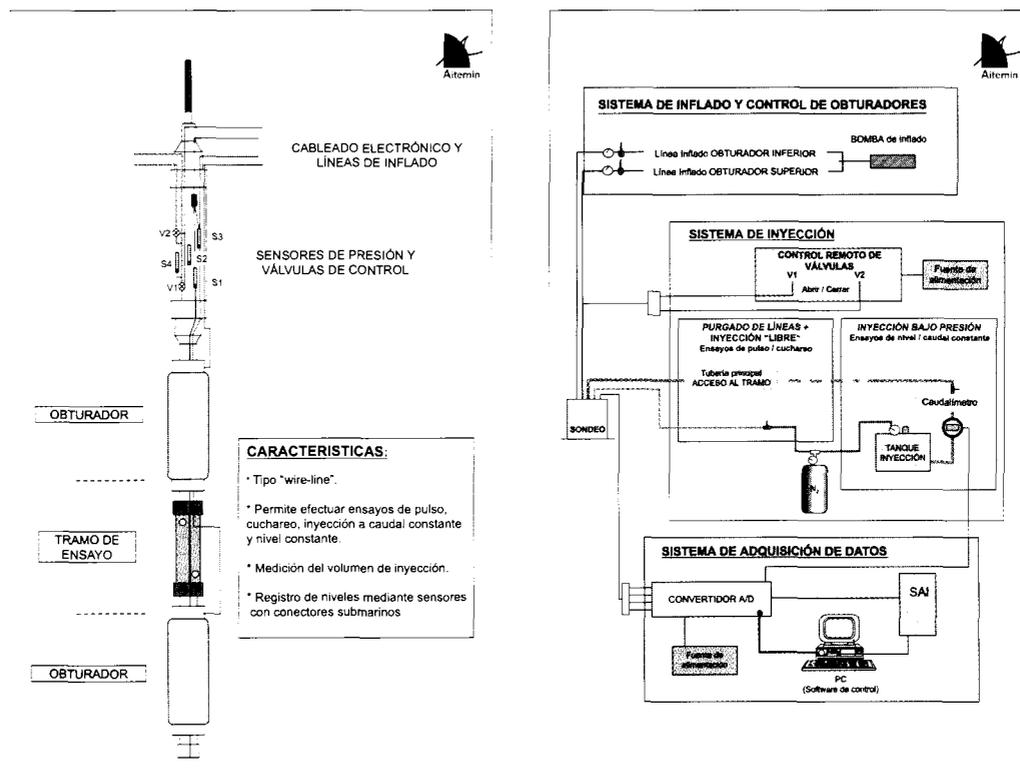


Figura 4. Instrumentación de sondeo y de superficie para la realización de ensayos de testificación hidráulica en sondeo único. Esta instrumentación ligera de tipo wire line permite efectuar ensayos de pulso, cuchareo, caudal o nivel constantes en tromas aisladas de un sondeo hasta 500 m de profundidad, cubriendo un rango de transmisividades de 10^{-11} a 10^{-5} m²/s.

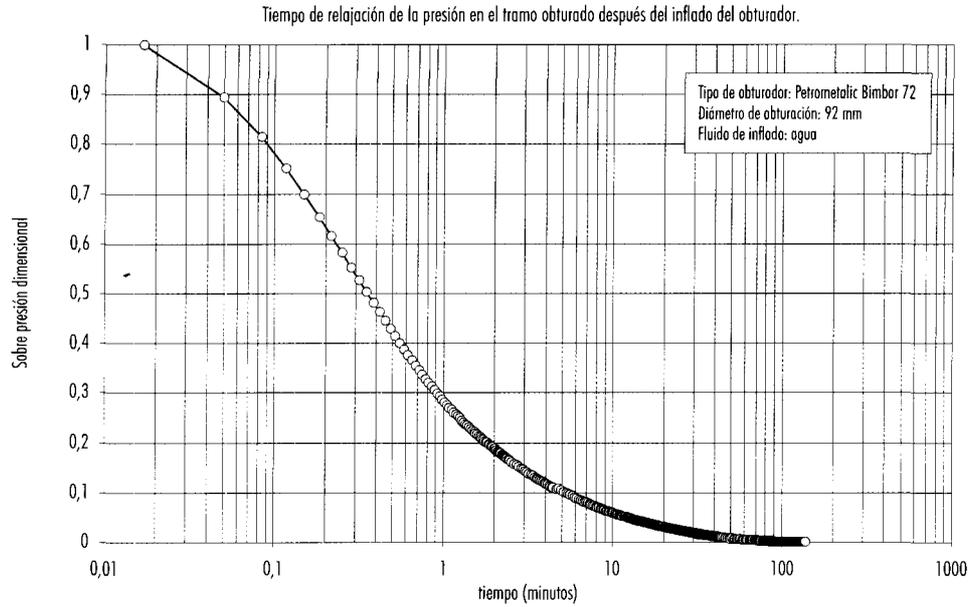


Figura 5. Tiempo de relajación de la presión en el tramo obturado por efecto del inflado del obturador. El obturador al acabar de hincharse presenta siempre un efecto de relajación o reajuste a las paredes del sondeo, que se traduce en una variación de la presión del tramo obturado. La presión se estabiliza en un 95% a los 10 minutos después del inflado, y al 100% en 90 minutos.

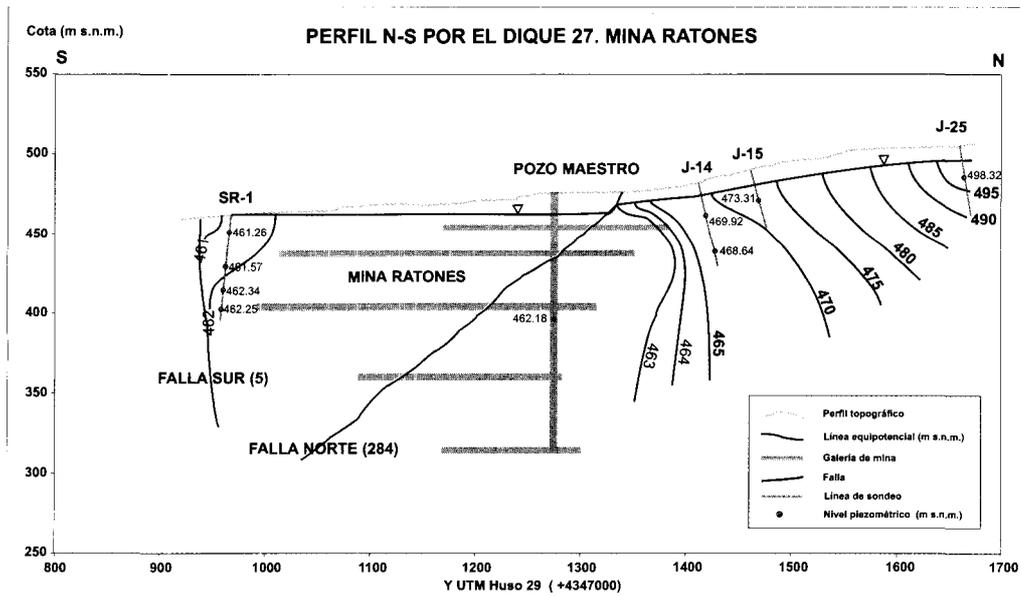


Figura 6. Perfil piezométrico vertical. Los perfiles se elaboran a partir de las niveles piezométricos medidas en tramos aislados de sondeos, y permiten identificar zonas de recarga y descarga subterránea y elaborar, verificar y descartar hipótesis sobre el funcionamiento del medio.

METODOLOGÍA PETROFÍSICA PARA LA CARACTERIZACIÓN FRACTOGRÁFICA E HIDROGEOLÓGICA DE LA MATRIZ ROCOSA

Modesto Montoto San Miguel
Dpto. de Geología (Grupo de Petrofísica), Universidad de Oviedo

Resumen

Se resume y actualiza la metodología petrofísica que permite caracterizar la red microfractográfica comunicada de la matriz rocosa como vías potenciales de circulación del agua. Se cartografían dichas vías y se evalúa la superficie específica de los minerales petrográficos a los que afecta. También se relacionan con las tensiones residuales del macizo intentando establecer flujos preferenciales del agua en la matriz rocosa. Se caracterizan las propiedades hídricas de la matriz rocosa, así como su potencial anisotropía y grado de heterogeneidad. Con estos estudios y planteamiento petrofísico se han perfeccionado las técnicas de caracterización de la matriz rocosa, mejorando la calidad de los datos obtenidos y rebajando sus costos de adquisición.

Abstract

The petrophysical methodology for characterizing the open microfractographic network of the intact rock as potential water pathways is summarized and updated. Those water pathways are mapped and the specific surface of the traversed rock-forming minerals is evaluated. Structural relationships are established among them and the geostresses for establishing preferential directions of water flow. The hydric properties of the intact rock and its potential anisotropy and heterogeneity degree are also evaluated. The techniques for the characterization of the intact rock have been developed by using the petrophysical approach; the costs and quality of the data so obtained have been improved.

Petrofísica de la matriz rocosa

La Petrofísica de la matriz rocosa (Montoto y Esbert, 1999) estudia sus propiedades físicas y las interpreta en función de sus componentes petrográficos (poros y fisuras, uniones intergranulares, presencia de anisotropías, minerales, incluyendo su estado de alteración físico y químico, composición química, etc.); este planteamiento permite, además, intentar predicciones futuras acerca del comportamiento físico de la roca. Por todo ello la metodología petrofísica se inicia con los correspondientes estudios de campo y se complementa con los de laboratorio de tipo físico, químico y petrográfico. Resulta esencial la rigurosa cuantificación de los componentes petrográficos significativos en Petrofísica, para relacionar estos datos con los proporcionados mediante los ensayos sobre propiedades físicas y poder interpretar éstas; la citada cuantificación se consigue con ciertas técnicas instrumentales y otras más específicas de microscopía.

Pero, la interpretación petrográfica de las propiedades físicas, que requiere el planteamiento petrofísico, no siempre resulta fácil; esto se debe a que, a diferencia de otros materiales, en especial los fabricados por el hombre, las rocas son poco homogéneas, polifásicas, con abundantes discontinuidades y anisotropías lo cual dificulta, para la interpretación de sus propiedades físicas, la aplicación de los principios básicos de la Física teórica. Ésta, en sus postulados, considera materiales continuos, homogéneos, isótropos y sin límites, es decir, todo lo contrario de la realidad de las rocas. Este hecho, junto al amplio número de variables que pueden intervenir en el comportamiento físico del medio rocoso, contribuye a que las correlaciones entre petrografía

y propiedades físicas sean difíciles de interpretar y, sobre todo, de generalizar. Por otra parte, debido a la citada falta de homogeneidad en las rocas, deben ensayarse numerosas probetas para cada muestra a fin de lograr una correcta representatividad de los datos petrofísicos proporcionados.

Las características y componentes y petrográficos que se consideran más significativos para interpretar las propiedades físicas de la matriz rocosa son: textura, incluyendo los vacíos (poros o fisuras), uniones intergranulares, presencia de anisotropías (fractográficas, composicionales, estructurales, ...) y minerales (considerando muy especialmente su estado de alteración físico y químico). Pero sin duda alguna el más influyente de todos ellos es la porosidad; su dualidad funcional es evidente, por una parte representa una carencia de fase sólida en el seno de la roca, con evidente incidencia mecánica, pero por otra condiciona la movilidad del componente que más variabilidad comunica a las propiedades físicas de las rocas, el agua.

En el análisis de la porosidad deben considerarse el volumen total ocupado por los huecos y las características geométricas de éstos, así como de sus accesos, en términos de conectividad, tortuosidad, etc.; en general suele hablarse de la "geometría del sistema poroso". Para poder interpretar mejor los movimientos del agua por el seno de la matriz rocosa, se contabilizan todos los espacios vacíos, comunicados o no, distinguiéndose entre "porosidad total" y "porosidad abierta y, también, entre "porosidad atrapada", con muy difícil entrada y salida del agua, y "porosidad libre o circulante o efectiva". Sin embargo, dado que las características de los accesos a los poros son los que realmente gobiernan la capacidad de tránsito del agua, se recomienda evaluar el rango de variación de los tamaños de tales conductos y, más concretamente, el porcentaje de la porosidad total de la roca accesible a través de cada rango de tamaños; estos datos pueden obtenerse mediante porometría de inyección de mercurio y se representan utilizando un sencillo histograma. Con esta técnica se determina, para cada tamaño de acceso, la porosidad de tipo efectiva y atrapada.

Si se presuponen posibles reacciones sólido-fluido, como las que preocupan en los análogos naturales sobre migración de elementos radiactivos, o las que tienen lugar en numerosas aplicaciones industriales y en las clásicas de interés petrogenético, debe, además, considerarse la composición química mineral y global de la roca, así como las relaciones

geométricas existentes entre los espacios vacíos abiertos –efectivos para el tránsito de fluidos– y los minerales de la roca. En estos casos debe poderse discernir y cuantificar la localización de los vacíos comunicados –intra, trans e intergranulares– respecto a cada mineral de la roca.

Otro "componente petrográfico" esencial en Petrofísica es la posible presencia de anisotropías que la roca puede presentar a diversas escalas, debido a orientaciones en la red microfractográfica, bandeados composicionales, esquistosidad mineral, etc. Su valoración más adecuada suele lograrse mediante la utilización de técnicas no destructivas como las ultrasónicas.

Escalas en la barrera geológica: macizo y matriz rocosa

En la mayoría de procesos geológicos coexisten dos sistemas o escalas diferentes dentro del mismo marco geológico: el macizo rocoso (con fracturas de m a km) y la matriz rocosa (con fisuras de μm a cm); esta "matriz rocosa" o "roca matriz" ("intact rock") ha sido definida por la ISRM (International Society for Rock Mechanics) como un volumen de roca carente de discontinuidades de macizo: fracturas, diaclasas, planos de estratificación, ... Ambas escalas, muy diferentes y significativas, se establecen claramente en "Engineering Geology, Rock Engineering, ..." y para una misma propiedad física sus valores son claramente diferentes, en ocasiones en varios órdenes de magnitud.

En condiciones de baja presión de confinamiento y cortos períodos de tiempo el flujo de agua por el seno del macizo está condicionado más por las propiedades hidráulicas de las fracturas que por las fisuras presentes en la matriz rocosa. Pero al intentar interpretar el comportamiento físico de todo el medio geológico durante un proceso de larga duración, como el que implica el almacenamiento definitivo de residuos radioactivos de alta actividad, surgen numerosas incógnitas, por ejemplo: ¿cómo interactúan ambas escalas durante el transporte y el flujo? o, ¿cuáles son sus papeles específicos en un proceso de tan larga duración? (Glass, R.J. et al., 1996). Esto conlleva que para poder alcanzar una interpretación global no quede otro remedio que ceñirse a la realidad física del medio geológico, es decir, comprendiendo e integrando los datos proporcionados por ambas escalas en la modelización del flujo de fluidos en el macizo rocoso.

Caracterización no-destruktiva de la matriz rocosa: Evaluación de anisotropía e inhomogeneidad

Dado que las rocas muestran generalmente anisotropías potenciales de muy diferente significado (fractográfico, composicional, granulométrico...) y también una gran inhomogeneidad en sus propiedades físicas, aspectos que claramente dificultan las interpretaciones posteriores, lo aconsejable es caracterizar los testigos de sondeo, con anterioridad a cualquier otro estudio, mediante ensayos no destructivos (NDT) que, en absoluto, modifican las características originales de tales testigos.

Este análisis de anisotropías e inhomogeneidades se realiza mediante perfiles ultrasónicos (Montoto, 1999a) perpendiculares al eje del testigo y a lo largo de éste. El proceso implica: la medición sistemática de los "tiempos de vuelo" de ondas compresivas (P) según cuatro direcciones ortogonales que van repitiéndose a lo largo de todo el testigo (Fig. 1) a analizar, la evaluación de las correspondientes velocidades (en m/s) y cálculo de "slowness" (en $\mu\text{s}/\text{cm}$) de todos los datos medidos; a su vez se selecciona una zona de "referencia" en el testigo representativa de una situación petrofísicamente "ideal" (no meteorizada, carente de microfisuración visible,...). El valor de "slowness" de esta zona se resta del de todas las demás obteniéndose los correspondientes "tiempos residuales"; éstos se representan gráficamente a lo largo del testigo obteniéndose una distribución espacial de valores positivos y negativos (Fig. 2) de zonas y orientaciones con mayor o menor "slowness" que la "referencia". Las discrepancias permiten poner en evidencia no sólo la presencia de anisotropías sino, también, el grado de heterogeneidad de la matriz rocosa. Las zonas con "tiempos residuales" positivos son indicadoras de un mayor grado de meteorización, mayor fisuración interna, mayor debilidad en las uniones intergranulares, etc.; lo contrario debe interpretarse en las negativas.

Estos estudios previos alertan, a su vez, sobre las potenciales variaciones en los resultados que pueden mostrar ensayos posteriores sobre otras propiedades físicas que puedan realizarse en estas rocas.

Otras técnicas más recientes, como la tomografía mediante rayos-X permite también, en testigos de sondeo y sin destruirlos: identificar la presencia y posición de fracturas internas (Anderson et al., 1997), evaluar la porosidad de rocas (Klobes et al.,

1997; Ruiz de Argandoña et al., 1999), el estado de meteorización interna (Jacobs et al., 1994), realizar análisis texturales tridimensionales y cuantitativos en rocas anisótropas o la reconstrucción tridimensional de la textura, mineralogía y fractografía (Denison et al, 1997a, b)... La escala de trabajo de esta técnica se solapa con el de la microscopía, tal como demuestran las aplicaciones de esta última referencia y las desarrolladas en el Lawrence Livermore National Laboratory (<http://www.llnl.gov/IPandC/opportunities93/08-NDE/XRayTomo.shtml>, 1998), entre otros muchas Instituciones.

Si se desea evaluar con mayor detalle, escala mm-cm, la funcionalidad hidráulica de la red fractográfica de los testigos de sondeo puede recurrirse a un sencillo método eléctrico (Slater et al., 1997); para ello se hace circular, secuencialmente, agua con diferente grado de salinidad por tal red fractográfica, se analizan las variaciones existentes entre tales imágenes secuenciales y se interpretan en términos de flujo de agua.

Observación, cuantificación y cartografía de la red microfractográfica que condiciona la capacidad de migración del agua por la matriz rocosa

Después de esta fase previa, de carácter no destructivo, se seccionan los testigos de sondeo para preparar probetas rocosas destinadas a estudios microscópicos y de propiedades físicas; la señalización y orientación de las muestras obtenidas, respecto al testigo original, es crítica en este tipo de trabajos en los que en todo momento debe poderse identificar espacialmente la direccionalidad de componentes petrográficos y propiedades.

Se utilizan secciones de roca no habituales en Petrografía preparadas según un procedimiento desarrollado en la etapa del proyecto Stripa (Montoto et al., 1980) y que permite combinar informaciones microfractográficas, texturales y mineralógicas.

Se consigue así poder observar, cartografiar y cuantificar los componentes petrográficos –texturales, mineralógicos y fractográficos– que gobiernan el flujo de agua y el comportamiento hidráulico de la matriz rocosa, así como posicionarlos respecto a las tensiones del macizo (Montoto, 1999b). Para ello se recurre a técnicas muy variadas de micros-

copía: óptica de polarización, fluorescencia, láser-confocal, acústica, electrónica,...(Fig. 3); a su vez, las mismas preparaciones microscópicas utilizadas con las técnicas anteriores pueden ser sometidas a bombardeo de neutrones en un reactor nuclear desarrollando trazas de U ("fission tracks") que permiten identificar paleomicrofisuras por las que en el pasado geológico circularon fluidos con radionucleidos (Montoto et al., 1996, 2001).

En la Fig. 4 se esquematiza la metodología desarrollada para una rápida cartografía y cuantificación de la red fractográfica, discriminada a la escala cm, en su marco textural y mineralógico (c). Corresponde al granito pegmatítico rojizo de Palmottu (Finlandia), sondeo R 385 a 222.52. En falso color se presentan las fisuras, las uniones intergranulares y las asociaciones de granos minerales homofásicos ("clusters") de cuarzo y de feldespato. En (e) se presentan los datos de la superficie específica de tres tipos texturales de fisuras: las situadas en posiciones intergranulares, las que afectan a feldespatos y las que afectan al cuarzo. En (d) la orientación y densidad del conjunto fractográfico y la posición E-W de las tensiones in-situ de esa zona del macizo. El procedimiento se ha iniciado a partir de una sección axial del testigo de sondeo (a) teñido selectivamente para una fácil discriminación automatizada entre cuarzo y feldespatos.

Toda esta metodología se ha aplicado en la roca tonalítica de Olkiluoto (Finlandia) en un tema directamente relacionado: evaluar la perturbación fractográfica causada en la matriz rocosa durante la excavación de pozos de almacenamiento (1.5 m de diámetro) de los contenedores. Se ha podido dictaminar que la fisuración inducida queda restringida a una fina película de roca de apenas 2mm de espesor desde el límite de la excavación (Fig. 5) (Montoto et al., 1999d).

Relaciones entre la red microfractográfica, las tensiones residuales y la conductividad hidráulica de la matriz rocosa

A partir de la metodología desarrollada para caracterizar, a escala cm, la red microfractográfica de la roca matriz en su contexto mineralógico-textural, se pretende que la información obtenida permita, además, ayudar a interpretar la variable funcionalidad hidráulica de cada dirección de fisuración en fun-

ción de las direcciones locales de las tensiones residuales del macizo. Este planteamiento, básico en "Rock Engineering" (Hudson, 1989), lo fundamentamos en datos sobre deformabilidad mecánica de la roca matriz y aperturas de su red fractográfica; se analiza, pues, el cierre potencial de las principales fisuras hidráulicamente conductoras para plantear una posible distribución anisótropa de direcciones de flujo en el seno de la roca matriz; el método exige disponer de testigos de sondeo orientados, es decir, cuya posición (orientación y buzamiento) en el macizo sea conocida.

Como ejemplo metodológico se ha utilizado el granito pegmatítico rojizo de Palmottu, en la zona 25.41-25.50 m del sondeo R-384 (Fig. 6). Se parte de la siguiente información: orientación (337°/47°) del sondeo, orientación de la fractura de macizo (130°/8°) contenida en el testigo a 25.41m. y orientación de las secciones macroscópicas (Fig. 7) (157°/90°) destinadas a la cartografía fractográfica-textural-mineralógica. La resistencia mecánica a la compresión uniaxial es 133.8 MPa y el módulo de Young, al tercio de carga, $E = 69.6$ GPa. Las tensiones in-situ han sido evaluadas en Olkiluoto (150 Km al NW de Palmottu) son de dirección E-W con valores promedio de 0.065 Mpa; evidentemente, al no corresponder a Palmottu sólo son válidos como ejemplo de procedimiento.

El conjunto metodológico se incluye en la Fig. 7, según el siguiente esquema:

- (a) Bloque diagrama de una zona del análogo natural con su red de fracturación interna de macizo, las vías de circulación del agua y un sondeo que atraviesa tales fracturas.
- (b) Detalle de una zona de fractura hidráulicamente conductora atravesada por el sondeo.
- (c) Testigo de sondeo cortado por una fractura conductora.
- (d) Sección macroscópica (9 x 4.5 cm) del testigo paralela al eje del sondeo en la que se identifica, a escala cm, la fractografía, textura y mineralogía de la roca matriz.
- (e) Mediante proceso digital de imágenes se ha cartografiado, a escala cm, la red fractográfica de dicha sección de roca matriz en su contexto mineralógico-textural.
- (f) Detalle, en falso color, de dicha cartografía.
- (g) Proyección de las direcciones de: sondeo, fractura de macizo, secciones macroscópicas y tensiones in-situ.

- (h) Se presentan los datos de superficie específica de fisura.

El estudio se completa utilizando secciones macroscópicas paralelas, a 1 cm de distancia, que permiten evaluar la tridimensionalidad de las principales redes de fisuración de la roca matriz. Se deduce así que la dirección local (E-W) de las tensiones in-situ y dos de las principales direcciones de fisuración convergen bajo un ángulo del orden de 45° , o inferior y, en ocasiones, son subparalelas. La tercera dirección no ha podido determinarse con precisión. Por consiguiente, las tensiones in-situ apenas parecen afectar la funcionalidad hidráulica de las fisuras de la roca matriz. Si se hubiera dispuesto de más material podrían haberse realizado otras secciones perpendiculares a las paralelas, ya citadas, para valorar mejor la tridimensionalidad de la red fractográfica. En cualquier caso, la deformabilidad de esta roca (0.065 MPa), en función de su baja densidad de fisuración lineal (2 - 4 fisuras/cm), habría modificado la apertura, de hasta $10 \mu\text{m}$, de estas fisuras y, por consiguiente, su funcionalidad hidráulica; el resultado hubiera sido poder establecer una anisotropía direccional de flujo en el seno de la roca matriz.

Gracias a este tipo de información puede precisarse mejor el comportamiento hidráulico global de la roca matriz en su contexto geológico-estructural real; por todo ello creemos que tal información debería integrarse en la modelización hidráulica general del macizo rocoso para procesos geológicos de larga duración.

Debe resaltarse, una vez más que todo el estudio se ha restringido a la escala centimétrica, más cercana a la de las fracturas de macizo, analizando exclusivamente fisuras y minerales identificables a dicha escala; por consiguiente, no se contempla aquí información fractográfica como la proporcionada en otros proyectos parecidos, como los de "El Berrocal", en los que se analizaban fisuras a escala μm mediante microscopía láser-confocal (Montoto et al., 1995, 1996).

Caracterización de las vías de migración de agua y propiedades hídricas de la matriz rocosa

El planteamiento y metodología petrofísica (Montoto, 1999c) aplicada a la caracterización de la capacidad hidráulica de la matriz rocosa y de las vías

potenciales de circulación de agua a su través implica diversas técnicas manuales e instrumentales. Así, la cinética de absorción libre de agua de la roca se evalúa según normativa ISRM (Brown, 1981) y RILEM (1980); a partir de ella se deducen los valores de porosidad efectiva y de densidad. Para solventar las dificultades prácticas habituales, trabajando con muestras no normalizadas procedentes de testigos de sondeo, las cinéticas de absorción libre y de succión capilar las evaluamos usando un prototipo instrumental informatizado (Mosquera et al., 1998). Por otra parte, la geometría del sistema poroso se caracteriza con porometría de inyección de Hg (Pirhonen, 1990) y también con C-PMMA (Fernández-Mercayo et al., 1996). No se mencionan aquí las técnicas, bien conocidas, de evaluación de la permeabilidad.

Para lograr una mayor precisión en el conocimiento de la migración del agua desde las fracturas del macizo, hidráulicamente activas, hacia el interior de la matriz rocosa se realizan perfiles "micro-petrofísicos", a escala mm-cm, perpendiculares a dichas fracturas; estos perfiles integran los datos obtenidos sobre propiedades hídricas y las relaciones, ya mencionadas, textura-mineralogía-fractografía, tal como se muestra (Fig. 8) para los estudios realizados con la arenisca silicificada de Bagombé (Oklo, Gabón).

En la migración del agua, desde las fracturas conductoras del macizo hacia el interior de la roca matriz, el tapizado mineral en dichas fracturas puede ocasionar un efecto impermeabilizante o, en menor grado, retardador del flujo de agua; este aspecto se evalúa mediante ensayos bidireccionales de la cinética del flujo de agua, tanto desde el interior de la matriz rocosa hacia la superficie de fractura como en sentido opuesto (Montoto, 1999a,b).

Combinando estos estudios petrofísicos con los geoquímicos sobre perfiles de desequilibrio radioactivo, desde las fracturas hidráulicamente activas al interior de la matriz rocosa, puede realizarse una interpretación más completa de los procesos geológicos desarrollados en análogos naturales y, particularmente, los referentes a "rock matrix diffusion" (migración de radionucleidos y procesos de retardo en general). Además, todos estos aspectos ayudan a establecer predicciones de retención, como factor añadido de seguridad, en el escenario de un futuro repositorio; en este caso los datos de partida serán, entre otros muchos, las relaciones existentes entre minerales petrográficos susceptibles de retención de radionucleidos y la red microfractográfica potencialmente conductora de agua en la roca matriz.

Fisuración inducida en testigos de sondeos profundos

En el caso de testigos extraídos de sondeos profundos pueden formarse microfisuras de relajación ("stress-relief cracks") así como abrirse las preexistentes modificando el comportamiento hidráulico de la matriz rocosa. La consecuencia más importante es que los ensayos posteriores que se realicen con estos testigos, sea bajo condiciones triaxiales o uniaxiales, es que no pueden reproducir su comportamiento hidráulico original. Esta "strain relaxation" puede monitorizarse mediante emisión acústica, inmediatamente después de extraído el testigo (Montoto et al., 1998); a su vez pueden detectarse las zonas mecánicamente más débiles de la matriz rocosa. Esta técnica permite, además, basándose en el efecto Kaiser ("memoria tensional" de las rocas), evaluar estados tensionales previos que han afectado al macizo rocoso, (Montoto y Hardy, 1991), o evaluar su estabilidad geomecánica (Montoto, 1984).

Conclusiones

La metodología petrofísica, caracterizando la red microfractográfica comunicada de la matriz rocosa, permite establecer a escala mm-cm las vías potenciales de circulación del agua en su entorno textural-mineralógico y tensional y sus relaciones con las fracturas hidráulicamente activas del macizo.

Se proporcionan datos tan significativos como la superficie específica de cada mineral petrográfico afectado por fisuras con capacidad hidráulica (Fig. 4, 7 y 8). Todo ello permite aportar información básica para los estudios sobre interacciones fluido-sólido; también para la modelización integral "macizo rocoso - matriz rocosa" del flujo de agua en procesos de larga duración.

En la arenisca encajante del "reactor nuclear natural" de Bagombé, en Oklo (Gabón), se ha identificado que el flujo de agua es de tipo fisural, canalizado a través de una sencilla red fractográfica con anchuras en el rango 10^1 - 10^2 μm (Fig. 8); la accesibilidad a esta matriz rocosa del flujo hidráulico, procedente de las fracturas del macizo, es más restringido de lo esperado (con bajos valores de absorción libre de agua para una arenisca: inferiores al 1%, porosidad accesible al agua 0,5 - 1,5 %, superficie específica de la porosidad 0,1 - 0,2 g/cm^2 y succión capilar 0,0154 - 0,034 g/cm^2); lo impor-

tante de estos resultados, de cara a la modelización hidráulica integral, es que ha podido demostrarse que esta matriz rocosa muestra un comportamiento hidráulico más semejante al de un granito que al de una arenisca (Montoto, 2000).

En el caso del granito pegmatítico rojizo de Palmotu (Fig. 7) se demuestra la existencia de una importante red microfractográfica, esencialmente intra-granular, a través de las asociaciones de granos ("clusters") de cuarzo y feldespato que, a la escala cm es poco tortuosa y alcanza anchuras de hasta 10 μm ; su porosidad es muy variable (0,42 - 1,98 %) y elevada para un granitoide; su superficie específica de poro (a escala mm-cm, mediante proceso digital de imágenes) es 0,85 cm^{-1} , pero restringida a la escala cm se reduce a 0,03 - 3,6 10^3 cm^{-1}). La cartografía de la red fractográfica en su marco textural-mineralógico y de direcciones de tensiones residuales permite dictaminar sobre la funcionalidad hidráulica preferente de determinadas direcciones de fisuración.

Mediante la aplicación de esta metodología se informa sobre el grado de heterogeneidad física (Fig. 1 y 2) y anisotropía de la roca. Gracias a ella se han perfeccionado las técnicas de caracterización de la matriz rocosa, mejorando la calidad de los datos obtenidos y rebajando sus costos de adquisición.

Referencias

- Anderson P., Davis G. R. and Elliot J. C. "Microtomography". European Microscopy and Analysis. March 1997 pp. 35-37. (1997).
- Boisson J. Y. and Derlich H. S. "Études de la fissuration et de la microfissuration du granite". European Commission, Sciences et Techniques Nucléaires (1994).
- Brown, E. T. "Rock Characterization, Testing and Monitoring. ISRM Suggested methods". Comm. on Testing Methods; Int. Soc. for Rock Mechanics. Pergamon Press. (1981).
- Denison C., Carlson W. D. and Ketcham R. A. "Three-dimensional quantitative textural analysis of metamorphic rocks using high-resolution computed X-ray tomography: Part I. Methods and techniques". J. Metamorphic Geol., vol 15, pp. 29-44. (1997).
- Denison C. A. and Carlson W. D. "Three-dimensional quantitative textural analysis of metamorphic rocks using high-resolution computed X-ray tomography: Part II. Application to natural samples". J. Metamorphic Geol., vol 15, pp. 45-57. (1997).
- Fernández-Merayo N., Siitari-Kauppi M., Montoto M. and Hellmuth K. H. "Characterization of Rock Matrix Structure Using Microscopy and ^{14}C -PMMA for the

- Study of Retardation Mechanisms in Granite". *Radiochimica Acta* 74, pp 211-215. (1996).
- Glass, R. J., Nicholl M. J. and Tidwell V. C. "Challenging and Improving Conceptual Models for Isothermal Flow in Unsaturated, Fractured Rock Through Exploration of Small-Scale Processes". Yucca Mountain Site Characterization Project. Sandia Report. SAND95-1824. UC-814. (1996).
- Hudson, J. A. "Rock Mechanics Principles in Engineering Practice". CIRIA Ground Engineering Report: Underground Construction. Butterworths. (1989).
- Jacobs P. and De Cleene M. "Interactive physical weathering and bioreceptivity studies on building stones monitored by computerised X-ray tomography (CT) as a potential non-destructive research tool". Trieste NDT Workshop. (1994).
- Klobes P., Riesemeier H., Meyer K, Goebels J. and Hellmuth K. H. "Rock porosity determination by combination of X-ray computerized tomography with mercury porosimetry". *Fresenius J Anal Chem* 357: 543-547 (1997).
- Lawrence Livermore National Laboratory ([http://www.llnl.gov/IPandC/opportunities93/08-NDE/X Ray Tomo.shtml](http://www.llnl.gov/IPandC/opportunities93/08-NDE/X-Ray%20Tomography.html)). (1998).
- Montoto M., Montoto L., Roshoff K. and Leijon B. "Microfractographic study of heated and non-heated Stripa granite". *Subsurface Space: Rockstore '80*. Vol. 3, pp. 1357-1368. Pergamon Press. (1980).
- Montoto M. "Auscultación y registro de la emisión acústica/actividad microsísmica generada en macizos rocosos. Interpretación petrofísica de las condiciones de estabilidad geomecánica". *Energía Nuclear*, nº. 149-150. (1984).
- Montoto M. and Hardy H.R. "Kaiser effect in intact rock: current status as a feasible means of evaluating thermal and mechanical loading". *Int. Gesellschaft für Felsmechanik*. W. Wittke, Ed.; Balkema Publ. pp 569-572. (1991).
- Montoto M., A. Martínez-Nistal, A. Rodríguez-Rey, N. Fernández-Merayo, P. Soriano. "Microfractography of granitic rocks under Confocal Laser Scanning Microscopy". *J. of Microscopy*, vol. 177, Pt 2, pp. 138-149. (1995).
- Montoto M., Ménager M.T., Rodríguez-Rey A., Menéndez B., Martínez-Nistal A. and Fernández-Merayo N. "Uranium transfer phenomena in rock matrix: petrophysical and geochemical study of El Berrocal experimental site, Spain". *J. of Contaminant Hydrology* vol. 21, pp 35-46. (1996).
- Montoto M. "Microestructura de rocas y retardo de radionucleidos". *Estratos*, 40 pp 12-17. (1996).
- Montoto M., Hardy H.R. Jr., Fernández-Merayo N. and Suárez del Río L. M. "Microfractographic evolution of granitic rock cores during stress relief from deep boreholes: an AE/MS evaluation review". *Acoustic Emission/Microseismic Activity in Geologic Structures and Materials*. Proc. Sixth Conf., Trans Tech Publications, Clausthal. H. Reginald Hardy, Jr (Ed.), pp. 73-84. ISBN 0-87849-102-3. (1998).
- Montoto M. y Esbert R. M^o. "Petrofísica de la roca matriz". *Trabajos de Geología*. Vol. 21, pp. 239-252. (1999).
- Montoto, M. "Caracterización petrofísica de las vías de migración de agua en la roca matriz de la arenisca silicificada de Bagombé (Gabón)". Informe a ENRESA. (1999a).
- Montoto, M. "Caracterización petrofísica de las vías de migración de agua en la roca matriz del granito pegmatítico de Palmottu (Finlandia)". Informe a ENRESA. (1999b).
- Montoto M. "Petrophysics: the Petrographic Interpretation of the Physical Properties of the Intact Rock". En "Göttinger Arbeiten zur Geologie und Paläontologie" Sb 4. S 210, Oct 1999, Special Issue "Textures and Physical Properties of Rocks" ISSN 0534-0403. pp. 132-133. (1999c).
- Montoto M., Rodríguez-Rey A., Martínez-Nistal A. and Díez I. "Microfractographic characterization of the excavation disturbance caused by boring of the experimental full scale deposition holes in the Research Tunnel at Olkiluoto (Finland)". POSIVA OY (Helsinki, Finland) Working Report 99-69. (1999d).
- Montoto M. "Petrophysical Characterization of the Groundwater Migration Pathways through the Bagombé (Gabón) Rock Matrix Silicified Sandstone" Oklo Working Group, Proj. Report, EUR 19137 EN, ISBN 92-828-9220-4. (2000).
- Montoto M. "Characterization of palaeo and present water pathways through the intact rock". *Geophysical Research Abstracts*. (2001, en prensa).
- Mosquera M. J., R. Alcántara and J. Martín. "New Procedure for Performing Moisture Absorption Test". *American Ceramic Society Bulletin*, 77 (10), pp. 66-81. (1998).
- Pirhonen, V. "Porosity and focussed dissolution of granitic rocks in two study areas in southern Finland. Aspects of methodology". *Tech. Res. Centre of Finland (VTT)*. Publ. 69. Espoo, Finland. (1990).
- Ruiz de Argandoña V.G., Rodríguez-Rey A., Celorio C., Suárez del Río L.M., Calleja L. and Llavona J. "Characterization by Computed X-Ray Tomography of the Evolution of the Pore Structure of a Dolomite Rock During Freeze-Thaw Cyclic Tests". *Phys. Chem. Earth (A)*, Vol. 24, No. 7, pp. 633-637. (1999).
- Slater L. D., Binley A. and Brown D. "Electrical Imaging of Fractures Using Ground-Water Salinity Change". *Ground Water* vol. 35, no. 3, pp. 436-442 (May-June). (1997).
- Zinszner B. and Meynot Ch. "Visualisation des propriétés capillaires des roches réservoir". *Revue de l'Institut Français du pétrole*. Vol. 37, No. 3, Mai-Juin. (1982).

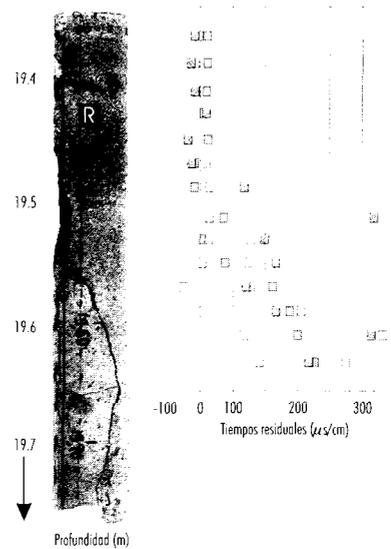
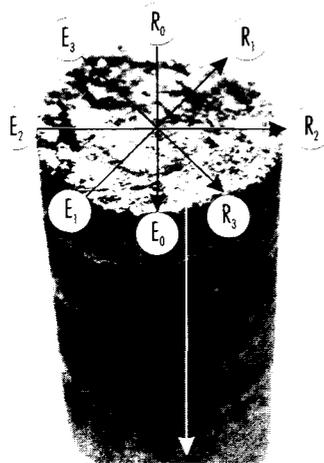


Figura 1. La caracterización no destructiva de los testigos de sondeo, se realiza mediante perfiles ultrasónicos perpendiculares al eje del testigo y a lo largo de éste; posteriormente se realiza la interpretación petrofísica en términos fractográficos y de estado de meteorización.

Figura 2. Resultados de la caracterización ultrasónica mediante un perfil de "tiempos residuales" a lo largo de un testigo de sondeo y respecto a la zona de "referencia" marcada con una R (arenisca silicificada de Bagombé, Gabón) .

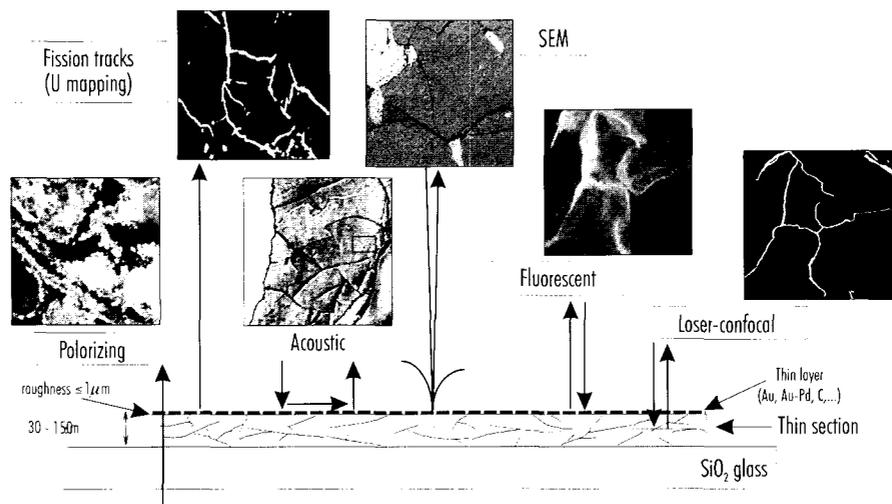


Figura 3. Secciones planas (rugosidad $<1 \mu\text{m}$), pulidas, "delgadas-gruesas" (espesor $>30 \mu\text{m}$), impregnadas con fluoresceína, metalizadas con capa fina de Au-Pd o Au o C. Permiten ser observadas bajo muy diferentes técnicas de microscopía: óptica de polarización en luz transmitida y reflejada, fluorescencia, láser-confocal de rastreo, acústica, electrónica de rastreo (con detector de electrones secundarios y retrodispersados). El portaobjetos es de SiO_2 puro y la sección puede ser bombardeada en un reactor nuclear para obtención de "fission tracks".

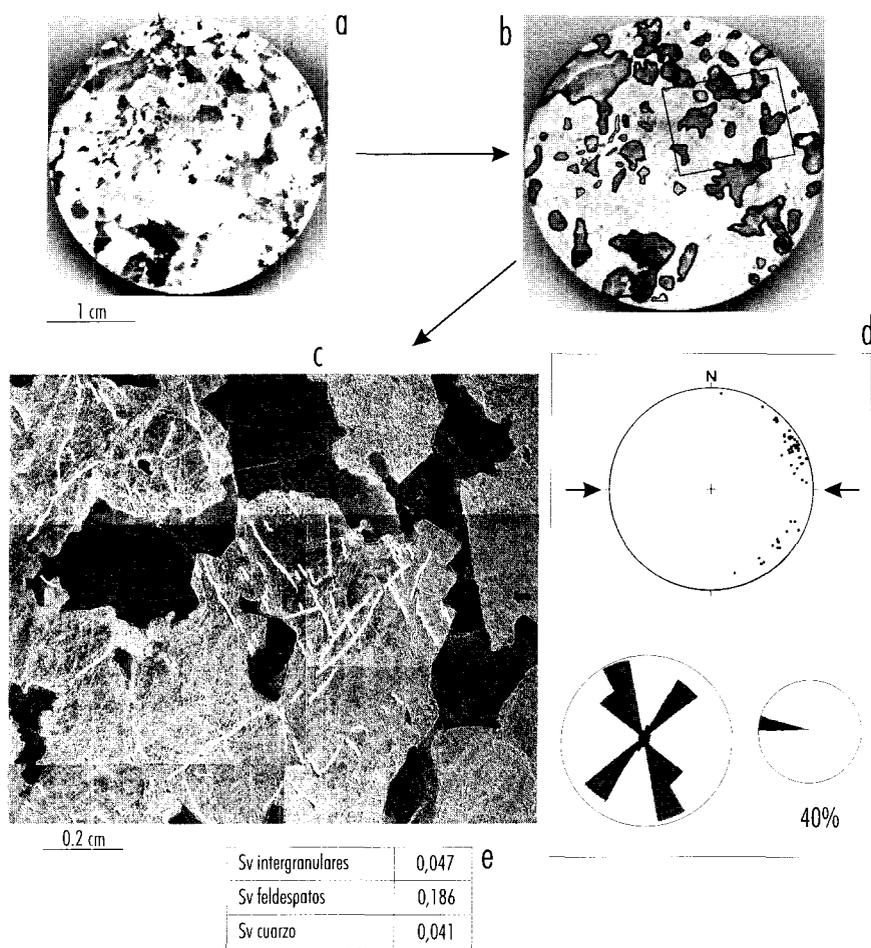


Figura 4. Sección del testigo R 385 a 222.52 m. Palmattu (Finlandia) cortado perpendicularmente a su eje. Se ha realizado una tinción mineralógica selectiva para facilitar la identificación automatizada, mediante proceso digital de imágenes, de sus componentes petrográficas, así como su posterior cartografía y cuantificación.

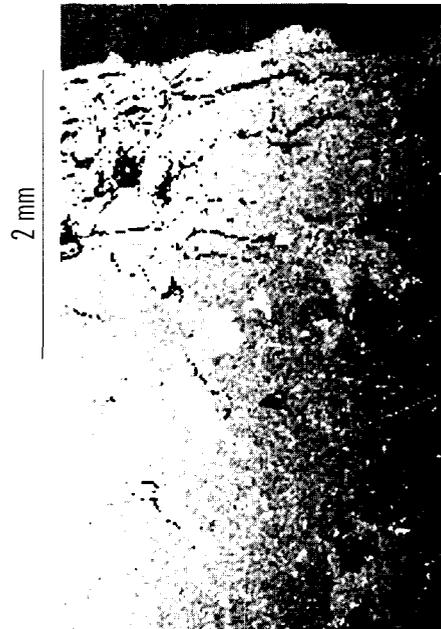


Figura 5. La perturbación causada en la matriz rocosa tonalítica de Olkiluoto (Finlandia) durante la excavación de pozos de almacenamiento (1.5 m de diámetro) de los contenedores se identifica restringida a un máximo de 2mm del borde de la excavación (remarcado en la parte superior de la imagen).

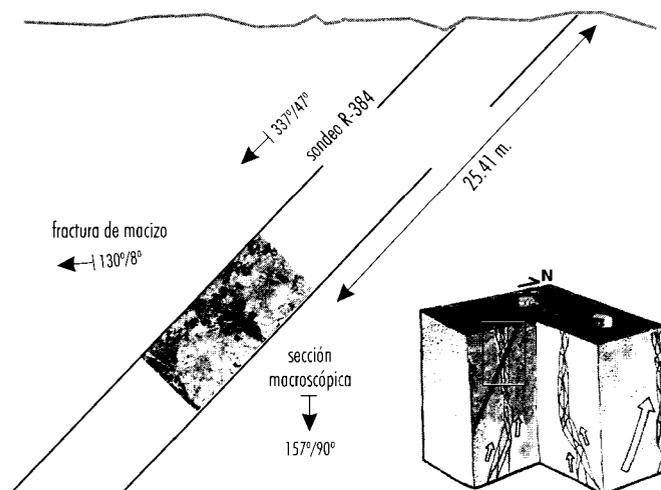


Figura 6. Esquema, en un análogo natural, de las orientaciones de: sondeo, fractura de macizo que afecta al testigo en estudio y secciones macroscópicas (véanse Fig. 9 y 10) del testigo destinadas a la cartografía fractográfica-textural-mineralógica de la roca matriz. (Sondeo R-384 25.40 - 25.50 m., Palmottu, Finlandia).

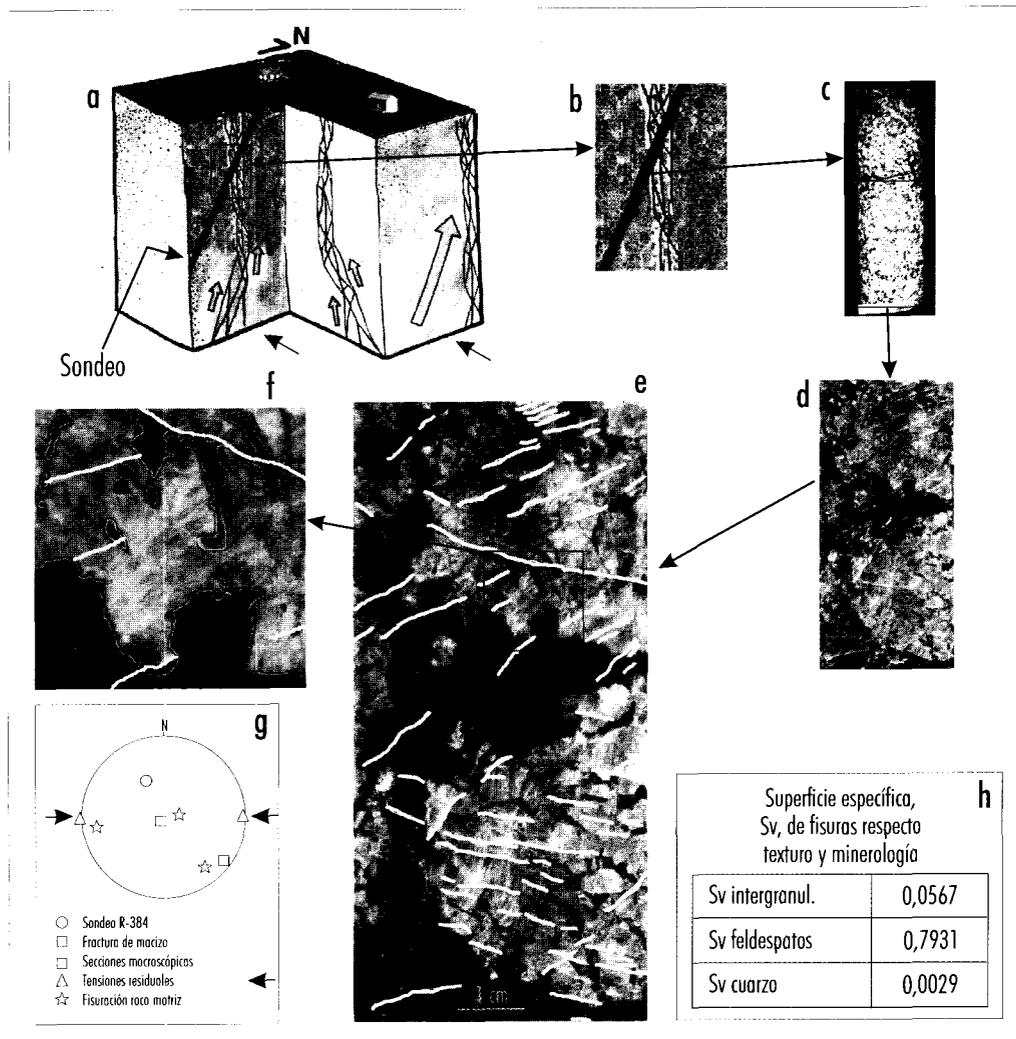


Figura 7. Caracterización de la red microfractográfica de la roca matriz del granito pegmatítico de Palmottu (Finlandia) (sondeo R-384 25.41 - 25.50 m) en su contexto mineralógico-textural; la información obtenida permite, además, interpretar su funcionalidad hidráulica respecto a las direcciones locales de las tensiones in-situ.

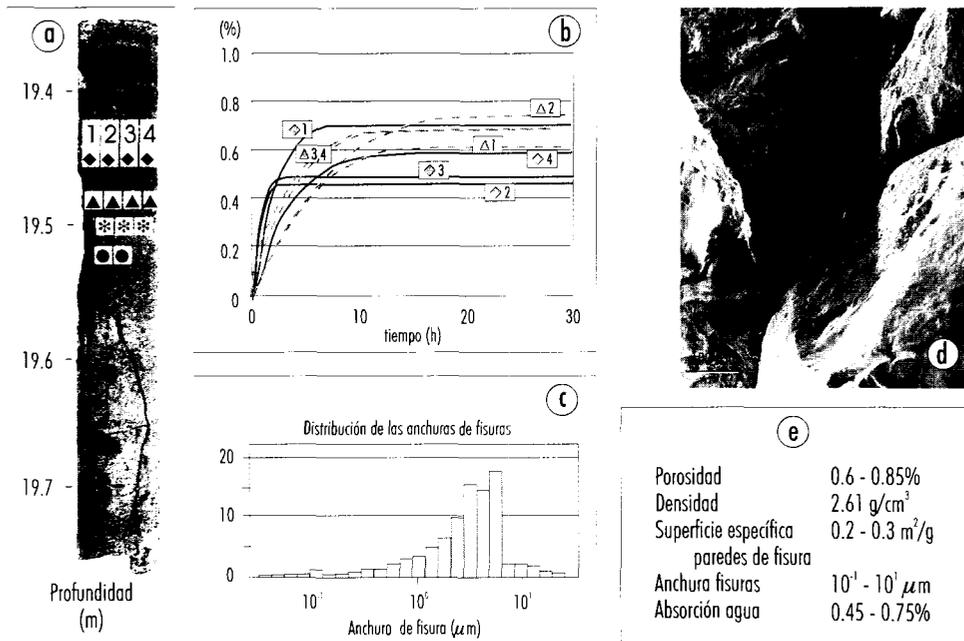


Figura 8. Metodología petrofísica para la caracterización de la capacidad hidráulica de la matriz rocosa (arenisca silicificada de Bagombé (Oklo, Gabón) y de las vías potenciales de circulación de agua a su través: a) En un esquema del testigo se señalan las zonas de las que se van a obtener probetas para ensayos de absorción de agua, porometría de Hg y estudios mediante técnicas de microscopía. b) Representación de las curvas de absorción libre de agua respecto al tiempo de las probetas obtenidas. c) Análisis geométrico del sistema poroso mediante porometría de Hg. d) Estudios microscópicos centrados en las relaciones: textura-mineralogía-fractografía. e) Conjunto de datos sobre las principales propiedades que gobiernan los movimientos del agua. Esta información permite realizar perfiles petrofísicos desde la superficie de fractura hidráulicamente activa (que recorre verticalmente este testigo de sondeo) hacia el interior de la matriz rocosa.

ESTABILIDAD DE LA BARRERA GEOLÓGICA: ESTUDIOS NEOTECTÓNICOS, SISMOTECTÓNICOS Y PALEOSISMOLÓGICOS

P. Santanach, E. Masana
UB

M. Herraiz, G. de Vicente
UCM

M. Lucini
ENRESA

Resumen

En las regiones geotectónicas cuyas fallas presentan tasas de deslizamiento bajas, como es el caso de la Península Ibérica, y cuyos ciclos sísmicos tienen una duración varios órdenes de magnitud superior al tiempo abarcado por el catálogo sísmico es posible que fallas activas, capaces de producir grandes sismos y por lo tanto capaces de desestabilizar la barrera geológica, no los hayan causado en tiempo histórico. En estos casos, para caracterizar la peligrosidad sísmica considerando los períodos de retorno adecuados para instalaciones críticas, es imprescindible acudir a la información que proporciona la neotectónica y la paleosismicidad. Con este objetivo se han realizado dos aproximaciones:

- 1) Caracterización del campo de esfuerzos reciente y actual de la Península Ibérica a partir, respectivamente, de los datos aportados por el análisis poblacional de fallas menores y por los mecanismos focales de sismos instrumentales. (Proyecto SIGMA). La comparación de los estados de esfuerzo reciente y actual pone de relieve la continuidad de esfuerzos tectónicos en la Península Ibérica en los últimos 9 millones de años. Ello proporciona un sólido fundamento para la predicción de las distribuciones futuras y la evaluación de la peligrosidad sísmica.

Con los resultados obtenidos, conocidas las fallas, posibles fuentes de grandes terremotos,

es posible evaluar cuáles, en función de su orientación respecto al campo de esfuerzos actual, presentan mayor probabilidad de producir sismos. La determinación mediante diversas técnicas (geomorfológicas, geofísicas) de las fallas neotectónicas y el análisis de su disposición respecto al campo de esfuerzos determinado en el proyecto SIGMA es la continuación imprescindible del mencionado proyecto.

- 2) Caracterización paleosismológica de fallas que muestran evidencias geológicas de haber actuado en los tiempos más recientes (proyecto DATACIÓN). La paleosismología trata de establecer los parámetros sísmicos de las fallas a partir del registro geológico que dejan los grandes terremotos que producen. Para el establecimiento de la peligrosidad sísmica es importante determinar las fallas que producen grandes sismos, la magnitud de los mayores sismos que pueden producir, el período de recurrencia entre ellos y el momento de ocurrencia del último acaecido. La datación de los depósitos que se forman inmediatamente después de los terremotos al pie de los escarpes causados por el terremoto son un elemento clave en el establecimiento de los parámetros mencionados.

El proyecto DATACIÓN ha mostrado la aplicabilidad de estos métodos, que se han desarrollado en zonas de gran actividad sísmica (California, Japón,

Nueva Zelanda), a una falla de deslizamiento lento (0.02 mm/año), sin actividad sísmica actual ni histórica, la falla de El Camp. Ha podido demostrarse que la falla de El Camp ha producido sismos de una magnitud del momento de 6.7 con un período de recurrencia medio de unos 30000 años durante los últimos 125000 años. Se trata de la primera falla de la península ibérica parametrizada paleosismológicamente. El éxito de este proyecto hace imprescindible la realización de estudios similares en las fallas sismogénicas que puedan influir en la estabilidad de los emplazamientos de instalaciones críticas actuales o futuras.

Introducción

En los últimos tiempos se ha puesto de relieve la necesidad de observar, como mínimo, los datos de un ciclo sísmico entero para poder caracterizar correctamente la peligrosidad sísmica de una zona. En caso contrario se suele infravalorar la peligrosidad. Esto tiene especial interés en las zonas donde la duración del ciclo sísmico es mucho mayor que el tiempo registrado en el catálogo, es decir, tanto en las zonas con corta duración de su información histórica como en las zonas con ciclo sísmico largo, eso es, con velocidad de deformación lenta.

La duración del ciclo sísmico está estrechamente relacionada con la velocidad de deformación de la estructura analizada. La tasa de deslizamiento de una falla depende en gran manera del contexto geotectónico en el que ésta se encuentre (Giardini 1995). Así, las tasas de deslizamiento de las fallas que se sitúan en los bordes de placa son, en general, mucho mayores que las de las fallas que se encuentran a cierta distancia de los mismos y, éstas, a su vez, son mayores a las de las fallas situadas en zonas intraplaca. Además, a mayor velocidad de deformación menor duración del ciclo sísmico. Ello permite estimar la duración del ciclo sísmico de las fallas, bien sea comparando la falla a investigar con el comportamiento de fallas en contextos parecidos o, simplemente, a partir del contexto en que se encuentra la falla considerada. Así se puede evaluar el período de tiempo que debe ser analizado para abarcar uno o más ciclos sísmicos para poder caracterizar correctamente el comportamiento sísmico de la falla a investigar.

En las regiones geotectónicas cuyas fallas presentan tasas de deslizamiento bajas, como es el caso de la Península Ibérica (entre 0.01 y 0.1 mm/año), y cu-

pos ciclos sísmicos tienen una duración (entre 10^3 y 10^5 años) varios órdenes de magnitud superior al tiempo abarcado por el catálogo sísmico (pocos centenares de años) es posible que fallas activas, capaces de producir grandes sismos y por lo tanto capaces de desestabilizar la barrera geológica, no los hayan causado en tiempo histórico. En estos casos, para caracterizar la peligrosidad sísmica considerando los períodos de retorno adecuados para instalaciones críticas, es imprescindible acudir a la información que proporciona la neotectónica y la paleosismicidad. Con este objetivo se han realizado dos aproximaciones.

- 1) El proyecto SIGMA (Herraiz et al., 1999, 2000) cuyo objetivo fué determinar el campo de esfuerzos reciente y actual de la Península Ibérica. Conocido este campo de esfuerzos y la localización y disposición espacial de las distintas fallas potencialmente sismogénicas se dispone de una buena base para discutir la peligrosidad de las fallas. Esta discusión sería la continuación del proyecto SIGMA.
- 2) El proyecto DATACIÓN (Santanach et al. en prensa, Masana et al., en prensa) tenía por objeto mostrar como podían determinarse, mediante el estudio de las estructuras geológicas, eventos sísmicos acaecidos en el pasado, anteriormente a los tiempos incluidos en el catálogo histórico, incluso en fallas que no han mostrado sismicidad histórica. Como ejemplo se ha utilizado la falla de El Camp de Tarragona, que no presenta sismicidad histórica y de la que se han podido determinar los parámetros sísmicos principales. Los resultados de este proyecto muestran como la Paleosismología es un método indispensable para la descripción de la sismicidad, en particular en regiones de baja sismicidad.

Proyecto SIGMA

Durante los años 1996-1998 se ha desarrollado en España el proyecto SIGMA ("Análisis del estado de esfuerzos tectónicos, reciente y actual a partir de poblaciones de fallas y mecanismos focales de terremotos. Metodología y aplicación a la Península Ibérica") liderado por la Universidad Complutense de Madrid y subvencionado por el Consejo de Seguridad Nuclear (CSN) y la Empresa Nacional de Residuos Radiactivos S.A. (ENRESA). Este proyecto ha permitido dibujar, por primera vez, una detalla-

da distribución de los esfuerzos tectónicos actuantes en la Península Ibérica durante el Mioceno superior-Cuaternario y en la actualidad.

Para conseguir este objetivo, el territorio peninsular español fué dividido en 12 zonas estructuralmente homogéneas, a las que se añadió Portugal (fig.1). En cada una de ellas se realizó una cuidadosa adquisición de datos sísmicos y geológicos.

La información sísmica básica consistió en el mecanismo focal de 28 sismos tomados de la bibliografía, y 128 seleccionados de una muestra de 446 eventos relocalizados cuidadosamente. A ellos se añadieron 6 mecanismos obtenidos por Ribeiro et al. (1996) y correspondientes a sismos ocurridos en territorio portugués. Toda esta información sísmica fué empleada para estudiar los esfuerzos actuales.

La información geológica, utilizada para la obtención del estado de esfuerzos reciente, consistió en 324 estaciones tomadas de la bibliografía y 409 localizadas en el campo en el transcurso del proyecto (fig. 2). El número total de pares de estría-falla proporcionado por dichas estaciones geológicas fué de 8165.

Método

Para la obtención de los estados de esfuerzos recientes (Mioceno superior-Cuaternario) se han utilizado tres técnicas de análisis poblacional de fallas:

- Método de los diedros rectos.
- Modelo de deslizamiento.
- Método de inversión de esfuerzos

El empleo de estas técnicas ha proporcionado 531 orientaciones del acortamiento máximo horizontal, E_v , y 284 orientaciones del esfuerzo máximo horizontal, Sh_{max} . Con ellas ha sido posible dibujar el mapa de esfuerzos recientes (fig. 2) en el que las trayectorias de Sh_{max} han sido obtenidas utilizando el programa "Lissage".

El análisis de los esfuerzos actuales ha sido realizado por dos procedimientos:

- Determinación simultánea del tensor de esfuerzos regional y de los mecanismos focales individuales.
- Análisis ponderado de una población de mecanismos focales.

La aplicación de estos métodos a los datos sísmicos ha permitido conocer mejor el campo de esfuerzos actuante en la Península Ibérica (figs, 3 y 4). Las tra-

yectorias de Sh_{max} han sido obtenidas también mediante el programa "Lissage".

Resultados

La comparación del estado de esfuerzos correspondiente al Mioceno superior - Cuaternario (obtenido mediante mediciones de fallas) con el actual (para el que se han considerado datos sísmicos) pone de relieve la continuidad de esfuerzos tectónicos en la Península Ibérica en los últimos 9 millones de años. Ello proporciona un sólido fundamento para la predicción de las distribuciones futuras y la evaluación del peligro sísmico.

En el período analizado se ha mantenido una tendencia predominante en los esfuerzos tectónicos en la Península Ibérica, caracterizada por una compresión horizontal máxima orientada N120-140E. Esta compresión se relaciona directamente con la convergencia de las placas africana y euroasiática.

En el caso de los esfuerzos recientes, junto con esta dirección bien definida aparece otra moda menos importante con orientación N030-060E. Para los esfuerzos actuales la orientación predominante pasa a ser N-S en el Pirineo y E-W en el golfo de Cádiz (fig.2). Este campo primario de esfuerzos actuales parece estar acompañado por otros de carácter más local asociados a rasgos tectónicos o geológicos específicos. Un caso particularmente notable es la presencia de un campo activo en los Pirineos.

El empleo conjunto de técnicas de análisis poblacional de fallas y determinación de mecanismos focales permite obtener una visión amplia y completa de los campos de esfuerzos tectónicos recientes y actuales en una zona.

Los resultados obtenidos constituyen una aportación importante para el diseño de un nuevo mapa sismotectónico de la Península Ibérica. Así mismo pueden ser muy útiles para analizar la orientación relativa de fallas respecto de los campos de esfuerzos actuantes y evaluar mejor su peligrosidad.

El proyecto DATACIÓN

Durante los años 1997-1999 se ha desarrollado por convenio de colaboración entre el Consejo de Seguridad Nuclear (CSN), la Empresa Nacional de Residuos Radiactivos S.A. (ENRESA) y la Universitat de Barcelona (UB) el proyecto de investigación Datación sobre determinación de estructuras geológi-

cas responsables de eventos paleosísmicos fuertes y datar dichos eventos con la mayor exactitud posible. Este proyecto ha permitido mostrar, por primera vez en la Península Ibérica, que fallas en regiones carentes de sismicidad son capaces de producir terremotos con ruptura y desnivelamiento (deformación permanente) de la superficie. El proyecto se ha desarrollado en el Departamento de Geodinámica i Geofísica de la Universitat de Barcelona.

Método

Se partía del estudio de Masana (1995) en el que mediante un reconocimiento neotectónico (geomorfológico y estructural) se establecieron las principales estructuras con actividad reciente (fig. 5), entre ellas la falla de El Camp que se encuentra situada en un área de escasa sismicidad (fig. 6). En su estudio Masana puso de manifiesto la existencia de un escarpe de falla que afecta a los abanicos cuaternarios que recubren parcialmente la falla de El Camp. A partir de estos datos iniciales se procedió como sigue:

- i) Estudio de los abanicos aluviales asociados a la falla de El Camp y que están afectados por la falla. En particular, se estableció su edad relativa, se hipotetizó una edad absoluta por comparación con las variaciones del nivel del mar y se dataron radiométrica e isotópicamente.
- ii) Análisis del escarpe de falla (mapas topográficos de detalle y levantamiento de perfiles topográficos con estación total) y su relación con los distintos abanicos con el fin de determinar donde excavar zanjas a través del escarpe (y de la falla) que mejor información pudieran suministrar.
- iii) Excavación de trincheras a través de las falla, levantamiento a escala 1:20 de los perfiles expuestos, análisis de los depósitos y las estructuras presentes, e interpretación de los mismos en términos de paleoeventos sísmicos. La fig.7 muestra el caso de como una cuña coluvial puede ser un reflejo de un sismo durante el cual rompió la superficie y se produjo un escarpe. El depósito coluvial es una respuesta a la ruptura del equilibrio geomorfológico producida por la creación del escarpe.
- iv) Muestreo en las siete trincheras estudiadas a lo largo de unos 16 km de falla y datación de las muestras recogidas.
- v) Integración de todos los datos (fig.8) y establecimiento de los parámetros sísmicos mediante comparación de las estructuras geológicas observadas con las que se han formado durante los sismos instrumentales. Para esta comparación se han utilizado los resultados de los estudios estadísticos de Wells y Copersmith (1994).

A lo largo del proyecto se han utilizado diversas técnicas de datación, en función de la edad previsible y del material a datar. El contraste de los resultados de las distintas técnicas ha permitido obtener un modelo de edades coherente. Hay que destacar la complejidad de los procesos geológicos e indicar que el principal problema de toda datación geológica no reside en la exactitud de las técnicas analíticas sino en comprender qué proceso, de los muchos que comprende la historia de cualquier muestra, se está datando. Se han utilizado las siguientes técnicas

- Datación relativa:
 - Relaciones geométricas entre los cuerpos sedimentarios y entre éstos y las estructuras.
 - Grado de evolución geomorfológica de las superficies de los abanicos.
- Técnicas de correlación:
 - Con las variaciones del nivel del mar.
 - Con las inversiones de polaridad del campo magnético terrestre.
- Radiométricas:
 - Radiocarbono.
 - Desequilibrio de la serie del uranio (U/Th).
- Isotópicos
 - Termoluminiscencia
- Análisis palinológico

Resultados

El potencial sísmico que se desprende del estudio realizado en el proyecto Datación es el siguiente:

- La falla meridional de El Camp se divide en dos segmentos. El septentrional, de 16 km de longitud, cesó en su actividad hace unos 140000 años. Previamente a este tiempo presentaba una tasa de deslizamiento vertical comprendida entre 0.03 y 0.1 mm/año. El segmento meridional tiene 24 km de longitud (14 en tierra firme y 10 en mar) ha persistido en su actividad posteriormente a 125000 años BP. Los datos que siguen se refieren a este segmento.

- Para los últimos 125000 años se ha obtenido una tasa de deslizamiento vertical de 0.02 mm/año.
- El carácter sísmico de la falla está confirmado por las estructuras de licuefacción observadas en diversos afloramientos y por las cuñas coluviales puestas de manifiesto con la excavación de las zanjas.
- Se han detectado como mínimo 3 eventos durante los últimos 125000 años. El más reciente habría ocurrido entre el año 1195 AD y 30000 años BP, probablemente justo antes de 1195 AD (cuña coluvial), con un desplazamiento vertical observado de entre 0.7 y 1 m. El penúltimo evento (salto vertical máximo observado, 0.4 m) tuvo lugar antes del Holoceno (10000 años BP) y posteriormente al antepenúltimo evento. Éste ocurrió entre 125000 y 30000 años BP (no anterior a 60000 años BP con gran probabilidad). El desnivel vertical causado es de un mínimo de 1.4 m.
- El período de recurrencia se ha calculado comprendido entre 25000 y 50000 años, aunque a partir de los datos de observación se estiman unos 30000 años como el valor más probable.
- El tiempo transcurrido desde el último evento sería algo superior a 805 años (datación carbón en cuña coluvial), en todo caso entre este valor y 3000 años (edad máxima de la cuña coluvial de acuerdo con los análisis polínicos: 2600 años BP).
- De acuerdo con los datos de Wells y Coppersmith (1994), la magnitud del momento (M_w) del máximo terremoto esperable sería de $6.7 + 0.5$ (se ha tenido en cuenta la longitud del segmento de falla roto y el desplazamiento vertical).
- De acuerdo con la U.S. Nuclear Regulatory Commission, la falla de El Camp, aunque no presente sismicidad histórica significativa, es una falla capaz puesto que la totalidad de la falla meridional de El Camp sufrió movimientos recurrentes durante los últimos 500000 años y, además, su segmento meridional ha roto la superficie al menos una vez durante los últimos 35000 años.

Conclusiones

Los resultados de los proyectos SIGMA y DATACIÓN muestran claramente la necesidad de los es-

tudios neotectónicos, sismotectónicos y paleosismológicos para el establecimiento realista de la peligrosidad sísmica. Los métodos desarrollados en ambos proyectos son imprescindibles en regiones de baja sismicidad, es decir con fallas de baja actividad como es el caso de la Península Ibérica.

El proyecto SIGMA ha permitido obtener una buena imagen del campo de esfuerzos reciente y actual de la Península Ibérica. Con los resultados obtenidos, conocidas las fallas, posibles fuentes de grandes terremotos, es posible evaluar cuales, en función de su orientación respecto al campo de esfuerzos actual, presentan mayor probabilidad de producir sismos. La determinación mediante diversas técnicas (geomorfológicas, geofísicas) de las fallas neotectónicas y el análisis de su disposición respecto al campo de esfuerzos determinado en el proyecto SIGMA es la continuación imprescindible del mencionado proyecto.

El proyecto DATACIÓN ha mostrado como fallas lentas, sin actividad sísmica actual, pueden ser fallas capaces en el sentido de la U.S. Nuclear Regulatory Commission, y como pueden determinarse los parámetros sísmicos de dichas fallas. La falla de El Camp es la primera falla de la Península Ibérica parametrizada paleosismológicamente. Los resultados obtenidos ponen de manifiesto la necesidad de analizar desde el punto de vista paleosismológico las estructuras geológicas que, aun sin presentar sismicidad actual o histórica, caso de ser capaces, pudieran influir en la estabilidad de los emplazamientos de instalaciones críticas actuales o futuras.

Bibliografía

- Giardini, D. (1995): The Geological Input in the Practice of Seismic Hazard Assessment: the Kobe Lessons, in G. Valensise y D. Pantosti, 11th. Course: Active faulting studies for seismic hazard assessment, Extended Abstracts, 14 pp., Erice.
- Giner, J.L. (1996): Análisis Neotectónico y Sismotectónico en el sector Centro-Oriental de la Cuenca del Tajo. Tesis doct., Univ. Complutense Madrid, 345 pp.
- Herraiz, M., de Vicente, G., Lindo, R., Giner, J., Simón, J.L., González Casado, J.M., Vadillo, O., Rodríguez-Pascua, M., Cicuéndez, J.L., Casas, A., Cabañas, L., Rincón, P., Cortés, A. (Ramírez, M., Lucini, M. y Herraiz, M., eds.) (1998): Proyecto Sigma: Análisis del estado de esfuerzos tectónicos, reciente y actual en la Península Ibérica. Consejo de Seguridad Nuclear, 239 pp., 2 mapas, ISBN 84-87275-89-3.

- Herraiz, M., de Vicente, G., Lindo, R., Giner, J., Simón, J.L., González Casado, J.M., Vadillo, O., Rodríguez-Pascua, M., Cicuéndez, J.I., Casas, A., Cabañas, L., Rincón, P., Cortés, A., Ramirez, M. y Lucini, M. (2000): Recent (Upper Miocene to Quaternary) and present tectonic stress distributions in the Iberian Peninsula, *Tectonics*, 19(4), 762-786.
- Masana, E. (1995): *L'activitat neotectònica a les Cadenes Costaneres Catalanes*. Tesis doct., Univ. Barcelona, 444 pp.
- Masana, E., Villamarín, J.A., Sánchez Cabañero, J., Plaza, J. y Santanach, P. (en prensa): Paleoseismicity along the El Camp fault (Northeast Spain): a seismogenic fault in a low seismic area. *Netherlands Journal of Geosciences*.
- Rivera, L.A. y Cisternas, A. (1990): Stress tensor and fault plane solutions for a population of earthquakes. *Bull. Seism. Soc. Am.*, 80(3), 600-614.
- Santanach, P., Masana, E., Villamarín, J.A. (coord., Sánchez Cabañero, J., Plaza, J. y Santanach, P) (en prensa): *Datación*. Consejo de Seguridad Nuclear.
- Wells, D.L. y Coppersmith, K.J. (1994): New empirical relationships among magnitude, rupture length, rupture width, rupture area, and surface displacement. *Bull. Seism. Soc. Am.*, 84, 974-1002.

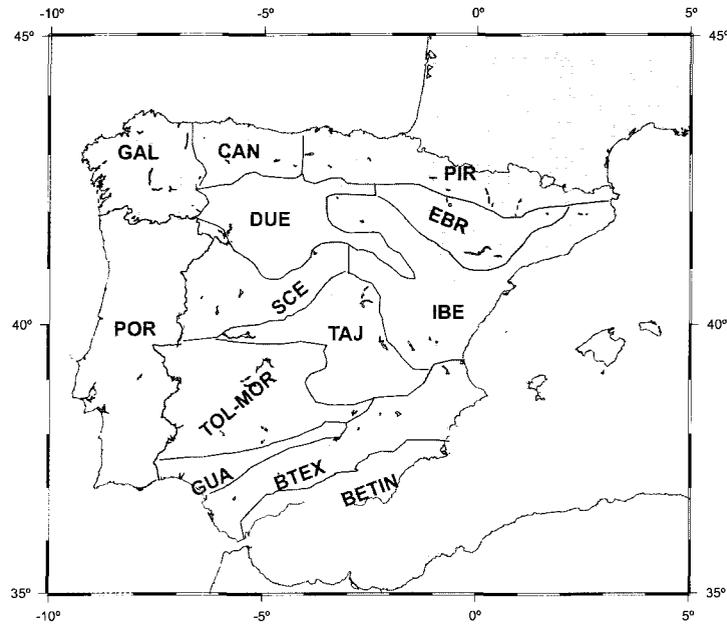


Figura 1. Distribución de las zonas adoptadas en el proyecto SIGMA.

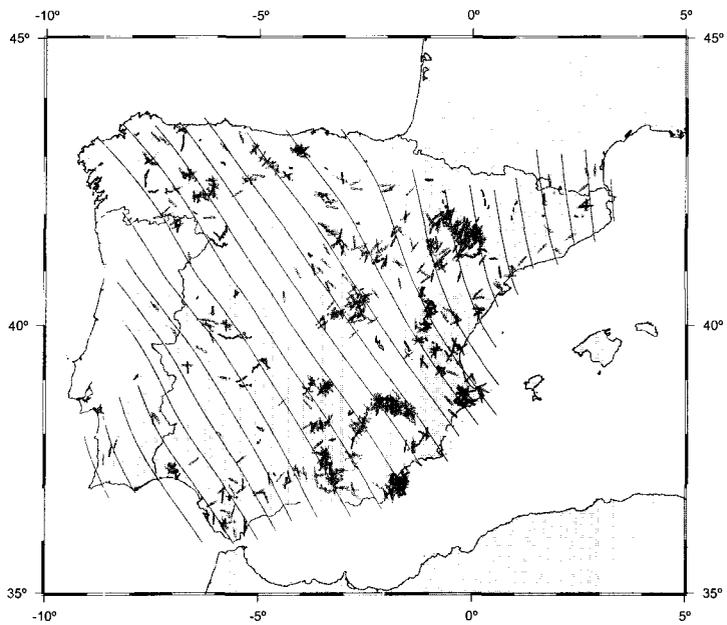


Figura 2. Mapa en el que se representan los resultados obtenidos del análisis de las estaciones de análisis estructural tomadas en campo y bibliográficas. Las flechas indican la orientación puntual de $S_{h_{max}}$ y las trayectorias corresponden a la interpolación de los datos que se asimilan a la moda NW-SE.

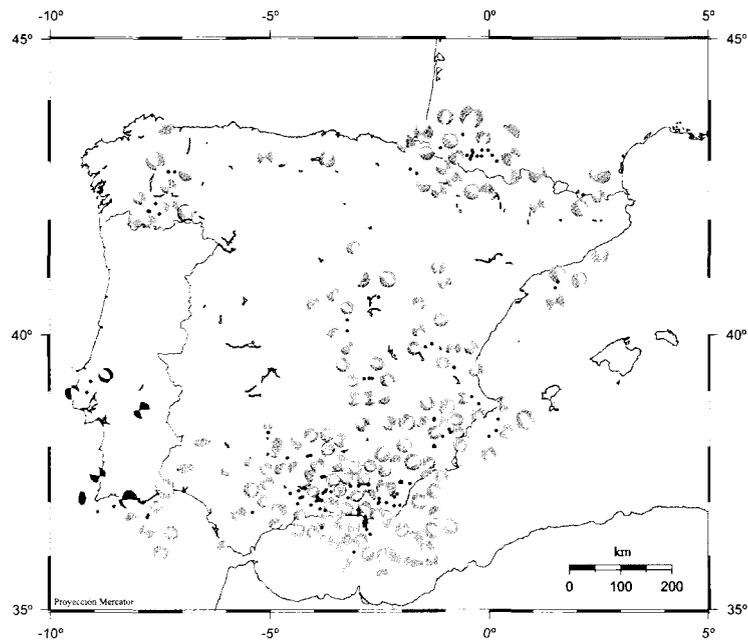


Figura 3. Localización de los mecanismos focales obtenidos con el método de Rivera y Cisternas (1990).

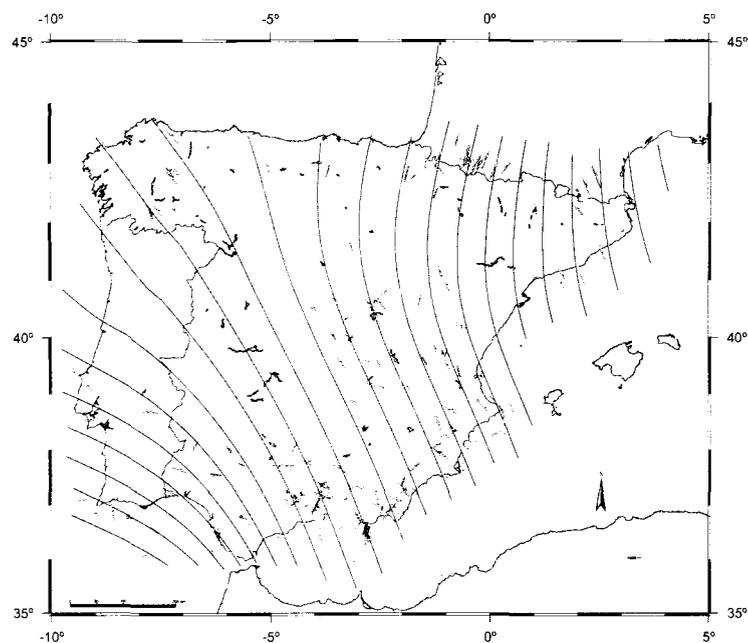


Figura 4. Mapa de esfuerzos actuales. Las trayectorias corresponden a $S_{H_{max}}$. (Giner 1996).

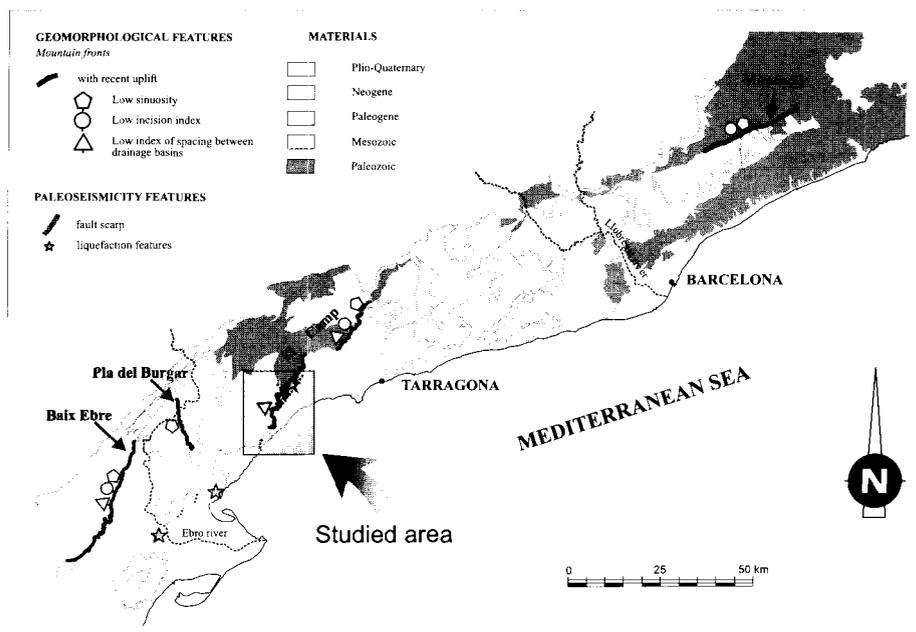


Figura 5. Mapa de indicios de actividad neotectónica en las Cadenas Costeras Catalanas (Masana 1995).

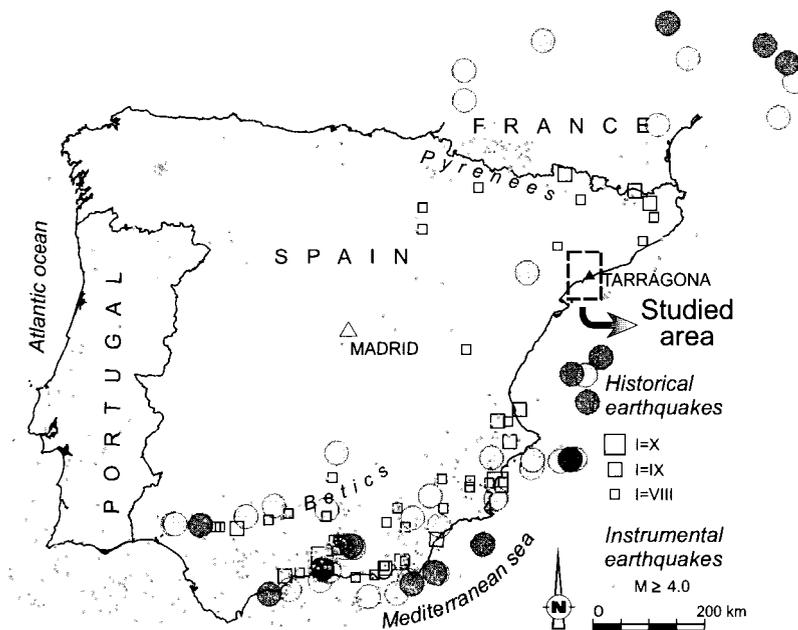


Figura 6. Sismicidad de la Península Ibérica y localización del área estudiada.

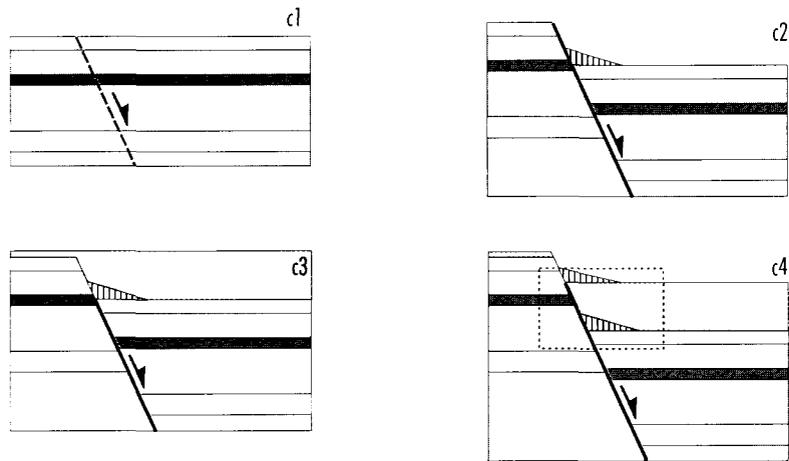


Figura 7. Las cuñas coluviales como reflejo de una sedimentación inmediatamente posterior a los sismos durante los que se crean escarpes morfológicos por el desplazamiento de la superficie debido al movimiento brusco de la falla causante del terremoto.

TRINCHERA 1 - PARED S

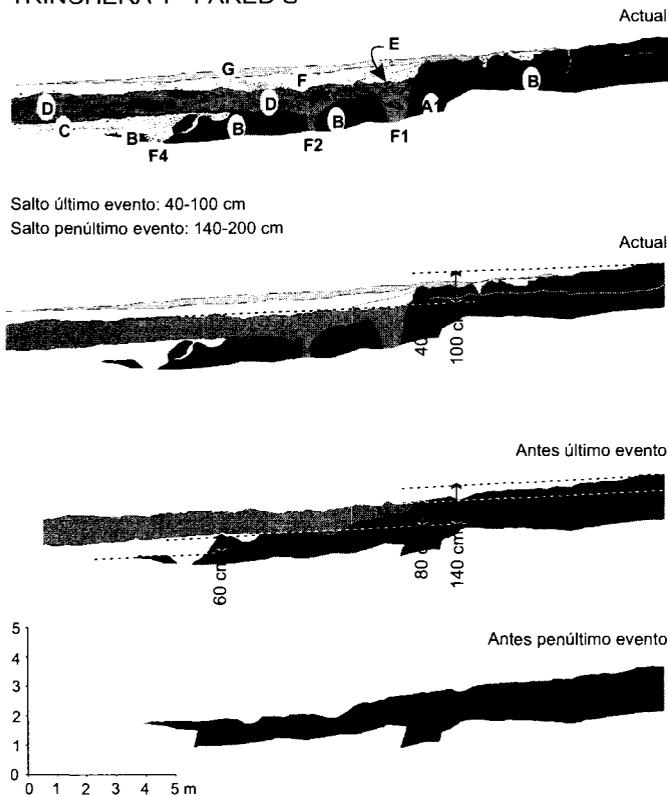


Figura 8. Restitución de la pared sur de la trinchera 1 excavada en los terrenos del Golf Bonmont-Terres Noves. Obsérvese la distinta magnitud del deslizamiento vertical de los dos eventos presentes (corresponden al último y antepenúltimo evento de la falla).

Sesión V:
Evaluación
de la seguridad
de las instalaciones
de gestión de residuos
radiactivos

Sesión V: Evaluación de la seguridad
de las instalaciones de gestión
de residuos radiactivos

LA EVALUACIÓN DE LA SEGURIDAD EN LA GESTIÓN DE RESIDUOS RADIATIVOS. APROXIMACIONES INTERNACIONALES Y APROXIMACIÓN DE ENRESA

J. Alonso
ENRESA

La evaluación de la seguridad a largo plazo de los almacenamientos geológicos de residuos radiactivos es una necesidad desde el momento que se plantea esta vía de gestión, por razones éticas evidentes y, además, por ser un requisito para obtener las autorizaciones necesarias. Esta exigencia se encuentra tanto en las normativas nacionales como en los acuerdos y guías internacionales.

Las características específicas de los sistemas de almacenamiento geológico, especialmente lo que se ha dado en llamar las escalas espacial y temporal del problema, plantean nuevos retos para la evaluación de su seguridad, que son de una naturaleza completamente distinta a la que se encuentran en otros campos de la ciencia y de la ingeniería. En particular, la necesidad de efectuar extrapolaciones fuera del campo accesible a la experimentación, y el tratamiento mediante métodos apropiados de las incertidumbres existentes, consecuencia de las limitaciones inevitables del conocimiento disponible sobre el sistema y sobre su futura evolución, y que afectan tanto a los escenarios como a los datos, y a los modelos que representan su funcionamiento futuro.

Otro rasgo importante de la evaluación de la seguridad de un almacenamiento geológico (AGP) es su carácter multidisciplinario. El almacenamiento geológico es habitualmente descrito como un sistema multibarrera, que utiliza diversos componentes, naturales y tecnológicos, para asegurar el aislamiento y el confinamiento de los residuos radiactivos. Ambos tipos de barreras, junto con la biosfera, en la que se encuentra el hombre, constituyen el sistema a evaluar. Las funciones de aislamiento y confinamiento están controladas por un gran número de factores, unos internos al sistema y otros externos, que es necesario considerar de forma sistemática.

Esto significa que la evaluación de seguridad debe integrar múltiples conocimientos desarrollados en diversas áreas científicas.

Son numerosos los países que, como España, tienen la responsabilidad de gestionar sus residuos radiactivos de alta actividad y larga vida, y que tienen programas en diversos grados de desarrollo para estudiar la viabilidad o incluso para crear instalaciones de almacenamiento geológico. La colaboración internacional en el campo de la evaluación de la seguridad es muy intensa, debiendo mencionarse especialmente, en los aspectos técnicos, las actividades impulsadas por la Agencia de la Energía Nuclear (NEA) de la OCDE y los proyectos de I+D de los programas marco de la Comisión Europea, y en el ámbito de la normativa, las publicaciones del Organismo Internacional de Energía Atómica. ENRESA participa activamente en las distintas iniciativas promovidas por estos organismos, asegurándose la coherencia de sus métodos con los adoptados internacionalmente. También tienen gran importancia los acuerdos bilaterales entre ENRESA y la mayor parte de las agencias gestoras de residuos radiactivos.

La puesta a punto y aplicación de la evaluación de la seguridad forma parte, en último término, del proceso legal de autorización de un almacenamiento geológico de residuos. Pero antes de llegar a esta fase es necesario seguir un programa de desarrollo de los métodos y técnicas necesarias coherente con las sucesivas etapas del programa general de desarrollo del AGP, interaccionando con las restantes actividades fundamentales del mismo: estudios geológicos, plan de I+D y diseño de las instalaciones. Los objetivos generales de este programa son:

- a) desarrollo de métodos y técnicas numéricas,

- b) obtención de datos e información científica, y
- c) verificación y validación de los modelos.

A nivel internacional se observa que en todos los programas, incluido el de ENRESA, las capacidades de evaluación de la seguridad se desarrollan siguiendo un proceso iterativo a lo largo del cual las técnicas utilizadas se perfeccionan y la información y datos disponibles se amplían progresivamente.

ENRESA ha cubierto una primera etapa entre los años 1995 y 1998, en el que se realizaron evaluaciones de la seguridad de almacenamientos geológicos en granito y en arcilla. Los objetivos en esta primera fase fueron la adquisición y aplicación de los métodos y herramientas de evaluación básicos, la formación del equipo humano para la evaluación, y el análisis del papel que cada barrera juega en la seguridad del sistema global.

Dentro de esta primera fase, ENRESA participó en el proyecto comunitario SPA, junto con los organismos de otros cinco países europeos, realizando la evaluación de un almacenamiento de combustible gastado en una formación granítica. Los resultados de este proyecto muestran que los métodos utilizados por ENRESA son de un nivel comparable al de los demás países participantes.

Los resultados de esta primera fase permitieron acometer una segunda etapa denominada ENRESA 2000 iniciada en 1997 con la evaluación de un almacenamiento en granito, que se encuentra ahora en fase de terminación, y que está previsto continuar con la evaluación de un almacenamiento en medio arcilloso. Los objetivos principales de ENRESA 2000 son:

- 1) la aplicación de los desarrollos realizados dentro de los planes de I+D de ENRESA, esencialmente de métodos, modelos y datos, y
- 2) la participación directa en la evaluación de los investigadores que colaboran con ENRESA en el Plan de I+D, conjuntamente con las ingenierías responsables de la integración y del análisis global. Los resultados de esta etapa permitirán derivar criterios para una orientación más precisa de las futuras actividades de I+D relacionadas con la evaluación de la seguridad. A esta segunda fase corresponden también los proyectos internacionales BENIPA y SPIN, pertenecientes al 5º Programa Marco de la Comisión Europea.

La participación de las organizaciones de I+D en ENRESA 2000 se articula a través de los llamados

Grupos Temáticos de Integración (GTI's), formados por los expertos en cada una de las actividades en que se ha desglosado la evaluación.

Las características principales de ENRESA 2000 son las siguientes:

- 1) El contexto de la evaluación viene definido por la naturaleza del sistema de almacenamiento, los objetivos y el alcance del ejercicio, y por el marco regulador.

ENRESA 2000 se enmarca en un programa que está en una fase de I+D, sin actividades de selección o caracterización de emplazamientos. Por ello, ENRESA 2000 ha tenido que construir un emplazamiento hipotético reuniendo características típicas de las formaciones geológicas consideradas dentro del territorio español. Sin embargo, es preciso tener presente que las limitaciones de los datos disponibles no permiten en todos los casos una descripción suficiente de todas las características relevantes, por lo que se han debido formular en estos casos hipótesis alternativas plausibles. En cuanto a las instalaciones de almacenamiento, se parte de los diseños de referencia desarrollados por ENRESA.

Ya se ha mencionado anteriormente lo más fundamental en lo que respecta a los objetivos y al alcance de ENRESA 2000. En cuanto al marco regulador, se han considerado los criterios radiológicos que en su día manifestó el Consejo de Seguridad Nuclear, y por otra parte se tienen en cuenta las guías publicadas por organismos internacionales.

Algunos de los aspectos en esta materia que influyen más profundamente en la forma de llevar a cabo la evaluación son los siguientes:

- No se considera límite temporal del período objeto de evaluación.
 - La evaluación no da ningún crédito a las acciones de vigilancia o preventivas, más allá de un corto periodo posterior a la clausura.
 - Se toman en consideración las acciones de intrusión plausibles que puedan tener lugar en el futuro.
- 2) El análisis de escenarios tiene por objetivo la identificación de las situaciones en las que con alguna verosimilitud se puede encontrar el sistema de almacenamiento en el futuro.

En ENRESA 2000 se ha aplicado un procedimiento de análisis de escenarios desarrollado dentro del plan de I+D, que se basa, en último término en la aproximación sistemática de los laboratorios Sandía, de los EE.UU., a la que incorpora además la experiencia de aplicación, obtenida en particular en el ejercicio SITE 94 del organismo regulador sueco (SKI), y los desarrollos efectuados en el entorno de NEA.

Dentro del proyecto se ha realizado una base de datos de características, procesos y sucesos que está relacionada con la base de datos internacional de NEA. También se ha definido una secuencia climática en la región biogeográfica mediterránea para los próximos 125 Ka.

Para la evaluación cuantitativa del sistema de almacenamiento se ha definido una serie de escenarios que corresponden a tres grupos:

- Escenario de referencia: que considera únicamente la dinámica interna del sistema de acuerdo con la fenomenología prevista.
- Escenario climático, que tiene en cuenta la evolución del clima.
- Escenarios alternativos, que considera cambios en el sistema debidos a fallos, perturbaciones aleatorias o a intrusiones en el sistema.

Asimismo, también se consideran otros escenarios con fines metodológicos, también llamados variantes, cuya verosimilitud no puede analizarse en el nivel actual del programa o que son puramente especulativos, pero que revisten interés para la puesta a punto de la metodología y permiten profundizar en el conocimiento del sistema.

- 3) *Modelos*: ENRESA 2000 supone en este apartado un avance cualitativo por el elevado número de modelos y códigos de cálculo utilizados, desarrollados en su mayoría por investigadores españoles y que se han empleado por primera vez por ENRESA en un ejercicio integrado de evaluación de la seguridad de un AGP. En un rápido repaso, y sin querer ser exhaustivos, mencionaremos entre ellos los siguientes:

- Simulación de la degradación del residuo mediante un modelo mecanístico de oxidación radiolítica de la matriz de óxido de uranio.

- Aplicación de modelos acoplados termo-hidro-mecánicos para la determinación del tiempo de resaturación y la evolución de tensiones y temperaturas.
- Utilización de modelos acoplados termo-hidro-químicos para la determinación de la evolución geoquímica y la migración de radionucleidos en el campo próximo.
- Utilización de modelos hidrogeológicos alternativos basados en medios porosos equivalentes y en redes discretas de fracturas, así como modelos de transporte en geosfera que siguen estas dos aproximaciones. También se han aplicado técnicas de seguimiento de partículas para identificación de caminos de migración.
- Aplicación del concepto de Biosferas de referencia según la metodología desarrollada en el proyecto internacional BIOMASS.

- 4) Para la realización de los cálculos se han recopilado bases de datos sobre solubilidades, coeficientes de sorción, etc. utilizando tanto la información generada dentro de los planes de I+D de ENRESA como la existente en las bases de datos internacionales.

- 5) *Análisis de sensibilidad e incertidumbre*. ENRESA sigue una metodología probabilista basada en la aplicación del método de Monte Carlo. Los datos afectados por incertidumbres son caracterizados mediante una función de distribución de probabilidad y los cálculos se realizan múltiples veces, muestreando las variables de entrada dentro de su curva de variabilidad siguiendo diversos métodos de muestreo. Los resultados son también de carácter probabilista y se analizan mediante la aplicación de estadísticos de sensibilidad, utilizando herramientas específicas desarrolladas en el programa de ENRESA.

Dentro del tratamiento de las incertidumbres hay que señalar además la generación de campos de conductividad hidráulica mediante técnicas geoestadísticas, también desarrolladas por investigadores españoles, que han sido utilizados en los cálculos hidrogeológicos.

- 6) *Justificación de la aproximación*. Las aproximaciones seguidas en la evaluación integrada de la seguridad reposan necesariamente en la justificación de cada uno de sus componentes. El modelo integrado global, está concebido para representar un sistema complejo du-

rante periodos de tiempo muy prolongados. Estas características limitan seriamente las posibilidades de utilización de estos modelos en programas experimentales de validación. Son los modelos de detalle, que representan un número limitado de procesos en un contexto espacial y temporal concreto, los que pueden ser contrastados con evidencias experimentales o naturales. Estas evidencias son acumuladas progresivamente en múltiples programas científicos que contribuyen a reforzar la confianza en la interpretación de las leyes que controlan los procesos y en el desarrollo y aplicación de los modelos.

La pertinencia de los modelos de evaluación global, que integran, en general de forma simplificada, los modelos de detalle, puede verificarse mediante la comparación de los resultados obtenidos con modelos de distinto nivel. ENRESA 2000 permitirá progresar en este camino al seguir varias líneas alternativas de modelación de algunos de los procesos más importantes.

Una estructuración sistemática de los argumentos que avalan la aceptación de una evaluación global corresponde a una etapa más avanzada dentro de un programa de desarrollo de un AGP. No obstante, dentro de ENRESA 2000 se contrastan sistemáticamente las aproximaciones seguidas en el proyecto con las seguidas en los restantes programas en el ámbito internacional, y se analiza el soporte científico y técnico existente para los datos y modelos utilizados.

Conclusiones

- Las evaluaciones de seguridad realizadas por ENRESA muestran que los almacenamientos geológicos de residuos radiactivos de alta actividad en granito y en arcilla, tienen capacidad para dar una respuesta satisfactoria a las demandas de protección a largo plazo del hombre y del medio ambiente, con los niveles de seguridad y fiabilidad requeridos.
- Por otra parte, debe continuar el proceso de ampliación y consolidación de las bases científicas y técnicas de la evaluación, siguiendo un

proceso iterativo coordinado con las restantes actividades del programa.

En lo que respecta a ENRESA 2000, aunque la evaluación de un almacenamiento en granito no está todavía completamente terminada, ya es posible extraer alguna de las conclusiones del trabajo realizado.

- Se ha conseguido construir una arquitectura solvente de modelos y códigos de cálculo que constituye una base sólida para las próximas etapas.
- Un valor cualitativo añadido es que una parte importante de estos modelos y códigos han sido desarrollados por investigadores del plan de I+D de ENRESA, que han participado directamente en la evaluación. Esto permite una gran capacidad de respuesta para adaptar las herramientas de cálculo a las necesidades futuras, y para introducir en las investigaciones los resultados de la evaluación.
- Se han identificado claramente las áreas que deberán ser objeto de atención preferente en las próximas etapas. Entre ellas se pueden mencionar las siguientes:
 - ⇒ Adaptación de las herramientas numéricas para mejorar la capacidad de tratamiento realista de las heterogeneidades a diversas escalas del medio geológico.
 - ⇒ Consideración en los modelos de evaluación de algunos procesos que todavía no están integrados, como son la generación y flujo de gases, y las interacciones físicoquímicas con los productos de corrosión de la cápsula.
 - ⇒ Extensión de la evaluación a otros residuos distintos del combustible gastado.
 - ⇒ Mejor caracterización de la geosfera, especialmente en la interfase con la biosfera.

Será por otra parte necesario perseverar en la puesta al día continua de los métodos de evaluación con los desarrollos obtenidos en los proyectos de I+D y los producidos en el ámbito internacional y, asimismo, continuar los procesos de verificación y validación de los modelos y códigos de cálculo.

DESARROLLOS DE I+D DE APOYO METODOLÓGICO A LA EVALUACIÓN DE LA SEGURIDAD

F. Recreo; C. Ruiz
CIEMAT

R. Bolado; E. Gallego
UPM-ETSII

Introducción

La evaluación de la seguridad de los almacenamientos de residuos radiactivos se basa en la construcción de escenarios y de modelos conceptuales para anticipar el comportamiento del sistema de almacenamiento y las consecuencias radiológicas asociadas a la evolución a largo plazo del mismo. Este comportamiento a largo plazo vendrá afectado por procesos físicos, químicos, geológicos y biológicos de naturaleza compleja. Las predicciones a realizar para contrastar el previsible comportamiento del sistema con los objetivos de seguridad, están basadas en la utilización de modelos matemáticos elaborados para simular dichos procesos bajo las solicitaciones impuestas por los escenarios de evaluación. Las predicciones resultantes estarán afectadas de un número, presumiblemente elevado, de incertidumbres, resultado del conocimiento incompleto tanto de la evolución de las propiedades físicas y químicas de los materiales que constituyen las barreras del repositorio como del comportamiento en el tiempo de la barrera natural geológica.

En una evaluación de seguridad de un almacenamiento de residuos radiactivos se pretende conocer las distribuciones predictivas de ciertas variables de salida, teniendo en cuenta que éstas pueden verse muy afectadas por la consideración de los diferentes escenarios y los diferentes modelos fenomenológicos utilizados, cada uno de ellos regido posiblemente por diferentes modelos físicos, y estos que a su vez utilizan parámetros que son las variables aleatorias sobre las que se ha hecho inferencia.

En el marco bayesiano, el tratamiento de un problema de caracterización y propagación de incerti-

dumbres complejo como el que nos ocupa demanda el tratamiento explícito de la incertidumbre tanto en los escenarios como en los modelos. Entre estos dos tipos de incertidumbre, el primero, el relacionado con los escenarios si ha sido explícitamente tratado en evaluaciones de seguridad de este tipo de almacenamientos, no así el segundo.

La evaluación de la seguridad de los sistemas de almacenamiento de residuos constituye, por tanto, un proceso complejo cuyos aspectos metodológicos y conceptuales están evolucionando, en el ámbito internacional, desde hace más de 20 años. La Unión Europea ha promovido desde 1982 una serie de proyectos orientados a actualizar y armonizar los desarrollos individuales de los países miembros en el área de la evaluación del comportamiento, poniendo énfasis en el desarrollo metodológico y en la demostración de la validez de la Evaluación del Comportamiento como instrumento en la toma de decisiones.

Metodología de generación de escenarios para la evaluación del comportamiento de los almacenamientos de residuos radiactivos

El objetivo general del proceso de generación de escenarios en el contexto de la metodología de evaluación del comportamiento de los sistemas de almacenamiento geológico es conceptualizar un conjunto de situaciones ilustrativas de la evolución plausible del sistema, con el propósito de obtener

un marco en el que analizar la importancia relativa de los factores, es decir, de las características físicas, químicas, geológicas y biológicas y de los procesos y sucesos que puedan influir directa o indirectamente en la liberación y en el transporte de radionucleidos (y en sus consecuencias), e identificar aquellos que deban ser considerados en la modelización posterior del sistema de almacenamiento. Los escenarios a definir deben ser representativos de una envolvente de las posibles líneas evolutivas del sistema y aquellos que finalmente se seleccionen para el análisis de seguridad y la toma de decisiones deberán poner a prueba cada uno de los subsistemas, de forma que se considere la respuesta de todo el sistema de almacenamiento frente a las eventuales condiciones adversas derivadas de la evolución del mismo o de las acciones humanas.

La descripción y el análisis de un sistema de almacenamiento no es en ningún caso un asunto sencillo, más bien existen diversos temas relacionados con la identificación, representación, selección de escenarios y modelización que requieren un análisis detallado.

En el pasado se han utilizado dos tipos de metodologías, la metodología conocida como “de los escenarios” y la “simulación ambiental”, para representar el rango de posibilidades abierto a la evolución futura del sistema. La utilización de la metodología basada en escenarios tiene muchos atractivos, particularmente su sencillez y su condición de evidente; la simulación ambiental, en cambio, adolece de una cierta falta de transparencia y presenta dificultades tanto teóricas como prácticas a la hora de definir las funciones de densidad de probabilidad de muchas de las variables involucradas.

ENRESA no ha ensayado por el momento la aproximación de simulación ambiental y no nos adentraremos en ella en esta exposición. Señalaremos, no obstante, su principio básico consistente en construir un único modelo de comportamiento que engloba y combina todos los procesos considerados importantes y sus interacciones, así como su evolución en el tiempo, a un determinado nivel de detalle. La aplicación de esta aproximación hasta la fecha se ha circunscrito a procesos controlados por el cambio climático sin incluir en ningún caso fenómenos provocados por la operación del repositorio o por la intrusión humana.

Ambas aproximaciones tienen un alto potencial de complementariedad, cada una de ellas con sus ventajas relativas. La simulación ambiental permite

predecir lo que parece predecible y el método de los escenarios, “ilustrar” lo que no es predecible.

La aproximación por escenarios es la forma más utilizada en los últimos 20 años para la evaluación cuantitativa de la seguridad de los sistemas del almacenamiento de residuos.

Identificación de factores

Aunque se han hecho progresos en los últimos años en la definición de los factores que se utilizan para construir escenarios, también conocidos como FEPs (features, events, processes), no es posible demostrar la *completitud* en la definición de tales factores y tampoco en la de los escenarios. Es sin embargo necesario demostrar una *suficiencia* consistente con el contexto de evaluación: los criterios reguladores que la dirigen, y la naturaleza del sistema de almacenamiento; la descripción espacial y formal del sistema, es decir, la caracterización del repositorio y de su medio físico (geosfera y biosfera), y la metodología de evaluación a seguir. Para ello se requiere una documentación del proceso de generación de escenarios que sea flexible, sistemática, transparente y también revisable.

Existe un cierto número de métodos que pueden utilizarse en combinación para definir e identificar factores, la lista internacional de FEPs de la NEA/OCDE (OECD/NEA, 2000), el juicio de experto y la estructura más formalizada del denominado sistema de procesos (Process system), métodos que pueden utilizarse tanto procediendo de lo general a lo detallado (top-down) como de lo detallado a lo más general (bottom-up).

Un escenario es un conjunto plausible de procesos y sucesos de la serie de secuencias imaginables que ilustran el rango de estados y formas de comportamiento futuro de un sistema de almacenamiento. No es necesario y tampoco sería factible describir uno a uno todos los escenarios posibles. No obstante, la consideración de los aspectos más probables o de mayor y más reconocida repercusión debería proporcionar un test robusto de la seguridad del repositorio.

Esta definición tomada de Chapman et al., (1995) se basa en la que originalmente propusieron Kahn y Wiener en 1967 (The Year 2000: A Framework for Speculation on the Next Thirty-Three Years. Macmillan, New York.) y refuerza la idea de escenarios como una simple *ilustración* que puede ayudar en la toma de decisiones.

La asignación de probabilidades o incluso de "grados de verosimilitud" a los escenarios que se generan por un procedimiento "bottom-up", es decir, partiendo desde los niveles detallados a los más generales, como combinación de factores (Chapman et al., 1995), tal y como proponen las metodologías del tipo Sandia (Cranwell, R.M. et al., 1990. Risk Methodology for Geologic Disposal of Radioactive Waste: Scenario Selection Procedure. NUREG/CR-1667) es extraordinariamente difícil si no imposible. Sin embargo, en determinados contextos de evaluación, se impone la asignación de probabilidades. Para facilitar esta tarea se sugiere una aproximación "top-down", de lo general a lo detallado, para la construcción de escenarios. En esta aproximación se postulan consecuencias o estados ambientales y se consideran los mecanismos por los cuales se pueden alcanzar dichos estados.

El Joint SKI/SKB scenario development project (Andersson et al., 1989) puso en circulación la idea de que el análisis de seguridad de un almacenamiento de residuos radiactivos supone considerar todas aquellas Características, Sucesos y Procesos (FEPs) que pueden, de forma directa o indirecta influir en la liberación y el transporte de los radionucleidos desde el repositorio. Por característica se entiende toda propiedad o parámetro que es mensurable; un suceso es un cambio súbito en una característica (una falla que provoca un sismo, p.e), y un proceso es un mecanismo físico o químico mediante el cual las características pueden modificarse a lo largo del tiempo.

Uno de los problemas más relevantes que surgen al tratar de agrupar los factores de una lista de FEPs para su utilización en la Evaluación del Comportamiento es el de la complejidad de la lista, y ello debido a la concurrencia de tres tipos de incertidumbres: incertidumbre paramétrica, incertidumbre en los modelos conceptuales, e incertidumbre hacia el futuro o en los escenarios. Esta última es la más evidente de las tres clases de incertidumbre ya que es imposible demostrar que se han identificado correctamente todos los factores que van a ser importantes en el futuro así como sus interrelaciones, por la simple razón de que no puede anticiparse el futuro con seguridad. Tampoco puede afirmarse que no puedan existir modelos conceptuales alternativos y la incertidumbre conceptual nace precisamente de la eventual existencia de otros modelos alternativos no identificados. Por lo tanto es engañoso pensar que los resultados de cualquiera de las dos aproximaciones citadas (simulación ambiental o generación de escenarios) suponen una predicción de lo

que vaya a suceder en el futuro, debe aceptarse que es imposible alcanzar la completitud en sentido absoluto. Y, sin embargo, aunque una determinada estrategia de generación de escenarios nunca dará lugar a un conjunto completo de escenarios, hay que esforzarse por la completitud. De aquí que la completitud no pueda ser el tema crucial en una evaluación, sino la *suficiencia*. Los criterios que permitirán demostrar tal suficiencia de la evaluación del comportamiento van a depender en gran medida de las aproximaciones seguidas al tratar la incertidumbre, aspecto éste que se tratará en la segunda parte de esta presentación.

Generación de escenarios

La fase de construcción de escenarios comienza una vez identificados los factores y sus interrelaciones.

Sumerling (1996) en su An International Comparison of Disposal Concepts and Postclosure Assessments for Nuclear Fuel Waste Disposal, AECL TR-M-43, establece los pasos que son comunes a la mayoría de las metodologías de generación de escenarios:

- identificación de los factores que pueden afectar a la seguridad del repositorio a largo plazo,
- selección de factores para su análisis cuantitativo,
- combinación de factores en un escenario de referencia y en escenarios alternativos.

Las mayores diferencias metodológicas aparecen en relación con el tipo de aproximación: "top-down" o "bottom-up", probabilista o determinista, y si aquella se apoya en un árbol de sucesos y fallos o si por el contrario lo hace en el concepto de "sistema de procesos".

La utilización de un sistema de procesos simplifica considerablemente el proceso de generación de escenarios. Este concepto nació en el ya mencionado Joint SKI/SKB scenario development exercise, en 1989, al considerar, a diferencia de la metodología Sandia para la generación de escenarios, todos los factores que pueden influir en el comportamiento a largo plazo de un almacenamiento y no sólo aquellos fenómenos considerados disruptivos. Surgieron así 150 factores, sin incluir los de carácter biosférico. La necesidad de organizar este elevado número de factores a considerar llevó a establecer dos categorías de factores:

1. Aquellos sucesos externos de mayor relevancia.
2. Los fenómenos que pueden considerarse siempre presentes en el sistema de almacenamien-

to, activos o no, y que están controlados por los sucesos externos, considerados como "causas primarias".

Este segundo grupo de factores, tomado como un todo, es el denominado "Process System", "un conjunto organizado de todos los factores que se requieren para la descripción del comportamiento de las barreras y de los radionucleidos en un repositorio y en su medio circundante, y que pueden ser valorados con un cierto grado de determinismo a partir de un conjunto dado de condiciones externas". La mayoría de los factores considerados en el proyecto conjunto de SKI y SKB se asignaron al sistema de procesos, en particular todos aquellos que tenían la categoría de características, quedando solo unos pocos factores (sucesos y procesos) externos que podían ser de importancia para la evolución del repositorio y que recibieron la denominación de "factores generadores de escenarios".

El mismo concepto ha sido recogido por Nagra en 1994 como *System Concept*, y por AECL, también en 1994, como *Reference Disposal System*. Del mismo modo, se ha constatado la utilidad del concepto de "escenario central" (AECL, 1989), conocido también como "Reference Case" en TVO-92 (1992) y en SKI (1995), o como "caso base" (SANDIA, 1982; Nagra, 1994; TVO-92). En todos ellos, el escenario central representa la evolución interna del sistema de almacenamiento bajo condiciones de contorno como las actualmente existentes, que se consideran permanentes. También el concepto de escenarios alternativos es común a muchas de las evaluaciones del comportamiento. Estos escenarios se construyen proponiendo alternativas verosímiles a los presupuestos del escenario central o de referencia, o estableciendo supuestos del tipo "what if". El número de estos escenarios alternativos puede llegar a ser muy elevado y es aquí dónde se materializa la disyuntiva completitud vs. suficiencia aludida al inicio.

Por tanto, desde los primeros pasos en la aplicación del concepto de escenario al almacenamiento de residuos radiactivos en formaciones geológicas profundas por Schneider y Platt (1974) se ha producido un desarrollo metodológico notable.

CIEMAT ha realizado un análisis detallado de las distintas alternativas que se han ido proponiendo para la generación de escenarios en el contexto internacional, particularmente las comprendidas bajo el epígrafe genérico de "aproximación sistemática", desarrolladas a partir de los trabajos realizados por Sandia National Laboratories ("Sandia Methodology", Cranwell et al., 1990) en la década de los

80s. Así, además de la ya citada Metodología Sandia, basada en la utilización de árboles binarios de sucesos disruptivos, se estudiaron las metodologías propuestas por SKI y SKB en The joint SKI/SKB scenario development project (Andersson, J. 1989), por la Atomic Energy of Canada Ltd (Goodwin et al., 1989), la metodología de SKI en SITE-94 (Chapman et al., 1995), la aproximación de Nagra (Nagra, 1994) en Krystallin-1 y la aproximación de TVO (Vieno et al., 1992).

A partir de este análisis, CIEMAT, a propuesta de ENRESA, ha desarrollado una metodología de generación de escenarios que toma como referentes principales los resultados del Proyecto SITE-94 de SKI (Chapman et al., 1995), el trabajo del Joint SKI/SKB Scenario Development Project (Andersson et al., 1989) y la aplicación por SKB (Stephansson and Hudson, 1993; Skagius et al., 1995) de la metodología RES (Rock Engineering Systems; Hudson, 1992) al trabajo conjunto de SKI y SKB.

La metodología de generación de escenarios propuesta ha sido documentada en ENRESA Publicación Técnica Num. 10/97 "Metodología de Generación de Escenarios para la Evaluación del Comportamiento de los Almacenamientos de Residuos Radiactivos", (Ruiz, C. y Eguilior, S., 1997).

Actualmente ENRESA está llevando a cabo el análisis del comportamiento de su concepto de almacenamiento geológico profundo a través del ejercicio ENRESA 2000, en el que se integran los desarrollos alcanzados hasta la fecha por los grupos de I+D que trabajan para ENRESA.

CIEMAT ha participado en las tareas de Identificación de Factores y de Construcción de Escenarios, siguiendo la metodología descrita en la Publicación Técnica 10/97 de ENRESA ya señalada.

En la Identificación de Factores han participado asimismo los Grupos Temáticos de Integración (ENRESA, 1999a) y la Ingeniería del Proyecto AGP (ENRESA, 1999b), habiéndose identificado un total de 151 factores para los subsistemas Campo Próximo y Geosfera que se recogen en una Base de Datos (Ruiz, C. 1999) construida de acuerdo con la International Database of Features, Events and Processes de la NEA (NEA, Junio 1997).

- La fase de Construcción de escenarios persigue la identificación de un conjunto de escenarios plausibles que permitan encuadrar los análisis de consecuencias radiológicas y evaluar de este modo el comportamiento del sistema de almacenamiento a largo plazo.

La metodología seguida establece una etapa inicial de diferenciación entre los factores externos. Se separan por un lado aquellos factores externos que están en estrecha relación con el Sistema de Referencia, hasta el punto de constituir una extensión temporal o espacial del mismo, como son los factores de carácter climático y los factores de tipo geodinámico, y por otro, los factores externos que aluden a las distintas formas de acción o intrusión humana o que tienen que ver con fallos prematuros de las barreras de ingeniería.

En la tarea de Construcción de Escenarios realizada por CIEMAT sólo se han definido aquellos escenarios desencadenados por un único factor externo, es decir, sin tener en cuenta la posibilidad de ocurrencia simultánea de más de un suceso iniciador. La metodología seguida propone la consideración de un Escenario de Referencia, un Escenario Climático y una serie de Escenarios Alternativos.

Escenario climático y escenario geodinámico

Escenario climático

Las condiciones climáticas futuras determinarán en gran medida la evolución medioambiental del emplazamiento y, en particular, del sistema hidrológico-hidrogeológico del mismo. De aquí que sea necesario definir, en primer lugar, la evolución climática futura previsible en el emplazamiento a escalas global y regional, así como las eventuales consecuencias ambientales de dicha evolución y su influencia a la cota del repositorio.

Durante el Cuarto Programa Marco de I+D de la Comunidad Europea (1990-1994), ENRESA, en colaboración con el Instituto Tecnológico Geominero de España, ITGE, el BRGM de Francia y el CSIC, llevó a cabo el proyecto "Palaeo-Climatological Revision of Climate Evolution and Environment in Western Mediterranean Regions", publicado como EUR-17455 EN en 1996, y en colaboración con CIEMAT el proyecto "Consideration of Environmental Changes in Long-Term Radioactive Waste Disposal System Evaluations" publicado como EUR-16751 EN en 1996. Por su parte CIEMAT, junto con IPSN y ANDRA, realizaron el proyecto MICE (Method to Integrate Climate Evolution) cuyo objetivo fue definir un método para describir cuantitativamente determinadas "biosferas de referencia" para su utilización en la evaluación de la seguridad a largo plazo.

A partir de estos trabajos y teniendo en cuenta los desarrollos metodológicos llevados a cabo por Nirex y la Climatic Research Unit de la University of East Anglia, del Reino Unido, y el concepto de escenario climático de SKI en el SITE-94 Project), CIEMAT produjo, dentro del Acuerdo de Colaboración con ENRESA para el análisis de la seguridad a largo plazo de los sistemas de almacenamiento de residuos de alta actividad, una propuesta metodológica orientada a definir la secuencia más probable de los estados climáticos esperables en la Península Ibérica en el periodo de tiempo que abarca desde el presente hasta el próximo interglacial, unos 125 ka. de acuerdo con la mayoría de los modelos climáticos orbitales basados en la teoría de Milankovitch (1930).

Para la reconstrucción paleoclimática del último ciclo glacial/interglacial en la Península Ibérica se ha realizado un estudio comparado de los sondeos P2 y P3 de Padul (Granada) en Pons and Reille, 1988; del sondeo KET 8003 del mar Tirreno en Rossignol-Strick and Planchais, 1989, y de las consecuencias de temperatura y precipitación en Les Echets y La Grande Pile, en los Vosgos (Woiillard and Mook, 1981). La construcción del escenario climático a largo plazo para la Península Ibérica tal como se propone en "Consideración del cambio medioambiental en la evaluación de la seguridad. Escenarios climáticos a largo plazo en la Península Ibérica" ENRESA, Publicación Técnica núm. 01/97 (1997) parte de considerar la existencia en la misma de dos regiones bioclimáticas, Mediterránea y Eurosiberiana, en las que se diferencian diversos pisos bioclimáticos. La clasificación climática utilizada fue la de Font Tullot (1983) para los rangos termo y ombroclimáticos, y la de Walter (1973, 1994) para las zonas de vegetación. Para delimitar los potenciales estados climáticos futuros se ha utilizado la curva de variación del índice ACLIN1 de Kukla (1981) y el trabajo de Garcin y Godefroy (1995).

Como resultado del análisis, se proponen cinco situaciones o escenarios climáticos-tipo que resumen la variabilidad detectada en el registro paleoclimático desde los 130 ka BP. Conjugando estos escenarios climáticos-tipo con los umbrales del índice ACLIN 1 se establece una posible sucesión climática futura desde la actualidad a los 125 ka AP.

En el Ejercicio ENRESA 2000-Granito (ENRESA-2000. Documento de Actividad. Análisis de Escenarios, Agosto de 2000) se ha adoptado como Escenario Climático el tipo 1, atendiendo a su represen-

tatividad y frecuencia. Este escenario representa una fase de empeoramiento climático con una temperatura media entre 4 y 8 °C y unas precipitaciones entre 200 y 350 mm. Al final del escenario, el nivel del mar se encontraría a 70 m por debajo del nivel actual. Para la modelización de este Escenario es necesario modificar los modelos hidrogeológico y biosférico del Escenario de Referencia.

Escenario geodinámico

A diferencia del Escenario Climático, el Escenario Geodinámico no suele formar parte de los ejercicios de Evaluación del Comportamiento realizados hasta la fecha en el contexto internacional.

Este escenario podría describirse atendiendo a la evolución geológica pasada más reciente del emplazamiento y el Estado Tectónico Actual del mismo. De los distintos factores externos que constituyen el grupo de factores geodinámicos, la Tectónica de Placas parece ser el marco que encuadra la ocurrencia de dichos factores, aunque no exclusivamente. La mayoría de ellos son factores que se manifiestan a escala regional con marcadas influencias entre sí, lo que aconseja establecer un escenario que contemple estos factores de manera conjunta y en función de la historia geodinámica del emplazamiento.

En el Ejercicio ENRESA 2000-Granito se ha considerado que lo más probable en el área de referencia es que continúe la fase distensiva posterior a la Orogenia Alpina con una actividad tectónica mínima en la región y que continúe asimismo la baja actividad sísmica actual. Sin embargo, la evaluación del comportamiento de los almacenamientos de residuos radiactivos debe considerar la eventualidad del impacto de los sucesos y procesos potenciales durante todo el periodo de funcionamiento del repositorio.

Dadas las condiciones geotectónicas de la Península Ibérica por su ubicación en el límite de las placas Europea y Africana, ENRESA ha considerado de su interés analizar la relevancia de los sucesos y procesos geotectónicos como factores externos en la evaluación de la seguridad a largo plazo de los almacenamientos de residuos radiactivos en la Península Ibérica.

Este estudio constituye una de las líneas actuales en el desarrollo de herramientas y metodologías necesarias para la evaluación de la seguridad acogidas al Acuerdo de Investigación y Desarrollo Tecnológico entre CIEMAT y ENRESA 2000/2001.

La propagación bayesiana de la incertidumbre. Incertidumbre en modelos y escenarios

Draper (Draper, 1995) propone un enfoque bayesiano directo y sencillo para este problema. Para ello considérese que el modelo del sistema puede expresarse del modo $M=(S,\theta)$, donde S representa uno o varios conjuntos de hipótesis estructurales y θ representa los parámetros correspondientes a esas estructuras. Este enfoque consiste en tratar el modelo completo $M=(S,\theta)$ explícitamente e integrar tanto en la incertidumbre estructural como paramétrica a la hora de obtener la distribución predictiva a posteriori para una cierta variable de salida Y , del modo siguiente:

$$p(y/x, M') = \int_{M'} p(y/x, M) p(M/x) dM = \int_{\theta, S} p(y/x, \theta, S) p(\theta, S/x) d\theta dS \quad (1)$$

que constituye un promedio pesado de las distribuciones predictivas basadas en diferentes modelos $p(y/x, M)$, siendo los pesos las probabilidades a posteriori de los diferentes modelos, $p(M/x)$. Un problema que inmediatamente se suscita es qué debería considerarse como rango de integración M' en la ecuación (1).

Obsérvese que la distribución a posteriori del modelo podemos escribirla del modo

$$p(\theta, S/x) = p(S/x) p(\theta/x, S) \quad (2)$$

lo que permite ver que el caso habitual de considerar un único modelo S^* es un caso particular de la ecuación (1) correspondiente a condicionar por S^* del modo

$$p(y/x, M') = p(y/x, S^*) = \int_{\theta} p(y/x, \theta^*, S^*) p(\theta^*/x, S^*) d\theta^* \quad (3)$$

Obrar así, considerar un único modelo del sistema $-S^*$ permite evaluar correctamente la incertidumbre paramétrica mediante integración en θ^* con respecto a la distribución a posteriori $p(\theta^*/x, S^*)$, así como la incertidumbre predictiva en Y , condicionada por $M'=(S^*, \theta^*)$, mediante $p(y/x, \theta^*, S^*)$. Pero considerar sólo ese modelo implica no haber evaluado correctamente la incertidumbre estructural. Se pone todo el peso en un único modelo cuando se sabe a ciencia cierta que no es totalmente válido.

Aplicando la regla de Bayes a $p(M/x)$ puede descomponerse esta probabilidad a posteriori para el modelo del sistema del modo

$$\begin{aligned} p(M/x) &= p(S, \theta/x) = p(S/x)p(\theta/x, S) = \\ &= cp(S)p(\theta/S)p(x/\theta, S) \end{aligned} \quad (4)$$

donde c es la habitual constante de proporcionalidad que garantiza la integración a uno. En esta expresión aparecen las ya habituales distribución a priori de los parámetros $-p(\theta/S)-$ y la verosimilitud $-p(x/\theta, S)-$ pero incluye también la no tan familiar $p(S)$, que es la distribución a priori para el conjunto de todos los posibles conjuntos de hipótesis estructurales (modelos).

En cierto modo nos encontramos con dos extremos en el planteamiento del problema. En un extremo se encuentra la no apreciación de la incertidumbre en modelos haciendo reposar todo el estudio en un único modelo S^* , asignando a éste peso uno, y en otro considerar un continuo de posibles modelos alternativos caracterizados mediante $p(S)$, manteniendo la esperanza de que el proceso de actualización de la información que supone pasar de $p(S)$ a $p(S/x)$, vía adquisición de nueva información x aportada por experimentación, ayude a la identificación de diferentes modelos verosímiles.

Expansión discreta de modelos

El problema práctico que se da con el planteamiento anterior de la evaluación y propagación de incertidumbre en modelos consiste en que es materialmente imposible llevar a cabo esa integración sobre un continuo de modelos alternativos, además de ser difícil de imaginar ese continuo en sí.

La alternativa que propone Draper (Draper, 1995) consiste en una aproximación de expansión de modelo, es decir, partiendo del modelo considerado en principio $-S^*-$ expandir el mismo dependiendo del contexto del estudio y de los datos aportados por la experimentación, y realizar esta expansión de modo discreto, no continuo. La aproximación bayesiana mostrada anteriormente, y también particularizada según esta expansión de modelo nos introduce de modo natural en el marco de los modelos jerárquicos.

Esto consiste en añadir en la parte superior de la jerarquía de niveles de incertidumbre que implícitamente se está siguiendo en todo el documento, la incertidumbre estructural, pasando de la formulación en términos de

$$\theta \sim p(\theta)$$

$$(x/\theta) \sim p(x/\theta)$$

$$(y/x, \theta) \sim p(y/x, \theta) \quad (5)$$

a la formulación en términos de

$$S \sim p(S)$$

$$(\theta, S) \sim p(\theta, S)$$

$$(x/\theta, S) \sim p(x/\theta, S)$$

$$(y/x, \theta, S) \sim p(y/x, \theta, S) \quad (6)$$

El hecho de seleccionar una expansión discreta de modelos, es decir suponer un conjunto finito, y desde luego más bien pequeño, viene dado no sólo por las complicaciones de índole computacional sino por el propio carácter discreto de los posibles modelo alternativos para simular el comportamiento del sistema. Cuesta imaginar cómo establecer un continuo entre dos alternativas tan diferentes como un modelo advectivo-difusivo 1-D con difusión en matriz y un modelo 2-D fractal de transporte. Esta expansión discreta puede representarse mediante el conjunto finito de alternativas estructurales $S' = \{S_1, \dots, S_m\}$, uno de cuyos elementos es necesariamente S^* , de modo que la expresión (1) pasa a tomar la forma siguiente

$$\begin{aligned} p(y/x, S') &= \sum_{i=1}^m \int_{\Theta} p(y/x, S_i, \theta_i) p(S_i, \theta_i/x) d\theta_i = \\ &= \sum_{i=1}^m p(S_i/x) p(y/x, S_i) \end{aligned} \quad (7)$$

donde se distinguen claramente las tres componentes en la distribución predictiva para la variable de salida:

1. la elección del conjunto de alternativas estructurales S' , y sus probabilidades a priori,
2. la distribución predictiva condicionada $-p(y/x, S_i)-$ por los diferentes modelos, y
3. las probabilidades a posteriori de los diferentes modelos $-p(S_i/x)$.

Obsérvese que las distribuciones predictivas condicionadas pueden obtenerse vía simulación una vez conocidas las distribuciones a posteriori de los parámetros. Sin embargo, las probabilidades a priori pueden ser calculadas vía juicio de expertos. Draper propone los dos criterios siguientes para incluir un cierto modelo S_i junto al de referencia en el conjunto S' :

1. S_i debería tener alta probabilidad a posteriori, admitiendo que no se le asignado probabilidad nula a priori (regla de Cromwell), y

2. S_i debería tener consecuencias predictivas $-p(y/x, S_i)$ que difieran substancialmente de las determinadas por S' .

En todo momento de la exposición de este apartado se ha hecho especial hincapié en la incertidumbre en modelos, no fijando tanto la atención en los escenarios. Un modo de acoplar en todo el desarrollo anterior el problema de los escenarios sin hacer más engorrosa la notación es considerar que el conjunto de modelos considerados S' puede descomponerse en varios subconjuntos, cada uno de los cuales está relacionado con un escenario. Esto obliga también a evaluar las probabilidades de los diferentes escenarios de algún modo, probablemente mediante inferencia bayesiana o mediante juicio de expertos.

Una vez caracterizada toda la incertidumbre en escenarios, modelos y parámetros, la propagación de la incertidumbre se realiza mediante simulación, pudiéndose calcular como resumen el valor medio y la incertidumbre, en términos de varianza. Esas dos medidas pueden representarse del modo

$$E(y / x, S') = E_{\varepsilon}(E_S(E(y / x, E, S))) = \sum_{i=1}^e \pi_i \sum_{j=1}^e \lambda_j \bar{y}_{ij} \quad (8)$$

$$\begin{aligned} \text{Var}(y / x, S') &= V_{\varepsilon}(E_S(E(y / x, E, S))) + \\ &+ E_{\varepsilon}(\text{Var}_S(E(y / x, E, S))) + E_{\varepsilon}(E_S(\text{Var}(y / x, E, S))) = \\ &= \sum_{i=1}^e \pi_i (\bar{y}_i - \bar{y})^2 + \sum_{i=1}^e \pi_i \hat{\sigma}_i^2 + \\ &+ \sum_{i=1}^e \pi_i \sum_{j=1}^e \lambda_j \hat{\sigma}_{ij}^2 \quad (9) \end{aligned}$$

lo cual indica que la media global $-E(y / x, S')$ puede descomponerse como promedio pesado de las medias de cada modelo en cada escenario, \bar{y}_{ij} , siendo los λ_j y los π_i las probabilidades respectivamente de cada uno de los e escenarios y los e_i modelos alternativos considerados en cada escenario. Se supone que el número total de modelos en los e escenarios suma la cantidad m , que era el número total de elementos de S' . La varianza total es suma de la variabilidad entre escenarios más la variabilidad interna de cada escenario más la variabilidad interna de los modelos.

La asignación de probabilidades y funciones de distribución

Un tratamiento completo de la incertidumbre en un problema complejo, en virtud de lo expuesto en el

anterior apartado, implica la evaluación de la incertidumbre en modelos, escenarios y parámetros. Esto hace necesario asignar probabilidades a escenarios y a modelos así como funciones de distribución a los parámetros.

El marco frecuentista es extremadamente limitado, dada la insalvable necesidad de disponer de muestras aleatorias de parámetros, es decir, disponer de datos conseguidos en condiciones homogéneas. Probablemente sólo en el caso de parámetros relacionados con la caracterización del residuo y de la obra civil pueda esta aproximación ser plenamente aplicable. Un parámetro de este podría ser la fracción de un cierto radionucleido presente en el huelgo de las barras de combustible, ya que se puede tomar una muestra aleatoria de esta variable. Claramente es inservible para evaluar probabilidades de modelos y de escenarios. Otro ámbito en que la aproximación frecuentista es de clara aplicación, es la estimación de parámetros de modelos de variabilidad espacial mediante técnicas geoestadísticas.

La inferencia bayesiana ha sido extensamente utilizada sobre todo en el estudio de la fiabilidad de componentes críticos para la seguridad de instalaciones industriales complejas, y que por tanto demandan tasas de fallos muy pequeñas. Para calcular la fiabilidad específica de las componentes en la instalación en cuestión se utilizan distribuciones a priori genéricas obtenidas a partir de toda la población existentes, por ejemplo las bombas de un cierto tipo en todas las plantas nucleares con un cierto diseño, y esta se combina con una verosimilitud obtenida a partir de los escasos fallos de esa componente en esa instalación específica, obteniendo mediante el teorema de Bayes la distribución a posteriori. Sin embargo, por ejemplo al principio de la utilización de una componente de nuevo diseño con la que se ha experimentado mucho en taller o laboratorio, pero que por mucho que sea la experimentación no es comparable la información que aporta el funcionamiento continuo en muchas instalaciones reales, se utiliza juicio de expertos (ingenieros de diseño) para evaluar una primera distribución a priori.

Ahora bien, el marco bayesiano da más de sí que lo recién comentado sobre fiabilidad de componentes. En ese caso se cuenta con una muestra, aunque sea de pequeño tamaño, para construir la verosimilitud, usando a lo sumo juicio de expertos para construir la prior. En sentido estrictamente bayesiano la prior sólo indica donde se cree que el parámetro en cuestión puede tomar valores, y la

verosimilitud indica sólo que valores del parámetro podrían ser más coherentes con una cierta evidencia, que nadie obliga a que sea muestral. Es decir, tanto en la prior como en la verosimilitud, como en ambas simultáneamente puede introducirse información 'blanda', cualitativa, no numérica (Bolado, Ibáñez y Lantarón, 1999). Esto da toda la flexibilidad posible para combinar todo tipo de información sobre un cierto parámetro, escenario o modelo.

Esta total flexibilidad hace de la utilización de la fórmula de Bayes junto con técnicas depuradas de juicio de expertos la herramienta idónea para abordar todos los problemas relacionados con la incertidumbre en una evaluación de seguridad. Bolado, Ibáñez y Lantarón (1999) proporcionan una guía para la utilización de estas técnicas así como un procedimiento estructurado disponible en la CTN.

A continuación se muestra una serie bastante exhaustiva de ejemplos de utilización de procedimientos estructurados de juicio de expertos en evaluaciones de seguridad de almacenamientos de residuos radiactivos en los países de nuestro entorno. Posteriormente se muestran una serie de problemas que suelen darse en la caracterización de incertidumbres en nuestra área así como algunas técnicas de ayuda a los expertos y determinación de parámetros que no necesitan nivel tan fino de caracterización.

Uso del juicio de expertos en programas de almacenamientos de residuos radiactivos

Desde comienzos de la década de los ochenta se han realizado bastantes análisis relativos a la selección de emplazamientos para almacenamientos de residuos radiactivos y a las evaluaciones de comportamiento de los mismos. En muchos de esos casos se ha recurrido a los procesos formales de juicio de expertos para evaluar cuestiones de distinta naturaleza.

En los estudios relativos al emplazamiento de Hanford, en el estado de Washington (EE.UU.), el juicio de expertos formal se utilizó para evaluar funciones de utilidad y distribuciones de probabilidad para diversos parámetros (U.S. Department of Energy, 1984, Golder Associates, 1986). Las funciones de utilidad sirvieron para aplicar análisis de decisión multiatributo para clasificar las distintas opciones de construcción identificadas como viables. Posteriormente, para estimar los flujos de agua subterránea

y de gas metano en la instalación propuesta se evaluaron distribuciones de probabilidad de 41 parámetros geológicos, hidrológicos y de disolución de gases.

El análisis de decisión multiatributo también fue utilizado por el Department of Energy (DOE) de los EE.UU. en 1986 para clasificar cinco potenciales emplazamientos de un almacenamiento de residuos radiactivos de alta actividad (U.S. Department of Energy, 1986). Los cinco sitios propuestos originalmente como candidatos para el primer emplazamiento de residuos nucleares del programa civil son: Yucca Mountain (Nevada), Richton Dome (Missisipi), Deaf Smith (Tejas), Davis Canyon (Utah) y Handford (Washington). Se utilizaron seis grupos de expertos de diversas áreas de conocimiento para evaluar tanto juicios de valor sobre las actitudes de la población hacia el riesgo como aspectos técnicos relativos al comportamiento previsto del almacenamiento. Por ejemplo, se estimó el número de víctimas mortales que se podrían dar debido al transporte de los residuos a cada uno de los sitios. Para cada uno de los efectos se realizaron estimaciones puntuales y se estimaron intervalos de confianza del 95%. Tanto los procedimientos utilizados para obtener las opiniones de los expertos como las propias opiniones fueron sometidas posteriormente a una revisión pública. Otra aplicación del análisis de decisión que merece ser mencionada se refiere a la comparación de diversos modos de emplazamiento vertical y horizontal de bidones de combustible nuclear quemado en un almacenamiento en formaciones de sal. En este caso los expertos proporcionaron sus opiniones sobre algunos de los 10 atributos que se identificaron como importantes.

Sandia National Laboratories (SNL) ha venido aplicando de modo sistemático juicio de expertos a diferentes facetas de la evaluación iterativa de la seguridad de la Planta Piloto de Aislamiento de Residuos Radiactivos (WIPP - Waste Isolation Pilot Plant) en el estado de Nuevo México (EE.UU.) (Bonano et al, 1991, Rechar, Trauth and Guzowski, 1990, Rechar, Iuzzolino and Sandha, 1992, Trauth, Guzowski and Hora, 1994, Trauth, Hora and Rechar, 1993, Trauth et al. 1992). La evaluación de distribuciones para parámetros inciertos es una de las áreas a que se han dedicado esfuerzos, especialmente en el caso de parámetros relacionados con la solubilidad y sorción de radionucleidos (Rechar et al., 1993) importantes desde el punto de vista de la seguridad. SNL ha aplicado también juicio de expertos, en este caso tanto de modo formal como informal, a la interpretación de datos Gu-

zowski, 1990), con vistas a su utilización en los modelos usados en la evaluación del comportamiento.

El desarrollo de escenarios ha ocupado también un lugar destacado en las aplicaciones de juicio de expertos para este almacenamiento (Guzowski, 1991, Hora, von Winterfeldt and Trauth, 1991). En estos estudios se ha puesto de manifiesto la importancia que tiene la opinión de los expertos para la realización creíble de esta tarea, sobre todo en lo que se refiere a la criba de sucesos y procesos y a su combinación para la generación de escenarios. Después de la selección de todos los procesos y sucesos relevantes, las cribas de los mismos suelen realizarse tomando como criterios los posibles daños a que podrían llegar a dar lugar, así como la verosimilitud con que se puedan producir. Una vez eliminados procesos y sucesos que por su poca verosimilitud o pequeñas consecuencias, evaluadas ambas mediante juicio de expertos, se combinan los restantes para generar los escenarios verosímiles, que de nuevo serán cribados atendiendo a los mismos tipos de criterios, produciendo finalmente el conjunto de escenarios que realmente pueden inducir riesgo apreciable en la instalación. En Europa, el organismo regulador Sueco (SKI) ha continuado en la evaluación del comportamiento SITE-94 con el esfuerzo realizado en el proyecto SKI-90 en temas de generación de escenarios por expertos. Si bien los objetivos perseguidos por el juicio de expertos realizados en la generación de escenarios son los mismos que si se hubiera en una elicitación formal, la forma en la que se ha desarrollado tiene sus peculiaridades, ya que se pone el énfasis en la auditabilidad de los pasos realizados, prescindiendo de asignar probabilidades a los escenarios considerados.

Capítulo aparte merece el caso especial de los escenarios de intrusión humana, a los que se ha dedicado especial atención y ha sido merecedor de un profundo estudio mediante juicio de expertos (Guzowski and Gruebel, 1991, Trauth, Hora and Guzowski, 1993, Sagar and eslinger, 1987). En concreto se trató, por una parte, de inferir posibles situaciones futuras que pudieran conducir a intrusiones en el almacenamiento, por otra, se trató de estudiar el tipo de señales que habría que dejar en las inmediaciones del repositorio para advertir a generaciones futuras de la existencia de 'algo' inductor de riesgo. Este último panel de expertos identificó los principios que deberían seguir la señalización, entre ellos están:

- i) el mensaje debería ser veraz e informativo,

- ii) debería ser presentado de múltiples formas, la señalización debería carecer de valor (sin posible reciclado), y

- iv) debería darse un esfuerzo a nivel internacional para mantener el conocimiento de la localización de los residuos y los contenidos de los repositorios.

El panel también consideró eficaz las señales propuestas aunque se estimó que su eficacia disminuiría con el tiempo dependiendo del modo de intrusión y del desarrollo tecnológico de la sociedad.

Procesos de juicio de expertos estructurados han sido utilizados por diferentes instituciones americanas que han participado en proyectos relacionados con el almacenamiento de residuos radiactivos de alta actividad de Yucca Mountain, como Rockwell International (Barnard et al., 1992), SNL (De Wispelare, 1993) y el Instituto de Investigación del Sudoeste (Dalrymple, 1987).

EPRI (Electric Power Research Institute) realizó una elicitación formal del juicio de expertos para evaluar la probabilidad de terremotos en las proximidades de Yucca Mountain en los siguientes 10000 años. Este estudio valoraba las distribuciones de probabilidad asignadas por siete geólogos y sismólogos con conocimientos geológicos específicos del entorno de Yucca Mountain o de zonas similares. El panel de expertos se reunió en su totalidad en dos sesiones: la primera con el fin de entrenar al grupo en los métodos de elicitación y la segunda para presentar y discutir las materias relacionadas con la sismicidad del área de Yucca Mountain. Los expertos suministraron de forma individual juicios probabilistas relacionados con la posibilidad de desplazamientos en la zona de fallas del lugar. Aunque los expertos participaron en sesiones en grupos para identificar y definir los temas, cada uno de ellos identificó sus propios temas significativos y desarrolló sus propios modelos para obtener su evaluación personal. Las evaluaciones personales recogen las distribuciones de probabilidad describiendo la incertidumbre de cada experto acerca de las posibles causas de los desplazamientos por fallas.

De nuevo en Europa, el Departamento de Medio Ambiente (DOE - Department of Environment) del Reino Unido participó junto a otras instituciones europeas en el proyecto comunitario PACOMA (Dalrymple, 1989, Sumerling, 1992a), apostando claramente por los procedimientos de juicio de expertos para abordar el problema de la caracterización de incertidumbres en parámetros de entrada,

aplicándolo al caso del emplazamiento de Harwell. Esta aproximación al problema fue posteriormente utilizada por el Inspectorado para la Polución de Su Majestad (HMIP - Her Majesty's Inspectorate of Pollution) del DOE en los estudios Dry Run 3 (Sumerling et al., 1992b, Dalrymple and Willows, 1992, Thorne, 1992), para la evaluación de la seguridad del mismo emplazamiento. Mientras que en el caso de PACOMA se centró el estudio en parámetros geosféricos, como dispersividades, difusividades y conductividades hidráulicas entre otros; en el estudio Dry Run 3 se volcaron más las tintas en parámetros relacionados con cambios ambientales y biosféricos en general.

Un resumen y conclusión de este repaso a los estudios que se han realizado de procesos de juicio de expertos es que éstos se han aplicado a los campos siguientes en las evaluaciones de seguridad de almacenamientos de residuos radiactivos:

- 1) Desarrollo de escenarios, que supone la identificación y criba de sucesos y procesos, la formulación de y criba de escenarios y la asignación de probabilidades a éstos.
- 2) Desarrollo de modelos, que supone la selección e interpretación de datos, la elaboración de modelos conceptuales y el desarrollo de códigos de cálculo.
- 3) Estimación de la incertidumbre en los parámetros.
- 4) Selección de la información importante para la evaluación de seguridad.
- 5) Toma de decisiones sobre el diseño, construcción y operación del almacenamiento.

Principales problemas específicos en la asignación de funciones de distribución

Los procedimientos estructurados de juicio de expertos han acumulado ya suficientes aplicaciones para poder mostrar una serie de problemas genéricos a casi todos los campos en los que se han aplicado. Sin embargo, en el área de las evaluaciones de seguridad de almacenamientos de residuos radiactivos aparecen ciertos problemas no muy tratados en la bibliografía, lo cual no quiere decir que no se den, por separado al menos, en otros campos. Estos son esencialmente:

- 1) el problema de la dilución del riesgo,

- 2) el problema de las correlaciones entre parámetros,
- 3) el caso de los parámetros colapsados,
- 4) la heterogeneidad en las fuentes de información, y
- 5) la incertidumbre en modelos.

A continuación se tratan estos problemas, algunos de los cuales, en ocasiones, pueden afectar simultáneamente a un mismo parámetro

El problema de la dilución del riesgo

Uno de los mayores problemas que se da con los expertos es el problema de la sobreconfianza (Bolado, Ibáñez y Lantarón, 1999). Este problema consiste en que los expertos, a la hora de emitir sus opiniones tienden de modo general a proporcionar rangos de incertidumbre inferiores a los que el conocimiento de la materia les permite proporcionar. Esto es un problema serio que lleva a dejar fuera del estudio valores que si podría tomar el parámetro en cuestión. En el caso de escenarios la sobreconfianza se traduce en excluir procesos o sucesos que si podrían tener relevancia y en subestimar su probabilidad. Existe una serie de técnicas para intentar remediar este problema, o al menos paliarlo. El problema de la dilución del riesgo es en cierto modo antagónico del problema de la sobreconfianza y consiste en la posibilidad de mejorar la medida que proporciona el comportamiento del sistema artificialmente, sea esto hecho de modo premeditado o no, mediante un aumento en la dispersión (varianza) de determinados parámetros presentes en los modelos. Para ver esto considérese el modelo 1-D advectivo-dispersivo de transporte en medio poroso considerando la inyección de un pulso que integra en el origen de coordenadas los tiempos, y realizaremos la aproximación de que la vida media del contaminante es tan grande que no afecta a la cantidad que llega a la biosfera, es decir:

$$\frac{\partial C}{\partial t} - D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + v \frac{\partial C}{\partial x} = 0 \quad x \in (-\infty, +\infty), t > 0$$

$$C(x,0) = \delta(x) \quad (10)$$

donde C representa la concentración del contaminante en cada instante t y cada punto x , D es la dispersividad, v la velocidad y L la longitud del camino. Consideremos como medida del comportamiento el flujo que sale por $x=L$ en cada instante de tiempo por unidad de superficie normal a la dirección del flujo. En esta tesitura, la solución de

(10) viene dada por la curva señalada como correspondiente a $\varepsilon = 0.0$ en la figura 1.

Supóngase ahora que el verdadero valor de la velocidad es incierto, distribuyéndose en torno a un cierto valor v_0 , y pongamos por caso que toma valores entre $v_0 - \varepsilon$ y $v_0 + \varepsilon$ con distribución de probabilidad uniforme. Supóngase que, como es usual, la medida del comportamiento es el valor medio de la variable de salida (el flujo). Cabe preguntarse que ocurrirá con ella al introducir esa incertidumbre. La figura 1 muestra el valor de la evolución del valor medio del flujo frente al tiempo $-E(f(t))$ obtenido mediante simulación para valores de ε (0,0, 0,2 y 0,5). Obsérvese que dependiendo de la región de tiempos la medida del comportamiento empeora o mejora respecto a la situación de incertidumbre en la velocidad, pero en este caso el máximo de la curva disminuye, indicando que para un criterio como que el valor medio de la medida de comportamiento no sobrepase cierto valor en ningún instante (como es el caso español en que se exige que la dosis media no sobrepase cierto valor en ningún instante del futuro), el hecho de que el máximo de esa curva lo sobrepase en un instante implicaría violación del criterio. Nos encontraríamos en la paradójica situación de convertir en aceptable el sistema simplemente admitiendo mayor desconocimiento que el real sobre el mismo. Esto no es más que una consecuencia de la falta de dependencia lineal de la variable de salida tomada como medida del comportamiento con la variable de entrada considerada. Este problema podría agudizarse si además de falta de linealidad se diere falta de monotonía. Una revisión de los modelos habituales en las evaluaciones de seguridad muestra que este fenómeno puede afectar a muchos de ellos.

La solución a este problema pasa en primer lugar por ser consciente de él. En principio el ensanchamiento del rango de incertidumbre pasa por ser una medida conservadora, pero como se ha visto hay casos en que no es así. Se trata de proporcionar el verdadero estado del conocimiento, no de propagar intuitivamente incertidumbres y tratar de hacerlo de modo supuestamente conservador; eso ya lo hacen los códigos de cálculo. En este problema pueden ser de gran ayuda las técnicas de calibrado de expertos y las reglas de puntuación (scoring rules [Bolado, Ibáñez y Lantarón, 1999]). Una extensión de este problema consiste en que no sólo disminuya el valor medio de la respuesta sino también su varianza, con lo cual, además del falso mejor resultado se tendría una mayor confianza en la bondad del mismo.

El problema de la correlación entre parámetros

La correlación entre parámetros puede afectar tanto a aquellos afectados de incertidumbre del conocimiento como a aquellos afectados de variabilidad inherente. El problema no suele ser tan crítico como el problema de la dilución del riesgo. Si hay parámetros de entrada que están correlacionados y afectan a diferentes radionucleidos, como podrían ser las diferentes solubilidades, inducirían correlación entre las dosis de esos radionucleidos. Eso no tiene en general por qué afectar a la dosis media, ya que la media de la suma de variables aleatorias no se ve afectada por la correlación entre las variables aleatorias, sin embargo sí podría afectar a la varianza de la suma. Supongamos que llamamos X e Y a las dosis en determinado instante de tiempo de dos radionucleidos determinados, que asumimos que tienen respectivamente varianzas σ_x^2 y σ_y^2 y supongamos que la existencia de parámetros correlacionados que afectan a ambas ha inducido correlación entre ellas. Recuérdese que la varianza de la suma de ambas variables viene dada por

$$\begin{aligned} \text{Var}(X + Y) &= \sigma_x^2 + \sigma_y^2 + 2 \text{cov}(X, Y) = \\ &= \sigma_x^2 + \sigma_y^2 + 2\rho_{xy}\sigma_x\sigma_y \end{aligned} \quad (11)$$

que cuando X e Y toman iguales varianzas puede llegar a tomar valores extremos 0 y $2\sigma_x^2$, dependiendo de que el coeficiente de correlación tome valor -1 ó $+1$. Esto sería importante de cara a la asignación de intervalos de confianza, pues podría llevar de intervalos de confianza prácticamente puntuales, pasando por el caso de independencia, hasta intervalos de confianza de anchura $(2)^{1/2}$ veces la del caso de independencia. Ha de tenerse en cuenta también que en este sencillo desarrollo se han supuesto varianzas iguales, lo cual supone radionucleidos de importancia pareja, que sería el caso más desfavorable, en casos de radionucleidos muy dispares en peligrosidad el efecto sería muy inferior.

Al caso anterior podríamos llamarlo caso transversal, pues se ha supuesto que la correlación se da entre parámetros que afectan a diferentes radionucleidos. Un caso menos estudiado y que podría tener relevancia es el de correlación longitudinal, es decir, correlación entre parámetros que afectan a un mismo radionucleido. Un caso transversal podría ser por ejemplo la solubilidad de radionucleidos cuyas especiaciones presenten propiedades químicas parejas, o el porcentaje del inventario de varios radionucleidos en el huelgo de la barra de combustible. Un caso de correlación longitudinal podría ser por ejemplo la correlación entre los coefi-

cientes de sorción en bentonita y en geosfera de un mismo radionucleido, o que los caminos geosféricos más rápidos fueran en general los más cortos y viceversa (aunque este sería también transversal, pues afectaría a todos los radionucleidos).

A parte de los efectos en las variables de salida, es importante tener en cuenta la correlación entre los parámetros en cuestión e implantarla en los muestreos, entre otras cosas por dar credibilidad al estudio global, ya que podrían llegar a darse en las simulaciones del comportamiento del sistema incluso resultados imposibles (Stephen, Goodwin and Andres, 1993) si no se hiciese adecuadamente.

Cuando hay correlación entre parámetros suele deberse a la existencia de modelos desconocidos, al menos en parte, que originan esos parámetros y que inducen la correlación. El tratamiento adecuado siempre que se disponga de expertos en el tema es tratar de implantar los modelos subyacentes generadores de correlación, descomponiendo esos parámetros en términos de otros, obteniendo después la distribución conjunta de los parámetros de interés caracterizando la incertidumbre en esas variables subyacentes y propagándola mediante simulación. Serían de aplicación en este caso las técnicas de descomposición y de diagramas de influencia, así como algunas técnicas de construcción de distribuciones multivariantes (Bolado, Ibáñez y Lantarón, 1999).

No debería darse este problema en parámetros afectados de variabilidad inherente. Bastaría tener cuidado de tomar medida de ambas variables aleatorias en cada uno de los elementos de muestreo. Se perdería la valiosa información referente a la correlación si no se operase así.

El problema de los parámetros colapsados

Estos son parámetros con los que se pretende describir el efecto neto de varios procesos elementales o procesos que muestran apreciable variabilidad espacial o temporal o, incluso, de ambos tipos simultáneamente. Estos parámetros promediados pueden presentar distribuciones, o al menos atributos de las mismas, claramente diferentes respecto a los datos originales, aquellos medibles en campo, de hecho en muchas ocasiones no son observables, e igualmente puede ocurrir con las dependencias que muestren con otros parámetros. Todo esto hace que algunos de éstos sean arquetipos de parámetros que han de ser tratados mediante juicio de expertos.

Sin embargo no todos son igualmente difíciles de tratar ya que hay casos específicos muy estudiados en la bibliografía, especialmente aquellos en que se trata de obtener una medida media de una cierta magnitud, es decir, cuando se pretende proporcionar un valor medio que represente el comportamiento global del medio. Así, por ejemplo, es conocido (De Marsily, 1986) que en el caso de la permeabilidad, independientemente de la dimensión del medio (1, 2 ó 3) cualquiera que sea la estructura de autocorrelación de la misma, la permeabilidad media se encuentra siempre entre la media armónica y la aritmética de las permeabilidades locales. Igualmente, si la distribución de probabilidades de la permeabilidad es lognormal y nos encontramos en un medio bidimensional, la permeabilidad media es igual a la media geométrica de las permeabilidades locales. Además, la variabilidad de esas medias globales se beneficia precisamente de esa condición de medias, de modo que la incertidumbre que tienen asociada es mucho menor que la variable original. De hecho, Tierney (Tierney, 1990) sugiere la siguiente relación entre las varianzas de las variables medidas a nivel local y las promediadas

$$\sigma_{pro}^2 \cong \sigma_{loc}^2 (v / V) \quad (12)$$

donde v y V son respectivamente los volúmenes representativos de la escala a que se mide (local) y a que se promedia.

El problema de la heterogeneidad en las fuentes de información

Sobre todo en las primeras iteraciones del proceso de evaluación continuada de la seguridad, en que la información utilizada suele ser aún genérica, y no específica de un emplazamiento dado, existe el problema de qué datos considerar, especialmente si se cuenta con una serie de datos y alguno de ellos parece discrepante del resto. Lo esencial es determinar si ese o esos datos han sido tomados en condiciones heterogéneas respecto al resto o no. Esto esencialmente es una labor del experto, pero hay ciertas técnicas estadísticas que pueden ayudar a los expertos a decidir sobre si los datos aparentemente discrepantes pueden considerarse tal o no, desde luego con bastante margen de incertidumbre y dejando la última palabra a los expertos.

La primera técnica que puede usarse útil, si de cada elemento de observación se cuenta con varias magnitudes medidas es el análisis de componentes prin-

cipales. Téngase en cuenta que se está trabajando con una serie de puntos (número de elementos de medida) en un espacio de dimensión número de magnitudes medidas en cada elemento de observación. Estrictamente el objetivo de un análisis de este tipo es transformar linealmente el conjunto de magnitudes en un subconjunto menor que mantenga la mayor información posible del conjunto original. Lo que se hace realmente es encontrar la transformación lineal de las magnitudes que proporciona los ejes principales del elipsoide formado por los datos. Se suelen seleccionar las dos componentes principales y mostrar la proyección de los puntos en ese plano.

Otras técnicas para ayudar a los expertos a detectar situaciones de heterogeneidad en los datos podrían ser la validación cruzada en un modelo de regresión cuando se disponga de dos magnitudes medidas en cada elemento de observación, y existe una correlación apreciable entre ellas, y pruebas de consistencia de un dato con la distribución estimada para otro conjunto de datos si sólo se ha medido una magnitud por elemento de observación.

Sin embargo estas técnicas no substituyen, sólo ayudan al experto. Relacionado con el problema de la heterogeneidad está el de la fiabilidad de los datos. En el estudio del transporte de contaminantes en geosfera sigue abierta la cuestión de si la dispersión hidrodinámica depende de la escala a que esta se mida o no. En 1992 Gelhar y colaboradores realizaron un estudio crítico para determinar la fiabilidad de los resultados de 59 experimentos de campo en este tema (106 medidas).

Los resultados se muestran en la figura 2, indicando que restringiéndonos al conjunto de experimentos de alta fiabilidad no hay evidencia de dependencia con la escala. La conclusión esencial fue que muchos estudios adolecían de errores relacionados con la recogida e interpretación de datos como:

- 1) la pobre definición de la pluma debida a una escasa monitorización,
- 2) fallo a la hora de recoger variaciones temporales en el flujo,
- 3) información incompleta sobre el término fuente,
- 4) limitaciones inherentes al procedimiento, y
- 5) sobresimplificaciones de las técnicas para interpretar los resultados.

Estimadores para descartar parámetros para estudiar con juicio de expertos

Uno de los inconvenientes de los procesos estructurados de juicio de expertos es la demanda importante de recursos económicos y de consumo de tiempo (aunque mucho menores que la experimentación en campo). Esto provoca que sea deseable pasar a determinar mediante juicio de expertos únicamente parámetros que realmente sean importantes en la seguridad de la instalación, y no se malgaste tiempo y dinero en estudiar parámetros intrascendentes.

Habida cuenta que la medida esencial del comportamiento del sistema es la evolución de la dosis media total frente al tiempo, o lo que es lo mismo, que el máximo de esa curva no exceda el valor límite, se propone realizar el estudio utilizando distribuciones uniformes en todas las variables de entrada con amplios márgenes de incertidumbre, tomar una gran muestra y ver las diferencias en las medias de la dosis total, mediante un esquema de repesado de la muestra. Todas aquellas variables en que las variaciones de distribución no afecten drásticamente a las medias de las dosis no deberían ser objeto de estudio mediante juicio de expertos.

Referencias

- OCDE/NEA, 2000: Safety Assessment of Radioactive Waste Repositories. An International Database of Features, Events and Processes.
- Chapman, N.A., et al., 1995: System Analysis, Scenario Construction and Consequences Analysis Definition for SITE-94. SKI Report 95:26.
- Kahn and Wiener, 1967: The Year 2000: A Framework for Speculation on the Next Thirty-Three Years. Macmillan Ed., New York.
- Cranwell, R.M. et al., 1982: Risk Methodology for Geological Disposal of Radioactive Waste: Scenario Selection Procedure. NUREG/CR-1667.
- Andersson, J., 1989: The Joint SKI/SKB Scenario Development Project. SKB TR 89-35.
- Sumerling, T.J. et al., 1997: Scenario Development for Kristallin-1. Nagra Technical Report NTR 93-13.
- Sumerling, T.J., 1996: An International Comparison of Disposal Concepts and Postclosure Assessments for Nuclear Fuel Waste Disposal. AECL, TR-M-43.
- Goodwin et al., 1989: Post-Closure environmental assessment for the Canadian Nuclear Fuel Waste Management Program. Radioactive Waste Management and Nuclear Fuel Cycle, Vol. 8.

- Vieno, T. Et al., 1992: TVO-92 safety analysis of spent fuel disposal. Nuclear Waste Commission of Finnish Power Companies, Report YJT-92-33E.
- SKI, 1996: SKI Site-94. Deep repository performance assessment project Volume II. SKI Report 96-36, Swedish Nuclear Power Inspectorate, Stockholm, Sweden.
- Nagra, 1994: Kristallin-1: Safety Assessment Report. Nagra Technical Report NTB 93-22.
- Skagius, K., et al., 1995: The Use of Interaction Matrices for Identification, Structuring and Ranking of FEPs in a Repository System. Application on the Far-Field of a Deep Geological Repository for Spent Fuel. SKB TR 95-22.
- Hudson, 1992: Rock Engineering Systems. Theory and Practice. Ellis Horwood (Ed.), New York.
- Ruiz, C. y Egüillor, S., 1997: Metodología de Generación de Escenarios para la Evaluación del Comportamiento de los Almacenamientos de Residuos Radiactivos. ENRESA Publicación Técnica Num. 10/97.
- ENRESA, 1999^a: Proyecto AGP. ENRESA-2000. Lista de factores de los Grupos de I+D de ENRESA. 49-1PP-L-06-04, Rev. A.
- ENRESA, 1999^b: Proyecto AGP. Enresa-2000. Procedimiento para la realización de la actividad Análisis de Escenarios del Ejercicio ENRESA-2000. 49-1PP-G-06-01. Rev. B.
- Ruiz, C., 1999: ENRESA 2000. Actividad "Análisis de Escenarios". Etapa de identificación, clasificación y selección de factores. Estructura y contenido de la BD de factores. CIEMAT/DIAE/51/55121/08/99.
- EUR-17455 EN, 1996: Palaeo-Climatological Revision of Climate Evolution and Environment in Western Mediterranean Regions.
- EUR-16751 EN, 1996: Consideration of Environmental Changes in Long-Term Radioactive Waste Disposal System Evaluations.
- Agüero, A. Et al., 1996: MICE: an attempt to define some reference biospheres representative of the long-term in the context of the safety assessment of radioactive waste disposal.
- Pons A. And Reille, M., 1988: The Holocene – and upper Pleistocene pollen record from Padul (Granada, Spain): a new study. Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology, 66:243-263.
- Rosignol-Strick M. and Planchais N., 1989: Climate patterns revealed by pollen and oxygen isotope records of a Tyrrhenian sea core. Nature, 342 (6248), 413-416.
- Woillard, G.M. and Mook, W.G., 1982: Carbon-14 dates at Grande Pile: correlation of land and sea chronologies. Science, 215, 159-161.
- Recreo, F. y Ruiz, C., 1997: Consideración del cambio medioambiental en la evaluación de la seguridad. Escenarios climáticos a largo plazo en la Península Ibérica. ENRESA Publicación Técnica Num. 01/97.
- Font Tullot, I., 1983: Climatología de España y Portugal. Instituto Nacional de Meteorología, Madrid.
- Walter, H. 1993: Zonas de Vegetación y Clima. Ediciones Omega. Barcelona.
- Kukla G. Et al., 1981: Orbital signature of interglacials. Nature, 290 (5804), 295-300.
- Garcín, M and Godefroy, P., 1995: Evolution future du site du Jarama à l'échelle de 100.000 ans. Rapport BRGM SGN/UPE N 1907.
- ENRESA, 2000; Proyecto AGP. ENRESA-2000. Documento de Actividad Análisis de Escenarios. 49-1 PP-L-06-02, Agosto de 2000.
- Draper, D., 1995: Assessment and propagation of model uncertainty. J. R. Statist. Soc. B, 57, nº 1, pp 45-97.
- Smith, A.F.M., 1990 The bayesian approach to probabilistic risk assessment. Paper presented at the OECD-NEAD 10th meeting of PSAC User Group. Madrid.
- Box, G.E.P. and Tiao G.C., 1973: Bayesian inference in statistical analysis. John Wiley and Sons.
- Declaración del Consejo de Seguridad Nuclear al Ministerio de Industria, incluida en su informe sobre el Primer Plan General sobre Residuos Radiactivos.
- Bonano, E.J. et al, 1990: Elicitation and Use of Expert Judgment in Performance Assessment for High-Level Radioactive Waste Repositories, Sandia National Laboratories, SAND89-1821 (NUREG/CR-5411), May 1990.
- Cranwell, R.M., et al., 1990: Risk Methodology for Geologic Disposal of Radioactive Waste: Scenario-Selection Procedure, U.S. Nuclear Regulatory Commission, NUREG/CR-1667.
- U.S. Department of Energy, 1984: Draft Environmental Assessment - Reference Repository Location. Hanford Site, DOE/RW-0017.
- Golder Associates, 1986: Report to Rockwell Hanford Operations - Probability Encoding of Variables Affecting Inflow into the Exploratory Shaft Test Facility at the Basalt Waste Isolation Project, Ridgeland, Washington, June, 1986.
- U.S. Department of Energy, 1986: A Multiattribute Utility Analysis of Sites Nominated for Characterization for the First Radioactive-Waste Repository. A Decision Aiding Methodology, DOE/RQ-0074.
- Gregory, R. and Lichtenstein, S., 1987: A Review of the High-Level Nuclear Waste Repository Siting Analysis, Risk Analysis 7, No. 2 (1987), pgs. 219-223.
- Fluor Technology Inc., Advanced Technology Division, 1988: Salt Repository Emplacement Mode Evaluation and Selection. Final Report, March, 1988.
- Rechard, R.P., Trauth, K.M. and Guzowski, R.V., 1990: Quality Assurance Procedures for Parameter Selection and Use of Expert Judgment Panels Supporting Performance Assessments of the Waste Isolation Pilot Plant, Sandia National Laboratories, SAND91-0429.

- Rechard, R.P., Iuzzolino, H. and Sandha, J.S., 1992: Data Used in Preliminary Performance Assessment of the Waste Isolation Pilot Plant (1990). Sandia Report SAND89-2408. December 1990. Sandia WIPP Project, Preliminary Performance Assessment for the Waste Isolation Pilot Plant; Volume 3: Model Parameters. Sandia Report SAND92-0700/3.
- Trauth, K.M., Guzowski, R.V. and Hora S.C., 1994: A Formal expert Procedure for Performance Assessments of the Waste Isolation Pilot Plant. Sandia report SAND93-2450.
- Trauth, K.M., Hora, S.C. and Rechard, R.P., 1993: Expert Judgment as Input to Waste Isolation Pilot Plant Performance Assessment Calculations. Probability Distributions of Significant System Parameters, Sandia Report SAND91-0625.UC-721.
- Trauth, K.M., et al., 1992: The Use of Expert Judgment to Quantify Uncertainty in Solubility and Sorption Parameters for Waste Isolation Pilot Plant Performance Assessment, Sandia National Laboratories, SAND92-0479.UC-721.
- Rechard, R.P., et al, 1993: The Use of formal and Informal Expert Judgments When Interpreting Data for Performance assessment. Sandia Report SAND92-1148.
- Guzowski, R.V., 1990: Preliminary Identification of Scenarios that May Affect the Escape and Transport of Radionuclides from the Waste Isolation Pilot Plant, Southeastern New Mexico Sandia Report SAND89-7149.
- Guzowski, R.V., 1991: Preliminary Identification of Scenarios for Waste Isolation Pilot Plant, Southeastern New Mexico, SAND90-7090.
- Hora, S.C., von Winterfeldt, D., and Trauth, K.M., 1991: Expert Judgment on Inadvertent Human Intrusion into the Waste Isolation Pilot Plant, Sandia Report, SAND90-3063.UC-721.
- Guzowski, R.V., and Gruebel, M.M., (Editors), 1991: Background Information Presented to the Expert Panel on Inadvertent Human Intrusion into the Waste Isolation Pilot Plant. Sandia Report SAND91-0928.
- Trauth, K.M., Hora, S.C., and Guzowski, R.V., 1993: Expert Judgment on Markers to Deter Inadvertent Human Intrusion into the Waste Isolation Pilot Plant. Sandia Report SAND92-1382.
- Sagar, B., and Eslinger, P.W., 1987: Use of Subjective Information in Probabilistic System Analysis. Paper presented at the topical session of the fifth meeting of PSAC. Stockholm.
- Barnard, R.W., et al., 1992: TSPA 1991: An Initial Total-System Performance Assessment for Yucca Mountain. Yucca Mountain Site Characterization Project. Sandia report SAND91-2795.
- De Wispelare, R., et al., 1993: Expert Elicitation of Future Climate in the Yucca Mountain Vicinity. Iterative Performance assessment Phase 2.5. CNWRA 93-016.
- Dalrymple, G.J., 1987: Defining Probability Density Functions. Paper presented at the topical session of the fifth meeting of PSAC.
- Dalrymple, G.J., et al, 1989: Acquisition of Subjective Data for Use in Models for Waste Site Assessments (PACOMA Project). Final Report, Principia Mechanical Ltd., PM1008/TR-STM/40.
- Sumerling, T.J. (Editor), 1992a: Dry Run 3. A Trial Assessment of Underground Disposal of Radioactive Wastes Based on Probabilistic Risk Analysis. Overview. DOE Report N°: Doe/HMIP/RR 92.039.
- Sumerling, T.J., et al., (Editors) 1992b: Dry Run 3. A Trial Assessment of Underground Disposal of Radioactive Wastes Based on Probabilistic Risk Analysis. Volume 1: The Factual Database". DOE Report N°: DOE/HMIP/RR 92.041.
- Dalrymple, G.J. and Willows, M., 1992: Dry Run 3. A Trial Assessment of Underground Disposal of Radioactive Wastes Based on Probabilistic Risk Analysis. Volume 4: Elicitation of Subjective Data. DOE Report N°: Doe/HMIP/RR 92.043.
- Thorne, M.C., 1992: Dry Run 3. A Trial Assessment of Underground Disposal of Radioactive Wastes Based on Probabilistic Risk Analysis. Volume 8: Uncertainty and Bias Audit. DOE Report N°: Doe/HMIP/RR 92.040.
- Helton, J.C., et al., 1998: Uncertainty and Sensitivity Analysis Results Obtained in the 1996 Performance Assessment for the Waste Isolation Pilot Plant. Sandia National Laboratories, SAND98-0365.
- Chapman, N.A., et al., 1995: SITE-94. System Analysis, Scenario Construction and Consequence Analysis Definition for Site-94. SKI Report 95:26.
- Stenhouse, M., et al., 1993: SITE-94. Scenario Development. FEP Audit List Preparation: Methodology and Presentation". SKI Technical Report 93:27.
- SKI SITE-94, 1996: Deep Repository Performance Assessment Project. Volume I. SKI Report 96:36 December 1996.
- Samper, F.J. y Carrera, J., 1990: Geoestadística. Aplicaciones a la hidrogeología subterránea. CIMNE. Barcelona.
- Bolado, R., Ibáñez, J., y Lantarón, A., 1999: El juicio de expertos. Publicación del Consejo de Seguridad Nuclear. Colección Otros Documentos 18.1999.
- Stephens, M.E., Goodwin, B.W., and Andres, T.H., 1993: Deriving Parameter Probability Density Functions". Rel. Eng. Sys. Saf. Vol. 42. Pages 271-291.
- De Marsily, G., 1986: Quantitative hydrogeology. Groundwater hydrology for engineers. Academic Press.
- Tierney, M.S., 1990: Constructing Probability Distributions of Uncertain Variables in Models of the Performance of the Waste Isolation Pilot Plant : The 1990 Performance Simulations". Sandia report SAND90-2510 UC-721.

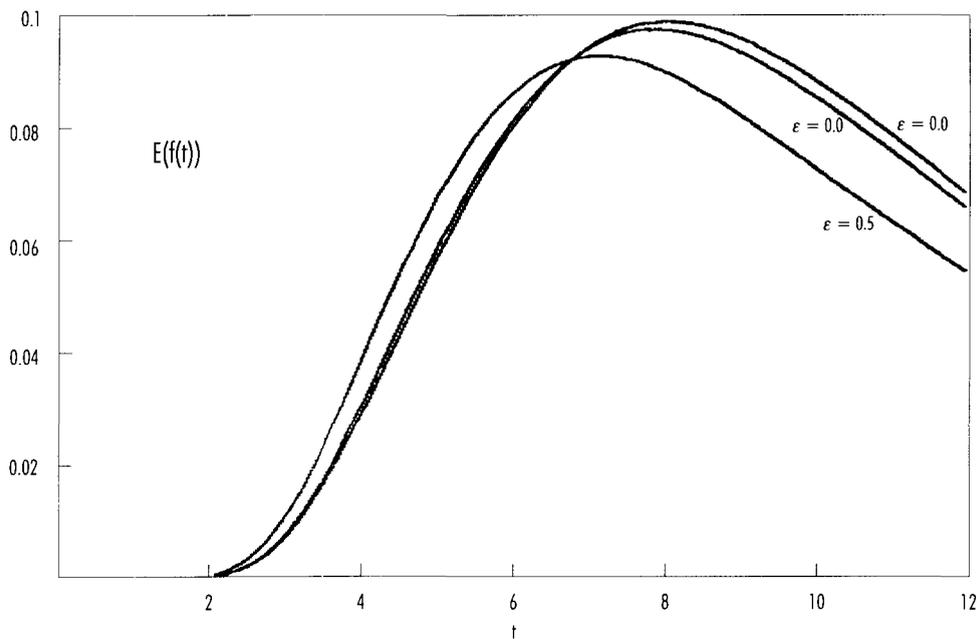


Figura 1. Valor esperado del flujo por unidad de área frente al tiempo para diferentes límites de la distribución de probabilidades de v .

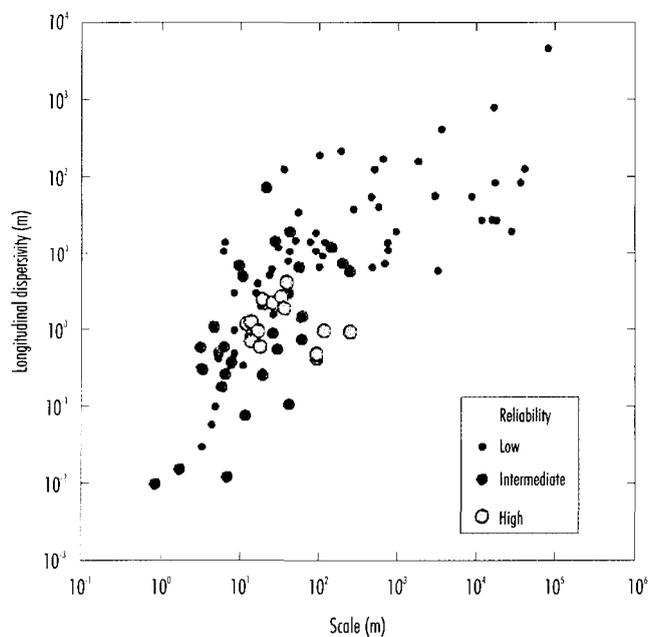


Figura 2. Clasificación de una serie de experimentos de dispersión hidrodinámica atendiendo a su fiabilidad.

LA EVOLUCIÓN CLIMÁTICA A LARGO PLAZO Y EVALUACIÓN DE LA SEGURIDAD

A. Delgado, E. Reyes
CSIC

P. Pinedo, F. Recreo
CIEMAT

T. Torres
UPM-ETSIM

A. Cortés
ENRESA

Introducción

El concepto de almacenamiento geológico profundo para residuos radiactivos de alta actividad basa una parte importante de su seguridad a largo plazo en el comportamiento del medio geológico. De aquí que los estudios de seguridad post-clausura de tales almacenamientos deban contemplar la necesidad de cuantificar los procesos susceptibles de intervenir en la liberación y el transporte de los radionucleidos desde el propio almacenamiento hasta la biosfera, y las modificaciones importantes que esta última pueda sufrir debido tanto a factores naturales como antropogénicos, durante los periodos de tiempo del orden de cientos de miles de años en que se cifra la duración de la liberación de radionucleidos [AGP, 1997].

De entre los factores naturales, la *variación climática a largo plazo* es el factor que de forma más directa interviene sobre el *flujo subterráneo* y el *transporte de radionucleidos en la barrera geológica del almacenamiento*, y el que de forma más importante *modifica los distintos componentes biosféricos* (hidrología, suelo y vegetación), en las escalas de tiempo anteriormente aludidas.

Las variaciones climáticas en el largo plazo (periodos superiores a los 19 ka) son resultado de las variaciones en la cantidad y en la distribución de la radiación solar recibida y retenida en la superficie de la Tierra. La teoría de que las variaciones en la

intensidad estacional de la radiación solar como resultado de factores astronómicos podía dar lugar a glaciaciones periódicas fue inicialmente adelantada, a finales del siglo XIX, por el matemático francés J. Adhémar, retomada por el escocés James Croll (1864) y finalmente refinada y formalizada por el astrónomo serbio M. Milankovitch entre 1920 y 1930 y es conocida por su nombre. En esencia, la teoría de Milankovitch asocia los ciclos glaciales a los cambios en la distribución de la radiación solar que se producen como consecuencia de las variaciones geométricas de la órbita de la Tierra, variaciones que dependen de tres elementos con carácter periódico: la precesión de los equinoccios (19-23 ka), la oblicuidad del eje de la Tierra (41 ka) y la excentricidad de la órbita terrestre (96 ka).

La variación periódica de estos parámetros orbitales, conocidos como "variables de Milankovitch", permite calcular la variación de la insolación recibida por la Tierra en las distintas latitudes. No obstante, los efectos de las variables orbitales son modulados, amplificándolos o mitigándolos, por mecanismos internos al sistema climático, en particular por las concentraciones atmosféricas de CO₂ y otros gases con efecto invernadero, a su vez variables en el tiempo.

La teoría de Milankovitch ha tenido su principal confirmación empírica al estudiar las variaciones isotópicas de la relación $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$, ($\delta^{18}\text{O}$), en los foraminíferos de los sedimentos de los fondos oceáni-

cos y la clara relación existente entre la variación climática anticipada por la teoría y los cambios climáticos ocurridos en los últimos 750.000 años permite utilizar los ciclos de Milankovitch para predecir cuándo se producirán periodos glaciales en el futuro y su magnitud relativa [SKB-91, 1992].

El impacto potencial del cambio climático sobre las variables hidrológicas clave (precipitación, evapotranspiración y escorrentía) no se conoce bien aún y resulta difícil evaluar las modificaciones del ciclo hidrológico como resultado del cambio climático a largo plazo, tanto por la complejidad de las interacciones entre la atmósfera, la hidrosfera, la criosfera y la geosfera como por la todavía baja capacidad predictiva de los Modelos de Circulación General (GCM. Por su parte, la respuesta del flujo hidrogeológico a las variaciones climáticas –fundamentalmente expresadas por las variaciones en la recarga (y, en menor grado, de la evapotranspiración)– es una respuesta diferida, especialmente en lo que se refiere a los flujos subterráneos profundos, los de mayor interés en el análisis del comportamiento y de la seguridad de los almacenamientos de residuos radiactivos. A diferencia de los acuíferos someros de carácter local, los sistemas acuíferos regionales profundos pueden tardar en responder a las variaciones en la recarga cientos o miles de años, normalmente en el rango de los 10^3 – 10^5 años, lo que vincula sus regímenes de flujo a las condiciones paleoclimáticas [Dames & Moore, 1989].

La consideración del cambio climático en las evaluaciones de seguridad de los sistemas de almacenamiento geológico ha ido tomando cuerpo de manera progresiva desde los primeros años de la década de los 80, hasta la incorporación del concepto mismo de cambio climático en el Escenario Central del Proyecto SITE-94 de SKI. Hasta el momento actual se han manejado dos aproximaciones en cuanto a la consideración del cambio climático a largo plazo en las evaluaciones de seguridad de los sistemas de almacenamiento geológico: la aproximación o método de los escenarios, y la aproximación por simulación ambiental. El Proyecto internacional BIOMOVs II (1996) y el Programa BIOMASS (1998) han formulado y desarrollado, respectivamente, el concepto de biosferas de referencia para su utilización como apoyo en las evaluaciones de seguridad, y un nuevo proyecto internacional sobre modelización de los sistemas biosféricos en el largo plazo (BIOCLIM), a desarrollar en el 5º Programa Marco de la UE (1998/2003), propone dos estrategias, jerárquica e integrada, para la simulación de la evolución futura de

la biosfera teniendo en cuenta el cambio climático y los mecanismos de cambio ambiental relevantes en la evaluación del comportamiento de los almacenamientos de residuos radiactivos.

Todas las alternativas señaladas requieren, como paso previo ineludible, *formular la secuencia climática más probable en el área de interés y caracterizar cuantitativamente las condiciones físicas de la biosfera en cada estado climático potencial futuro.*

Para definir la secuencia climática y el orden en que se producirán las transiciones entre estados climáticos en el futuro se utilizan dos áreas de conocimiento complementarias: la *reconstrucción paleoclimática y paleohidrológica* de la zona a partir del registro geológico, haciendo uso de paleoindicadores (espectros polínicos, relaciones isotópicas del oxígeno y del carbono, travertinos, restos antracólitos y arqueológicos, series dendroconológicas, paleosuelos y facies sedimentarias en depósitos cuaternarios), y mediante modelos climáticos orbitales basados en la teoría de Milankovitch y calibrados frente a secuencias estratigráficas marinas del Cuaternario, tales como las series SPECMAP.

Reconstrucción paleoclimática preliminar del último ciclo glacial/interglacial

La reconstrucción paleoclimática preliminar del último ciclo glacial/interglacial en la Península Ibérica [ENRESA, 1997] ha partido de un análisis comparado de los sondeos P2 y P3 de Padul (Granada), de los sondeos KET8003 del mar Tirreno y de las secuencias de temperatura y precipitación en Les Echets y en la Grande Pile (Francia), por una parte, y de la utilización de los resultados de los modelos climáticos orbitales, por otra. Para la caracterización de los escenarios o estados climáticos se ha trabajado en función el concepto de bioclima ya que éstos admiten una doble definición, climática y vegetal, con la que es posible determinar el bioclima a partir de la vegetación (espectro polínico). En función de estos resultados se han definido 5 estados o escenarios climáticos tipo en los que se recogen las variaciones esperadas del clima en la región biogeográfica mediterránea de la Península Ibérica en periodos de tiempo de distinta duración definidos por la variación del índice ACLIN 1 en los últimos 110 ka BP. Conjugando dichos escenarios climáticos tipo con los umbrales del índice ACLIN 1 desde la actualidad a los 125 ka AP se ha estable-

cido la secuencia climática futura más probable para la región biogeográfica Mediterránea de la Península Ibérica, figura 1.

0-2 ka AP	Condiciones templadas. Escenario climático tipo nº 5. Efecto invernadero reforzado por la acción humana.
2-20 ka AP	Enfriamiento muy rápido hasta los 5 ka AP. Oscilación climática de carácter estadal entre los 5 y los 20 ka AP. Escenario climático tipo nº 1.
20-25 ka AP	Condiciones glaciales atemperadas. Escenario climático tipo nº 3b.
25-56 ka AP	Condiciones estadales-interestadales. Escenario climático tipo nº 2.
56-64 ka AP	Condiciones netamente glaciales. Escenario climático tipo nº 3a.
67-72 ka AP	Recuperación climática hasta condiciones interestadales templadas. Escenario climático tipo nº 4.
72-108 ka AP	Enfriamiento rápido hasta los 83 ka AP y mucho más lento hasta los 108 ka AP. Escenario climático tipo nº 1.
108-110 ka AP	Condiciones glaciales. Escenario climático tipo nº 3b.

Identificación de biosferas de referencia ligadas al cambio climático

En función de los Escenarios Climáticos (EC) definidos en el apartado anterior, se observa que los periodos interestadales-estadales abarcan la mayor parte del periodo cubierto entre hoy y los próximos 130.000 años, representados por los escenarios climáticos tipo 1, 2 y 4 [Recreo y Ruiz, 1998]. De ellos, el escenario climático tipo 1 se produce en dos ocasiones entre los 2.000 y los 20.000 años y posteriormente entre los 72.000 y los 108.000 años. Por su representatividad y frecuencia en el periodo analizado es éste escenario climático (tipo 1) el que se considera como un posible estado climático de evolución. Para el sistema biosférico (EC-tipo1) seleccionado, se asumen características constantes a lo largo del periodo de evaluación radiológica y, se describe siguiendo la estructura que se muestra en la Tabla 1, con características correspondientes a sistemas climáticos análogos. Al sistema biosférico así desarrollado se le denomina biosfera de referencia o sistema de referencia.

El escenario climático tipo 1 ilustra la evolución climática que acompaña el descenso relativamente rápido desde una clase climática interglacial a otra de carácter estadal. El índice climático ACLIN1 pasa de 4,3 a 1,5 en unos 10.000 años. El progresivo descenso de la temperatura lleva a termoclimas supramediterráneos (Tm entre 8° y 13°C) con ombroclima claramente seco (350-650 mm), primero, y a condiciones oromediterráneas (Tm entre 4° y 8 °C) más tarde, con un aumento notable de la aridez (ombroclima semiárido). La evapotranspiración potencial disminuye a lo largo del escencio desde los aproximadamente 1050 mm de las condiciones mesomediterráneas a los 650 mm de las condiciones oromediterráneas. El nivel del mar sufre un descenso continuado y bastante rápido desde -20 m al inicio del escenario a los -70 m al final del mismo.

Es este estado climático final del escenario climático tipo 1, al que se refiere la descripción que a continuación se realiza (Tabla 1). Para el cálculo del potencial impacto radiológico, se asumen asentamientos de un grupo/grupos de población con determinados hábitos, coherentes con los recursos naturales existentes.

Según la clasificación climática de Köppen, este estado correspondería a un clima seco, estepario y frío (BSk). En la actualidad las estepas en la península Ibérica, utilizadas como entornos análogos para la descripción del sistema, se extienden por zonas del Valle del Ebro, el sureste semiárido, la Mancha, y otras zonas menores de la Península.

Resultados de los proyectos ligados al 2º y 3º I+D de ENRESA

- En los apartados anteriores se ha puesto de manifiesto que para la evaluación del comportamiento del AGP, tanto en lo que se refiere al campo cercano como a la biosfera, resultaría de interés contar con una *Prospectiva Climática y Ambiental* la cual solo se puede obtener a partir del *Análisis Paleoclimático y Paleoambiental*. A tal fin, ENRESA ha basado esta búsqueda de datos en un amplia serie proyectos que se inscriben en sus Planes de I+D:
- Reconstrucción paleoclimática desde el Pleistoceno medio a partir de análisis geocronológicos e isotópicos de travertinos: 1992-1994.

- ❑ Estudio paleoambiental de la mitad sur de la Península Ibérica. 1996-1999.
- ❑ Paleoclima: 1998-2001.
- ❑ Paleoclimatological Revision of Climate Evolution in Western Mediterranean Region. Evaluation of Altered Scenarios (CE-FI2W-CT91-0075). Enero 1991/diciembre 1994.
- ❑ Evidency from Quaternary Infills Palaeohydrogeology (F14W-CT96-00 Nb 960296). Marzo 1997/marzo 2000.

Si de una manera genérica se tuviera que definir el alcance de los intereses de ENRESA, en lo que se refiere a la posible interacción evolución paleoclimática/paleoambiental y evaluación de la seguridad de repositorios de residuos radiactivos sería *“la obtención de datos de la evolución paleoambiental de la Península Ibérica durante el último millón de años, con especial énfasis en los últimos cien mil años”*.

Esta demanda requería, en principio, un único requisito: *encontrar un registro geológico continuo que cubriera dicho espacio temporal*. Por supuesto, al hablar de un registro continuo de esta importancia, se refiere a continuidad geológica, asumiendo que las condiciones paleoambientales de algunos intervalos de tiempo no quedaron registradas. Ello invalidaba definitivamente el estudio de secuencias de terrazas, detríticas o travertínicas.

Una vez localizado un registro geológico de éstas características, continuidad, también se precisaba que en la secuencia seleccionada se dieran necesariamente las siguientes características:

- ❑ El registro continuo debe contener algún tipo de material capaz de haber registrado fielmente los cambios paleoambientales.
- ❑ No deber haber sufrido fenómenos diagenéticos que alteraran el mensaje paleoambiental registrado.
- ❑ El registro debe ser datable.

De acuerdo con los datos conocidos hasta ahora, estas condiciones se localizaban en la Cuenca de Guadix-Baza (Sector Cúllar Baza) y en la turbera de Padul, ambas en Granada.

La Cuenca de Guadix-Baza (Sector Cúllar Baza)

Se trata de una cuenca aluvial palustre en la que se ha localizado una sección de algo más de 300m de potencia, tras estudiar casi 4000 m de serie, que cubre un intervalo de tiempo comprendido entre

1,68 millones de años BP y 300.000 años BP. Desgraciadamente la erosión o no depósito ha hecho que falta el registro mas reciente.

- ❑ El registro es sumamente rico en ostrácodos, cuyo caparazón calcítico registra con total exactitud el sello isotópico del agua de lluvia ($\delta^{18}\text{O}$) que permite conocer la variación de la paleotemperatura; también tiene otros elementos ($\delta^{13}\text{C}$, Sr, Mg, Ca) que proporcionan información paleoambiental (productividad, paleohidrología, paleohidrogeología). También aparecen grandes cristales de yeso sinsedimentario que permiten conocer la paleosalinidad de las aguas del lago.
- ❑ Se ha trabajado en una zona marginal del lago en la que no se detecta diagénesis, en zonas centrales la diagénesis, yesificación, ha destruido los caparazones calcíticos.
- ❑ La abundancia de restos de organismos ha permitido el uso intensivo del método de datación por análisis de racemización de aminoácidos, puesto a punto para este grupo de proyectos. Los materiales detríticos finos (arenas muy finas y lutitas) tienen suficiente remanencia magnética para el análisis de paleomagnetismo, que ha permitido la determinación de varios cronos paleomagnéticos.

La turbera de Padul

La turbera de Padul es un registro único en Europa: un espesor de más de 100 m de turba contiene el registro comprendido entre 4000 BP y 1 millón de años BP, esta última cifra es una estimación basada en la velocidad de acumulación de turba conocida en la zona.

- ❑ El registro continuo de turba está repleto de pólenes que proporcionan una información paleoclimática regional (entorno que incluye Sierra Nevada, la costa y la depresión de Granada). La materia orgánica (turba) proveniente de plantas que vivían en el pantano de Padul, proporcionará una importante información paleoclimática (δ) del entorno de la turbera, mientras que los biomarcadores presentes en la turba (alcanos, cetonas, aldeidos, S orgánico, vitamina E etc.) van a proporcionar datos paleohidrogeológicos del área. El posible desfase del registro polínico y los isotópicos y biomarcadores permitirá estimar el retardo en la respuesta local frente al cambio climático global. El método de análisis de biomarcadores

se puso a punto para la realización de éstos proyectos.

- ❑ Como el desmuestre de las turbera se ha realizado a partir de una zanja (8.5m) y de un sondeo (103 m) se ha comprobado la ausencia de diagénesis (oxidación), explicable por la alimentación subterránea de la turbera que se refleja en sondeos surgentes.
- ❑ Hay abundante material para dataciones: gasterópodos y ostrácodos para datación por racemización de aminoácidos, turba (^{14}C , U/Th y en un futuro U/Pb). No obstante la parte del sondeo de edad superior a 300.000 años no ha podido ser datada.

Resultados

Cuenca de Cúllar-Baza

- ❑ A partir de las dataciones realizadas, el análisis paleobiológico de las muestras (% de *Cyprideis torosa* Jones), el análisis isotópico de elementos traza e isótopos estables de O y C, en el intervalo comprendido entre 1.68 Ma y 300 ka BP, se detectan cuatro Grandes Períodos Cálidos y Áridos y cuatro Grandes Períodos Fríos y Húmedos, con una duración aproximada de 350 ka cada uno, Figura 2.
- ❑ Se ha determinado una elevada correlación significativa entre la paleosalinidad de las inclusiones fluidas del yeso intrasedimentario y la $\delta^{18}\text{O}$ del carbonato cálcico del caparazón de ostrácodos asociados, de forma que se ha podido calcular la paleosalinidad lacustre existente a lo largo de toda la serie y, por lo tanto, la de las aguas que por infiltración podrían alcanzar un presunto repositorio. Figura 3 y 4.
- ❑ Se ha definido un escenario denominado "mosaico lacustre" que, presumiblemente, podría presentar correlatos en la evolución futura de cuencas alpinas como son las del Ebro, Duero y Tajo.
- ❑ Se ha encontrado un reflejo, en partes de la serie, de los ciclos de Milankovitch.

Turbera de Padul

- ❑ Se ha obtenido la curva isotópica de la $\delta^{13}\text{C}$ de la materia orgánica (Padul) que refleja los eventos paleoclimáticos a nivel de la turbera de Padul. Figura 5.

- ❑ A falta de datos palinológicos propios, se están realizando los análisis, se han recuperado y tratado estadísticamente datos ya publicados que para los primeros 100 ka del registro revelan que existe un decalaje entre el registro isotópico (local) y el polínico (lluvia de polen, regional). Ello va a permitir cuantificar retrasos de respuesta de sistemas locales frente a cambios globales. Figura 6.
- ❑ El tratamiento estadístico de los datos polínicos también permite establecer, que no se dan cambios polínicos (paleoclimáticos) bruscos: generalmente hay estados transicionales. Al menos en los 100 ka analizados. Figura 7.
- ❑ El análisis de la evolución de los biomarcadores ha permitido establecer una secuenciación de momentos de alto flujo y bajo flujo hidrogeológico en la turbera de Padul, que teniendo en cuenta se trata de aportes a través de dolomías (del Complejo Nevado-Filábride) karstificadas que alcanzan las zonas más elevadas de Sierra Nevada, donde la cota de suelos permanentemente helados ha variado de acuerdo con los cambios climáticos globales, proporcionando un aporte hidrogeológico mayor (períodos cálidos) o menor (períodos fríos) en los que los conductos cercanos a la superficie (lapiaces) estaban ocluidos por el hielo. Figura 8.

Referencias

- AEA (1995). Anuario de Estadística Agraria 1993. Ministerio de Agricultura, Pesca y Alimentación.
- Cardona F. Suárez et al., MOPT, ISBN: 84-7433-777-1. Centro de publicaciones, 1992
- CIEMAT/DIAE/PIRA/15/99, Descripción de la biosfera. Proyecto ENRESA2000. Versión 1.1. Madrid, Noviembre 1999.
- GOURMET (1999), Base de datos Gourmet. Guía del Usuario. Versión 1.0. Mayo 1996/Actualización 1999.
- Recreo F y Ruiz C (1997). Consideración del cambio medioambiental en la evaluación de la seguridad. Escenarios climáticos a largo plazo en la Península Ibérica. Publicación técnica (ENRESA) nº 01/97.
- Recreo F y Ruiz C (1998). Escenarios climáticos a largo plazo (125 Ka AP) en la península Ibérica. Síntesis. CIEMAT/DIAE/550/55800/05/98. Madrid.
- Strahler A (1984). Geografía física. ISBN 84-282-0351-2. Barcelona, Ediciones Omega.

Tabla 1
Descripción del sistema biosférico correspondiente a las Estepas Ibéricas [Cardona et al. 1992]

Datos meteorológicos y climáticos	Clima mediterráneo más o menos ocentuado, con un período seco en verano, con un déficit de agua importante para el desarrollo vegetal, enmarcado por dos períodos lluviosos, en otoño-invierno y primavera. Pluviosidad anual de 350-400 mm y una temperatura media invernal entre 5-8°C, aunque las condiciones climáticas de las distintas áreas pueden cambiar debido a las características locales. La presencia de vientos más o menos constantes puede considerarse característico de la estepas ibéricas.
Hidrología e hidrogeología	En los tipos de clima seco ("B") la escorrentía es relativamente grande e importante en cuanto a las consecuencias respecto a los climas húmedos. Las lluvias fuertes y de corta duración depositan agua en el suelo de manera más rápida de lo que puede absorberse. El resultado es que el agua requerida no es absorbida por el suelo, además de darse una erosión activa del mismo. Los ríos son escasos y las vías de drenaje poco desarrolladas. Como la evapotranspiración excede a la precipitación no se originan arroyos permanentes dentro de estas zonas aunque se dan arroyos intermitentes.
Edafología	En este régimen climático el proceso pedogénico dominante es la calcificación, con salinización en los lugares de escaso drenaje [Strahler, 1984]. Los suelos tipo chernozem contienen morfológicamente una capa superficial de unos 5 cm de espesor poco firme compuesta por restos de vegetación. Por debajo de ésta, se encuentra el horizonte Ah, que puede tener hasta 2m de profundidad, con una morcada estructura granular. Con la profundidad, el contenido en materia orgánica disminuye y se incrementa la cantidad de carbonato depositada formando un horizonte cálcico.
Ecología	<i>Vegetación:</i> En la estepa pueden encontrarse arbustos aislados y árboles de pequeño tamaño. Existen numerosas especies de gramíneas, y otras plantas típicas como el girasol y el tabaco. Las formas vegetales son los arbustos (<i>Quercus coccifera</i> , <i>Rhamnus lycioides</i> y <i>saxatilis</i> , <i>Prunus spinosa</i>), intercalados entre una vegetación constituido mayoritariamente por matorrales (<i>Thymus</i> , <i>Genista</i> , <i>Astragalus</i> , <i>Teucrium saturneja</i> , <i>Phlomis</i> , <i>Helianthemum</i> , <i>Salsola</i>) y plantas herbáceas cespitosas (<i>Stipa</i> , <i>Bromus</i> , <i>Festuca</i> , <i>Aranula</i>). Pueden aparecer rodales de árboles en estado precario (<i>Pinus</i> , <i>Juniperus</i>). El frío invernal y lo sequío estival reducen el período vegetativo en la estepa a tres o cuatro meses al año, generalmente entre abril y julio. <i>Fauna: Vertebrados</i> <i>Aves:</i> se pueden agrupar en varios conjuntos: (1) las no paseriformes, (2) los Aloúidos, (3) es el más heterogéneo, aunque con fuerte predominio de las aves insectívoras. A estos tres grandes grupos habría que añadir otro serie de especies que ocupan temporalmente estos medios. <i>Mamíferos:</i> en general escasos y con especies que difieren ligeramente dependiendo de la región: Liebre (<i>Lepus capensis</i>), Conejo (<i>Oryctolagus cuniculus</i>), el Ratón de campo (<i>Apodemus sylvaticus</i>), el Ratón marino (<i>Mus spretus</i>), el Lirón careto (<i>Elyomis quercinus</i>), el Topillo (<i>Pytymis duodecimcostatus</i>), Topillo campesino (<i>Microtus arvalis</i>), la Musaraña común (<i>Crocidura russula</i>), la Camadreja (<i>Mustela nivalis</i>), el Tejón (<i>Meles meles</i>) y el Zorro (<i>Vulpes vulpes</i>).
Datos antropológicos y sociológicos	La importancia que ha adquirido la influencia humana sobre los ecosistemas en los últimos milenios hace muy difícil discernir qué estepas responden prioritariamente al efecto ambiental o son mayoría o parcialmente ontrópicas. Los territorios esteparios mediterráneos presentan señales de haber sido ocupados por el hombre desde la antigüedad, ya que son áreas adecuadas para la ganadería y el cultivo de cereales. Por ello las comunidades esteparias han experimentado una notable extensión como consecuencia de la degradación edáfica que sobreviene tras los períodos de agricultura intensiva. La erosión de los suelos ha hecho aflorar en superficie margas y yesos que estaban recubiertos por suelos forestales. Cultivos de cereales de invierno (trigo, cebada y avena) con períodos de barbecho y rebaños de ganadería lanar o caprina constituyen el sistema de explotación tradicional de los territorios esteparios ibéricos. El estudio de población y actividades socioeconómicas de la zona, se basa en datos recogidos de estadísticas para aquella/s región/es en las que existen zonas esteparias [AEA, 1995] y [Gourmet, 1999]. Los datos sobre densidad media de población, actividades productivas mayoritarias, aprovechamiento del área de secano y de regadío, porcentaje de superficie de cultivo y rendimiento de los cultivos para las diferentes variedades, censo ganadero para producción (por unidades/km ²) se incluye en [CIEMAT/DIAE/PIRA/15/99]. La tabla 2 recoge los consumos medios por persona y año.

Tabla 2
Consumo de alimentos por persona y año en las estepas Ibéricas.

Alimento	kg año ⁻¹
Cereales	105
Patatas	66
Legumbres	11,5
Vegetal de hoja	16
Vegetal de fruto	71
Cítricos	30,5
Frutales no cítricos	48,5
Carne vacuno	6
Carne ovino (cordero)	1,5
Carne porcino	11
Carne ave	22
Pescado (agua dulce)	0,5
Huevos	270 unidades/año
Leche	120 l/año (6% de cebra)

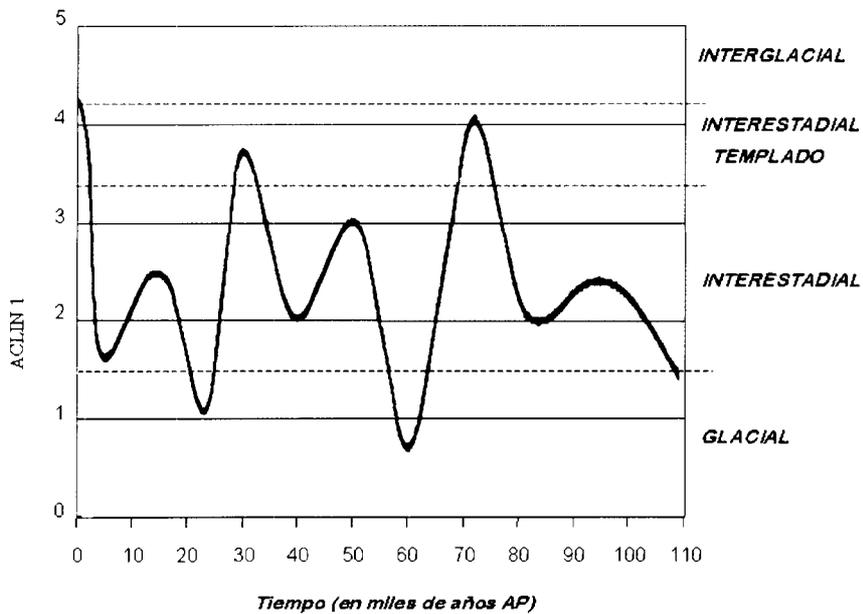


Figura 1. Variación del índice ACLIN1 para la secuencia climática de los próximos 110.000 años.

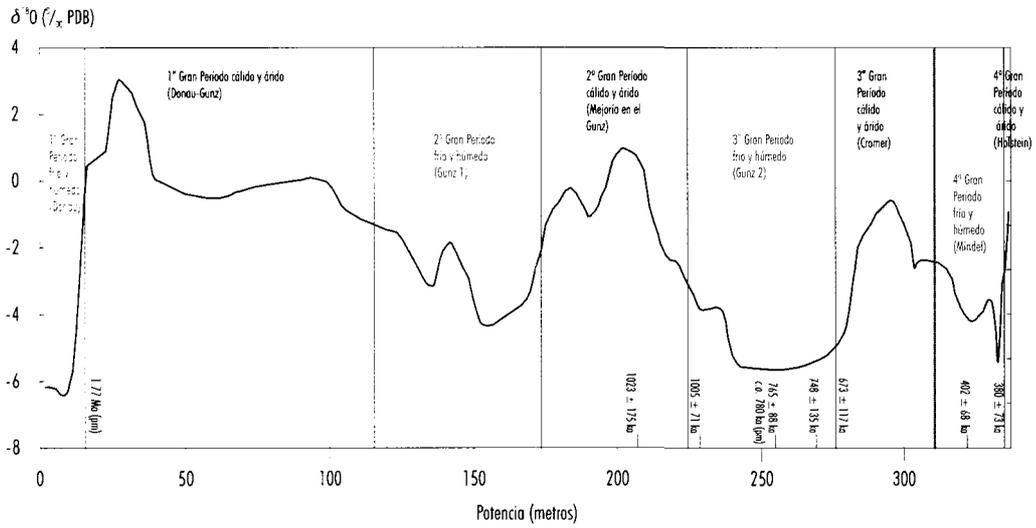


Figura 2. Curva suavizada de la $\delta^{18}O$ en la cuenca de Cúllar-Baza, con los grandes períodos fríos y húmedos y áridos y cálidos, correlacionados con los períodos glaciares e interglaciares de Europa central.

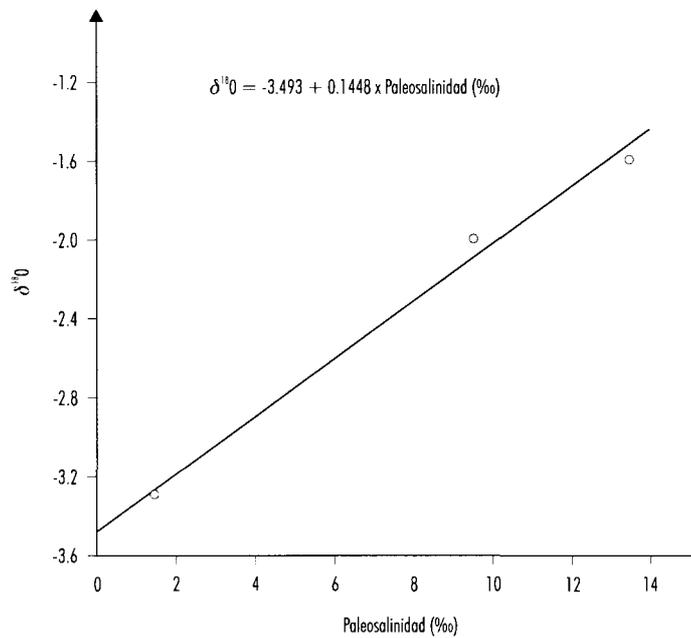


Figura 3. Correlación entre la $\delta^{18}O$ de ostrácodos y la paleosalinidad medidas en los cristales de yeso intrasedimentario.

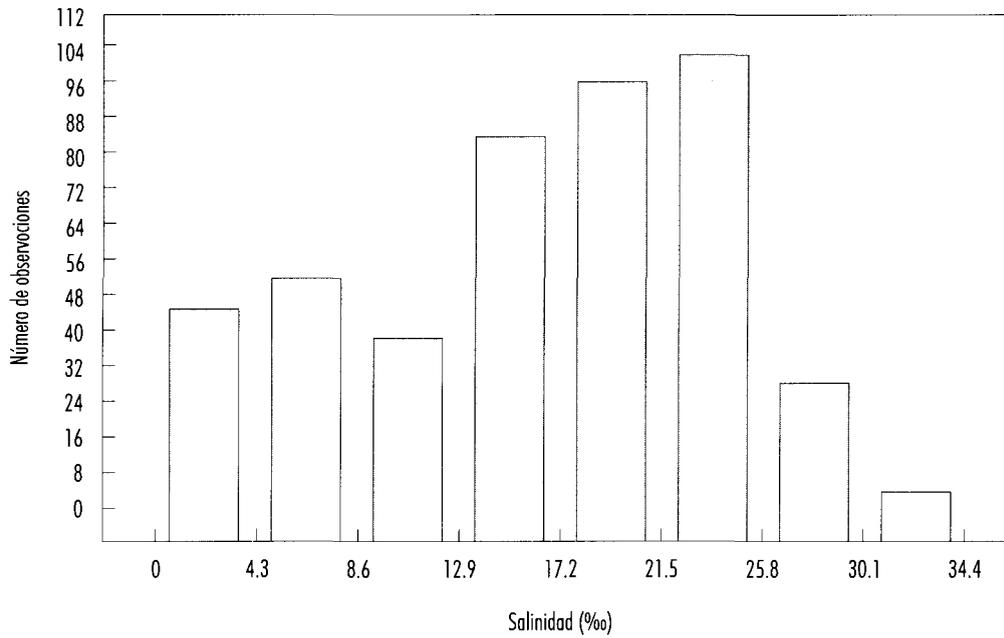


Figura 4. Histograma de paleosalinidad de las muestras estudiadas.

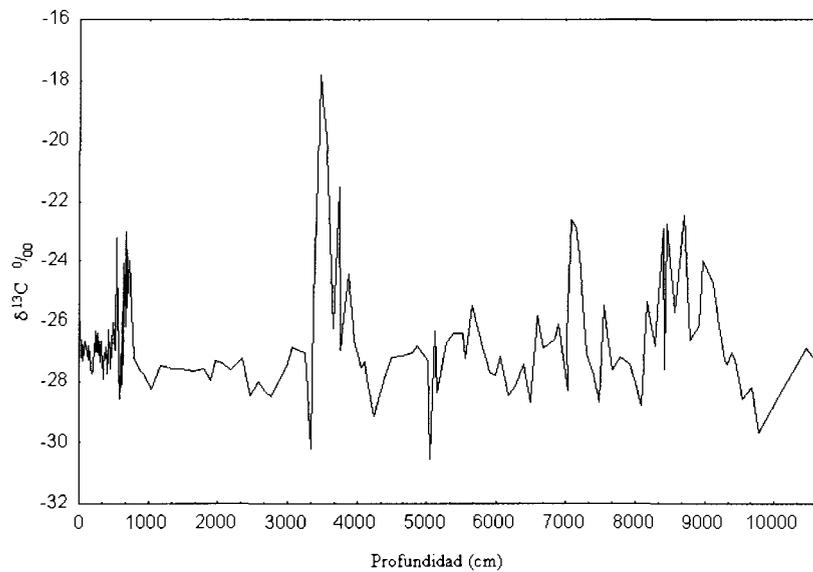


Figura 5. Evolución de la $\delta^{13}C$ (‰ PDB) a lo largo del sondeo de Padul.

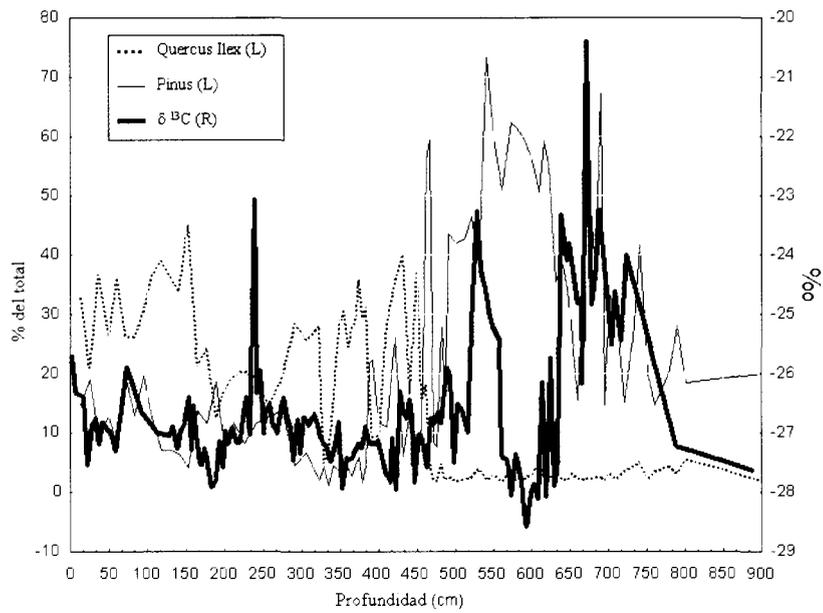


Figura 6. Respuesta local $\delta^{13}\text{C}$ al cambio climático frente a dos especies arbóreas (Pinus, clima frío, y Quercus Ilex clima cálido) con respuesta regional, más tardía.

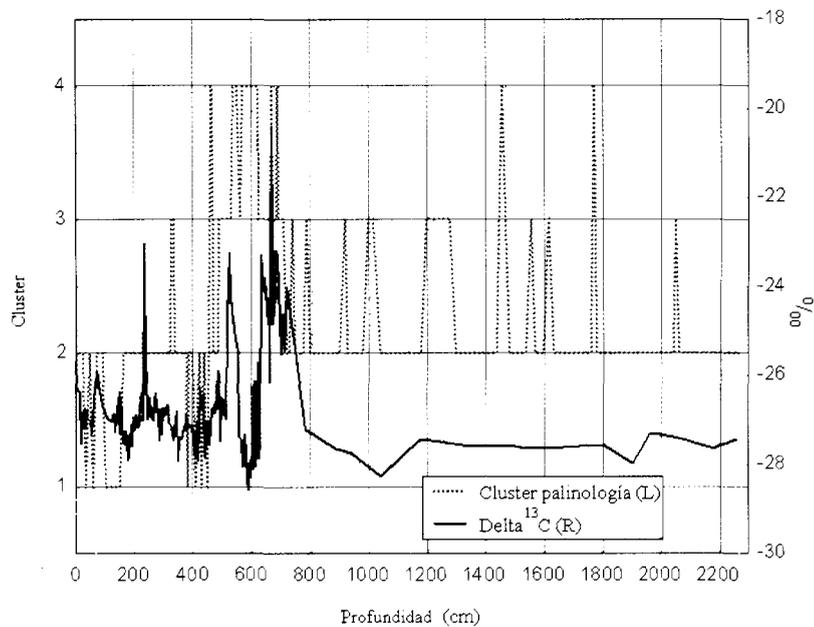


Figura 7. Cluster de los datos palinológicos tomados de Pons & Reille. Clusters de 1 a 4 (cálido a muy frío).

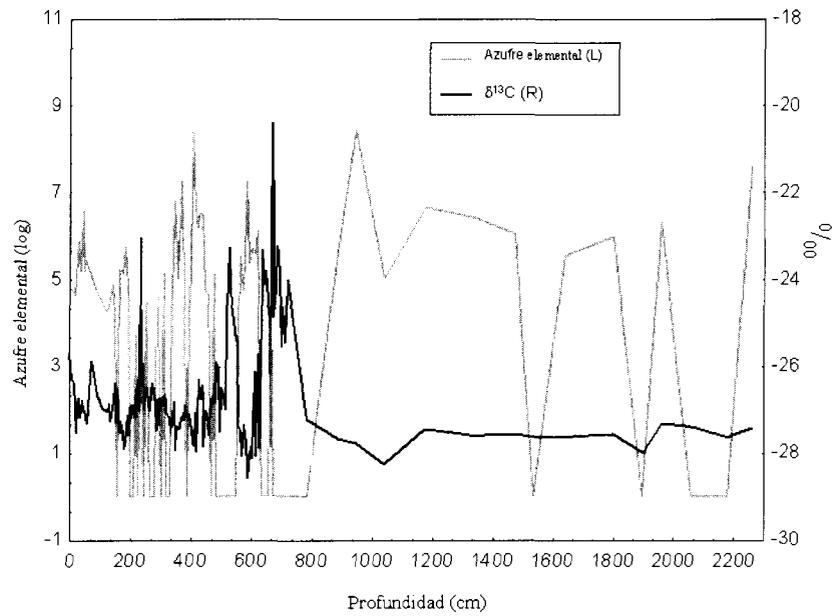


Figura 8. Variación de la cantidad de azufre elemental, obtenido por GC-MS, que, apoyado por el $\delta^{13}\text{C}$, muestra las fluctuaciones y condiciones de la lámina de agua en la turbera en la deposición.

EL COMPORTAMIENTO DE LOS PRODUCTOS DE LA FISIÓN NATURAL EN EL MEDIO GEOLÓGICO: IMPLICACIONES PARA LA EVALUACIÓN DEL COMPORTAMIENTO DE UN AGP Y LA OPINIÓN PÚBLICA (PROYECTO OKLO FASE II)

L. Pérez del Villar, A. Quejido, J. S. Cózar, J. Peña, A. Garralón, P. Gómez, M. T. Crespo,
M. Fernández, J. Pardillo, M. J. Gimeno, M. J. Turrero, M. Pelayo, R. Campos, B. Buil
CIEMAT

J. Bruno, L. Duro, D. Arcos, S. Jordana, M. Grivé, J. Pon
ENVIROS-QUANTISCI

J. Salas, C. Ayora
CSIC

I. Pérez, I. Casas
UPC-DIQ

M. Montoto
Universidad de Oviedo

P. Hernán
ENRESA

Resumen

El estudio de los reactores naturales de fisión de Oklo (Gabón) como análogos naturales fue relanzado por investigadores franceses poco tiempo después de que los sistemas naturales empezaran a utilizarse para validar los modelos geoquímicos aplicables a la evaluación del comportamiento de un almacenamiento geológico profundo de residuos nucleares. Esta nueva visión de Oklo se materializó con dos proyectos europeos, denominados: "Oklo, natural analogue for a radioactive waste repository (Oklo Phase I)" y "Oklo-natural analogue: behaviour of nuclear reaction products in a natural environment (Oklo Phase II)", llevados a cabo entre 1991 y 1995, y 1996-1999, respectivamente.

El objetivo primordial de "Oklo Phase I" fue demostrar que los reactores de Oklo presentaban muchos

aspectos y procesos análogos a los esperados en un almacenamiento de residuos nucleares; mientras que el objetivo fundamental de la segunda fue aportar datos cuantitativos sobre los procesos de migración/retención que afectaron en el pasado reciente a los productos de fisión, desde el término fuente hasta el campo lejano, así como el de desarrollar modelos conceptuales y numéricos que explicaran los datos de observación, teniendo en cuenta las escalas de espacio y tiempo.

La reconstrucción de la historia geológica de los reactores de Okélobondo y Bangombé, el estudio de la movilidad geoquímica de los productos de fisión, tanto en el medio natural como en el laboratorio, las investigaciones hidrogeológicas e hidrogeoquímicas enfocadas al transporte de los radionucleidos, así como la modelización de los procesos de migración/retención de dichos nucleidos,

han permitido obtener una serie de conclusiones sobre:

- i) la estabilidad del combustible gastado;
- ii) el comportamiento de los radionucleidos en la interfase campo próximo/campo lejano;
- iii) los mecanismos de migración/retención de los radionucleidos y
- iv) la validación de técnicas de caracterización y modelización de gran utilidad para la evaluación de un almacenamiento de residuos nucleares, así como para la formación de opinión pública acerca de la seguridad que ofrecen dichos almacenamientos profundos en determinados medios geológicos.

En este trabajo se resumen los resultados y conclusiones más relevantes de la Fase II del Proyecto Oklo, haciendo especial énfasis en la aportación española en dicha investigación.

Abstract

The re-launching of the studies on the Oklo fission natural reactors as natural analogues of a nuclear waste repository was started by French researchers a few years later than the analogical studies on natural systems were used to validate the geochemical models applied in the performance assessment of a nuclear waste repository. This new approach to the Oklo phenomenon was materialised by means of two EU-research projects named: "Oklo, natural analogue for a radioactive waste repository (Oklo Phase I)" and "Oklo-natural analogue: behaviour of nuclear reaction products in a natural environment (Oklo Phase II)", carried out from 1991 to 1995, and from 1996 to 1999, respectively.

Even though the main objective of the first phase was to demonstrate that many aspects and processes in the Oklo reactors were analogous to those expected in a nuclear waste disposal after burial, the main objectives of the second phase were to assess quantitatively the migration/retention processes involving fission products during the recent past, from the spent fuel to the far field, and to develop conceptual and numerical models, taking into account the space and time scales and in order to understand the observation data.

The reconstruction of the geological history of the Okélobondo and Bangombé reactors, the study of the geochemical mobility of the fission products in the natural environment and under laboratory con-

ditions; and the hidrogeological and hydrogeochemical investigations and models, mainly focussed on the transport of radionuclides, has allowed to draw conclusions on:

- i) the spent fuel stability;
- ii) the radionuclide behaviour at the near/far field interface;
- iii) the migration/retention mechanisms of radionuclides; and
- iv) the validation of the characterisation and modelling techniques, which are useful for the performance assessment of a nuclear waste disposal. Finally, these conclusions can also be very useful in order to form a good and responsible public opinion on the safety of the deep geological repositories for nuclear wastes.

The more relevant results and conclusions obtained in the Oklo-Phase II project are summarised in this work, emphasizing those supplied by the Spanish research groups.

Introducción

El interés de la comunidad científica internacional por el denominado "fenómeno Oklo" se despertó a partir del año 1972, cuando investigadores franceses de la Planta de Difusión de Pierrelatte (CEA) encontraron una anomalía isotópica en unos concentrados de uranio que tenían que ser enriquecidos en Rusia. Su contenido de ^{235}U no era el normal, 0.7202%, sino que estaba empobrecido hasta un valor de 0.7171 %. Las investigaciones posteriores demostraron que dichos concentrados procedían de un yacimiento africano (Gabón), denominado Oklo (Bodu et al., 1972). Al poco tiempo quedaría demostrado que, en efecto, la fisión espontánea había ocurrido en dicho yacimiento (Neuilly et al., 1972). A partir de entonces y hasta finales de la década de los 80, tesis, libros y varios cientos de artículos fueron publicados en distintos centros de investigación y en las más prestigiosas revistas científicas internacionales (OIEA, 1975 y 1977; Gauthier-Lafaye, 1986; Naudet, 1991; Gauthier-Lafaye et al., 1997; Gauthier-Lafaye et al., 2000).

El estudio de los reactores naturales de fisión de Oklo como análogos naturales fue relanzado por los investigadores franceses: J.C Petit (CEA) y P. Escalier des Orres (IPSN) en 1988, pocos años después de que los análogos naturales empezaran a

utilizarse para validar los modelos geoquímicos aplicables a la evaluación del comportamiento de un almacenamiento geológico profundo (AGP) de residuos radiactivos de alta actividad (RRAA). Este nuevo enfoque se materializó en el proyecto europeo: "Oklo como análogo natural de un almacenamiento de residuos radiactivos (Fase I)", desarrollado entre 1991 y 1995, liderado por el CEA-IPSN (Francia) y que sirvió para caracterizar el sitio y obtener información sustancial sobre los procesos geoquímicos análogos en los campos próximo y lejano del término fuente (Blanc, 1996; Holliger y Gauthier-Lafaye, 1996; Gurban et al., 1996; Blanc et al., 1997).

Los conocimientos adquiridos durante estos quince años dedicados a la investigación del fenómeno Oklo, resumidos por Michaud y Mathieu (1998), así como la necesidad de obtener información cuantitativa sobre los procesos de migración/retención acaecidos en Oklo, con el fin de alimentar a los modelos para la evaluación del comportamiento (PA) al uso, justificaron la realización del proyecto "Oklo-Fase II: "comportamiento de los productos de reacción nuclear en un medio natural", cuyos objetivos más importantes fueron:

- ❑ Definir las propiedades de confinamiento y el comportamiento, a largo plazo, de los materiales análogos del sitio: uraninita fisiónada o combustible gastado (término fuente); arcillas de los reactores o barrera arcillosa (campo próximo) y roca encajante (campo lejano).
- ❑ Valorar cuantitativamente los procesos de migración/retención de los radionucleidos desde las zonas de reacción (término fuente y campo próximo) hasta el medio geológico (campo lejano).
- ❑ Construir modelos conceptuales de los procesos de migración/retención y verificarlos con los datos obtenidos del sistema natural, teniendo en cuenta las escalas de tiempo y espacio.
- ❑ Proporcionar datos apropiados, especialmente termodinámicos, y escenarios útiles para el PA de un AGP.

Este proyecto, encuadrado en el programa 1994-98 de la UE sobre la Seguridad de la Fisión Nuclear, concretamente en el ÁREA C (Gestión y Almacenamiento de Residuos Radiactivos), ha sido financiado por la Comisión Europea, el Comisariado de Energía Atómica (CEA, Francia), que lideró el proyecto, y tres agencias nacionales de Gestión de Residuos Radiactivos: SKB (Suecia), ENRESA (Espa-

ña) y ANDRA (Francia). Otros centros que han participado en el proyecto son: el Centro Nacional de Investigaciones Científicas (CNRS, Estrasburgo, Francia), asociado del CEA, la Universidad Politécnica de Cataluña (UPC), Consejo Superior de Investigaciones Científicas (C.S.I.C., Instituto Jaime Almela) y la Universidad de Oviedo, asociados con ENRESA. A su vez, cada institución financiera del proyecto subcontrató a otras instituciones de investigación para la realización de las distintas tareas programadas en el proyecto. Por ejemplo, ENRESA subcontrató al Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas (CIEMAT) y Enviro-QuantiSci. Otras instituciones científicas de países no comunitarios, participantes o interesadas en el proyecto, fueron: La Compañía de Minas de Uranio de Franceville, COMUF (Gabón); NAGRA (Suiza); US DOE/LBL, las Universidades de Berkeley y Arizona (USA); y JAERI y la Universidad Metropolitana de Tokio (Japón). Más de un centenar de investigadores de distintas disciplinas concurren en el proyecto, coordinados por un comité directivo, asistido por otro técnico.

El yacimiento de Oklo y los reactores estudiados

El yacimiento de Oklo, donde se localizan 13 de los reactores conocidos, está a unos 2 Km al S de Mounana, población situada a unos 130 Km al NO de Franceville (Gabón). El yacimiento y reactor de Okélobondo (OK-84) está situado en la parte más suroriental de Oklo, mientras que el de Bangombé se encuentra a unos 20Km al SSE del yacimiento de Oklo (Fig. 1). La mineralización de uranio y los 15 reactores hasta el momento conocidos encajan a techo de la denominada Formación FA, constituida por areniscas y conglomerados fluviales, en las proximidades del contacto con la formación FB, esencialmente pelítica y de origen deltáico. La edad de la transición sedimentaria entre ambas formaciones es de 2143 ± 143 Ma (Francevillense).

El nivel mineralizado, en el que se localizan los reactores, tiene aproximadamente 6 m de potencia. Se denomina nivel C-1 y descansa sobre un nivel discontinuo de conglomerados, con una potencia máxima de 50 cm (Fig. 2). Todos los reactores tienen morfología lenticular, están asociados a zonas fuertemente tectonizadas y su tamaño e importancia nuclear es muy variable. El más importante fue el reactor 2, en el que reaccionaron unos 2000 Kg de ^{235}U , que produjeron una energía de 5.500Mw/a.

En los reactores 7, 8 y 9 fisieron unos 480Kg de ^{235}U , generando una energía de unos 1300Mw/a. Todos ellos se caracterizan por presentar altas concentraciones de uranio (20%-60% UO_2), en forma de uraninita (UO_{2-x}), con relación $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ inferior a la natural (0,00725) e íntimamente mezclado con mayor o menor cantidad de materia orgánica (Gauthier-Lafaye, 1996). En general, todos los reactores están rodeados por arcillosas formadas durante la fisión y cuyo desarrollo está relacionado con la intensidad de la reacción en cada reactor (arcillas de pila o de los reactores).

La mineralización primaria de U, definida como diagenética y formada hace 2050 ± 50 Ma, entró en reacción en las zonas en las que se alcanzó la masa crítica (las más ricas del yacimiento), en presencia de suficientes moderadores de neutrones, principalmente el hidrógeno del agua, y la ausencia de elementos absorbentes de neutrones, como el Li, B, Cd, y REE. La reacción en cadena comenzó hace 1970 ± 50 Ma, y su duración, variable de un reactor a otro, estuvo comprendida entre 22000 años en el reactor 13, y aproximadamente 10^6 años en el reactor 2. Dado que todos los reactores no fueron simultáneos, la duración de las reacciones nucleares en la zona fue entre 10^6 y $2 \cdot 10^6$ Ma (Naudet, 1991). De acuerdo con este autor, las reacciones de fisión en Oklo involucraron aproximadamente 700.000 Kg de U, produciendo unos 16.500 Mw/a, que consumieron aproximadamente 607 Kg de ^{235}U . Aproximadamente los dos tercios de este combustible fue ^{235}U primario, mientras que el tercio restante resultó de la conversión del ^{238}U . Las relaciones isotópicas de los productos de fisión indican que, por lo menos, se generó una tonelada de ^{239}Pu , que decayó posteriormente a ^{235}U (Salah, 2000).

Aunque la temperatura alcanzada durante el funcionamiento de los reactores fue diferente en función del reactor, se puede decir que en el núcleo de los mismos se alcanzaron, en general, los 400-500°C, pudiendo llegar hasta los 1000°C en el reactor 2. El régimen de presiones no varió excesivamente del que prevaleció durante la fase diagenética, que se produjo entre 400 y 1000 b, bajo un régimen mixto hidrostático/litostático. El gradiente térmico alrededor de los reactores fue alto y variable entre 10°C/m y 100°C/m, de manera que a unos 20m del núcleo de los reactores no se observan perturbaciones térmicas (Royer et al., 1994; 1995).

Los efectos más importantes de los reactores sobre el propio combustible y los materiales geológicos más próximos fueron:

- i) la recristalización de la pechblenda original (UO_{2+x} coloforme) en uraninita,
- ii) la masiva disolución de sílice en el núcleo del reactor y encajante próximo (Fig. 3),
- iii) la formación de las denominadas arcillas del reactor, y
- iv) la movilización intensa de productos de fisión a partir del núcleo del reactor. Este episodio de migración de radionucleidos fue el más importante de los registrados en Oklo.

A partir de la fisión nuclear, en la zona se han registrado al menos 6 episodios geológicos diferentes que produjeron, con mayor o menor intensidad, procesos de migración de radionucleidos y productos de fisión. Entre ellos, los más importantes fueron:

- i) los relacionados con las intrusiones de diques doleríticos en la zona, hace entre 1000 y 750 Ma y debidas a la distensión del continente Panafricano; y
- ii) los relacionados con las diferentes fases, sub-actuales y actuales, de alteración supergénica, bajo un clima ecuatorial (Gauthier-Lafaye et al., 2000).

Respecto a la naturaleza y características petrofísicas de la roca encajante de los reactores, una arenisca cuarítica muy silicificada, se puede decir que, de acuerdo con su baja porosidad y baja absorción de agua, su comportamiento hidráulico es más próximo al de un granito que al de una arenisca (Montoto, 2000).

En resumen, los reactores nucleares naturales de Oklo ofrecen numerosos aspectos análogos, que no iguales, a los que concurren en los modelos conceptuales generalmente admitidos de un AGP en un medio granítico. Entre ellos:

- i) la existencia de combustible nuclear gastado,
- ii) la estabilidad del mismo durante 2000 Ma,
- iii) la envoltura arcillosa formada durante el funcionamiento de los reactores,
- iv) el comportamiento hidráulico de la roca encajante, próximo a la de un granito, y
- v) la evidencia de procesos de migración/retención de los productos de fisión, bajo condiciones físico-químicas extremadamente diferentes.

Por otra parte, la disposición geológica actual de los distintos reactores de Oklo y Bangombé, en función de su proximidad a la superficie y, por lo tanto, de su grado de alteración supergénica (ver Fig.

2), permite clasificarlos en tres grupos: el primero, constituido únicamente por el reactor de Bangombé, sería el más afectado por los procesos meteóricos, dada su localización, a unos 12 m de profundidad, entre la cobertera edáfica y la roca madre; el segundo grupo, formado por los reactores 1 a 9 de la cantera de Oklo, estaría por debajo de la zona de edafización, pero afectado por las aguas meteóricas de infiltración; y el tercero, constituido por los reactores 13, 10 y Okelobondo, sería el más estable por no estar afectado por los procesos de alteración meteórica. Es decir, por estar en la zona reducida o de estabilidad del yacimiento (Gauthier-Lafaye, 1996; Gauthier-Lafaye et. al. 2000).

De acuerdo con esta clasificación, y teniendo en cuenta que los reactores más superficiales de Oklo estaban ya explotados y algunos de los más profundos estudiados, como los reactores 10 y 13, el proyecto Oklo-Fase II se centró principalmente en los reactores de Okélobondo y Bangombé, por ser los menos perturbados por las labores de explotación y, sobre todo, por ser los extremos desde el punto de vista de su grado de alteración meteórica. Es decir, el reactor de Okélobondo se estudió por estar bajo condiciones reductoras o de estabilidad, mientras que el de Bangombé por estar bajo condiciones oxidantes e hidrogeológicas extremadamente críticas.

El reactor de Okélobondo

Generalidades

El reactor de Okélobondo fue descubierto en la década de los 80 por la sociedad minera COMUF, durante los trabajos de exploración de esta parte del yacimiento de Oklo. El sondeo OK-84 bis cortó mineralización de uranio débilmente empobrecida en ^{235}U , a una profundidad aproximada de 350m (Fig. 4). La explotación de esta parte del yacimiento comenzó a principios de 1990 y la de la zona del reactor a mediados de 1997, durante la realización de este proyecto. Estos últimos trabajos de explotación permitieron observar y tomar muestras del reactor, así como de las arcillas del mismo, según un perfil vertical y perpendicular a la dirección de máximo alargamiento del reactor.

El núcleo del reactor, formado esencialmente por uraninita fisionada, determina un nivel discontinuo pero concordante con la estratificación, con un espesor medio de unos 40 cm, en el que se distin-

guen dos tipos de uraninita con estructuras diferentes: la inferior, generalmente masiva y homogénea, y la superior, ligeramente bandeada y mezclada con sulfuros y clorita. Las arcillas del reactor se localizan por encima del mismo, tienen un espesor variable, pero sin sobrepasar el metro. Presentan una zonación textural: son nodulosas y cloríticas en la zona inferior; están cataclastizadas en la zona intermedia y finamente laminadas en la superior. Los sulfuros, la uraninita y, a veces, la materia orgánica están presentes en todas las zonas del reactor (Jensen y Gauthier-Lafaye, 1998).

La uraninita fisionada o término fuente y la arcilla del reactor o campo próximo: características, estabilidad y capacidad de confinamiento

Al igual que en otros reactores (2, 9, 10, 13 y 16), la uraninita fisionada de Okélobondo tiene una textura brechoide, cuyos fragmentos corroídos, de aproximadamente 1mm de diámetro, están embutidos en una matriz arcillosa formada fundamentalmente de illita y, en menor proporción, clorita. En las arcillas del reactor la uraninita aparece como cristales dispersos, idiomorfos, también corroídos y con tamaño igual o inferior a $250\ \mu\text{m}$. La materia orgánica bituminosa suele estar íntimamente asociada con la uraninita. La mayor parte de los fragmentos y cristales de uraninita se encuentran parcialmente transformados en coffinita, que suele formar una aureola de no más de $10\ \mu\text{m}$ (Jensen y Ewing, 2000).

La galena se encuentra íntimamente asociada a la uraninita, bien como inclusiones, en los límites de grano, o asociada a la matriz arcillosa. Las aureolas de coffinita suelen contener también galena, indicando que durante la transformación uraninita-coffinita se produjo una pérdida de Pb. Aunque no existen datos definitivos sobre el momento y las condiciones bajo las cuales se produjo la transformación incipiente de la uraninita en coffinita, las características texturales de tal transformación sugieren que el proceso pudo tener lugar en diferentes fases:

- i) durante o después de la cristalización de la matriz arcillosa;
- ii) durante la migración del Pb radiogénico y la formación de la galena; y

- iii) durante procesos de alteración más tardíos, no necesariamente relacionados con la alteración supergénica (Jensen y Ewing, 2000).

La única evidencia de procesos meteóricos de oxidación y disolución de la uraninita en este reactor es la presencia de trazas de un sulfato-hidróxido de uranilo y plomo ($\text{Pb}_{10}(\text{UO}_2)_5(\text{SO}_4)_{11}(\text{OH})_8 \cdot n\text{H}_2\text{O}$), que reemplaza a la uraninita, y que es el resultado de la parcial oxidación de la uraninita, galena y otros sulfuros asociados (Jensen y Ewing, 2000).

La composición química media de la uraninita, obtenida mediante microsonda electrónica, es:

$\text{UO}_2=90.25\%$	$\text{ThO}_2=0.05\%$	$\text{SiO}_2=0.62\%$
$\text{TiO}_2=0.19\%$	$\text{ZrO}_2=0.06\%$	$\text{PbO}=6.43\%$
$\text{FeO}=0.46\%$	$\text{CaO}=1.49\%$	$\text{Al}_2\text{O}_3=0.08\%$
$\text{P}_2\text{O}_5=0.08\%$	$\text{SO}_3=0.08\%$	$\text{Ce}_2\text{O}_3=0.06\%$
$\text{Nd}_2\text{O}_3=0.05\%$		

Estos datos, en comparación con los de la uraninita de otros reactores estudiados (Jensen y Ewing, 2000), indican que se trata de una variedad muy pobre en Th, Ce, Nd, Zr y Pb, este último en relación con la edad de la uraninita, aproximadamente 2000 Ma. En este sentido, la edad química de esta uraninita, considerando que todo el Pb es radiogénico, es del orden de los 750 Ma, edad aparente que coincide con las últimas fases de intrusiones doleríticas en la zona y responsables de la migración del Pb radiogénico generado en dicho óxido desde su fisión hasta el momento de dichas fases intrusivas (Jensen y Ewing, 2000).

En consecuencia, a partir de los datos químicos y mineralógicos, los efectos de la coiffinitización y alteración meteórica sobre la química de la uraninita pueden considerarse insignificantes. Las observaciones realizadas por microscopía óptica y electrónica indican que ninguno de estos procesos penetraron en el interior de los fragmentos y cristales de uraninita (Jensen y Ewing, 2000).

El estudio isotópico de la uraninita se ha centrado en el U, al objeto de conocer su empobrecimiento en ^{235}U , y en los elementos del grupo del platino (Ru, Rh y Pd), por ser productos de fisión del ^{235}U , ^{238}U y ^{239}Pu . El interés de estos elementos es doble, ya que están considerados como relativamente inmóviles en ambientes geoquímicos hidrotermales y, si se exceptúan los placeres, por estar ausentes en ambientes sedimentarios como en el que se formó el yacimiento

de Oklo. Por todo ello, estos elementos, junto al Nb fisiogénico, pueden servir, teóricamente, para establecer tasas de movilidad a partir de los reactores naturales de fisión (Piboule y Amosse, 2000).

De acuerdo con el contenido en U metal, en la uraninita del reactor de Okelobondo se han distinguido dos zonas: la inferior y la superior, con leyes medias de 50.4% y 34.5%, respectivamente. Paradójicamente, la zona inferior, la más rica en U, es la que presenta un valor medio para la relación $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ más próxima a la natural (0.00670), mientras que, en la zona inferior, dicho valor se aparta más de la natural (0.00616). Es decir, la zona más rica del reactor es la que tiene un menor empobrecimiento en ^{235}U , mientras que la menos rica es, a su vez, la más empobrecida en ^{235}U , hecho que no es habitual (Piboule y Amosse, 2000).

Las concentraciones en Nb y Rh, elementos monoisotópicos y cuyos rendimientos de fisión son similares, muestran una distribución similar a la de la relación $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$, de manera que, en la zona donde la fisión del U fue más intensa, los contenidos medios en ambos elementos son mayores que en la zona donde la fisión lo fue menos. Por otra parte, la correlación entre los contenidos en Nb y Rh, aunque buena y de acuerdo con sus rendimientos de fisión, presenta una notable dispersión de puntos (Piboule y Amosse, 2000).

Todas estas pequeñas incongruencias entre el contenido en U, la relación $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ y los contenidos en Nb y Rh, en principio considerados como originados solamente por fisión, sugieren dos hechos bien diferenciados: a) la existencia de Nb natural asociado a fases minerales heredadas, que explicaría la dispersión de puntos observada en la correlación con el Rh, y b) la removilización y migración de una parte importante del U de la zona más intensamente fisiónada, actualmente más pobre en U y más rica en Rh fisiogénico. Este último fenómeno pudo estar facilitado por una mayor porosidad de la zona superior del reactor y por su proximidad a las arcillas del mismo, que actuarían como materiales impermeabilizantes (Piboule y Amosse, 2000).

La composición isotópica del Pd de la uraninita del reactor se ha determinado al objeto de evaluar la producción de productos de fisión, a partir del ^{235}U , ^{238}U y ^{239}Pu , y precisar cuantitativamente la movilidad eventual de dichos productos. Estos datos permitieron determinar aproximadamente los déficit de ^{99}Ru , procedente del ^{99}Tc , y evaluar, por lo tanto, la movilidad de este último, procedente del ^{99}Rb a través de seis desintegraciones β^- .

Sin embargo, los datos isotópicos del Pd sugieren la existencia de una mezcla de Pd natural y fisiogénico, particularmente importante en las arcillas del reactor, por lo que resulta imposible determinar los rendimientos de fisión en estos materiales, así como asegurar que todo el Pd de los reactores de fisión es fisiogénico. En consecuencia, para determinar los rendimientos de fisión del Pd sólo se tuvieron en cuenta los valores medios de las relaciones isotópicas medidas en las muestras del reactor propiamente dicho, por ser más constante y, por lo tanto, menos afectadas por la contribución de Pd natural. Estos datos y las relaciones isotópicas del Ru, particularmente $^{99}/^{101}$, permitieron evaluar el porcentaje de ^{99}Tc movilizado desde el reactor, variable entre el 2.88% y 1.45% en la zona inferior del mismo, y entre el 21.49% y 15.19% en su zona superior, lo que confirmó también el comportamiento dual del reactor de Okelobondo (Piboule y Amosse, 2000).

El interés de establecer la movilidad del Tc a partir de una zona de reacción natural o de un combustible comercial gastado radica en su facilidad, al igual que la del Mn, a oxidarse y solubilizarse en forma de TcO_4^- . Por otra parte, entre los isótopos fisiogénicos del Tc (98, 99, 100, 101, 102 y 104), sólo los 98 y 99 tienen interés a la escala de tiempo considerada en un repositorio, entre 10^5 y 10^6 años, ya que sus respectivos periodos de semidesintegración son de 4.2 Ma y $210 \cdot 10^3$ años. Es decir, se necesitarían aproximadamente 20 y 1Ma respectivamente para que decayeran totalmente a $^{98,99}\text{Ru}$, por desintegración β^- .

Por el contrario, el periodo del resto de los isótopos del Tc es tan breve, segundos o minutos, que su interés es nulo a la escala de tiempo mencionada. Además, dado que la producción del ^{98}Tc es extremadamente baja, tampoco tiene interés establecer su tasa de movilidad.

Por último, teniendo en cuenta la duración estimada de la fisión nuclear en los distintos reactores de Oklo, el porcentaje de ^{99}Tc movilizado desde el reactor de Okelobondo, mucho mayor en su zona superior que en la inferior, y el periodo de semidesintegración de dicho producto de fisión, se ha podido concluir lo siguiente (Piboule y Amosse, 2000).

- La pérdida de ^{99}Tc en el reactor tuvo que producirse durante y/o poco tiempo después del funcionamiento del reactor, y debida a la acción hidrotermal desencadenada en ese mismo intervalo de tiempo, aproximadamente 1Ma. Soluciones hidrotermales o meteóricas

posteriores no pudieron movilizar dicho isótopo ya que habría decaído totalmente a ^{99}Ru , geoquímicamente muy estable.

- La pérdida de ^{99}Tc fue mayor en la zona superior del reactor debido a una mayor porosidad del combustible y a la cercanía a las arcillas del mismo, que actuarían como nivel impermeable. Muy probablemente esta movilización del Tc estuvo acompañada por una importante movilización de U. Por el contrario, prácticamente la totalidad del ^{99}Tc ($\approx 98\%$) producido en la zona inferior del reactor quedó retenido en la matriz del combustible gastado, dada su menor porosidad.
- Los sumideros más probables del ^{99}Ru (^{99}Tc) son los arseniuros y sulfuros que se localizan en los bordes de los granos de la uraninita (Jensen, 1999), sin que se descarte la posibilidad de que se encuentre en forma de microagregados metálicos, como en el caso del reactor 10 (Holliger, 1991).
- Las relaciones isotópicas $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ y los contenidos en Rh y Nb detectados, permiten asegurar que el núcleo del reactor estaba localizado en la zona superior del mismo.

Los rellenos de fractura o campo lejano: características y capacidad de retención

En las proximidades del reactor de Okelobondo se han estudiado, desde el punto de vista geoquímico y mineralógico, los elementos de baja movilidad geoquímica, como el Hf, Th, REE, Sc y Ta, y los rellenos fisurales de fallas y fracturas, con el fin de encontrar trazadores geoquímicos de los procesos de interacción agua-roca que tuvieron lugar a lo largo de dichas fracturas, principalmente en las cercanías del reactor.

Las muestras procedían de los sondeos de testigo existentes en la zona, en las que estaban representadas las formaciones FA y FB, así como el reactor de Okelobondo (Gauthier-Lafaye, et al. 2000).

Tanto las fallas como las fracturas presentaban tapices de color blanco grisáceo, sin evidencias de haber sido afectados tectónicamente después de su formación. Desde el punto de vista mineralógico, estos tapices están formados principalmente por calcita e illita, en diferentes proporciones, estando la clorita, la dolomita y la piritita en menor proporción. La barita, y smithsonita son, a veces, abundantes, mientras que la caolinita está siempre como traza.

La asociación mineral más representativa de estos tapices fisurales, formada por calcita, illita, clorita y pirita, es muy similar a la de la formación FB, por lo que se puede decir que las soluciones que los precipitaron estuvieron en equilibrio con las formaciones geológicas por las que se infiltraron.

De acuerdo con las características geoquímicas de la mayor parte de las muestras, éstas se han clasificado en tres grupos, cuya distribución espacial sugiere lo siguiente:

- El primer grupo, el menos abundante, se caracteriza por un modelo REE/condrito de no fraccionado a cóncavo y muy altos contenidos en Sr. Éste se localiza en la formación FB y parece estar relacionado con los niveles dolomíticos de dicha formación.
- El segundo grupo, con abundancia intermedia, se caracteriza por un modelo REE/condrito cóncavo y una relación La/Th más alta que la de las pelitas de la formación FB. Se localiza en la formación FB y en la parte superior del nivel C-1, en el que se encuentra el reactor. Este grupo parece representar un trazador geoquímico de las soluciones que atravesaron la formación FB, aunque presente algunas evidencias de procesos de mezcla.
- El tercer grupo es el más abundante y está caracterizado por un modelo REE/condrito fraccionado y una relación La/Th más baja que la encontrada en las pelitas de la formación FB. La distribución de este grupo en la formación FA está de acuerdo con los contenidos en Th de las pelitas de la formación FA, que es dos veces mayor que en las de la formación FB.

Aunque este tercer grupo es el único observado en las proximidades del reactor, el segundo está también presente en la parte inferior de la formación FB, de naturaleza pelítica, indicando que estos niveles jugaron un papel impermeabilizante importante para las soluciones que interaccionaron con el reactor. El hecho de que las variaciones observadas en la relación La/Th en las fracturas que afectan al nivel C-1 y a la zona más superior de la formación FA dibujen una pluma a lo largo de las superficies de estratificación, parece confirmar que los niveles pelíticos de la formación FB jugaron un papel importante en el drenaje de las soluciones procedentes de la zona del reactor.

En consecuencia, la influencia del reactor en la geoquímica de los rellenos fisurales, y por lo tanto, en los procesos de interacción agua-roca, quedó restringida a unos 25 m (Raimbault, 1998).

Los procesos actuales de interacción agua-roca en relación con la migración de radionucleidos: modelización hidrogeológica, hidrogeoquímica y ciega

Desde el punto de vista geológico, el yacimiento de Oklo-Okélobondo es simple, pero las labores de explotación minera han perturbado el régimen de las aguas subterráneas, así como las características hidrogeoquímicas de las mismas. Sin embargo, durante la Fase I del proyecto se pudo establecer un buen modelo hidrodinámico de este yacimiento (Gurbán et al., 1996). El sistema hidrogeológico de Oklo-Okélobondo se puede describir como dos celdas convectivas: una situada al oeste del río Mitembé, cuya zona de recarga e infiltración está en las areniscas de la formación FA, y la otra, situada al este del río, cuya zona de recarga está en la covertera manganesífera del Plateau de Massango, atraviesa la formación FB, y alcanza la zona de reacción de Okélobondo, situada aproximadamente en la zona de mezcla entre ambas celdas. La descarga de las celdas es ascendente y hacia el valle del río Mitembé (ver Fig. 4).

El principal objetivo del estudio hidrogeoquímico fue conceptualizar y cuantificar la evolución de las aguas subterráneas. A este fin, la investigación se centró en identificar los principales procesos de interacción agua-roca responsables de la composición de las aguas subterráneas. Los resultados y conclusiones de esta investigación (Peña et al., 2000; Salas et al., 2000), que concuerdan con los obtenidos por Duro et al. (2000), se resumen así:

Las aguas se clasificaron en cinco grupos en función de su composición:

- i) aguas de la zona occidental de la galería (Okélo W), débilmente mineralizadas por su infiltración rápida a través de las fracturas;
- ii) aguas de la zona central de la galería (Okélo C), resultado de un proceso de interacción más avanzado que las anteriores, débilmente mineralizadas, ligeramente ácidas a neutras y oxidantes;
- iii) aguas de las proximidades del reactor (Okélo E), alcalinas, oxidantes y resultado de la interacción con las pelitas;
- iv) aguas procedentes de la formación FB (Complexes), reductoras y neutras; y
- v) aguas superficiales y del río (Superficiales), ácidas y oxidantes (Fig. 5).

Un análisis multivariante (PCA) de los datos analíticos de las muestras de agua, mostró que el 84% de la varianza del sistema podía expresarse en función de tres factores complejos:

- $F1 = [Mg] + [Ca] + [\text{alcalinidad}]$ (41%),
 $F2 = [Na] + [Cl]$ (25%), y $F3 = [SO_4]$ (18%).

Una vez identificados los tipos de agua y las vías preferentes de circulación, se confeccionó un modelo hidrogeoquímico conceptual en el que propusieron los principales procesos de interacción agua-roca responsables de la composición de las aguas (Peña et al., 2000). Dicho modelo conceptual se introdujo en los códigos de cálculo geoquímico NETPATH y PHREEQC, realizándose una modelización inversa para cuantificar cada uno de los procesos. Los procesos de interacción agua-roca identificados fueron:

- i) dedolomitización (dolomita+anhidrita=calcita),
- ii) intercambio catiónico, en los lechos pelíticos, y
- iii) alteración de los feldespatos en caolinita y/o illita.

Respecto a los procesos redox, los valores de pH y Eh medidos en las aguas subterráneas de Oklo-Okélobondo ponen de manifiesto la existencia de dos tipos de aguas (Salas et al., 2000): El tipo I, cuyos valores de pH y pE se sitúan paralelos al equilibrio entre $Fe^{2+}/Fe(OH)_3$, y el tipo II, oxidadas, ligeramente básicas y subsaturadas en uraninita. Este último tipo fue recogido en la zona más profunda de la mina, alrededor del reactor y en las proximidades del contacto entre las formaciones FA y FB (Fig. 6). A su vez, en las aguas del tipo I se pueden distinguir dos subgrupos: el IA, oxidante, ácidas y subsaturada en uraninita, y el IB, más reductora, de neutra a básica y saturada en uraninita.

Los dos tipos de aguas son también diferentes con respecto a la relación Fe/Mn, de manera que, en las del tipo I, dicha relación es mayor que la unidad, mientras que en las del tipo II es menor. La situación de estos tipos de aguas en el diagrama pH-Eh (Fig. 7) y sus respectivos contenidos en Fe y Mn sugieren que, en el tipo I, el pH y Eh están controlados por el par $Fe(II)/Fe(III)$, mientras que en el tipo II estarían controlados por el par $Mn(II)/Mn(IV)$.

Para verificar la hipótesis de que los valores medidos de pH y Eh en las aguas están controlados por los procesos de interacción agua-roca que tienen lugar a lo largo de las vías de flujo, se ha realizado un ensayo de modelización transporte-reactivo (Salas et al., 2000), teniendo en cuenta:

- i) el modelo hidrogeológico de la zona,
- ii) los diferentes dominios litológicos representados en el sistema,
- iii) la composición mineralógica de las litologías de los acuíferos y
- iv) las constantes de equilibrio de esas fases minerales incluidas en el fichero de datos del código EQ3NR (Wolery, 1992).

Los cálculos se han realizado usando los códigos RETRASO (Saaltink et al., 1997) y HYTEC-1D (Van der Lee, 1997). Los resultados de esta modelización permiten concluir, según Salas et al. (2000), lo siguiente:

- La composición química y los valores de pH-Eh de las aguas de la zona superior y occidental del sistema de Okélobondo (tipo I) se explican satisfactoriamente por la interacción entre las aguas de recarga y las pelitas, dolomías y areniscas. La disolución de la dolomita y los silicatos sería la responsable de los valores de pH cercanos a 8 de las aguas, mientras que la disolución de los silicatos de Fe y la precipitación del $Fe(OH)_3$ son los responsables de que los valores de Eh se mantengan a lo largo del equilibrio $Fe^{2+}/Fe(OH)_3$, alcanzando valores próximos a cero mV. Bajo estos valores de Eh la uraninita no se disuelve, siendo ésta la razón de los bajos contenidos en U de las aguas tomadas en las pelitas y dolomías existentes por encima del reactor.
- Los valores elevados de la relación Mn/Fe, pH y Eh de las aguas del tipo II de las zonas más profundas del sistema se explican también, satisfactoriamente, por la interacción entre las aguas de recarga, los depósitos residuales de Mn superficiales, las pelitas y las dolomías de la formación FB. Los factores claves para alcanzar las características químicas de este tipo de aguas son:
 - i) la disolución rápida de una fase de Mn,
 - ii) la disolución lenta de una fase de Fe, y
 - iii) una fuente continua de alcalinidad.

Concretamente, la disolución de la rodocrosita aportaría Mn al agua; los altos valores de pH resultarían de la disolución de dicho carbonato y la dolomita, los cuales impedirían la disolución de la clorita y el aumento de la concentración de Fe en solución; y, como consecuencia, la disolución/precipitación de la ro-

docrosita y la manganita controlarían la evolución del Eh-pH del sistema, con valores de Eh superiores a los correspondientes al equilibrio Fe(II)/Fe(OH)_3 .

Los modelos en 2D de la distribución del pH, Eh y U disuelto en el sistema de Okelobondo (Fig. 8), han permitido establecer así el escenario de las aguas profundas en el sistema de Okelobondo (Sallas et al., 2000). De acuerdo con estos modelos, se concluye que la distribución de los tipos de aguas en dicho sistema, con las aguas más reducidas y neutras en la zona superficial del mismo y las más oxidadas y alcalinas en la zona profunda, es un tanto particular e inducido por la presencia de una cobertera de alteración rica en carbonatos de Mn, hecho poco frecuente en la corteza terrestre.

Los resultados de la modelización anteriormente explicada coinciden con los obtenidos en el ejercicio de "modelización predictiva ciega", llevada a cabo en paralelo y al objeto de predecir el comportamiento del uranio en el sistema (Duro et al., 2000). Las conclusiones más relevantes de este ejercicio de modelización, que coinciden y completan a las obtenidas mediante la modelización transporte-reactivo, son, de acuerdo con Duro et al. (2000), las siguientes:

- El uranio en las aguas de Okelobondo está fundamentalmente en forma de complejos carbonatados de uranio, independientemente del tipo de agua.
- La solubilidad del U parece estar controlada por las fase sólidas de U(VI), principalmente silicatos, en las aguas tomadas en las proximidades del reactor y en la superficie del sistema. Por el contrario, la solubilidad de dicho radionucleido en las aguas más reducidas existentes en la formación "Complexes" estaría controlada por las fases sólidas de U(IV), bien coffinita o uraninita incipientemente oxidada.
- El control del potencial redox en la mayor parte de las aguas del sistema parece estar controlado por el par. Fe(II)/Fe(III) , excepto para las aguas más oxidadas de las proximidades del reactor, más ricas en Mn, en las que el potencial redox parece estar controlado por el par Mn(II)/Mn(IV) .

Estas conclusiones, junto con las obtenidas mediante el modelo transporte-reactivo, permiten deducir que la solubilidad del uranio en el sistema está íntimamente relacionada con el comportamiento geoquímico del Fe. Así, la concentración de uranio en

las aguas procedentes de las proximidades del reactor (Okélo E), oxidantes por haberse infiltrado a través de la cobertera manganesífera, estaría controlada por la formación de un coprecipitado de U(VI) y Fe(III). Estas aguas se reducirían al pasar por la zona "Complexes", dando lugar a la disolución de los coprecipitados de U(VI) y Fe(III), por reducción del Fe(III) a Fe(II), y a la liberación de uranio. Este proceso se confirma al observar la recta de regresión entre las concentraciones de U y Fe medidas en las aguas reductoras de la formación Complexes (Fig. 9).

El reactor de Bangombé

Generalidades

El yacimiento de Bangombé, donde se localiza el reactor del mismo nombre, ha sido solamente explorado y valorado, estando sus reservas comprendidas entre 100 y 200 Tn de mineral.

El reactor natural, que se puede considerar residual del primitivo, se localiza a unos 12m de profundidad (Fig. 10), tiene morfología lenticular, con una potencia de aproximadamente 25 cm, por unos 35m de largo y unos 7m de ancho. Está cubierto por unos 25 cm de las denominadas arcillas del reactor. Estas particularidades hacen que este reactor sea ejemplo único de conservación, al menos parcial, de una acumulación de combustible gastado natural, a pesar de estar sometido a los procesos meteóricos agresivos propios de un clima ecuatorial (Gauthier Lafaye et al., 1997; 2000).

La uraninita fisionada o término fuente y las arcillas del reactor o campo próximo: características, estabilidad y capacidad de confinamiento

La uraninita del reactor de Bangombé (Quejido et al., 2000), al igual que la de Okelobondo, es masiva, fuertemente brechificada, estando las fracturas rellenas por sericita-illita, caolinita, galena, piritita y azufre elemental (Fig. 11). Los bordes de los fragmentos de uraninita están siempre alterados a silicatos de U.

La composición química de la uraninita es muy constante, de manera que el contenido en UO_2 y

PbO varía entre 92.44% y 89.45%, para el primero, y entre 5.27% y 7.53%, para el segundo. Otros óxidos presentes son el CaO, entre 0.98% y 1.67% y el SiO₂, entre 1.11% y 2.34%. La composición química del silicato de U es variable, siendo la del término final próxima a la de la coffinita. En estas fases silicatadas de U, el aumento en SiO₂ conlleva el del PbO, Al₂O₃, P₂O₅ y óxidos de Fe. En consecuencia, el proceso de coffinitización, del que no existen evidencias claras si está o no relacionado con la alteración meteórica, es gradual y conlleva una acumulación progresiva de Pb (hasta el 10.18% de PbO), procedente probablemente de la uraninita, así como de P, que sustituiría al Si en la red de la coffinita.

Desde el punto de vista isotópico, la relación ²³⁵U/²³⁸U es inferior a la natural (0.006587 ± 29), indicando que la uraninita está empobrecida en ²³⁵U debido a la reacción de fisión (Quejido et al., 2000). Las relaciones ²³⁴U/²³⁸U y ²³⁰Th/²³⁴U, iguales a la unidad, indican que la muestra estudiada, procedente del núcleo de la zona del reactor, está en equilibrio secular para la parte superior de la serie del ²³⁸U, por lo que no ha sido afectada por pérdidas ni aportes de U durante los últimos 1.7 Ma (Crespo y Pérez del Villar, 2000).

El análisis isotópico del Pb muestra que este elemento procede fundamentalmente de la desintegración radiactiva del ²³⁵U y ²³⁸U, siendo los aportes de ²⁰⁴Pb común y del ²⁰⁸Pb procedente del ²³²Th muy minoritarios. El tiempo transcurrido para explicar el contenido en ²⁰⁶Pb, procedente del ²³⁸U, de la muestra es de 740 ± 12 Ma, que coincide, al igual que en todos los reactores estudiados, con la época de migración masiva de Pb, relacionada con la intrusión de los diques doleríticos en la zona (Quejido et al., 2000).

De acuerdo con las relaciones isotópicas del Ba, los isótopos fisiogénicos del Cs (134, 135 y 137), precursores de los isótopos del Ba (134, 135 y 137) migraron desde la uraninita fisiónada. Para el caso de los isótopos ¹³⁴, ¹³⁷Cs, la migración fue muy rápida dadas sus respectivas vidas medias: 2.08 y 30.1 años. Un comportamiento similar a los isótopos del Cs lo tuvo el ⁸⁸Sr, también fisiogénico. Sin embargo, el valor de la relación ¹³⁸Ba/¹³⁶Ba es ligeramente superior a la natural, lo que sugiere que parte del ¹³⁸Ba (fisiogénico) quedó retenido en la matriz de la uraninita o en los filosilicatos asociados a ella (Quejido et al., 2000).

Las contribuciones de fisión del ²³⁵U, ²³⁸U y ²³⁹Pu (92.0%, 5% y 3% respectivamente), calculadas a

partir de las relaciones isotópicas del Ru (Quejido et al., 2000), indican que la contribución en la fisión del ²³⁸U en el reactor de Bangombé fue más baja que en los de Oklo (Hidaka y Holliger, 1998).

A partir de las relaciones isotópicas del Zr y de las contribuciones de fisión anteriormente mencionadas, se ha calculado que el 64.6% del Zr total de la uraninita (1075 ppm) es fisiogénico y que el ⁹⁰Zr procedente del decaimiento radiactivo del ⁹⁰Sr es tan extremadamente bajo que dicho isótopo de Sr, al igual que el ⁸⁸Sr, migró desde el término fuente (Quejido et al., 2000).

Dado que los contenidos del ⁹⁴Ru y ⁹⁶Ru están por debajo del límite de detección de la técnica espectrométrica utilizada, el Ru de la muestra (69 ppm) fue producido por la reacción de fisión y por el decaimiento radiactivo del ⁹⁹Tc. De acuerdo con las contribuciones de fisión y las relaciones ⁹⁹Ru/¹⁰¹Ru, ⁹⁹Ru/¹⁰²Ru y ⁹⁹Ru/¹⁰⁴Ru medidas, el ⁹⁹Tc quedó retenido en la matriz de la uraninita. Sin embargo, una pequeña proporción de ¹⁰⁰Ru se produjo por captura neutrónica a partir del ⁹⁹Ru y ⁹⁹Tc. No obstante, las observaciones realizadas mediante SEM+EDX no han permitido determinar el mineral que alberga al Ru (Quejido et al., 2000).

El papel desarrollado por las arcillas del reactor de Bangombé durante la fisión no es fácil de establecer por la escasa profundidad a la que se encuentran y, por lo tanto, a la alteración supergénica que las afectaron. Sin embargo, las investigaciones recientes realizadas sobre el nivel pelítico y fuertemente oxidado existente inmediatamente encima del reactor (Bracke et al., 2000) ha puesto de manifiesto, por un lado, que está constituido por illita, kaolinita, goethita y hematites, y por otro, que la edad absoluta de la oxidación, obtenida por el método U-Pb, es de 2.03 ± 0.05 Ma. Es decir, coetánea con la reacción de fisión y no con la alteración supergénica, tal y como apuntó Bross (1996). En definitiva, la oxidación radiolítica relacionada con la reacción de fisión sería la responsable del aumento de Fe(III) observado en las inmediaciones del reactor (Curtis y Gancarz, 1983; Savary y Pagel, 1997).

Si bien la oxidación de las arcillas que rodean al reactor se produjo como consecuencia de la reacción nuclear, existen también datos isotópicos que sugieren que la alteración supergénica sobre dicho nivel comenzó hace entre 300 y 250 Ma (Bracke et al., 2000), continuando hasta un pasado reciente, menos de 350.000 años (Bros et al., 2000; Salah et al., 2000). En consecuencia, estos procesos de

migración/retención subactuales serán tratados en el siguiente apartado.

La roca encajante y los rellenos de fractura: características y capacidad de retención del campo lejano

Al objeto de conocer el papel de la roca encajante en la retención de ciertos productos de fisión, se ha determinado la composición isotópica del U, Pb, Mo, Ba, Sr y Zr en muestras pelíticas de la formación FB, suprayacente al reactor, y en areniscas de la formación FA, infrayacente al reactor (Quejido et al., 2000; Crespo y Pérez del Villar, 2000). La distribución de las muestras en relación a la situación del reactor nos ha permitido tener información a una distancia de 5 y 20 m, medidos en la horizontal del reactor, así como de 10m por arriba y por abajo del mismo.

La relación isotópica $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ en todas las muestras analizadas es la natural, por lo que se puede argumentar que si el U empobrecido migró desde la zona de reacción, éste no fue retenido en el campo lejano. Las relaciones $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ y $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$, indicativas de procesos recientes de migración son más variables, en función de la procedencia de las muestras. Así, en el 50% de las muestras pelíticas de la formación FB, el proceso más importante que afectó al equilibrio de la parte superior de la serie de desintegración del ^{238}U es la captación reciente de U (<350.000 años) disuelto en el agua. El resto de las muestras están en equilibrio secular. En la formación FA casi todas las muestras están en equilibrio secular, excepto algunas cuyas desviaciones pueden explicarse por procesos recientes de movilización o fijación del U (Crespo y Pérez del Villar, 2000). Estos datos, junto con los obtenidos por Bros et al (2000), demuestran que el sistema de Bangombé ha permanecido parcialmente abierto durante el último millón de años. Este sistema es, además, lo suficientemente complejo como para mostrar zonas en equilibrio secular y otras en las que han tenido lugar procesos de enriquecimiento o lixiviación de U, en relación con la circulación vertical y horizontal de las aguas meteóricas y las condiciones redox del sistema.

Los valores de la relación $^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}$ en el propio reactor y en las arcillas suprayacentes más próximas (Formación FB) indican una fuerte y reciente (<8000 años) lixiviación de Ra, mientras que en muestras más alejadas dichos valores indican una acumulación importante de dicho radioelemento.

Este hecho, en principio difícil de explicar, puede estar relacionado con el grado de oxidación de las muestras, más reducido en las lixiviadas en Ra y más oxidado en la enriquecidas en dicho elemento. Aunque la geoquímica del Ra no está afectada por las condiciones redox del sistema, su movilidad es mayor en los medios reducidos que en los oxidados, ya que, en estos últimos, la precipitación del Fe(III) y Mn(IV) adsorberían Ra, reduciendo así su movilidad (Crespo y Pérez del Villar, 2000). Por otra parte, la acumulación del Ra coincide con el sentido del flujo de las aguas subterráneas en el sistema.

Por lo que se refiere a los isótopos del Pb, las relaciones isotópicas entre ellos ponen de manifiesto que:

- i) la contribución de Pb común es extremadamente baja, ya que todas las relaciones $^{204}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ medidas son siempre inferiores a 0.0002;
- ii) la contribución del ^{208}Pb procedente del ^{232}Th es también muy baja; y
- iii) la mayor parte del Pb procede del ^{238}U y, en menor proporción, del ^{235}U (Quejido et al., 2000).

En relación al Mo, Bros et al. (2000) detectaron anomalías debidas a la fisión en las inmediaciones del reactor, tanto hacia el techo como hacia muro del mismo. Esto significa que el Mo se movilizó, probablemente durante la fisión, a partir del término fuente. Sin embargo, Quejido et al. (2000), en muestras más alejadas del reactor, encontraron relaciones isotópicas típicamente naturales, por lo que se sugiere que el Mo quedó retenido en el campo próximo o fue lixiviado del campo lejano durante los procesos meteóricos de alteración.

Las relaciones isotópicas del Ba en las muestras procedentes del campo lejano muestran evidencias claras de estar enriquecidas en ^{137}Ba , ^{135}Ba y ^{134}Ba , particularmente las más ricas en filosilicatos, lo que indica que sus precursores ^{137}Cs , ^{135}Cs y ^{134}Cs migraron desde el término fuente, quedando parcialmente retenidos en los materiales del campo lejano (Quejido et al., 2000).

Por el contrario, el valor de la relación $^{88}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$, muy próximo al natural, indica que el Sr movilizado desde el término fuente no quedó retenido en los materiales del campo lejano (Quejido et al., 2000).

Bros et al. (2000) sólo encontraron anomalías debidas a la migración del Zr en el campo próximo del reactor, mientras que Quejido et al. (2000) las encontraron en numerosas muestras de las formacio-

nes FA y FB, situadas a más de 20m del reactor. En consecuencia, dada la baja movilidad geoquímica de este elemento bajo condiciones supergénicas, se sugiere que su movilización a partir del término fuente tuvo lugar durante la reacción nuclear o durante cualquier otro proceso hidrotermal que afectara a la zona, como el relacionado con las intrusiones doleríticas. En este sentido, fases secundarias de circón y circonsilicatos complejos han sido detectados en prácticamente todas las muestras procedentes de la formación FA, lo que significa que el Zr se movilizó a lo largo de la dilatada historia térmica y mineralogénica del yacimiento (Quejido et al., 2000).

En resumen, se puede decir que los materiales del campo lejano ejercieron un papel importante en la retención de ciertos productos de fisión, entre ellos el Cs, actualmente en forma de Ba, y el Zr, ambos movilizados durante la reacción de fisión. El U, cuyo comportamiento geoquímico es dependiente de las condiciones de alteración meteórica del sistema, ha sido lixiviado o retenido en los campos próximo y lejano, en función de los procesos subactuales de interacción agua-roca y de las condiciones redox bajo las cuales estos procesos se han producido.

El estudio mineralógico de los rellenos de fracturas de las areniscas de la formación FB (Pérez del Villar et al., 2000), ha puesto de manifiesto el importante papel de estos materiales en la retención del U y REE, principalmente por precipitación y coprecipitación. El primer proceso se ha identificado por la formación de minerales secundarios de U, como autunita y torbernita, de fosfatos complejos de U, Ca, Fe, Al y REE, mientras que el segundo por la formación de fases mixtas de oxidróxidos de Fe, U(VI) y Ce(IV) (Fig. 11). La edad de un cristal de torbernita (76.500 ± 6800 años), procedente de estos rellenos, en equilibrio desde hace por lo menos 8000 años ($^{226}\text{Ra}/^{230}\text{Th}=1$) y calculada a partir de la serie del ^{238}U (Bros et al., 2000), indica que los procesos de retención en los rellenos de fractura se produjeron en el pasado reciente y dentro del intervalo de tiempo considerado por la evaluación del comportamiento de un almacenamiento de residuos radiactivos.

Por último, según Salah et al. (2000), el modelo propuesto para explicar el funcionamiento geoquímico del sistema Bangombé, desde su formación hasta los tiempos subactuales, es el recogido en la Fig. 12, en la que se resalta el funcionamiento geoquímico desde hace 1.5 Ma aproximadamente.

Los procesos actuales de interacción agua-roca en relación con la migración de radionucleidos: modelización hidrogeológica, hidrogeoquímica y ciega

El modelo hidrogeológico del sistema de Bangombé (Gurban et al., 1996) es extraordinariamente simple, de manera que las aguas de lluvia caídas sobre el "plateau Comilog" o zona de recarga, a 600m de altitud, se infiltrarían por la cobertera manganesífera de dicho "plateau" y las pelitas y areniscas de las formaciones FB y FA, para descargar en el río Lékoní, en las proximidades de la zona de reacción. En consecuencia, esta zona estaría fuertemente afectada por la acción de estas aguas y por las de infiltración directa (Fig. 13).

La modelización hidrogeoquímica de las aguas subterráneas del sistema (Garralón et al., 2000) sugiere que el potencial redox de las mismas está controlado, en general, por el par Fe(II)/Fe(OH)₃. El resto de las características hidroquímicas del agua quedarían explicadas por un proceso de caolinitización de la illita, típico de un clima ecuatorial, y por una mezcla de estas aguas con otras más profundas, procedentes del "plateau Comilog", que, al atravesar las areniscas de la formación FA, darían lugar también a la caolinitización de la illita y al envejecimiento de los oxihidróxidos de Fe, transformándolos en hematites (Fig. 14).

A partir de los datos hidrogeoquímicos de las aguas del sistema, en éste se han podido definir cuatro zonas bien diferenciadas (Madé et al., 2000):

- i) el reactor propiamente dicho, donde las aguas tienen valores de pH y Eh de 6.69 y 26 mV,
- ii) la zona de tampón redox, en la que la concentración de U disuelto en las aguas está en equilibrio con la uraninita,
- iii) la zona de areniscas, en la que el pH y Eh de las aguas es de 6.57 y 147 mV, respectivamente, y
- iv) la zona de pelitas, en la que los valores de pH y Eh son 5.64 y 277 mV, respectivamente (Fig. 15).

La modelización geoquímica del sistema, utilizando los códigos de reactivo-transporte RETRASO y HYTEC y la aproximación estadística denominada Mezcla Multivariante y cálculo del balance de Masas (3M) (Madé et al., 2000), ha permitido llegar a un conocimiento más preciso del comportamiento geoquímico de dicho sistema, en lo que se refiere a

los procesos tampón que han permitido y permiten la persistencia del reactor de Bangombé, a pesar de estar sometido a la acción de las aguas meteóricas oxidantes, y a la disolución y migración del U fisionado a partir de dicho reactor, aunque esté geoquímicamente protegido.

Los resultados de la aplicación de dichos códigos a la zona de tampón redox, teniendo en cuenta los minerales de Fe(II)/Fe(III), U(IV)/U(VI) y la hidrólisis de la materia orgánica, abundante en la zona de reacción e inmediaciones, permiten concluir que los dos primeros pares redox pueden entrar en competencia, de manera que las condiciones redox pueden variar con el tiempo. Sin embargo, el control de las condiciones redox por la hidrólisis del grafito o de la materia orgánica puede explicar que la zona de reacción se mantenga bajo condiciones reductoras, preservándola a lo largo del tiempo geológico. En consecuencia, el grafito podría ser un mineral interesante para estabilizar los parámetros hidrogeoquímicos en un almacenamiento de residuos nucleares (Madé et al., 2000).

La modelización ciega realizada en Bangombé (Duro et al., 2000) se centró en predecir la concentración de Al, Ba, Mn, Ni, U, Zn y algunas REE en las aguas más cercanas a la zona de reacción.

Respecto a la concentración de Al, ésta parece estar controlada fundamentalmente por la precipitación del $\text{Al}(\text{OH})_3$, excepto en las aguas más ácidas, en las que estaría controlada por la caolinita. El Ba estaría disuelto en forma divalente, siendo la codisolución congruente de minerales cálcicos con Ba la que controlaría la solubilidad de dicho elemento. El Mn en disolución se encuentra en forma de catión divalente y su concentración en las aguas más ácidas parece estar controlada por el equilibrio con MnHPO_4 o con la codisolución de una fuente de Ca y Mn con relación Ca/Mn de 1/0.1. Por el contrario, en las aguas más alcalinas, la concentración de Mn parece estar controlada por el equilibrio con la rodocrosita. En general, todas las hipótesis planteadas para explicar las concentraciones de Ni en las aguas no dieron los resultados esperados, de manera que el equilibrio con la fase Ni_2SiO_4 sobreestimaba las concentraciones medidas, mientras que el equilibrio con la trevorita (NiFe_2O_4) explicaba mejor la concentración de este elemento en las aguas más ácidas. No obstante, dicho mineral, que se forma a altas temperaturas, no parece el más apropiado para controlar el comportamiento del Ni a temperatura ambiente. Por lo tanto, aunque no se pueda concluir definitivamente sobre el control de

la solubilidad del Ni, se sugiere que pueda estar controlada por los procesos de sorción sobre los minerales de la arcilla. El Zn, que se encuentra fundamentalmente como catión divalente, está, al igual que el Ca y Mn, controlado por la codisolución congruente de fases mixtas de Ca-Zn (Duro et al., 2000).

Los potenciales redox medidos en las aguas de Bangombé parecen indicar que en el sistema están actuando dos posibles pares redox: Fe(II)/Fe(III) y $\text{UO}_2/\text{U}_4\text{O}_9$, lo que tiene una influencia muy importante en el comportamiento del U. En las aguas dicho elemento está en forma de complejos carbonatados de uranilo o de hidróxidos de U(IV), dependiendo si se tienen en cuenta los potenciales redox medidos en superficie o en el interior de los sondeos. No obstante, en las proximidades del reactor, las concentraciones de U observadas se reproducen mejor si se considera el equilibrio con la uraninita (Duro et al., 2000).

La solubilidad de las REE parece estar controlada por la solubilidad de los minerales fosfatados, tales como el hidroxiapatito, en el que el Ca parece sustituirse mejor por las REE intermedias que por las pesadas (Duro et al., 2000).

Conclusiones e implicaciones para la evaluación del comportamiento

En relación con las aplicaciones al PA de un almacenamiento de residuos radiactivos de alta actividad, el proyecto Oklo fase II ha permitido elaborar un conjunto de conclusiones que pueden clasificarse de acuerdo con el comportamiento previsible:

- i) del propio combustible gastado, tanto en lo referente a su estabilidad nuclear y químico-mineralógica, como a su capacidad de confinar ciertos productos de fisión, y
- ii) de los campos próximo y lejano frente a la migración de radioelementos, incluyendo los mecanismos físico-químicos que facilitan su retardo.

El último grupo de conclusiones está constituido por las enseñanzas aprendidas a partir de las herramientas utilizadas para modelizar y predecir el comportamiento de los reactores nucleares, frente a los procesos actuales de meteorización a los que están

sometidos, análogos a los que pudieran afectar a un AGP después de su clausura.

Comportamiento del combustible gastado

Estabilidad nuclear

Una de las conclusiones más importantes que se obtiene de los reactores nucleares de Oklo es la dificultad que se requiere para que, de una manera natural y espontánea, se produzca la fisión nuclear en un yacimiento de U, y si ésta ocurre es un proceso autolimitante. Esta dificultad, que se deduce simplemente del hecho de que los reactores de Oklo son los únicos encontrados hasta el momento en todo el registro geológico de la Tierra, se debe fundamentalmente al conjunto de condiciones que se requieren para que se produzca dicho proceso (Naudet, 1991; Oversby, 2000). Este es un aspecto de especial relevancia para el PA de un almacenamiento geológico profundo, particularmente si los residuos nucleares almacenados son ricos en isótopos fisionables (Bruno, 2000).

Estabilidad químico-mineralógica

Antes de establecer las conclusiones correspondientes a la estabilidad químico-mineralógica del combustible natural gastado, conviene establecer las analogías entre éste y el combustible comercial también gastado. Así, la concentración de ^{235}U en la uraninita de los reactores de Oklo en el momento de la fisión fue de alrededor del 3.5%, muy similar al enriquecimiento del combustible nuclear comercial. Además, el combustible natural gastado, al igual que el comercial, contiene, de una u otra forma, muchos de los productos originales de fisión, así como los isótopos originados por el decaimiento radiactivo de los primeros. Por último, en prácticamente todos los reactores, el combustible gastado se conserva como UO_2 , que es también el constituyente esencial de la matriz del combustible comercial gastado.

Las diferencias esenciales entre ambos tipos de combustible son también tres. La primera, se deriva del tiempo, manera y temperatura media alcanzada en la "combustión" del combustible natural, que fueron muy diferentes a los del combustible comercial, así como de la historia geológica, larga y compleja, del combustible natural. Todas estas circunstancias contribuyeron a que el combustible natural gastado aparezca actualmente más heterogéneo (en lo que a composición, cristalización y

grado de cristalinidad se refiere) que el combustible comercial gastado, en principio más homogéneo. La segunda diferencia se deriva de los altos contenidos en Pb radiogénico (hasta del 20%) del combustible natural, que podría influir en su solubilidad de una forma muy diferente que en el combustible comercial gastado, con bajos o muy bajos contenidos en este elemento. Y la tercera está relacionada con la abundante cantidad de materia orgánica existente en los reactores naturales e inmediaciones, que ha contribuido y está contribuyendo a la conservación de los mismos, incluso de aquellos que están bajo condiciones límites de oxidación, como es el de Bangombé. Por el momento, la materia orgánica no se contempla en los modelos conceptuales de los almacenamientos de residuos nucleares.

Una vez establecidas las analogías y diferencias entre ambos tipos de combustible, las enseñanzas aprendidas sobre la estabilidad químico-mineralógica de la uraninita de los reactores naturales, aplicables al PA de un AGP son las siguientes:

- La existencia de reactores a diferentes profundidades pueden dar indicaciones sobre las relaciones entre la estabilidad del combustible, a largo plazo, y el grado de oxidación. Los términos extremos serían, por un lado, el reactor 10 y, en menor grado, el de Okelobondo, y por otro, el de Bangombé.
- Tanto la uraninita de Okelobondo como la de Bangombé, así como la de otros reactores, está afectada por un proceso incipiente pero generalizado de coffinitización, mediante el cual el UO_2 (uraninita) se transformó en coffinita ($\text{USiO}_4 \cdot n\text{H}_2\text{O}$). Aunque la temperatura a que se produjo este proceso y el mecanismo íntimo de la transformación son temas controvertidos (Pérez del Villar, et al., 2000; Bruno, 2000), el fenómeno de coffinitización de la uraninita, frecuente en muchos yacimientos de uranio, pone en entredicho la idea de la estabilidad del UO_2 en las condiciones reductoras de un almacenamiento de residuos nucleares. Así, dicho óxido, en presencia de concentraciones adecuadas de sílice, puede transformarse en silicato de U(IV), bien previa amorfización u oxidación superficial de la uraninita. De esta manera se aumentaría la solubilidad del combustible y la migración de los productos de fisión. No obstante, aunque la coffinitización de la uraninita sea un proceso generalizado en la naturaleza y las repercusiones

sobre la estabilidad del combustible comercial gastado puedan ser importantes, la cinética y termodinámica de dicho proceso es un problema aún por resolver (Bruno, 2000).

- Además de la coffinitización observada en todas las uraninitas de los reactores de Oklo, éstas generalmente presentan evidencias texturales de disolución más o menos avanzada, sin que el cortejo de minerales secundarios de uranilo, generalmente existente en otros yacimientos, se haya desarrollado. Esto es debido a que la oxidación de la uraninita estuvo acompañada por la oxidación de los sulfuros asociados, especialmente galena y pirita, que provocaron la acidez suficiente como para lixiviar el U(VI) en forma de complejos sulfatados, evitando así la formación de los silicatos y fosfatos de uranilo. Sin embargo, estas condiciones ácidas y sulfatadas no están, en ningún caso, contempladas en los modelos conceptuales de un almacenamiento de residuos nucleares.
- Por último, la inconsistencia entre la estabilidad de la uraninita en los reactores estudiados y la presencia de U(VI) disuelto en las aguas de Bangombé, empobrecido en ^{235}U , resulta sólo aparente si se tiene en cuenta que los datos experimentales demuestran que la estabilidad del UO_2 es termodinámicamente compatible con fases de U(VI) en disolución, para valores de pH entre 6 y 7 y de Eh propios del tránsito redox (Casas et al., 1998).

Capacidad de confinamiento

El estudio comparativo entre las uraninitas de Oklo y el combustible gastado (Pérez et al., 2000) muestra las semejanzas existentes entre ambos tipos de combustible en lo que se refiere a los contenidos en Ba, Sr, Nd, Mo y Rh, mientras que, con relación al Cs, las uraninitas de Oklo están empobrecidas en relación al combustible gastado. En este sentido, las conclusiones derivadas de los estudios isotópicos del combustible gastado de los reactores naturales de Bangombé y Okélobondo son las siguientes:

- En el caso de la uraninita de Bangombé, los isótopos 135 , ^{137}Cs migraron desde el término fuente, mientras que el ^{138}Ba quedó parcialmente retenido en su matriz. Igualmente, 88 , ^{90}Sr migraron desde la matriz, aunque Hidaka y Holliger (1988) observaron en otros reactores que el ^{90}Sr quedó parcialmente retenido. El ^{99}Ru

parece totalmente fisiogénico y el ^{99}Ru procedente del ^{99}Tc quedó retenido también en la matriz del combustible de este reactor.

- En el caso de Okélobondo, entre el 1% y el 3% del ^{99}Tc migró desde la parte inferior del reactor, mientras que, desde la parte superior, más porosa, migró entre el 15 y el 20%. El resto de este isótopo quedó retenido en forma de arseniuros y sulfuros, localizados en los bordes de grano del combustible.

Las experiencias de laboratorio realizadas sobre muestras de uraninitas de Oklo (Pérez et al., 2000) y aleaciones artificiales de Mo, Ru, Pd y Rh, semejantes a los agregados metálicos encontrados en las uraninitas de Oklo (Cui y Eriksen, 2000), han puesto de manifiesto que:

- La capacidad de las uraninitas de Oklo para retener muchos de los productos de fisión, particularmente los metales 4d, es muy similar a la del combustible comercial gastado.
- La migración preferente del Cs y la oxidación selectiva del Mo, en relación a otros metales 4d, están de acuerdo con los modelos actuales existentes de liberación de radionucleidos a partir del combustible gastado (Bruno et al., 1999; Cera et al., 2000).
- La disolución de los componentes minoritarios de las uraninitas de Oklo, similar a la de los mismos componentes del combustible gastado, aporta validez a los conceptos químicos y físicos utilizados en los modelos aplicados en los ejercicios de PA, recientemente realizados en SKB y ENRESA.

Comportamiento de los campos próximo y lejano

Capacidad de retención

Aunque el papel de las arcillas de los reactores de Okélobondo y Bangombé no ha sido intensamente investigado durante el proyecto "Oklo Phase II", los datos obtenidos durante "Oklo Phase I" permitieron obtener ciertas conclusiones sobre el papel de estos materiales en la retención de los productos de fisión y otros elementos menores de interés para el PA. Las más importantes son:

- Entre los distintos tipos de fosfatos existentes en las arcillas de los reactores, el hidroxipatito es

responsable del confinamiento de importantes cantidades de Nd, Sm y Sr fisiogénicos, así como de pequeñas cantidades de Rb y ^{239}Pu , éste último originado a partir del ^{238}U por captura neutrónica. Dada la vida media del ^{239}Pu (24400 años), la formación del apatito y su papel en la retención de dichos núclidos fueron coetáneos con la reacción de fisión (Bros, 1996). Igualmente, los fosfatos de Al de la serie crandillita-goyacita-florencita fueron responsables del confinamiento de Zr, Y y REE fisiogénicos (Holliger, 1995).

- Entre los minerales de la arcilla, la sudoita (clorita aluminica), formada por el hidrotermalismo inducido por las reacciones de fisión, es también responsable del confinamiento de ^{239}Pu y de cantidades significativas de REE fisiogénicas (Bros, 1996).
- La illita, por su parte, contiene cantidades importantes de V, probablemente V(V) (Eberly et al., 1994; Jensen y Ewing, 1998), el cual, por su analogía con el Np (V), tiene una gran importancia para apoyar el retardo de este radionucleido en la barrera arcillosa de ingeniería.

Por lo que se refiere a los materiales del campo lejano, éstos ejercieron un importante papel en la retención de ciertos productos de fisión, entre ellos el Cs, actualmente en forma de Ba, y el Zr, movilizados durante la reacción de fisión. El U, cuyo comportamiento geoquímico es dependiente de las condiciones de alteración meteórica del sistema, ha sido lixiviado o retenido en los campos próximo y lejano, en función de los procesos subactuales de interacción agua-roca y de las condiciones redox bajo las cuales estos procesos se han producido.

Los rellenos de las fracturas de las areniscas de la formación FA ejercieron también un papel preponderante en la retención del U y REE, mediante la formación de minerales secundarios de U, como autunita y torbernita, fosfatos complejos de U, Ca, Fe, Al y REE y fases mixtas de oxidróxidos de Fe, U(VI) y Ce(IV). El papel de los oxihidróxidos de Fe en la adsorción del U ha sido ampliamente documentada por Salah et al. (2000) y Pérez del Villar et al. (2000).

Mecanismos de retención

A partir de las conclusiones expuestas en el apartado anterior, se deduce que los principales mecanismos de retardo que intervinieron en los campos

próximo y lejano de los reactores de Okélobondo y Bangombé fueron:

- i) la sustitución isomórfica en minerales fosfatos y de la arcilla,
- ii) la precipitación de fase secundarias de U y REE, principalmente fosfatos,
- iii) la coprecipitación de oxihidróxidos de Fe, Mn, Ce y U, y
- iv) la adsorción en minerales de la arcilla y oxihidróxidos de Fe y Mn.

Sin embargo, el detalle de estos mecanismos, tanto en sus aspectos cualitativos como cuantitativos, está aún pendiente de ser estudiado en laboratorio, al objeto de obtener suficientes datos con los que alimentar modelos numéricos que permitan evaluar la competición existente entre estos procesos, en función de las condiciones físico-químicas y termodinámicas del medio natural.

Como contrapunto a los mecanismos de retención, los procesos de migración en el sistema estudiado han estado controlados por los procesos hidrotermales desarrollados durante la fisión y con otros desarrollados durante la historia geológica compleja del sitio, especialmente con las intrusiones doleríticas.

En relación con la intensa alteración meteórica que afecta a Oklo, especialmente al reactor de Bangombé, los procesos de migración de muchos radionucleidos están fuertemente ligados a los ciclos del C, Fe, Mn, S y P, en los que la intervención de microorganismos es relevante. Por el contrario, la migración asociada a coloides no parece ser importante.

Modelización

La conclusión más relevante que a este respecto se ha obtenido del proyecto "Oklo-Fase II" es la siguiente: los avances realizados en el proyecto Oklo, a partir del desarrollo, la aplicación y la comprobación de los modelos hidrogeológicos y geoquímicos usados en los ejercicios actuales de PA, son indicativos del grado de madurez alcanzado en todas las fases de la investigación.

En este sentido, los conceptos subyacentes, los datos cinéticos y termodinámicos y las herramientas requeridas están más adelantados que los métodos de adquisición de algunos datos críticos necesarios para la caracterización del sitio.

Implicaciones para la opinión pública

Desde el punto de vista de la opinión pública, el fenómeno Oklo constituye la principal fuente de información para mostrar y demostrar al gran público la capacidad del Planeta Tierra para neutralizar aquellos procesos que, por sus efectos, pueden contravenir la inexorable, positiva y constructiva ley de la evolución, por la que se rige el Planeta Azul desde su formación.

Esta ley, responsable de la irrupción de la vida hace aproximadamente 3.500 Ma, de su diversificación y "complejificación" (siguiendo la terminología de T. de Chardín), así como de la aparición de la especie humana y, consecuentemente, la noosfera (esfera inteligente), ha permanecido invariante a pesar de los múltiples acontecimientos, más o menos destructivos, acaecidos durante la dilatada historia de la Tierra, entre ellos la fisión natural del yacimiento de uranio de Oklo.

La existencia de 15 reactores naturales de fisión en dicho yacimiento, únicos conocidos pero no necesariamente exclusivos en la Tierra, parece contradecir el concepto, un tanto erróneo por exagerado, de que la radiactividad se opone al desarrollo de la vida y, por lo tanto, a la evolución biológica de nuestro Planeta. En definitiva, la existencia de estos reactores es una evidencia clara y patente de la importancia de los procesos radiogénicos en la habitabilidad del Planeta Tierra (Boecker, 1985).

La conservación de estos reactores a lo largo de 2.000 Ma, a pesar de haber estado sometidos a una larga e intensa alteración meteórica, actualmente bajo un clima ecuatorial, permite asegurar que el combustible nuclear gastado, almacenado en condiciones geológicas similares a las de dichos reactores naturales, puede permanecer sine die estable.

En el peor de los casos, el uranio, de alta movilidad geoquímica en condiciones oxidantes superficiales, así como los productos de su fisión, quedarían fácil y rápidamente retenidos por los materiales geológicos circundantes, tal y como se ha demostrado en las investigaciones realizadas en Oklo. Es decir, parece demostrarse una vez más que la propia Naturaleza dispone de medios para anular o, al menos, mitigar sus propios errores y despropósitos (principio de la homeostasis o hipótesis de Gaia). En consecuencia, la Naturaleza muestra evidencias contundentes que no contradicen los principios fundamentales en los que actualmente se apoyan los

modelos sobre la seguridad y el comportamiento previsible de un almacenamiento geológico profundo del combustible nuclear gastado.

Estas implicaciones, derivadas de las investigaciones realizadas en los reactores de Oklo, están avalladas, a su vez, por otros yacimientos de uranio del Planeta, los cuales, sin haber sufrido reacción nuclear de fisión, se han conservado estables desde su formación hasta nuestros días, constituyéndose en ejemplos próximos, evidentes y didácticos que reafirman el comportamiento homeostático del Planeta Tierra.

En este sentido, algunos de los investigadores del proyecto Oklo alertaron a la comunidad científica internacional sobre la necesidad de salvaguardar el yacimiento-reactor natural de Bangombé, como único vestigio intácto del fenómeno Oklo. Este reactor, por su crítica situación con respecto a los lentos procesos destructivos naturales, puede servir para insistir en la investigación aplicada a los almacenamientos del combustible nuclear gastado, así como de ejemplo, para las generaciones venideras, de la sabiduría e "instinto conservador" de la Naturaleza (Gauthier-Lafaye et al., 1997).

Referencias

- Blanc, P.-L. (1996).- Oklo-Natural analogue for a radioactive waste repository. Acquirements of the project. Nuclear Science and Technology. Final Report EUR 16857/1 EN, 123 pp.
- Blanc, P.-L., Gauthier-Lafaye, F. y Ledoux, E. (1997).- Déchets nucléaires naturels. *Science*, 237, 82-87.
- Bodu, R., Bouzigues, H., Morin, N., y Piffelmann, J. P. (1972).- Sur l'existence d'anomalies isotopiques rencontrées dans l'uranium de Gabon. *C. R. Acad. Sci. Paris*, 275, 1731-1734.
- Bracke, G., Salah, S., Gauthier-Lafaye, F. y Hidaka, H. (2000).- Pb-Pb and U-Pb Dating on Clays and Oxides at the RZ Bangombé and its implication for weathering and modelling. In: Proc. of the 3th and final EC-CEA workshop on Oklo-Phase II (Cadarache, France). Nuclear Science and Technology. Project Report. EUR 19137 EN, 91-110.
- Boecker, W. (1985).- How to build an habitable planet. Eldigio Press Ed.
- Bros, R. (1996).- Source term evaluation and near-field migrations around the Oklo natural reactors. In: Proc. of 4th Oklo working group meeting CEC-CEA and final meeting of the Oklo as a natural analogue (Saclay). EUR 16704 EN, 17-27.
- Bros, R., Roos, P., Andersson, P., Holm, E., Griffault, L. y Smellie, J. (2000).- Mobilization of fission products

- and ^{238}U -series radionuclides in the Bangombé reactor zone.- Migration trends and time-scale evaluation In: Proc. of the 3th and final EC-CEA workshop on Oklo-Phase II (Cadarache, France). Nuclear Science and Technology. Project Report. EUR 19137 EN, 227-241.
- Bros, R., Carpena, J., Sère V. y Beltritti A. (1996).- Occurrence of Pu and fissionogenic rare earth elements in hydrothermal apatites from the fossil naturel nuclear reactor 16 of Oklo (Gabon). *Radiochim. Acta*, 74, 277-282.
- Bruno, J. (2000).- Uses and applications of Oklo-Phase II results for nuclear Waste repository performance assessment. In: OKLO-natural analogue Phase II. Behaviour of nuclear reaction products in a natural environment. (Final Report) Nuclear Science and Technology. EUR 19139 EN, 81-94.
- Bruno, J., Cera, E., Grivé, M., Eklund, U-B. y Eriksen, T. (1999).- Experimental determination and chemical modelling of radiolytic processes at the spent fuel/water interface. SKB Technical Report TR 99-26.
- Casas, I., de Pablo, J., Giménez, J., Torrero, M. E., Bruno, J., Cera, E., Finch, R. y Ewing., R.C. (1998).- The role of pe and pH and carbonato on the solubility of UO_2 and uraninite under niminaly reducing conditions. *Geochim. et Cosmochim. Acta*, 13, 2223-2231.
- Cera, E., Merino, J. y Bruno, J. (2000).- Liberación de los radionucleidos e isótopos estables contenidos en la matriz del combustible. Modelo conceptual y modelo matemático del comportamiento del residuo. ENRESA, Informe Técnico PT 3/2000.
- Cui, D. y Eriksen, T. (2000).- The oxidation of uraninite and fission product aggregates, a natural analogue. In: Oklo working group. Proc. of the 2nd EC-CEA workshop on Oklo-Phase II (Helsinki, Finland). Nuclear Science and Technology. Project Report. EUR 19116 EN, 111-121.
- Curtis, D. B. Y Gancarz, A. J. (1983).- SKBF/KBS N° 83-10 (Sweden).
- Crespo, M.T. y Pérez del Villar, L. (2000).- U-serie disequilibrium in bulk samples from FA and FB formations in the surroundings of the Bangombé natural nuclear reactor (Gabon). In: Oklo working group. Proc. of the 3th and final EC-CEA workshop on Oklo-Phase II (Cadarache, France). Nuclear Science and Technology. Project Report. EUR 19137 EN, 167-177.
- Duro, L., Arcos, D., Bruno, J., Jordana, S., Grivé M., Pon, J., Castelier, E., Beaucaire, C., Fauré, M-H., Peña, J., Gimeno, M. J., del Nero, M., Ayora, C., Salas, J., Ledoux, E. y Madé, B. (2000).- Blind Prediction Modelling (BPM) Exercise in Oklo. In: Oklo working group. Proc. of the 3th and final EC-CEA workshop on Oklo-Phase II (Cadarache, France). Nuclear Science and Technology. Project Report. EUR 19137 EN, 285-305.
- Eberly, P., Janeczek, J., y Ewing, R. C. (1994).- Petrographic analysis of samples from the uranium deposit at Oklo. Republic of Gabon. *Radiochemica Acta*, 66/67, 455-461.
- Garralón, A., Gómez, P., Peña y Turrero, M.J. (2000).- Water-rock interaction processes in Bangombé. Oklo Working Group. In: Oklo working group. Proc. of the 3th and final EC-CEA workshop on Oklo-Phase II (Cadarache, France). Nuclear Science and Technology. Project Report. EUR 19137 EN, 253-261.
- Gurban, I., Ledoux, E y Winberg, A. (1994).- Caractérisation et modélisation des migrations à distance des zones de réaction. Synthèse des investigations hydrogéologiques réalisées sur le sites d'Okélobondo et Bangombé. Raport EMP/CIG, LHM/RD/94/47, 57pp.
- Gurban, I., Ledoux, E., Made, B., Salignac, A. L., Winberg, A., Smellie, J., Louvat, D. y Toulhoat, P., (1996).- Oklo, analogue naturel de déchets radioactifs (Phase I). Caractérisation et modélisation des migrations à distance des zones de réaction (Sites d'Okélobondo et de Bangombé). Rapport final EUR 16857/3, Vol. 3, 177pp.
- Gauthier-Lafaye, F. (1986).- Les gisements d'uranium du Gabon et les réacteurs d'Oklo. Modèle métallogénique de gites à fortes teneurs du Protérozoïque inférieur. *Mémoire Sciences Géologiques*, 78. 206 p.
- Gauthier-Lafaye, F. (1996).- Oklo, analogue naturel de stockage de déchets radioactifs (Phase 1). Géologie des réacteurs. Etude des éponges et des transferts anciens: Réacteurs de fission et système géochimiques anciens. Commission Européenne, Sciences et Techniques Nucléaire, EUR 16857/2, Vol. 2, 123-344.
- Gauthier-Lafaye, F., Blanc, P.-L., Bruno, J., Griffault, L., Ledoux, E., Louvat, D., Michaud, V., Montoto, M., Oversby, V., Pérez del Villar, L. y Smellie, J. (1997).- The last natural nuclear fission reactor. *Nature*, 387, 337.
- Gauthier-Lafaye, F., Ledoux, E., Smellie, J., Louvat, D., Michaud, V., Pérez del Villar, L., Oversby, V. y Bruno, J. (2000).- OKLO-natural analogue Phase II. Behaviour of nuclear reaction products in a natural environment. (Final Report) Nuclear Science and Technology. EUR 19139 EN, 116pp.
- Hidaka, H. y Holliger, P. (1998).- Geochemical and neutronic characteristics of the natural fission reactors at Oklo and Bangombé (Gabon). *Geochim. Cosmochim. Acta*, 60, 4831-4852.
- Holliger, P. (1991).- Systematic U-Pb et étude isotopicue in situ U-Produits de fission de la zone de réaction hybride SF29 (zone 10). Autres zones d'intérêt sur le site d'Oklo pour les études futures. Note technique DEM N° 18/91, CEA-CENG, 50 pp.
- Holliger, P. (1995).- Terme source: caractérisation isotopique, paramètres nucléaires et modélisation. Rap-

- port Contrat CCE n° F112W-CT91-0071. Programme Oklo - Analogues Naturels, 70 pp.
- Holliger, P. y Gauthier-Lafaye, F. (1996).- Oklo, analogue naturel de stockage de déchets radioactifs. Réacteurs de fission et système géochimiques anciens. Rapport Final Sciences et Techniques Nucléaires. EUR 16857/2 FR, Vol. 2, 344pp.
- Jensen, K.A. (1999).- The natural fission reactor in Gabon: mineralogy, uraninite chemistry and retardation of nuclear reaction products. PhD Thesis, Department of Earth Sciences, Faculty of Sciences, 8000 Aarhus C, Denmark.
- Jensen, K.A. y Ewing, R.C. (1998).- Petrography and chemistry of the uraninites and uraninites alteration phases from the uranium ore-deposit at Bangombé. In: Oklo working group. Proc. of the 1st EC-CEA workshop on Oklo-Phase II (Sitges, Spain). Nuclear Science and Technology. Project Report. EUR 18314 EN, 139-159.
- Jensen K. A. y Gauthier-Lafaye, F. (1998).- Field report for Mission CEA/CNRS 12/11-8/12 1997. Report for the Oklo Working Group-Oklo Natural Analogue - Phase II. April 1998. Dept of Earth Science. Aarhus University. DK-8000 Aarhus C.
- Jensen, K.A. y Ewing, R.C. (2000).- Microtexture and chemistry of unaltered uraninite in the Oklo, Okélobondo and Bangombé natural fission reactors. In: Oklo working group. Proc. of the 2nd EC-CEA workshop on Oklo-Phase II (Helsinki, Finland). Nuclear Science and Technology. Project Report. EUR 19116 EN, 61-91.
- Madé, B., Ledoux, E., Ayora, C. y Salas, J. (2000).- Coupled Chemical Transport Modelling of Uranium around the Reaction Zone at Bagombé (Oklo, Gabon). In: Oklo working group. Proc. of the 3th and final EC-CEA workshop on Oklo-Phase II (Cadarache, France). Nuclear Science and Technology. Project Report. EUR 19137 EN, 307-331.
- Michaud, V. y Mathieu, R. (1998).- Synthesis of existing information on the geological history of the Franceville basin and the Oklo-Okélobondo and Bangombé nuclear reactor zones (Gabon). Rapport Technique. Direction du Combustible. CEA. Centre de Cadarache. 13108 Saint Paul lez Durance. France.
- Montoto, M. (2000).- Petrophysical characterization of the groundwater migration pathways through the Bangombé (Gabon) rock matrix silicified sandstone. In: Oklo working group. Proc. of the 3th and final EC-CEA workshop on Oklo-Phase II (Cadarache, France). Nuclear Science and Technology. Project Report. EUR 19137 EN, 393-400.
- Naudet, R. (1991).- Oklo: des réacteurs nucléaires fossiles. Paris: Collection du Commissariat à l'Énergie Atomique. 695 pp.
- Neuilly, M., Bussac, J., Frejacques, C., Nief, G., Vendryes, G. y Yvon, J. (1972).- Sur l'existence dans un passé reculé d'une réaction en chaîne naturelle de fission, dans le gisement d'uranium d'Oklo (Gabon). C. R. Acad. Sci. Paris, 275, 1847-1849.
- OIEA (1975).- Le phénomène d'Oklo. Compte rendu d'un colloque sur le phénomène d'Oklo tenu à Libreville (Gabon). OIEA, Viena, 647 pp.
- OIEA (1978).- Les réacteurs de fission naturels, Compte rendu d'un colloque sur le phénomène d'Oklo tenu à Paris. OIEA, Viena.
- Oversby, V. (2000).- Oklo natural analogue project Phase II: Performance Assessment Applications. In: Oklo working group. Proc. of the 3th and final EC-CEA workshop on Oklo-Phase II (Cadarache, France). Nuclear Science and Technology. Project Report. EUR 19137 EN, 393-400
- Peña, J., Turrero, M. J., Gómez, P., Garralón, A., Duro, L., Arcos, D. y Bruno, J. (2000).- Water-rock interaction processes in Okélobondo. In: Oklo working group. Proc. of the 3th and final EC-CEA workshop on Oklo-Phase II (Cadarache, France). Nuclear Science and Technology. Project Report. EUR 19137 EN, 245-252.
- Pérez, I., Casas, I., de Pablo, J., Duro, L. y Bruno, J. (2000).- Dissolution studies of Oklo uraninite samples. In: Oklo working group. Proc. of the 3th and final EC-CEA workshop on Oklo-Phase II (Cadarache, France). Nuclear Science and Technology. Project report. EUR 19137 EN, 111-124.
- Pérez del Villar, L., Cózar J.S., Pardillo J., Pelayo, M., Labajos M.A., Delgado, A., Reyes, E. y Núñez, R. (2000a).- Mineralogical processes in the surroundings of the Bangombé reactor zone (FA and FB formations) in relation to the ancient and recent migration/retention events affecting analogue elements: inferences from elemental and stable isotope geochemical studies. In: Oklo working group. Proc. of the 3th and final EC-CEA workshop on Oklo-Phase II (Cadarache, France). Nuclear Science and Technology. Project Report. EUR 19137 EN, 45-74.
- Pérez del Villar L., Cózar J.S., Pardillo J. y Labajos M.A. (2000b).- Mineralogical characterization of fracture filling in the far field of the Bangombé natural reactor (Gabon): implications on the migration/retention processes involving natural radionuclides and other analogue elements. In: Oklo working group. Proc. of the 3th and final EC-CEA workshop on Oklo-Phase II (Cadarache, France). Nuclear Science and Technology. Project Report. EUR 19137 EN, 179-198.
- Piboule, M. y Amosse, J. (2000).- Comportement des platinoides dans le réacteur d'Okélobondo (République du Gabon). In: Oklo working group. Proc. of the 3th and final EC-CEA workshop on Oklo-Phase II (Cadarache, France). Nuclear Science and Technology. Project Report. EUR 19137 EN, 199-221.
- Quejido, A.J., Pérez del Villar, L., Fernández, M., Crespo, M.T. y Cózar, J.S. (2000a).- Mineralogical, chemical and isotopic characterisation of fissioned uraninite from Bangombé natural reactor (Gabon): eviden-

- ce of retention capacity of the UO_2 matrix for some fissionogenic products. In: Oklo working group. Proc. of the 3th and final EC-CEA workshop on Oklo-Phase II (Cadarache, France). Nuclear Science and Technology. Project Report. EUR 19137 EN, 137-154.
- Quejido, A.J., Fernández M., Pérez del Villar, L. y Campos, R. (2000b).- The role played by the FA and FB formations in the retention of some fissionogenic products in the surroundings of the Bangombé natural nuclear reactor (Gabon). In: Oklo working group. Proc. of the 3th and final EC-CEA workshop on Oklo-Phase II (Cadarache, France). Nuclear Science and Technology. Project Report. EUR 19137 EN, 155-166.
- Raimbault, L. (1998).- Remplissages fissurés à Okélobondo. Données analytiques et interprétations préliminaires. Rapport d'avancement LHM/RD/98/27, Ecole des Mines, Paris, 79 p.
- Royer, J.-J. y Le Carlier de Veslud, C. (1994).- Modelling heat and fluid transfers during natural nuclear reaction in the Oklo uranium deposit (Gabon). In: Proc. of 3rd joint Oklo working group meeting CEC-CEA, EUR 16098 EN/FR, 63-76.
- Royer, J.-J., Gerard, B. y Le Carlier de Veslud, C. (1995).- Modelling heat and fluid transfers during natural nuclear reaction in the Oklo uranium deposit (Gabon). In: Proc. of 4th Oklo working group meeting CEC-CEA and final meeting of the Oklo as a natural analogue (Saclay). EUR 16704 EN, 75-101
- Saltink, M.W., Benet, I. Y Ayora, C. (1997).- RETRASO, User's guide, UPC_CSIC, 97pp.
- Salah, S. (2000).- Weathering processes at the natural nuclear reactor of Bangombé (Gabon). Identification and geochemical modeling of the retention and migration mechanisms of uranium and fissionogenic rare earth elements. PhD. Université Louis Pasteur de Strasbourg. 227 pp.
- Salah, S., Gauthier-Lafaye, F., Del Nero, M. y Bracke, G. (2000).- FB formation: Mineralogy of the pelites and description of the weathering profile In: Oklo working group. Proc. of the 3th and final EC-CEA workshop on Oklo Phase II (Cadarache, France). Nuclear Science and Technology. Project Report. EUR 19137 EN, 75-90.
- Salas, J., Ayora, C., Madé, B. y Ledoux, E. (2000).- Coupled transport modelling around Okélobondo uranium deposit (Oklo, Gabon). In: Oklo working group. Proc. of the 3th and final EC-CEA workshop on Oklo Phase II (Cadarache, France). Nuclear Science and Technology. Project Report. EUR 19137 EN, 333-348.
- Savary, V. y Pagel, M. (1997).- The effects of water radiolysis on local redox conditions in the Oklo, Gabon, natural fission reactors 10 and 16. *Geochim. et Cosmochim. Acta*, 61, 4479-4494.
- Van der Lee, J. (1997).- HYTEC-1D, un modèle hydrogéochimique de migration de polluants et de colloïdes. Report Ecole des Mines de Paris. CIG, LHM/RD/97/02.
- Worely, T. J. (1992).- EQ3NR, a computer program for geochemical aqueous speciation-solubility calculations (version, 7.0) Lawrence Livermore Laboratory. URCL-MA-110662 PTIII.

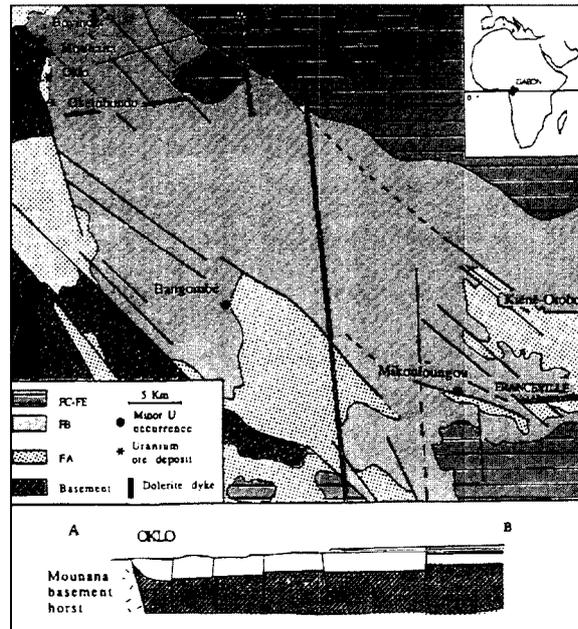


Figura 1. Mapa de situación de los yacimientos de Oklo, Okélobondo y Bangombé.

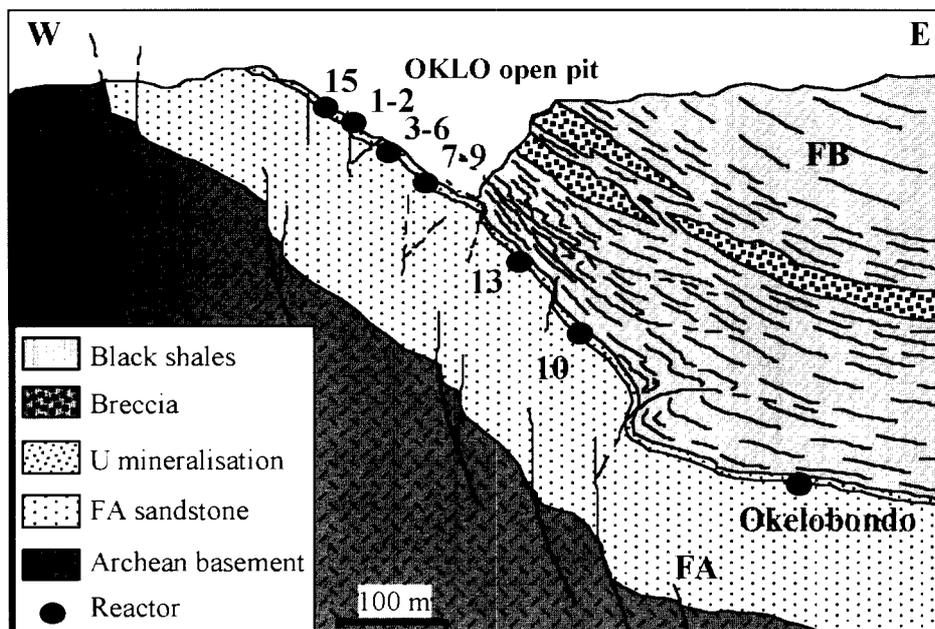


Figura 2. Corte geológico mostrando la situación de los reactores con relación a las formaciones FA y FB y a la superficie topográfica (Gauthier-Lafaye, 1996).



Figura 3. Huellas de los reactores 7, 8 y 9 sobre el nivel de conglomeración infrayacente al nivel C-1.

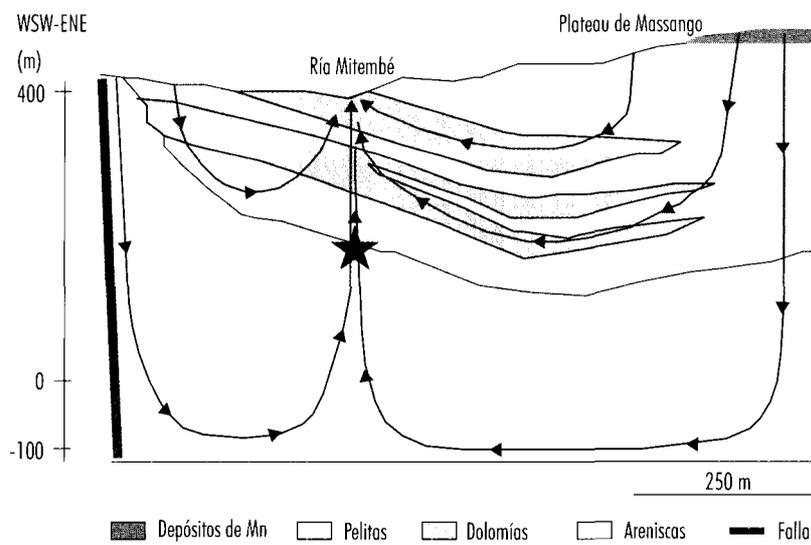


Figura 4. Modelo hidrogeológico del sector de Okétobondo.

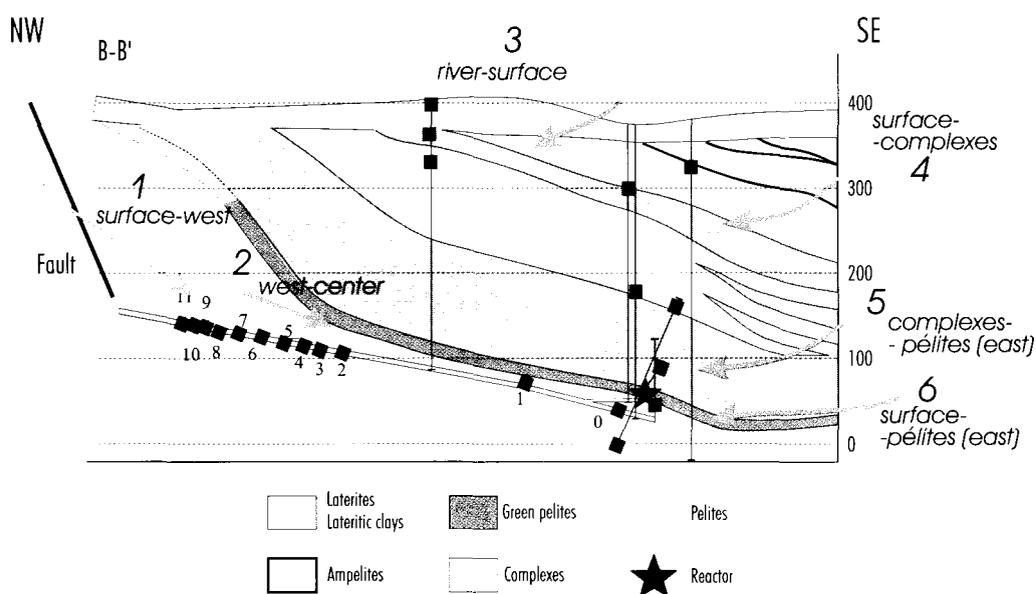


Figura 5. Situación de las muestras de agua en relación con las litologías del sector de Okélobondo.

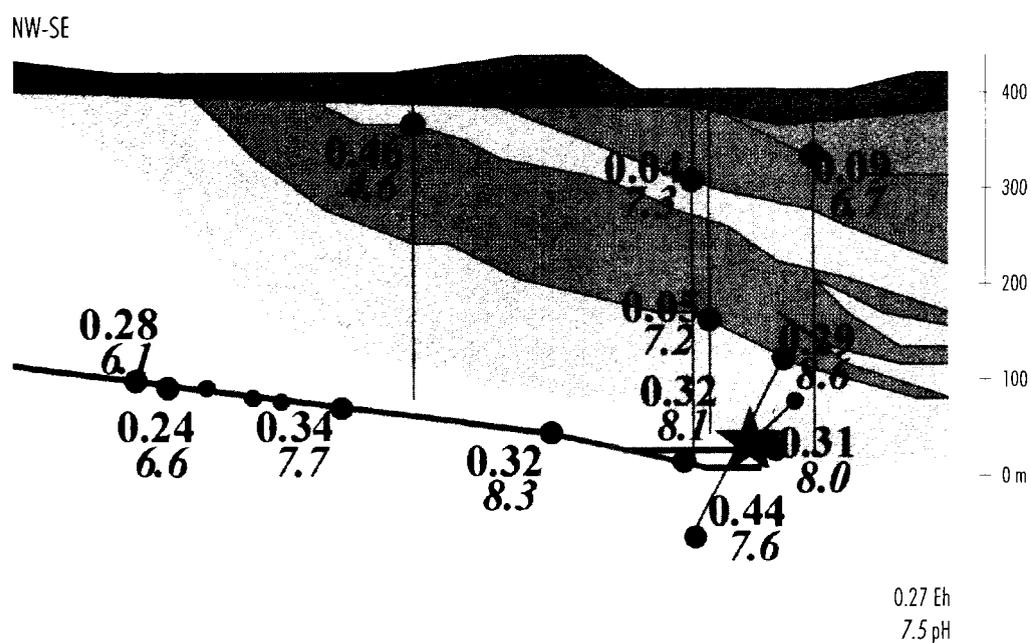


Figura 6. Distribución de los valores de pH y Eh en las aguas del sistema hidrogeoquímico de Okélobondo. Nótese que las aguas más oxidadas son las más profundas.

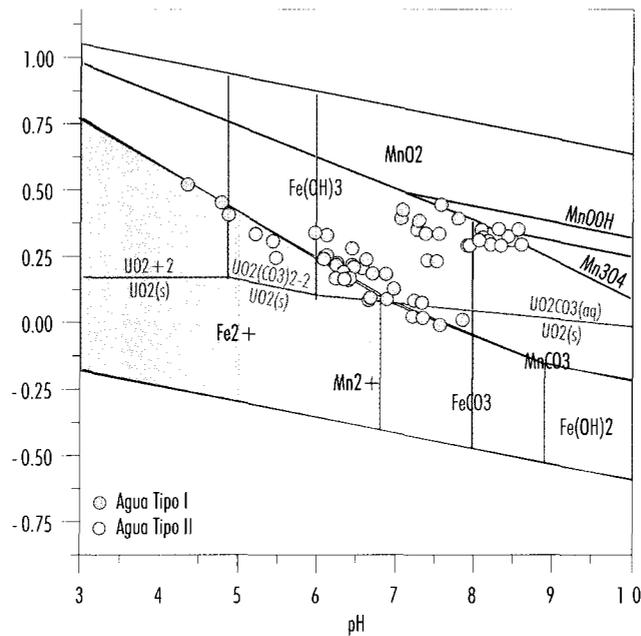


Figura 7. Situación de las aguas de Okélobondo en el diagrama de predominancia de las fases de Fe y Mn, en función del Eh-pH.

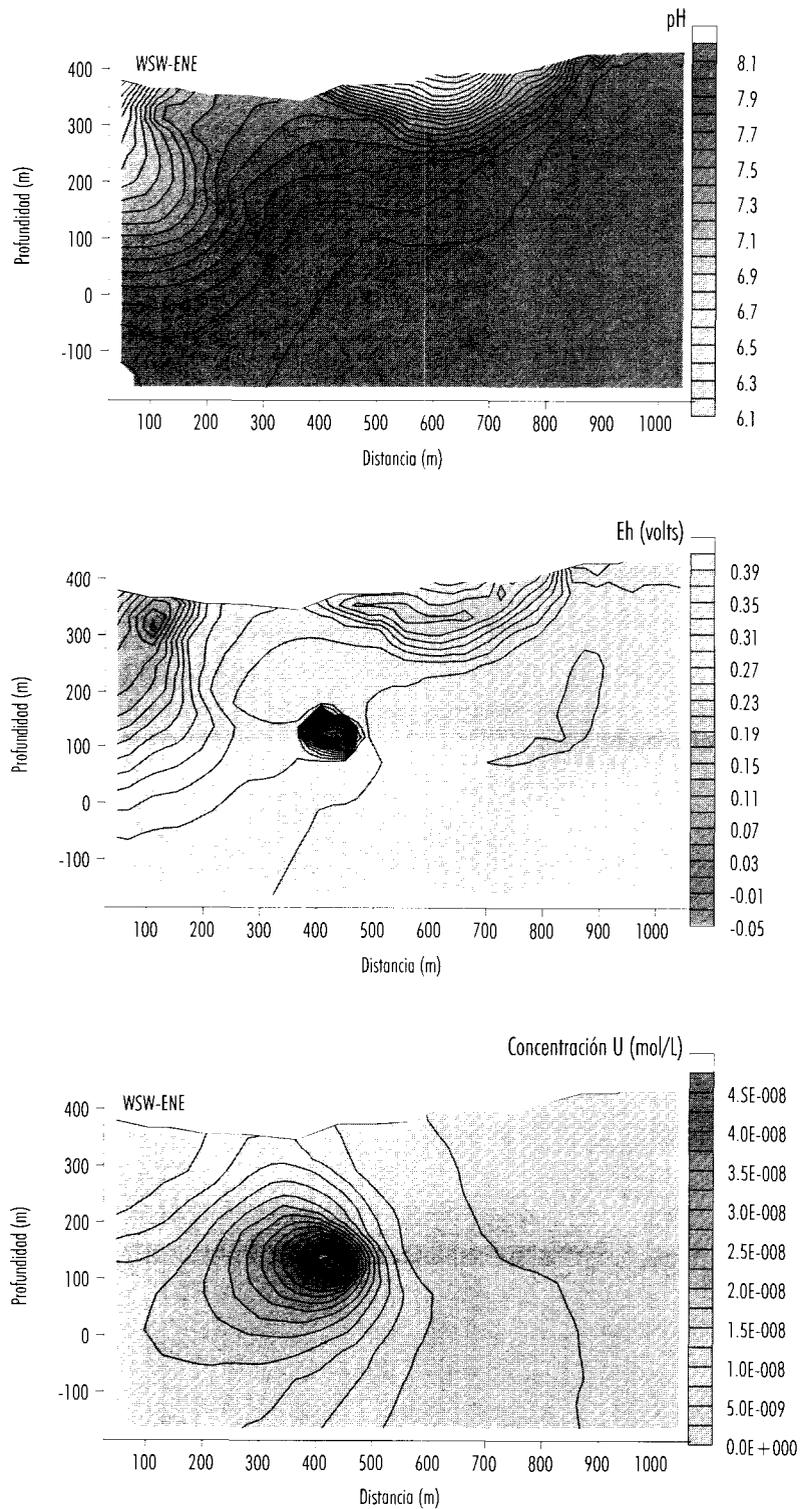


Figura 8. Modelos en 2D de los isovalores teóricos de pH, Eh y [U] en el sistema hidrogeoquímico de Okélobondo. Estos valores teóricos coinciden con los medidos.

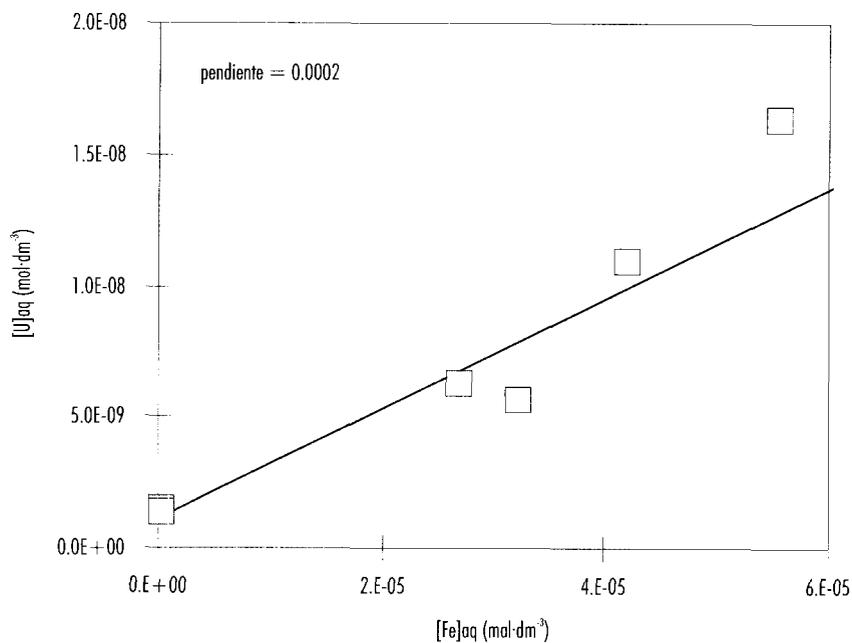


Figura 9. Recta de regresión entre las concentraciones de uranio y hierro medidas en las aguas Complexes.

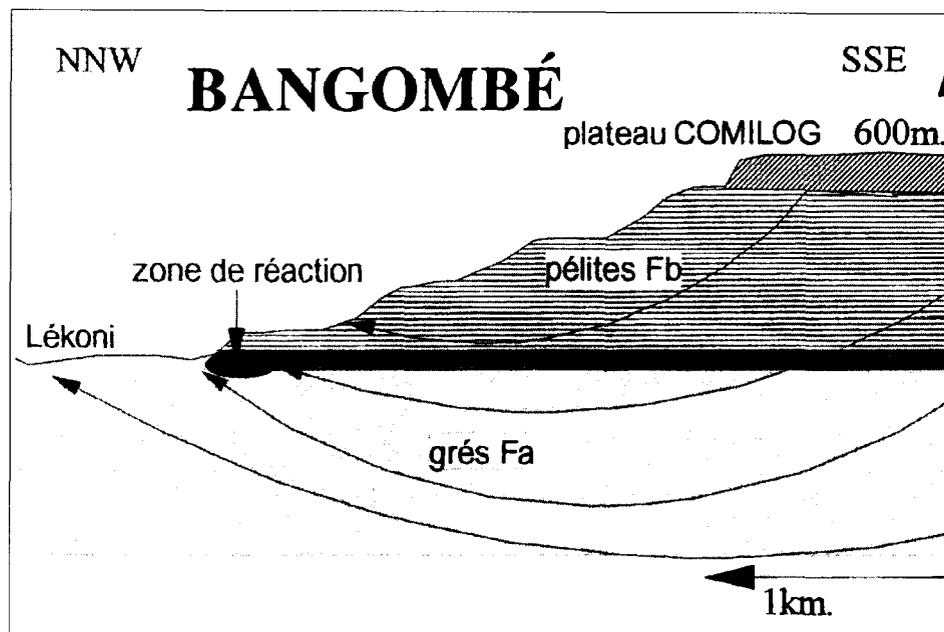


Figura 10. Corte geológico mostrando la situación del reactor de Bongombé (Gurban et al., 1994).



Figura 11. Uraninita fragmentada y parcialmente alterada a coffinita. Autunite precipitada sobre las salbandas de una fractura. Fosfatos complejos de U, Ca, Fe, Al y LREE precipitados sobre las salbandas de la misma fractura.

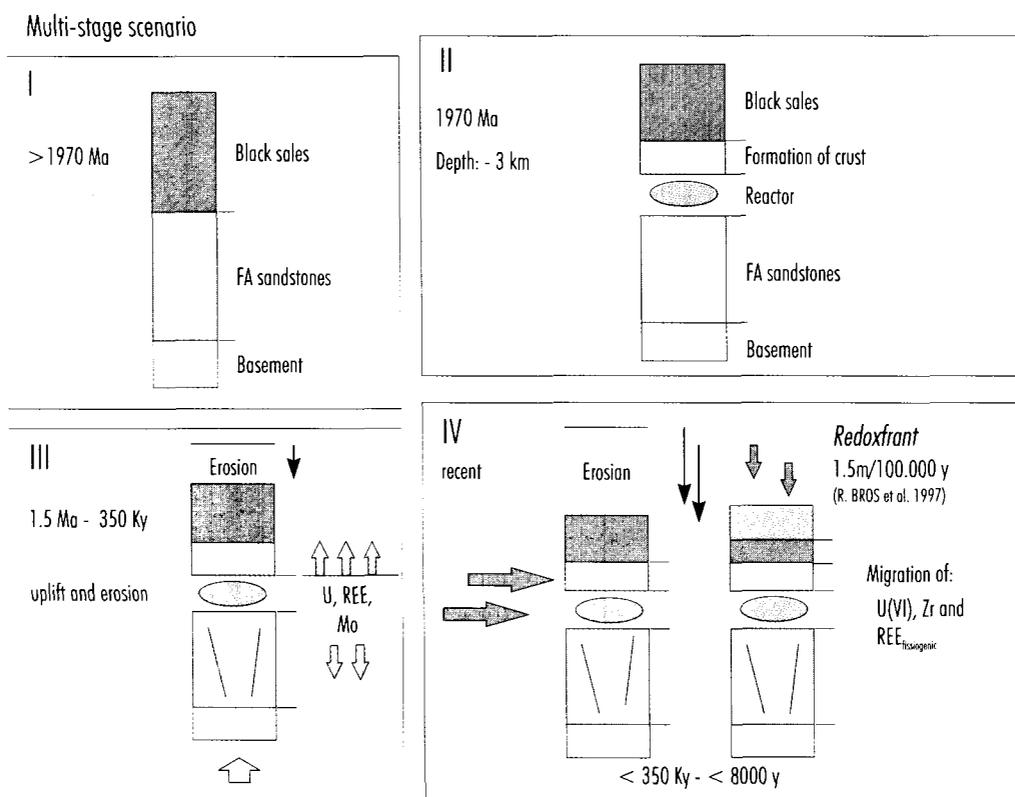


Figura 12. Modelo de funcionamiento geoquímico del sistema de Bangombé desde la formación del reactor (II) hasta tiempos subactuales (IV) (Salah et al., 2000).

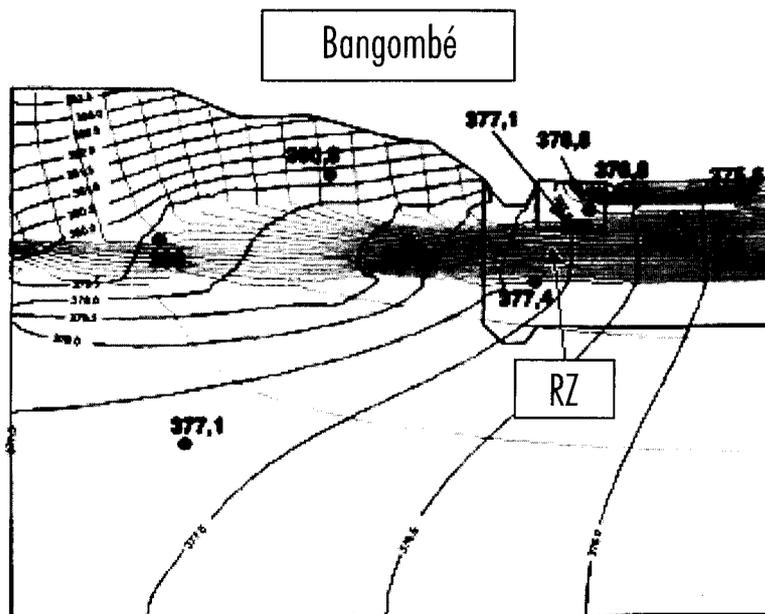


Figura 13. Modelo hidrogeológico del sistema de Bangombé (Gurbán et al., 1996).

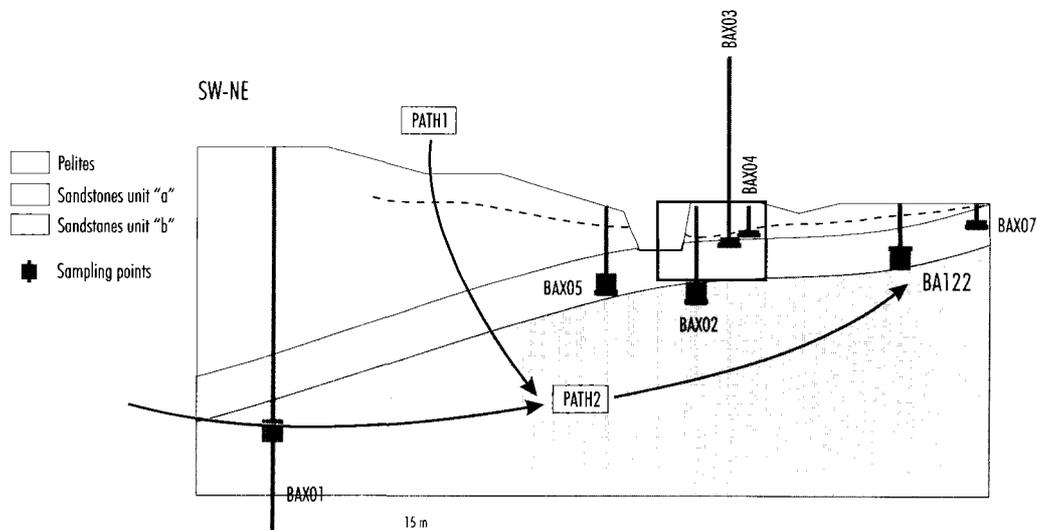


Figura 14. Modelo hidrogeoquímico del sistema de Bangombé.

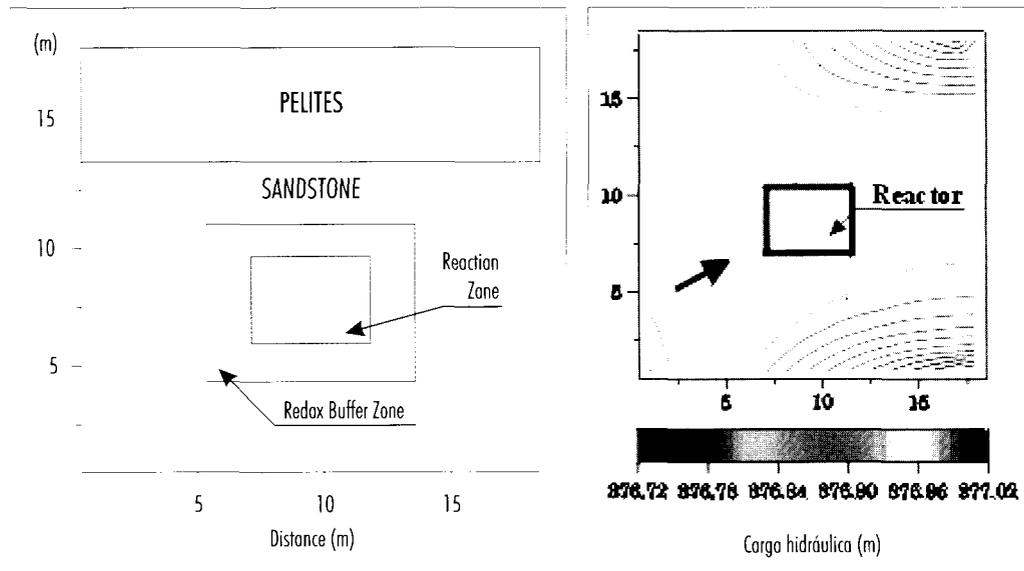


Figura 15. Modelo fisicoquímico e hidrogeológico en 2D del sistema geoquímico de Bangombé (Madé et al., 2000).

BENTONITAS COMO ANÁLOGO NATURAL DEL CAMPO PRÓXIMO: PROYECTO BARRA-I

D. Arcos, J. Bruno
ENVIROS-QUANTISCI

J. Linares, J. Martínez, E. Caballero, C. Jiménez
CSIC

A.M. Fernández, M. Pelayo, M.V. Villar, P. Rivas, L. Pérez del Villar
CIEMAT

Introducción

El proyecto BARRA se encuentra enmarcado en el programa de análogos naturales de ENRESA. Este programa es de vital importancia para determinar el comportamiento a largo plazo de los elementos que constituyen el campo próximo de un almacenamiento de residuos nucleares. El proyecto BARRA se centra en el estudio de depósitos de bentonita (Cabo de Gata, Almería) como análogos de la barrera de bentonita del campo próximo. La bentonita del Cabo de Gata no sólo ha sido estudiada como análogo natural de la barrera arcillosa, su importancia radica, además, en que se trata del material candidato para la construcción de dicha barrera según el concepto de ENRESA y también en su utilización en el proyecto FEBEX como barrera arcillosa.

El proyecto BARRA se inició en 1997 con la participación de grupos pertenecientes a distintas organizaciones nacionales (ENRESA, CIEMAT, CSIC y QuantiSci). Esta primera parte del proyecto, que se denominó BARRA-I, finalizó en 1999. En la actualidad se ha iniciado una segunda parte del proyecto (BARRA-II) para el periodo 2000-2003, en el cual se incluye la participación, además de los grupos nacionales mencionados anteriormente, de grupos internacionales como SKB (Suecia), IPSN (Francia), RAWRA (República Checa) y ISMES (Italia).

Las principales funciones de la barrera arcillosa en el campo próximo son, por un lado, minimizar el flujo de agua subterránea hacia el contenedor del combustible y, por otro lado, retardar la migración

de radionucleidos hacia la geosfera. Estas funciones se pueden subdividir en los siguientes aspectos:

- ❑ Disminuir el flujo de agua hacia el contenedor.
- ❑ Actuar como una barrera difusiva para minimizar el flujo de oxidantes hacia el contenedor y de radionucleidos hacia la geosfera.
- ❑ Actuar como tampón de alcalinidad y redox para mantener las principales variables (pH y Eh) en valores favorables.
- ❑ Permitir una capacidad retentiva de radionucleidos suficientemente grande.
- ❑ Disipar el calor generado por el combustible gastado.
- ❑ Absorber los efectos mecánicos debidos a la tensión inducida por movimientos sísmicos.

Estas funciones pueden verse afectadas significativamente debido a los efectos producidos por las variaciones en la composición química del agua (incremento de salinidad, flujo de aguas oxidantes) y/o por gradientes físicos (incremento de temperatura debido a la generación de calor desde el contenedor, presión inducida por los contenedores sobre la barrera arcillosa).

A partir de las investigaciones preliminares en los depósitos de bentonita de Almería, se ha evidenciado la existencia de estos procesos y de los efectos asociados, por consiguiente, el proyecto BARRA se ha enfocado hacia el estudio de estos fenómenos.

Objetivos

El objetivo del proyecto BARRA es determinar cualitativa y cuantitativamente los efectos producidos por incremento de presión, aumento de temperatura e intrusiones de aguas oxidantes y de aguas de elevada salinidad en distintos afloramientos de bentonita del Cabo de Gata.

Algunos de los procesos mencionados anteriormente tendrán lugar indudablemente en el campo próximo (como es el caso del gradiente térmico debido a la difusión de calor desde el combustible gastado), mientras que otros pueden llegar a producirse durante el estadio operacional del almacenamiento. El estudio de los afloramientos de bentonita seleccionados permitirá determinar qué cambios químicos y mineralógicos se han producido en la bentonita a consecuencia de los procesos mencionados anteriormente. Los cambios que principalmente pueden ocurrir en la bentonita son los siguientes:

- Illitización
- Disolución de minerales accesorios
- Cementación
- Intercambio catiónico
- Reemplazamiento de agua intersticial
- Variaciones en la capacidad de hinchamiento
- Cambios en las propiedades hidráulicas y mecánicas

La evaluación del comportamiento del AGP (Almacenamiento Geológico Profundo) diseñado por ENRESA considera la existencia de los procesos descritos anteriormente, como un incremento de temperatura y el efecto de la carga del contenedor sobre la bentonita. Aunque estos procesos pueden simularse en el laboratorio, los resultados no pueden extrapolarse a la escala de tiempo del almacenamiento. Por este motivo, el estudio de análogos naturales, donde estos procesos han estado actuando durante largos periodos de tiempo, es indudablemente la única manera de obtener datos sobre sus efectos a largo plazo.

Situación geológica

El Cabo de Gata es una zona volcánica, cuya actividad está relacionada con la fase tectónica extensiva en el mar de Alborán durante los periodos Serravaliense-Tortonense inferior (14-10 Ma) y Torto-

niense superior (9-7,5 Ma). Las rocas volcánicas afloran en una estrecha banda de dirección NE-SO desde el Cabo de Gata hasta el sur de Murcia (Fig. 1), aunque también se encuentran bajo el mar de Alborán y están relacionadas con el volcanismo del norte de África.

Las rocas volcánicas del Cabo de Gata pertenecen a una serie calcoalcalina principalmente representada por andesitas basálticas, andesitas, dacitas y riolitas (Fernández Soler, 1992). Se han distinguido tres periodos de actividad volcánica durante el Mioceno (Fernández Soler, 1992). El primero (Mioceno medio) está constituido por rocas andesíticas y dacíticas. El segundo episodio dio lugar a rocas de composición dacítica a andesitas piroxeno-anfibólicas durante el Tortonense inferior. Durante el tercer periodo (Tortonense superior) extruyeron grandes cantidades de dacitas y riolitas anfibólico-biotíticas. Una intensa actividad hidrotermal relacionada con el volcanismo dio lugar a la alteración de las rocas volcánicas y la formación de depósitos epitermales de oro en el área de Rodalquilar.

Cada uno de los episodios volcánicos se inició con fases explosivas que dieron lugar a la formación de rocas piroclásticas y de grandes calderas (en algunos casos de más de 5 km de diámetro), seguidas por la extrusión de coladas de lava e intrusiones de domos subvolcánicos. La alteración de las rocas piroclásticas (tuffs) dio lugar, en algunos casos, a la formación de bentonitas, cuyos afloramientos se distribuyen por toda la zona del Cabo de Gata.

Frecuentemente, se encuentran rocas carbonatadas con abundantes fósiles intercaladas entre las diferentes unidades volcánicas (Bordet, 1985) que, junto con la presencia de facies volcánicas hidromagmáticas, indican que gran parte de la actividad volcánica se produjo en condiciones marinas poco profundas (Fernández Soler, 1992). De todos modos, la presencia de paleosuelos de edad Tortonense superior-Mesiniense inferior al norte del Cabo de Gata confirma que, al menos durante este periodo, la zona volcánica se encontraba emergida.

En aquellas zonas donde las rocas volcánicas se fracturaron de manera considerable los minerales constituyentes de estas rocas fueron transformados por alteraciones hidrotermales, dando lugar a asociaciones minerales de baja temperatura. Los procesos de alteración fueron debidos a la interacción de estas rocas con dos tipos distintos de fluidos hidrotermales, que afectaron más intensamente a las rocas piroclásticas. Fluidos hidrotermales sulfatados ácidos que dieron lugar alteraciones típicas de de-

pósitos minerales epitermales, como los que se encuentran en Rodalquilar (Arribas et al., 1995), mientras que fluidos de pH neutro, mucho más extendidos en la zona del Cabo de Gata que los anteriores, dieron lugar a la formación de bentonita debido a la interacción con rocas piroclásticas (Caballero et al., 1985, 1992).

Bentonitas del Cabo de Gata

Se han descrito más de 30 afloramientos de bentonita en el Cabo de Gata. Caballero et al. (1985) distinguieron 3 zonas a partir de las características químicas de las bentonitas:

- Serrata de Níjar
- Sector norte de la Sierra del Cabo de Gata
- Sector sur de la Sierra del Cabo de Gata

De acuerdo con estos autores la homogeneidad relativa de las bentonitas en cada una de estas zonas depende, no solamente del tipo de roca original, depende además de la composición química y la temperatura de la solución hidrotermal.

Las bentonitas del sector sur del Cabo de Gata exhiben un contenido de filosilicatos inferior al del resto de zonas, así como mayores contenidos de cuarzo, tridimita y zeolitas. Cuando se compara la composición química de las bentonitas de las distintas zonas, se observa que las del norte del Cabo de Gata presentan contenidos inferiores en hierro y superiores en magnesio respecto a las otras dos zonas. Esto es debido al grado de bentonitización en el sector norte del Cabo de Gata es superior (Delgado et al., 1993), ya que el grado de alteración se correlaciona inversamente con el contenido en hierro, tal y como ya indican Caballero et al. (1991). El elevado contenido en magnesio de estas bentonitas puede ser consecuencia del elevado contenido en Mg de las aguas subterráneas que provienen de los macizos metamórficos de Sierra Alhamilla y Sierra Cabrera.

Otro aspecto importante de las bentonitas del Cabo de Gata es la elevada salinidad de las aguas intersticiales. Tal y como se puede observar en la Tabla I, las aguas intersticiales de las bentonitas del Cabo de Gata (S-2 y FEBEX) son hasta cinco veces más salinas que otras aguas intersticiales de bentonitas (Fernández y Cuevas, 1997), como MCA-C (bentonita del centro de España) o MX-80 (de Wyoming, E.E.U.U.). Esta característica nos permite estudiar el efecto de aguas de elevada salinidad en la estabilidad y el comportamiento de la bentonita

como barrera de ingeniería de almacenamientos de residuos nucleares.

Origen de los depósitos de bentonita del Cabo de Gata

Las bentonitas del Cabo de Gata se formaron a partir de la alteración de rocas piroclásticas, pero sólo en aquellas zonas en que estas rocas se encontraban intensamente fracturadas. Esto parece indicar que los fluidos que circulaban a través de estas fracturas eran los que daban lugar a la alteración de estas rocas. La composición isotópica de oxígeno y deuterio de estas bentonitas sugiere que estos fluidos eran de origen meteórico con temperaturas entre 40 y 120°C (Linares et al., 1993; Delgado et al., 1993; Leone et al., 1983), aunque la contribución de agua marina en el proceso de alteración no puede ser descartada.

Caballero et al. (1985) estudiaron la composición química de estas bentonitas, concluyendo que las áreas de recarga de las aguas se encontraban en las Sierras de Alhamilla y Cabrera, al norte del Cabo de Gata (principalmente constituidas por rocas metamórficas). Las aguas subterráneas circularon hacia el sur y fueron calentadas por el efecto de la actividad volcánica y/o simplemente por el gradiente geotérmico local.

La composición química de la bentonita también depende de la composición original de la roca alterada. Caballero et al. (1992) realizaron unos cálculos de balances de masa, concluyeron que las diferencias son debidas a que grandes volúmenes de agua aportaron Fe, Ca y Mg y lixiviaron Si, Na y K.

Afloramientos seleccionados

En el Cabo de Gata se han descrito más de 30 afloramientos de bentonita, entre los cuales algunos presentan un interés particular para el estudio de análogos naturales, puesto que han sido afectados durante largos periodos de tiempo por alguno de los procesos considerados en la evaluación del comportamiento (ver Figura 1).

- Incremento de temperatura
 - ⇒ Cala del Tomate
 - ⇒ Morrón de Mateo
- Efecto de presión ejercido por el peso del contenedor

- ⇨ Pozo Usero
- Intrusión de aguas oxidantes
 - ⇨ El Corralete
 - ⇨ Cala Rajá
- Efecto de aguas de salinidad elevada
 - ⇨ Cortijo de Archidona
 - ⇨ El Corralete y San José

Incremento de temperatura

Algunos de los depósitos de bentonita se encuentran intersectados por domos subvolcánicos que intruyeron a las bentonitas después de su formación. Estas intrusiones produjeron una débil aureola metamórfica debido a la elevada temperatura de la intrusión, incluso considerando que estas intrusiones se enfriaban rápidamente (del orden de decenas de años).

Entre los afloramientos que han sido intruidos por este tipo de rocas subvolcánicas, Morrón de Mateo y Cala del Tomate han sido investigados. Estos dos afloramientos se encuentran localizados en la zona de Los Frailes (Fig. 2).

Morrón de Mateo

El depósito de bentonita de Morrón de Mateo fue intruido por un conjunto de domos masivos de dacitas biotítico-anfibólicas (Fig. 3). El conjunto de domos de Morrón de Mateo está formado por una serie de domos-diques que han intruido en etapas sucesivas, dando lugar a varios cuerpos de geometría groseramente filoniana o en embudo. Aunque las dataciones calculadas por el método K-Ar indican edades dispares de 8,9 y 11,6 Ma, éstas deben considerarse con precaución, dado el estado general de oxidación y alteración de las rocas, que está especialmente acentuado en el extremo oriental del conjunto de domos.

Cala del Tomate

La bentonita de Cala del Tomate fue intruida por un domo andesítico piroxénico. Se trata de una intrusión subvertical de geometría filoniana con una potencia máxima de 350 m (Fig. 4). La edad de la intrusión se ha calculado en 10,5-11 Ma. El efecto térmico es más evidente que en el caso de Morrón de Mateo, dando lugar a una banda de bentonita con una coloración más oscura en la zona cercana al contacto intrusivo, que se ha interpretado como una aureola de metamorfismo de contacto. En este

caso, la temperatura de la intrusión también se ha determinado por extrapolación a partir de otros domos andesítico piroxénicos equivalentes a los de la Cala del Tomate, con temperaturas de entre 930 y 1020°C. Es poco probable que la duración del efecto térmico sobre la bentonita haya excedido las pocas decenas de años, ya que al tratarse de una intrusión subvolcánica, ésta tiende a enfriarse de manera relativamente rápida.

Efecto presión

La bentonita de Pozo Usero se encuentra recubierta por una unidad de calizas arrecifales de espesor variable, que se depositaron durante el Mioceno superior. La estructura del arrecife ha permanecido prácticamente intacta, siendo mínimos los efectos debidos a la erosión. Puesto que esta unidad litológica presenta una potencia variable (Fig. 5), la bentonita puede haber sufrido un efecto diferencial de presión que diera lugar a cambios químicos y mineralógicos en función de la potencia de carbonatos que se encuentra encima.

Intrusión de aguas oxidantes

Algunos de los afloramientos de bentonita del Cabo de Gata se encuentran recubiertos por paleosuelos, como en el caso de El Corralete y Cala Rajá. La interacción de aguas meteóricas con estos paleosuelos puede dar lugar a la formación de frentes oxidantes que penetran en la bentonita. Estos frentes oxidantes pueden dar lugar a cambios químicos y mineralógicos susceptibles de ser estudiados.

Efecto de aguas de salinidad elevada

Aquí se ha considerado el efecto relacionado con la existencia de aguas intersticiales de salinidad elevada, que a menudo se encuentran presentes en la bentonita. El depósito seleccionado para este estudio es el de Cortijo de Archidona (Fig. 6). La bentonita de este depósito ha sido seleccionada para ser utilizada como material de barrera en almacenamientos de residuos radiactivos. En la actualidad, está siendo utilizada para llevar a cabo una serie de proyectos relacionados con el comportamiento y durabilidad de este tipo de materiales, como el proyecto FEBEX.

Se ha observado que existe cierta correlación entre el grado de salinidad de las aguas intersticiales y la presencia de interstratificados esmectita-illita, de

tal manera que el contenido de esmectita es mayor cuanto menor es la salinidad. En teoría, la presencia de frentes de alta salinidad puede dar lugar a la formación de estos interestratificados.

Resultados

Durante el desarrollo del proyecto BARRA-I se obtuvieron unos resultados preliminares que permitieron establecer un punto de partida para iniciar la segunda parte del proyecto (BARRA-II), actualmente en desarrollo. En algunos de los casos estudiados, los resultados fueron suficientemente satisfactorios para plantearse un estudio más detallado que permitiera desarrollar modelos conceptuales y numéricos de utilidad para la evaluación del comportamiento del campo próximo. En otros casos, se precisa de mayor información para considerar su potencial analogía con un mayor grado de fiabilidad. A continuación se describen los principales resultados y conclusiones obtenidos durante el desarrollo del proyecto BARRA-I para cada uno de los procesos considerados.

Incremento de temperatura

Los resultados de los estudios realizados en los afloramientos de Morrón de Mateo y Cala del Tomate se consideran por separado ya que el efecto de la anomalía térmica es diferente en cada uno de estos dos casos.

Morrón de Mateo

Los grupos del CSIC y CIEMAT (Pelayo et al., 1999 y Martínez et al., 1998) llevaron a cabo estudios de caracterización mineralógica, agua intersticial y composición isotópica del sólido en muestras de bentonita recogidas cerca del contacto intrusivo y a distancias variables de éste. Los análisis mineralógicos se realizaron tanto en roca total como para la fracción inferior a 20 μm . Los resultados obtenidos se encuentran en las Tablas II a VI.

Estos resultados no muestran una tendencia clara de la composición mineralógica e isotópica de las muestras en función de la distancia al contacto intrusivo. Existen una serie de hipótesis para explicar el motivo de la ausencia de variaciones debidas al efecto térmico en estas muestras:

- El efecto térmico fue demasiado débil para afectar a la bentonita, incluso en el contacto intrusivo.

- La zona muestreada se encuentra demasiado cerca del contacto, de tal manera que sólo se observan los efectos debidos a la elevada temperatura. Se necesitarían más muestras alejadas de la intrusión para verificar esta hipótesis.
- El gradiente de temperatura es demasiado abrupto, de tal manera que el calor de la intrusión no afectó a la bentonita.
- La velocidad de enfriamiento fue muy rápida y por tanto no hubo tiempo suficiente para afectar a la bentonita.
- Un contenido muy bajo en agua intersticial pudo impedir cualquier cambio en la bentonita.

Es necesario realizar un estudio más detallado para poder evaluar los posibles cambios en la bentonita y para determinar cual de las hipótesis mencionadas anteriormente es la correcta. El estudio microtermométrico de inclusiones fluidas en los minerales contenidos en la bentonita (p. ej. cristobalita), puede ser muy útil para evaluar las temperaturas del agua intersticial de la bentonita en las inmediaciones del contacto intrusivo y para determinar los gradientes térmicos existentes desde dicho contacto. Los análisis de aguas intersticiales de las muestras tomadas en la cercanía del contacto muestran una acumulación de K, N y C y un empobrecimiento en Cl, S, Na, Ca y Mg que indica la movilización de fluidos.

Cala del Tomate

En el caso de la Cala del Tomate, el efecto del metamorfismo térmico sobre la bentonita es más evidente, incluso a escala de afloramiento, donde la bentonita cercana al contacto intrusivo presenta una coloración más oscura. Los resultados analíticos del estudio de la bentonita de Cala del Tomate se presentan en las Tablas VII, VIII y IX.

El análisis de estos datos permite determinar que el contenido de cuarzo, cristobalita y illita aumenta cerca del contacto, mientras que el contenido de esmectita en la fracción <20 μm aumenta al aumentar la distancia del contacto intrusivo (Fig. 7). Sería interesante llevar a cabo un detallado estudio mediante SEM de la estructura porosa y de las secuencias de crecimiento/degradación mineral de la bentonita para relacionar mejor estas relaciones espaciales con un modelo de frente térmico de reacción. Este modelo podría simular las interacciones bentonita/agua intersticial en función del gradiente térmico.

El efecto del gradiente térmico también se hace evidente al analizar los datos de composición isotópica del oxígeno de la bentonita (Fig. 8), aunque todavía es necesario disponer de información sobre las temperaturas que ha alcanzado la bentonita. Esta temperatura se puede evaluar del mismo modo que en Morrón de Mateo, utilizando la técnica microtermométrica de inclusiones fluidas en los minerales de la bentonita. En este caso, se requiere un estudio más detallado para evaluar el efecto real del incremento de temperatura en la bentonita. Además, puede ser de gran utilidad la utilización de muestras para evaluar cambios en la conductividad hidráulica producidos por la cementación mineral asociada al gradiente térmico.

Efecto presión

En el depósito de bentonita de Pozo Usero, las calizas arrecifales que se encuentran sobre la bentonita podrían aportar información muy útil sobre las propiedades hidráulicas y mecánicas relacionadas con el efecto del peso ejercido por el contenedor en condiciones de repositorio.

De acuerdo con los estudios relacionados con la estabilidad mecánica del campo próximo de un repositorio (Villar, 1998), parece que no se esperan cambios relevantes a corto plazo en la bentonita debido al efecto de carga del contenedor. Sin embargo, existe un profundo desconocimiento de cuál es el efecto producido por esta carga a largo plazo. Parece posible que las diferencias entre las propiedades mecánicas de la bentonita y del granito podrían conllevar importantes cambios en las propiedades de la bentonita.

En primer lugar, es importante determinar el rango de presiones que supondría la carga del contenedor y compararlas con aquellas calculadas en Pozo Usero como consecuencia de la carga litostática de las calizas sobre la bentonita. Considerando la densidad de la calcita ($2,72 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$) y el rango de potencias de la unidad carbonatada (desde 0 hasta unos 30 m), es posible calcular el rango de presiones debido a la carga litostática (1,0 hasta 9,1 bars). Por otra parte, si consideramos el diseño de repositorio de ENRESA (ENRESA, 1997), el contenedor de combustible gastado es de 15.000 kg. La presión de carga ejercida por el contenedor en posición horizontal sería de aproximadamente 1,6 bars, mientras que en posición vertical sería de unos 2,4 bars, en ambos casos los valores quedarían comprendidos dentro del rango de presiones

ejercidos por la unidad de calizas sobre el depósito de bentonita de Pozo Usero.

En este depósito, el grado de bentonización de las tobas volcánicas es variable, de tal manera que, en profundidad, las bentonitas pasan gradualmente a las rocas volcánicas no alteradas. Para evaluar el efecto presión sobre la bentonita se decidió tomar muestras en una zona donde las diferencias debidas al grado de bentonización pudieran descartarse y la única variable fuera el espesor de calizas suprayacentes. A partir del estudio de estas muestras se determinó que el único cambio observable era la cristalinidad de la esmectita, la cual decrecía al aumentar la presión litostática (Fig. 9).

Intrusión de aguas oxidantes

Los datos obtenidos de los diferentes afloramientos estudiados no permiten obtener conclusiones claras. A partir de los datos preliminares no se identificó ningún tipo de migración de óxidos de hierro, indicando que los afloramientos estudiados no eran los más idóneos. Sin embargo, no se descarta la posibilidad de seleccionar otros afloramientos de bentonita donde estos efectos sean más claros y haya mayores garantías de éxito.

Efectos producidos por aguas de elevada salinidad

En el depósito del Cortijo de Archidona, el grupo del CIEMAT ha llevado a cabo un exhaustivo estudio de la bentonita (mineralogía, capacidad de cambio de la bentonita, etc.) y de los efectos de las aguas de elevada salinidad sobre las propiedades de la bentonita (Fernández et al., 2000).

Uno de los aspectos más relevantes que se ha observado es la dependencia de la capacidad de hinchamiento de la bentonita con parámetros tales como la concentración de Ca del intercambiador catiónico y el pH de las aguas intersticiales. Los datos analíticos obtenidos se muestran en la Tabla X. Se ha observado que un aumento del pH hace disminuir la presión de hinchamiento de la bentonita (Fig. 10), mientras que un aumento del contenido de Ca del intercambiador catiónico hace aumentar la presión de hinchamiento (Fig. 11). Este efecto es muy importante, ya que pone de manifiesto la importancia de la interacción agua-bentonita en presencia de calcita que puede tamponar el pH y controlar el contenido de Ca del intercambiador.

Por otra parte, a partir del estudio de las aguas intersticiales de la bentonita, cuya extracción ha sido llevada a cabo mediante la técnica de squeezing, se ha podido establecer una relación directa entre las distintas zonas del depósito (Fig. 6) y el tipo de agua dominante. De este modo se ha deducido que el agua intersticial de la bentonita es de tipo Cl-Na y que se encuentra cerca de saturación respecto de calcita, barita y cristobalita. Por otra parte, la bentonita con un porcentaje de clastos dacíticos de entre 30 y 60% contiene un agua intersticial de tipo Cl-Na-Mg. En cambio, cerca del contacto con la roca volcánica menos alterada, el agua intersticial de la bentonita es de tipo SO_4^{2-} -Cl-Na.

Referencias

- Arribas, A. Jr., Cunningham, C.G., Rytuba, J.J., Rye, R.O., Kelly, W.C., Podwysoki, M.H., McKee, E.H. y Tosdal, R.M. (1995): Geology, geochronology, fluid inclusions, and isotope geochemistry of the Rodalquilar gold alunite deposit, Spain. *Econ. Geol.*, 90: 795-822.
- Bordet, P. (1985): Le volcanisme miocène des Sierras de Gata et Carboneras (Espagne du Sud-Est). *Doc. et Trav. IGAL*, Paris 8, 70 p.
- Caballero, E., Reyes, E., Delgado, A., Huertas, F. y Linares, J. (1992): The formation of bentonite: mass balance effects. *Applied Clay Science*, 6: 265-276.
- Caballero, E., Reyes, E., Huertas, F., Linares, J. y Puzzuoli, A. (1991): Early-stage smectites from pyroclastic rocks of Almería (Spain). *Chem. Geol.*, 89: 353-358.
- Caballero, E., Reyes, E., Linares, J. y Huertas, F. (1985): Hydrothermal solutions related to bentonite genesis, Cabo de Gata region, Almería, SE Spain. *Miner. Petrogr. Acta*, 29-A: 187-196.
- Delgado, A., Caballero, E. y Reyes, E. (1993): Bentonite deposits at Cabo de Gata (Almería, Spain). 2nd Biennial SGA meeting, Granada, 1993. Field trip guide book: 81-100.
- ENRESA (1997): FEBEX. Etapa preoperacional. Informe de síntesis. *Enresa Publ. Tec.* 09/97, 189 p.
- Fernández, A.M. & Cuevas, J. (1997). Estudio de las aguas intersticiales de bentonitas españolas de referencia. Proyecto BARRA. CIEMAT interim report nº CIEMAT/IMA/54A40/1/97.
- Fernández, A.M., Pelayo, M., Villar, M.V. y Rivas, P. (2000): Estudio del yacimiento de bentonita de El Cortijo de Archidona (Almería). Informe CIEMAT CIEMAT/IMA/54A40/1/97.
- Fernández, A.M.; Villar, M.V.; Tsige, M. y Pérez del Villar, L. (2001): Estudio de la microfábrica y mineralogía de la bentonita de Cortijo de Archidona. Proyecto BARRA I: Efecto salinidad. Informe CIEMAT, CIEMAT/DIAE/54341/2/00.
- Fernández Soler, J.M. (1992): El volcanismo calco-alkalino de Cabo de Gata (Almería). Tesis Doctoral Univ. Granada, 243 p.
- Fernández Soler, J.M. (1998) en prensa *Sedimentary Geology*.
- Leone, G., Reyes, E., Cortecci, G., Pochini, A. y Linares, J. (1983): Genesis of bentonites from Cabo de Gata, Almería, Spain: a stable isotope study. *Clay Minerals*, 18: 227-238.
- 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 almacenamiento de residuos radiactivos de alta actividad. *ENRESA Publ. Tec.* 01/93, 324 p.
- Martínez, J.A.; Caballero, E.; Jiménez de Cisneros, C. y Linares, J. (1998): Estudio del efecto presión sobre la barrera de arcilla. Análogos naturales en la región de Cabo de Gata, Almería. Informe CSIC-EEZ.
- Martínez, J.A.; Caballero, E.; Jiménez de Cisneros, C. y Linares, J. (1998): Estudio de un posible efecto redox sobre la barrera de arcilla. Análogos naturales en la región de Cabo de Gata, Almería. Informe CSIC-EEZ.
- Martínez, J.A.; Caballero, E.; Jiménez de Cisneros, C. y Linares, J. (1998): Estudio del efecto de un frente ácido sobre la barrera de arcilla. Análogos naturales en la región de Cabo de Gata, Almería. Informe CSIC-EEZ.
- Martínez, J.A.; Caballero, E.; Jiménez de Cisneros, C. y Linares, J. (1998): Estudio del efecto de un frente térmico sobre la barrera de arcilla. Análogos naturales en la región de Cabo de Gata, Almería. Informe CSIC-EEZ.
- Pelayo, M.; Villar, M.V.; Fernández, A.M. y Pérez del Villar, L. (1999): Estudio mineralógico, geoquímico, físicomecánico y de las aguas intersticiales de muestras procedentes de los yacimientos bentoníticos de Morrón de Mateo, Pozo Usero, El Toril, San José y El Corralete. Informe CIEMAT, CIEMAT/DIAE/54341/3/99.
- Pelayo, M. y Pérez del Villar, L. (1999): Caracterización geoquímica de las bentonitas de los yacimientos de la Cala del Tomate y El Toril: Implicaciones para la movilización de determinados elementos y compuestos químicos. Informe CIEMAT, CIEMAT/DIAE/54341/7/99.
- Pérez del Villar, L. y Fernández, A.M. (1998): Precisiones sobre la ampliación y viabilidad del estudio de la salinidad natural y los fenómenos de cementación en las bentonitas del Cabo de Gata (Almería). Informe CIEMAT, CIEMAT/DIAE/54341/5/98.
- Villar, M.V. (1998): Conceptos de partida para el estudio del análogo del efecto presión (proyecto Barra). Informe CIEMAT, DIAE/54341/6/8.

Tabla I
Composiciones de aguas intersticiales de distintas bentonitas (Fernández y Cuevas, 1997).

Bentonita humedad	S-2 $w_i=25\%$	FEBEX $w_i=23,8\%$	FEBEX $w_i=26,5\%$	MCA-C $w_i=24,7\%$	MX-80 $w_i=23,5\%$
pH	720	7,38	7,29	7,56	7,89
Eh(mV)	430	458	379	439	340
Alcalinidad	139,4	109,0	107,4	110,7	272,0
Cl	6570	4000	3600	921	1100
SO ₄ ²⁻	1490	1260	1100	276	2300
Br	160	9,1	4,9	5,3	1,2
NO ₃ ⁻	67	91,0	30,0	563,0	1300,0
HCO ₃ ⁻	169,3	132,3	130,4	134,2	
SiO ₂	12	—	14,4	—	29,7
Al	—	0,12	<0,1	<0,2	0,37
Ca	575	510	450	195	56
Mg	1100	390	410	300	30
Na	2425	2100	1725	285	2675
K	11	15	54	27	15
Sr	120	7,5	6,9	4,1	1,3
Fe total	—	0,09	0,11	<0,1	<0,1

Tabla II

Composición mineralógica de roca total de las bentonitas de Morrón de Mateo analizadas por Martínez et al. (1998).

Valores en porcentaje en peso. Qtz: Cuarzo, Feld-K: Feldespato potásico, Plg: Plagioclasa, Anf: Anfíboles, Fil: Filosilicatos, Calc: Calcita, Crist: Cristobalita, Mt: Magnetita, Alun: Alunita, Mord: Mordenita, Biot: Biotita.

Muestra	Distancia al domo (cm)	Qtz	Feld-K	Plg	Anf	Fil	Calc	Crist	Mt	Alun	Mord	Biot
mm2	30	1	0	7	0	87	4	1			0	0
mm4	105	3	0	5	0	81	6	5			0	0
mm5	170	3	0	16	0	54	7	11			8	0
mm6	270	2	0	9	0	77	4	2			7	0
mm7	700	0	0	1	1	67	3	25			2	0
mm8	1200	6	0	11	1	65	0	7			10	0
mm9	1	14	0	11	0	67	0	4			0	5
mm10	70	2	0	9	2	85	0	3			0	0
mm11	200	3	0	6	0	70	0	20			0	0
mm12	1000	2	0	15	0	61	0	12			10	0
m4	0	1	0	5	0	88	0	0	6	0	0	0
m5	40	3	4	16	1	75	0	0	0	0	0	0
m6	80	1	0	8	0	81	0	5	0	5	0	0
m7	120	5	0	15	0	61	0	5	13	0	0	1
m8	200	2	0	7	0	84	0	5	2	0	0	0
m9	600	1	0	16	0	76	7	0	0	0	0	0
m10	0	8	0	9	0	83	0	0	0	0	0	0
m11	50	11	15	0	0	62	12	0	0	0	0	0
m12	100	6	25	0	7	53	10	0	7	0	0	0
m13	180	9	0	9	0	83	0	0	0	0	0	0
m14	300	6	12	4	6	67	6	0	6	0	0	0

Tabla III
Composición mineralógica de la fracción <math> < 20 \mu\text{m}</math> de las bentonitas de Morrón de Mateo analizadas por Martínez et al. (1998).
Valores en porcentaje en peso.

Muestra	Distancia al domo (cm)	Illita	Esmectita	Halloysita	Caolinita	% Illita en I/S
mm2	30	0	91	0		17
mm4	105	0	89	0		18
mm5	170	0	92	0		14
mm6	270	0	86	0		22
mm7	700	0	92	0		12
mm8	1200	0	87	0		12/28/46
mm9	1	0	92	0		14
mm10	70	0	91	0		15
mm11	200	0	89	0		12
mm12	1000	0	90	0		12/62
m4	0	0	100		0	
m5	40	0	100		0	
m6	80	0	100		0	
m7	120	0	100		0	
m8	200	0	100		0	
m9	600	0	100		0	
m10	0	0	100		0	
m11	50	13	87		0	
m12	100	0	100		0	
m13	180	28	61		11	
m14	300	0	100		0	

Tabla IV
Composición del agua intersticial de las bentonitas de Morrón de Mateo analizadas por Martínez et al. (1998).
Distancia de las muestras al domo igual que en la Tabla anterior.

Muestra	pH	TDS mg/l	Salinidad ‰	Cl ⁻ mg/l	SO ₄ ²⁻ mg/l	HCO ₃ ⁻ mg/l	NO ₃ ⁻ mg/l	Na ⁺ mg/l	K ⁺ mg/l	Ca ²⁺ mg/l	Mg ²⁺ mg/l
mm2	8,69	729	0,7	278	172	202	8,6	300	44	7,3	7,9
mm4	8,63	820	0,8	313	184	205	4,3	340	18	8,9	9,6
mm6	8,34	1420	1,5	694	220	128	1,7	570	14	18	23

Tabla V
Composición del intercambiador catiónico de las bentonitas de Morrón de Mateo analizadas por Pelayo et al. (1999).
Valores en meq/100g.

Muestra	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Sr ²⁺	Ba ²⁺
mm2	17,8	2,43	105	34,6	0,15	0,02
mm4	19,6	2,40	130	36,2	0,14	0,02
mm6	56,6	5,63	55	22,2	0,25	—

Tabla VI
Composición isotópica del oxígeno de las bentonitas de Morrón de Mateo analizadas por Martínez et al. (1998).

Muestra	Distancia al domo (cm)	δ ¹⁸ O(SMOW)
m4-A	0	11,9
m4-B	0	12,3
m5	40	12,5
m6	80	9,6
m7-A	120	10,6
m7-B	120	12,9
m8	200	8,3
m9-A-1	600	12,0
m9-A-2	600	12,0
m9-B-1	600	11,0
m9-B-2	600	11,0
m10-A-1	0	10,6
m10-A-2	0	10,6
m10-B	0	11,5
m11	50	10,3
m12-A	100	8,9
m12-B	100	10,9
m13-A	180	11,0
m14-A-1	300	11,3
m14-A-2	300	11,3
m14-B-1	300	10,7
m14-B-2	300	10,7

Tabla VII
Composición mineralógica de las bentonitas de Cala del Tomate analizadas por Martínez et al. (1998). Valores en porcentaje en peso.

Muestra	Distancia al domo (cm)	Arcilla	Mica	Cristobalita	Cuarzo	Feldespato-K	Plagioclasa
to3b	0	28	2	50	3	2	14
to3c	40	26	1	46	3	0	25
to3d	70	67	2	26	1	0	5
to4	130	69	0	26	0	0	4
to5	200	83	0	0	13	0	4
to6	250	96	0	0	0	0	4
to7	300	97	0	0	0	0	3
to8	400	84	3	0	3	0	10
to9	600	97	0	0	0	0	3
to10	0	62	—	18	4	—	13
to11	400	63	—	13	—	—	23
to12	800	—	—	—	—	—	100
to13	1200	86	—	—	—	—	13
to14	1600	83	—	37	—	—	—

Tabla VIII
Composición mineralógica de la fracción <math>< 20 \mu\text{m}</math> de las bentonitas de Cala del Tomate analizadas por Martínez et al. (1998). Valores en porcentaje en peso.

Muestra	Distancia al domo (cm)	Esmectita	Illita	Caolinita	% illita en I/S
to3b	0	72	28	0	
to3c	40	91	9	0	
to3d	70	75	25	0	
to4	130	68	32	0	
to5	200	79	19	2	
to6	250	91	9	0	10
to7	300	100	0	0	
to8	400	100	0	0	
to9	600	94	6	0	
to10	0	100	0	0	30
to11	400	100	0	0	
to12	800	100	0	0	
to13	1200	90	10	0	
to14	1600	100	0	0	

Tabla IX
Composición isotópica del oxígeno de las bentonitas de Cala del Tomate analizadas por Martínez et al. (1998).

Muestra	Distancia al domo (cm)	$\delta^{18}\text{O}(\text{SMOW})$	T(°C)
to3b-A	0	9,48	150,79
to3b-B	0	10,59	135,37
to3c-A	40	10,91	131,23
to3c-B	40	12,27	115,01
to3d	70	11,17	127,98
to4	130	13,07	106,31
to5	200	16,25	76,81
to6-A	250	12,28	114,92
to6-B	250	12,75	109,75
to7-A	300	16,57	74,18
to7-B	300	15,22	85,62
to8	400	14,80	89,37
to9-A-1	600	14,81	89,30
to9-A-2	600	15,39	84,06
to9-B-1	600	14,41	92,98
to9-B-2	600	14,43	92,78
to10-A	0	12,15	116,32
to10-B	0	12,87	108,47
to11	400	13,46	102,27
to12-1	800	15,06	86,98
to12-2	800	13,76	99,25
to13	1200	9,82	145,82
to14-A-1	1600	17,17	69,46
to14-A-2	1600	17,17	69,46
to14-B	1600	16,26	76,7

Tabla X
Características de las muestras estudiadas por Fernández et al. (2001) con mayor influencia sobre la presión de hinchamiento.

Sondeo	Profundidad (m)	P _s (MPa)	Filosilicatos totales (%)	Esmectita (%)	CCC (meq/100g)	CCC-Ca (meq/100g)	pH
1	1,1	6,2	83	83			
1	5	0,6	74	74	68	40	
1	12,7	0,1	48	14	74	19	8,20
2	4	1,7	82	70	96	47	8,85
2	4,5	2,8	90	77	94	41	8,70
2	5,4	5,1	97	82	137	67	8,55
2	5,7	3,9	97	82	138	74	8,66
2	10,7	6,9	93	74	108	62	8,40
2	11	7,4	90	86	104	77	7,71
2	16,4	1,3	80		104	64	8,17
2	17,3	1,4	86	31	63	38	8,79
4	3,3	8,6	70	67	113	75	
4	4	9,8	98	93	133	76	8,09
4	4,2	9,0					
4	5,6	6,6	98	93	135	74	7,91
4	8,8	4,7	93	71	166	84	8,59
4	10	2,7	79	75	87	43	8,58
4	15,5	6,3	98	83	121	62	8,50
4	18,9	6,4	95	81	113	91	8,76
5	3,5	10,5	98	98	117	62	8,16
5	16,4	7,0	94	89	115	59	8,30
5	17,7	1,9	61	46	79	32	8,62
5	17,8	0,9	86	65	100	27	
5	23	8,7	96	91	130	56	8,56
5	23,3	0,5	64	35	138	43	8,68

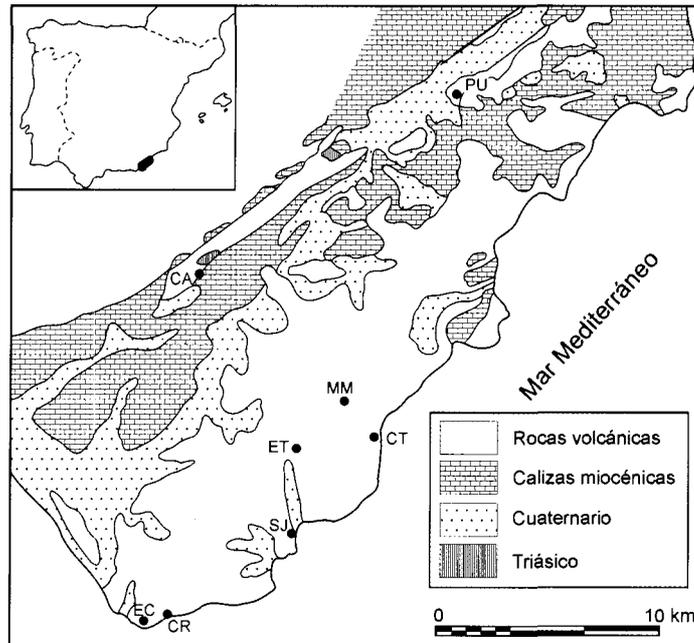


Figura 1. Mapa geológico de la zona del Cabo de Gata, según Caballero et al. (1985) modificado. Afloramientos de bentonita seleccionados: PU, Pozo Usero; MM: Morrón de Mateo; CT: Cala del Tomate; ET: El Toril; SJ: San José; EC: El Corralete; CR: Cala Rajá, CA: Cortijo de Archidona.

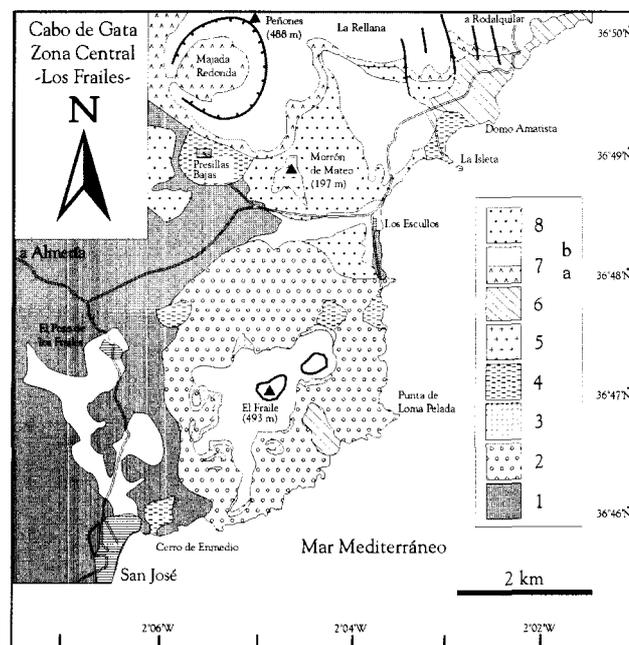


Figura 2. Mapa geológico de la zona de Los Frailes (Fernández Soler, 1998). Leyenda: 1. Andesitas antiguas, 2. Andesitas anfibólicas (Caldera Los Frailes), 3. Principales unidades sedimentarias y de tuffs, 4. Grandes domos de andesitas hornbléndicas, 5. Domo de lava de Morrón de Mateo, 6. Domos piroxeno-andesíticos, 7. Ignimbritas de Cinto (Caldera de Rodalquilar), a) unidades inferiores, b) unidades superiores, 8. Andesitas basálticas y piroxénicas de Los Frailes, CT: Cala del Tomate, MM: Morrón de Mateo.

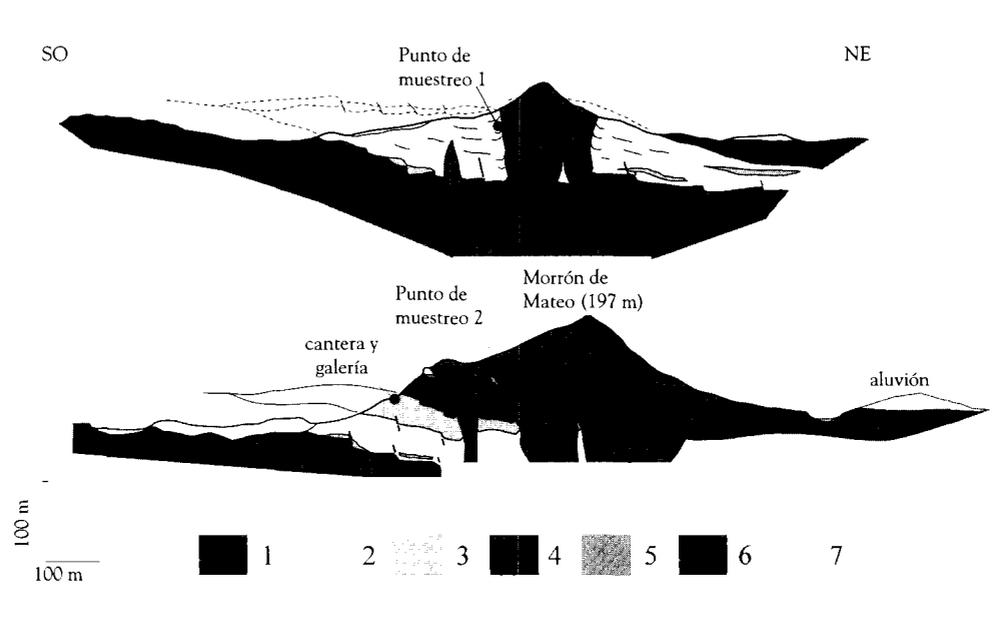


Figura 3. Secciones geológicas del sector de Morrón de Mateo. Leyenda: 1. Andesitas anfibólicas y anfibólicas-piroxénicas; 2. Rocas tobáceas estratificadas localmente bentonitizadas; 3. Rocas sedimentarias (areniscas y calizas); 4. Brechas volcánicas grises; 5. Andesitas anfibólicas superiores; 6. Andesita anfibólico-biotítico del domo de Morrón de Mateo; 7. Aluvial.

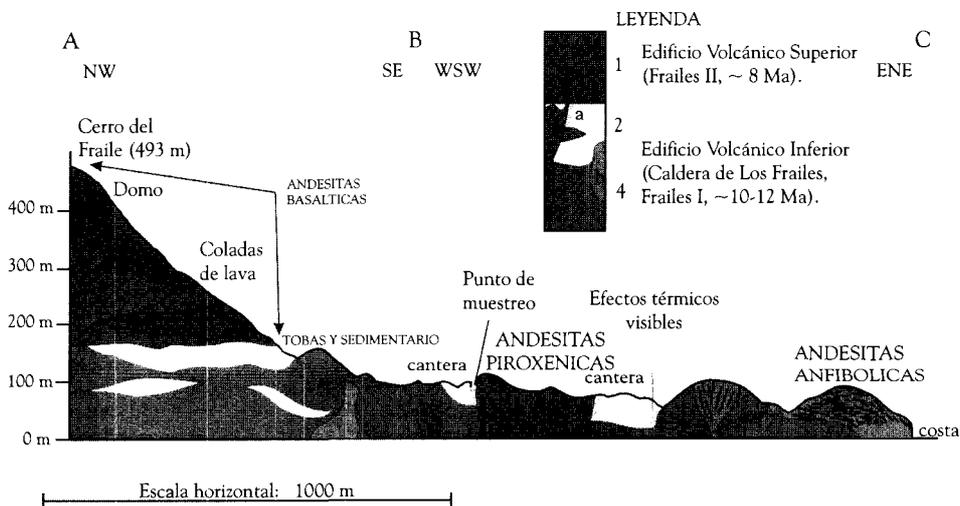
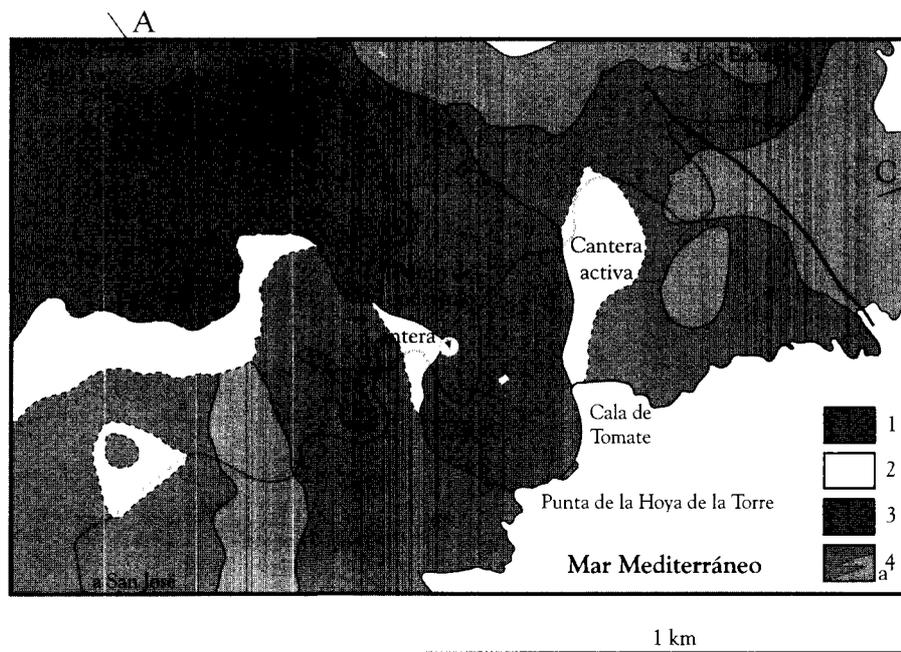


Figura 4. Mapa y sección geológica del área de Cala del Tomate. Leyenda: 1. Andesitas basálticas y piroxénicas de Las Frailes; 2. Rocas vulcano-sedimentarias; 3. Domo de andesita piroxénica de Cala del Tomate; 4. Brechas de andesita anfibólica con algunas rocas masivas (a).

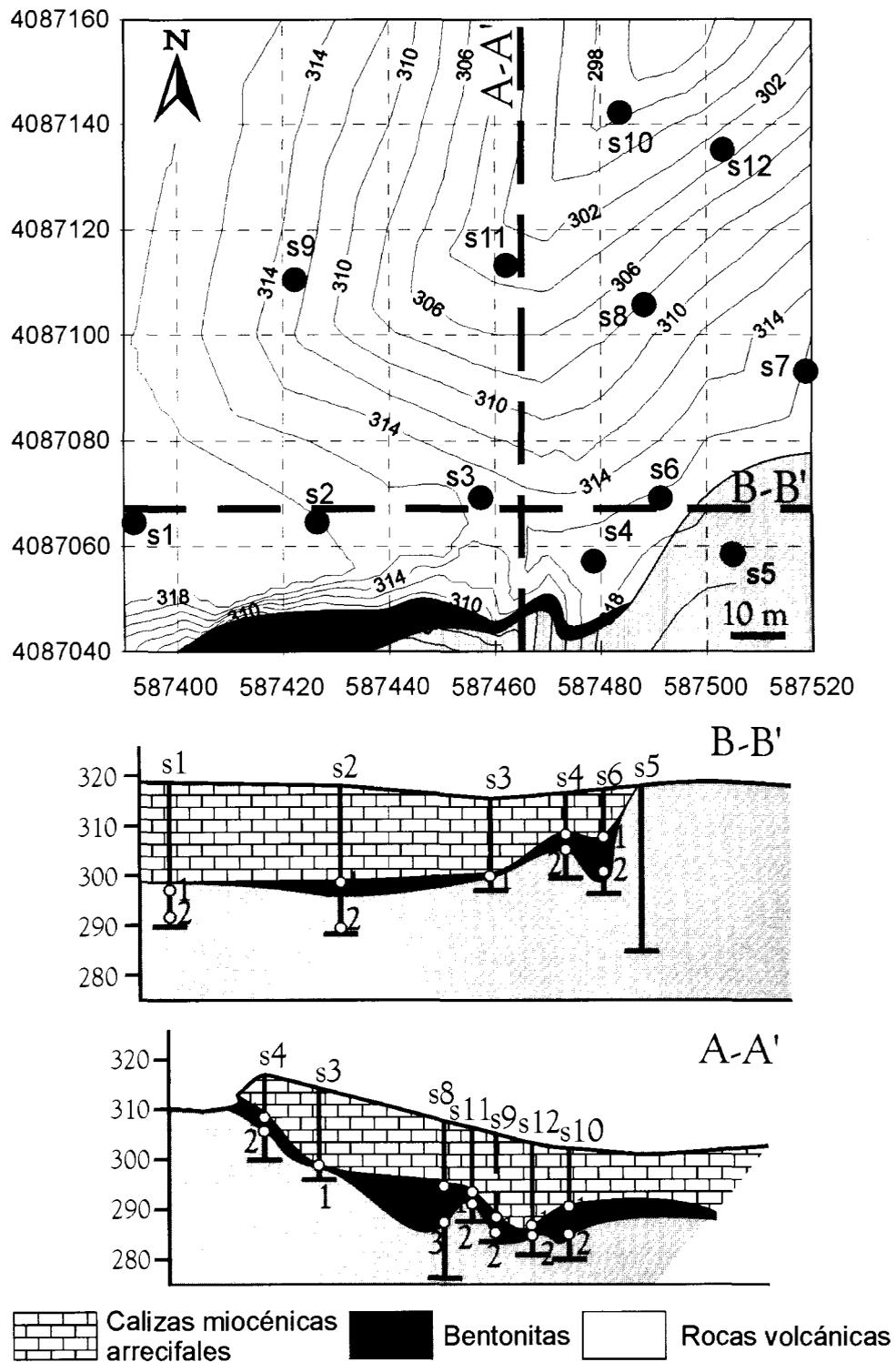


Figura 5. Mapa y cortes geológicos del afloramiento de Pozo Usero. Las calizas arrecifales recubren la unidad volcánica cuya parte superior se encuentra localmente alterada a bentonita.

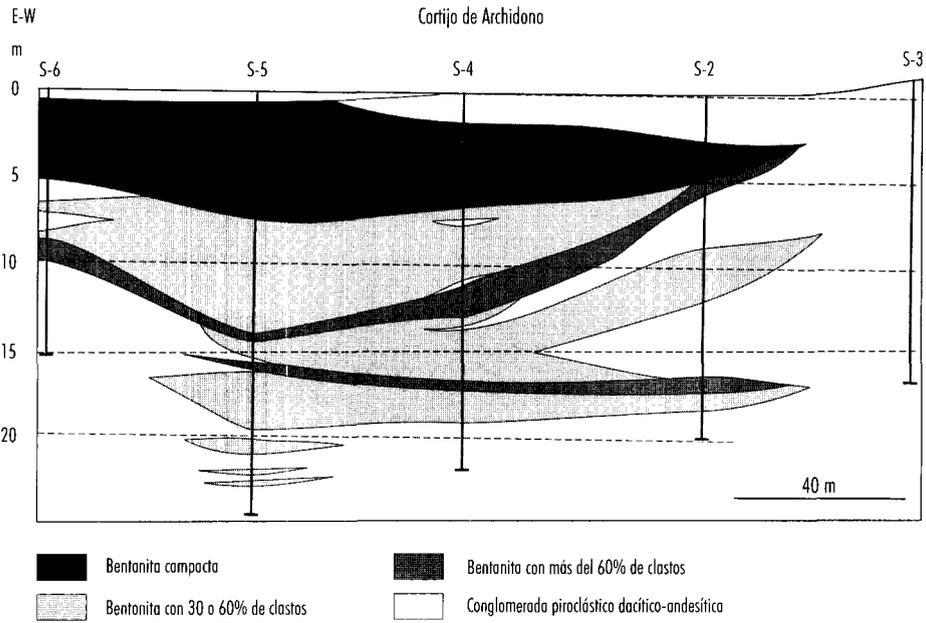


Figura 6. Sección geológica del depósito de bentonita del Cortijo de Archidona, donde se muestran las características y pureza de la bentonita del depósito (Fernández et al., 2001).

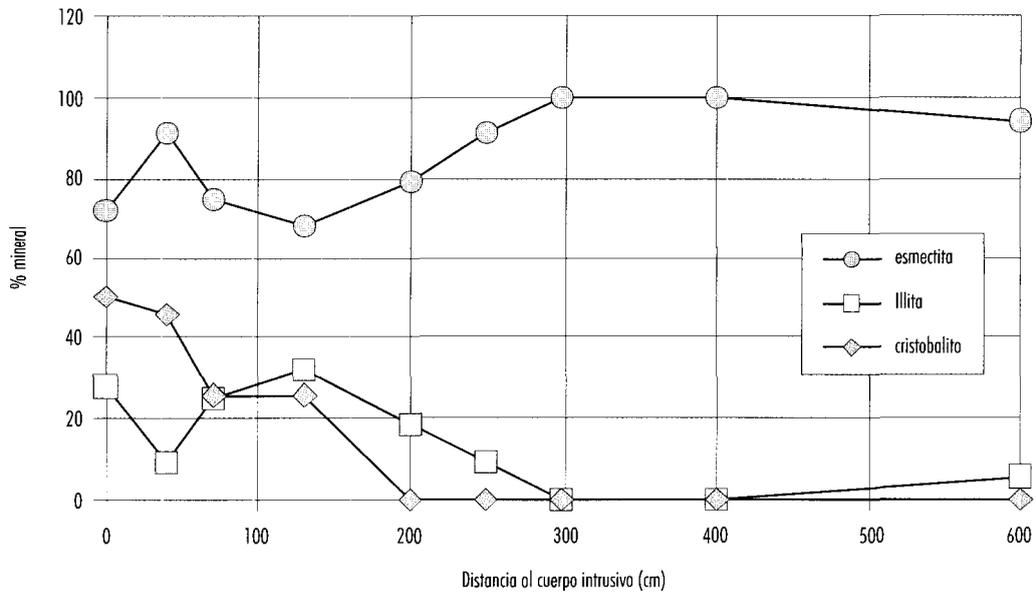


Figura 7. Evolución mineralógica de la bentonita de Cala del Tomate en función de la distancia al contacto intrusivo. Según datos de Martínez et al. (1998).

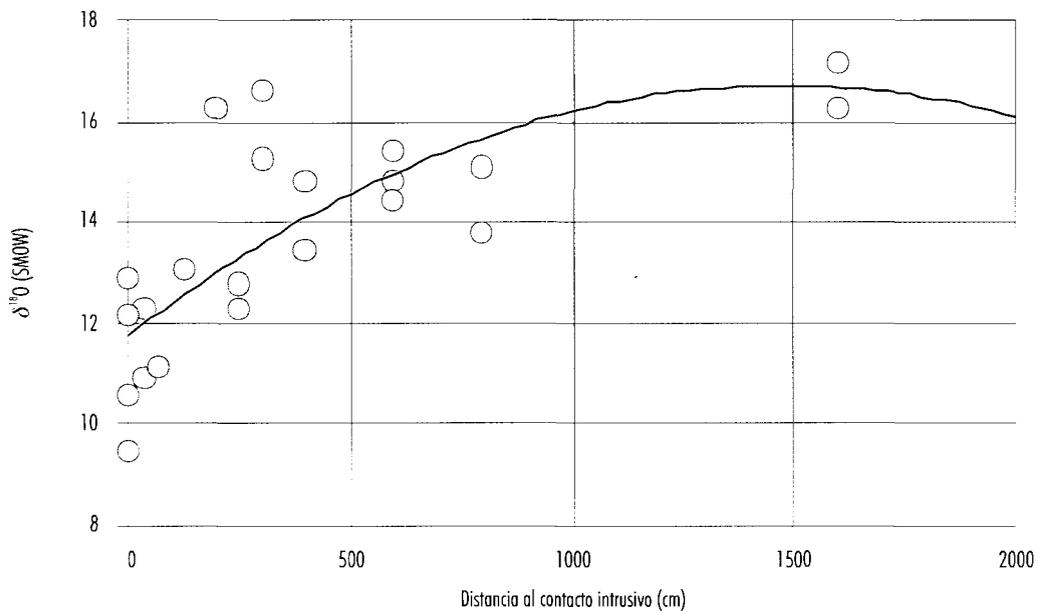


Figura 8. Evolución de la composición isotópica de oxígeno de la bentonita de Cala del Tomate en función de la distancia al contacto intrusivo. Según datos de Martínez et al. (1998).

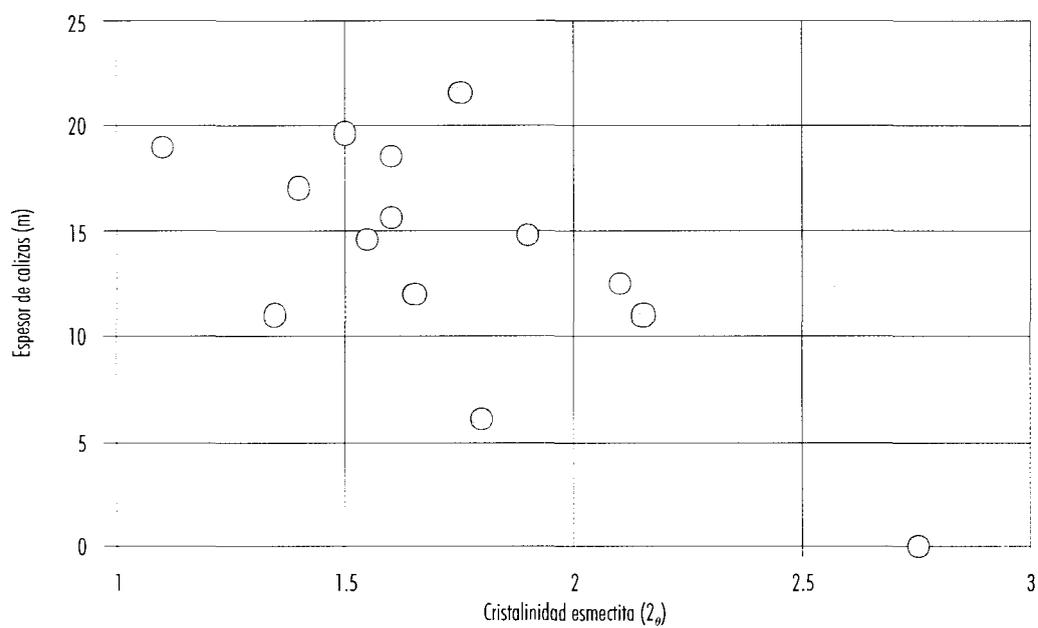


Figura 9. Variación en la cristalinidad de la esmectita (por correspondencia al tamaño del dominio cristalográfico) de Pozo Usero en función de la carga de calizas sobre la bentonita. Según datos de Martínez et al. (1998).

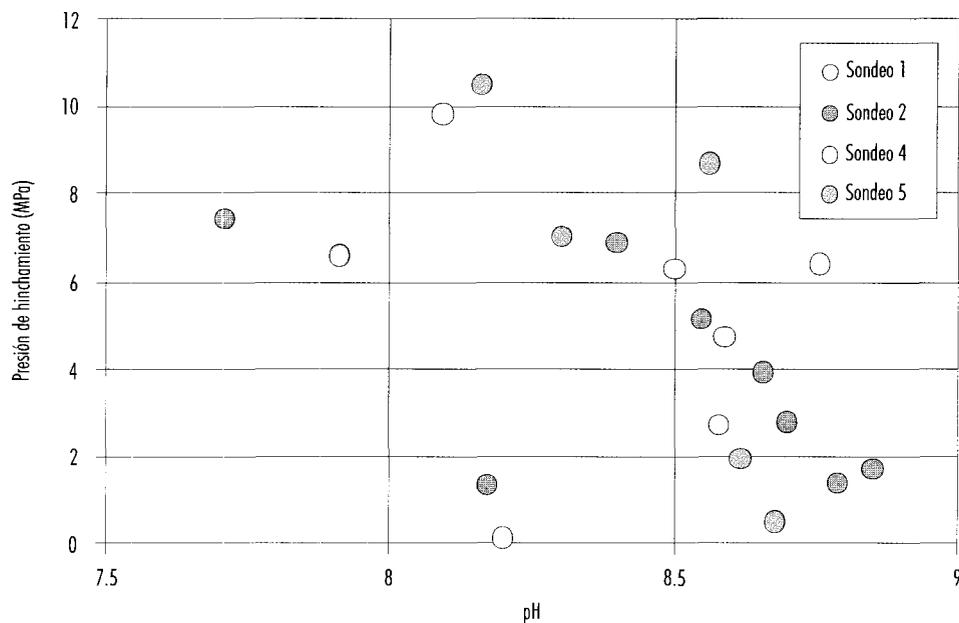


Figura 10. Presión de hinchamiento en función del pH del extracto acuoso de las muestras del depósito de bentonita del Cortijo de Archidona. Según Fernández et al. (2001).

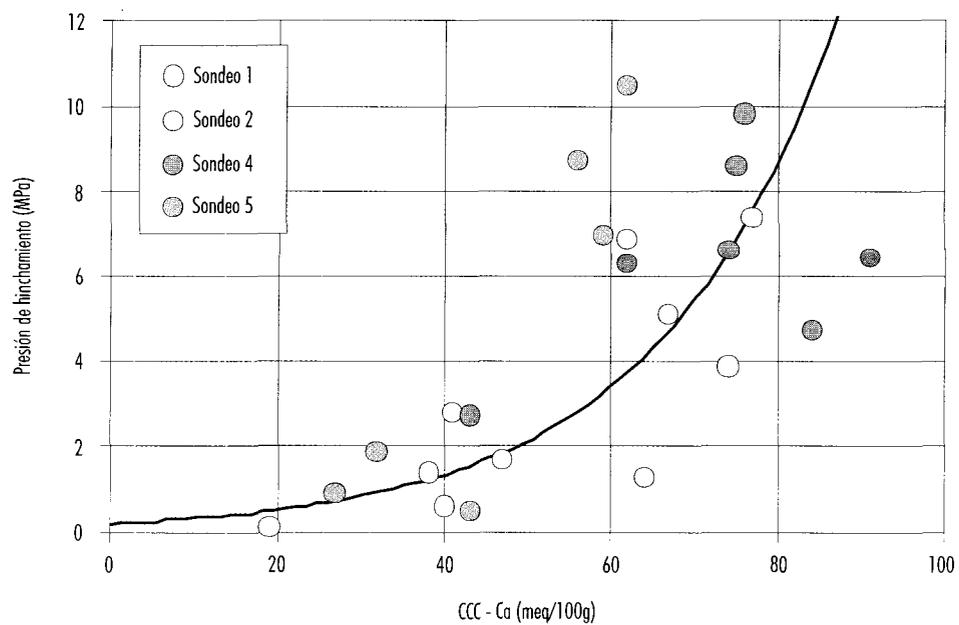


Figura 11. Presión de hinchamiento en función de la capacidad de cambio catiónico corregida de las muestras del depósito de bentonita del Cortijo de Archidona. Según Fernández et al. (2001).

TRANSPORTE DE RADIONUCLEIDOS EN UN SISTEMA DE FLUJO NATURAL DEL YACIMIENTO DE URANIO DE PALMOTTU (FINLANDIA). (PROYECTO PALMOTTU)

L. Pérez del Villar, M. J. Gimeno, J. S. Cózar, J. Peña, M. J. Turrero, M. T. Crespo, A. Yllera,
E. Floría, P. Gómez, R. Campos, J. Pardillo, M. Pelayo, A. Melón, M. D. Sánchez- de Ledesma,
M. García, Belén Buil
CIEMAT

J. Bruno, E. Cera, L. Duro, M. Grivé, C. Rollin
ENVIROS-QUANTISCI

J. Salas, C. Ayora
CSIC, Barcelona

A. Delgado, E. Reyes, R. Núñez
CSIC, Granada

P. Hernán
ENRESA

Resumen

El estudio de los análogos naturales constituye una parte esencial de los programas nacionales e internacionales orientados al almacenamiento geológico profundo de los residuos radiactivos de alta actividad. El yacimiento de U-Th de Palmottu, situado en Nummi-Pusula, al suroeste de Finlandia, tiene una serie de características análogas a ciertos aspectos geoquímicos que han sido considerados de interés en la evaluación del comportamiento de un almacenamiento de residuos nucleares, en rocas cristalinas. Además, este yacimiento incluye algunas características únicas debidas a su historia glacial y postglacial, y los resultados de la investigación realizada son bastante útiles para aquellos países que consideran adecuadas las rocas cristalinas para servir de almacén. El Proyecto Palmottu como análogo natural ha consistido en dos fases. La primera, entre el 1/1/1996 y 31/5/1997, estuvo enfocada a valorar los procesos relacionados con el flujo de las aguas subterráneas a través de la roca encajante, mientras que la segunda, entre 1/8/1997 y 31/8/99, estuvo dirigida a identificar y cuantificar aquellos

procesos relacionados con la movilización y transporte de los radionucleidos naturales.

En este trabajo se resumen las principales tareas realizadas y los resultados obtenidos, haciendo hincapié en las aportaciones de los grupos españoles de investigación involucrados en el proyecto. Así, tras la descripción del yacimiento, término fuente y de los procesos antiguos de migración y retención del U, se describen los procesos más recientes de interacción agua/roca que controlan la movilización/retención del U, que son, en definitiva, los que se tuvieron en cuenta para los ejercicios de modelización realizados en una fractura concreta del sistema. Al final del trabajo se resumen las principales conclusiones aplicables a la evaluación del comportamiento de un almacenamiento geológico profundo en rocas cristalinas.

Abstract

Natural analogue studies have become an essential part of the national and international programmes

for the deep disposal of radioactive wastes. The Palmottu U-Th ore deposit at Nummi-Pusula in south-western Finland has numerous analogous characteristics to some geochemical aspects being considered in the performance assessment of spent fuel repositories in crystalline rocks. Furthermore, it includes some unique features owing to its glacial and post-glacial history, and the results obtained from the research carried out in the site are of considerable benefit to countries considering crystalline rocks as a disposal alternative. The Palmottu Natural Analogue Project was divided into two phases. Phase I, from 1/1/1996 to 31/5/1997, was mainly focussed on to assess the processes related to the groundwater flow through the bedrock, while the second, from 1/8/1997 to 31/8/1999, was aimed to identify and quantify the processes related to radionuclide mobilisation and transport.

The main tasks and results obtained in this project are summarised in this work, emphasising those carried out by Spanish research groups. Thus, after the description of the U-Th ore deposit, the source term and the ancient migration/retention processes involving natural nuclides, the recent and recent-past rock/water interaction processes that control the mobilisation/retardation of U are described. Finally, the main conclusions concerning the performance assessment of a deep geological repository in crystalline rocks are summarised.

Introducción

La mineralización de U-Th de Palmottu, localizada al SO de Finlandia, ha sido utilizada como otro análogo natural en un medio granítico fracturado. Los estudios analógicos sobre esta mineralización se han venido realizando en Finlandia desde 1987 (Blomqvist et al., 1995), centrándose en la caracterización geológica general del sitio, así como en la caracterización hidrogeológica e hidrogeoquímica de la zona donde se localiza la mineralización urano-torífera.

Desde el punto de vista práctico, el sitio de Palmottu no sólo tiene interés para el programa finlandés de almacenamiento de residuos nucleares, sino que lo tiene también para el programa sueco, dadas las semejanzas geológicas, hidrogeológicas, hidrogeoquímicas y climáticas existentes entre Finlandia y Suecia. Por otra parte, este análogo es también de interés para aquellos países que tienen en consideración las rocas cristalinas como opción para alma-

cenar definitivamente dichos residuos, como son España y Francia.

El sitio de Palmottu ofrecía una oportunidad excelente para abordar el estudio integrado de la movilización y transporte de radionucleidos naturales a lo largo de una o varias fracturas hidráulicamente activas, en un medio cristalino fracturado. En este sitio se disponía del término fuente, encajado en rocas metamórficas y graníticas típicas del Escudo Escandinavo, el cual, durante su historia cuaternaria, ha estado sometido a repetidas fases de glaciación y deglaciación, así como a los movimientos isostáticos correspondientes.

El objetivo primordial del proyecto fue el estudio integrado de los procesos de migración/retención de los radionucleidos naturales, especialmente el U, a lo largo de una o varias fracturas activas desde el punto de vista hidráulico. Para ello, se han tenido en cuenta los siguientes aspectos:

- i) la hidrogeología del sitio,
- ii) la evolución geoquímica del sistema agua/roca (rellenos de fractura),
- iii) los pares y procesos redox más relevantes que controlan las características físico-químicas de las aguas subterráneas,
- iv) los procesos de migración/retención, y
- v) los datos de laboratorio obtenidos a partir de los materiales geológicos del sitio.

En definitiva, la pretensión final del proyecto fue la de modelizar los procesos de transporte y retención de los radionucleidos naturales en el sitio, y obtener conclusiones útiles para la evaluación del comportamiento (PA) de un Almacenamiento Geológico Profundo (AGP) de residuos nucleares en granitos.

Organización del proyecto

El proyecto ha sido financiado conjuntamente por la Unión Europea (UE); the Geological Survey of Finland (GTK), responsable del proyecto; the Radiation and Nuclear Safety Authority of Finland (STUK); the Svensk Kärnbränslehantering AB of Sweden (SKB); la Empresa Nacional de Residuos Radiactivos (ENRESA); el Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas (CIEMAT); y el Bureau de Recherches Géologiques et Minières (BRGM), bajo el contrato N° FI4W-CT95-0010, DG 12-WSME.

El proyecto se dividió en dos fases. La fase I, entre Enero de 1996 y Mayo de 1997, estuvo enfocada a conocer la importancia de los procesos que controlaban el flujo de las aguas subterráneas y en la elección del área más propicia para llevar a cabo la fase II. Esta última, enfocada fundamentalmente a la definición y comprensión de los procesos de movilización y transporte de los radionucleidos naturales del sistema, se llevó a cabo entre Agosto de 1997 y Agosto de 1999.

Las tareas de la fase I fueron:

- i) actualizar el modelo estructural del sitio,
- ii) establecer el modelo hidrogeológico e hidrogeoquímico,
- iii) elegir la zona idónea para realizar la fase II,
- iv) perforar un sondeo profundo y poco contaminante para los objetivos de la fase II, y
- v) realizar el primer ejercicio de PA.

Las tareas de la fase II estuvieron orientadas a:

- i) conocer la evolución geoquímica del sistema agua-roca,
- ii) establecer los procesos redox que regulaban dicho sistema,
- iii) definir los procesos de migración/retención de los radionucleidos, a la luz de la geoquímica del sistema, y
- iv) obtener las conclusiones más relevantes para el PA de un AGP.

En el proyecto participaron 32 instituciones gestoras y científicas de Finlandia (9), Suecia (10), España (8), Francia (1), Reino Unido (1), Canadá (1), Alemania (1) y Suiza (1). Más de un centenar de investigadores especializados en disciplinas diversas se dieron cita en el proyecto, dirigidos y coordinados por un comité de seis miembros y por los respectivos líderes de los 5 grupos de trabajos establecidos (Blomqvist et al., 2000).

El yacimiento de U-Th de Palmottu

Aspectos geológicos

El yacimiento de Palmottu es el más rico en U de una serie de manifestaciones de U-Th existentes en el contacto entre el granito de Perniö (1840 Ma) y los materiales metasedimentarios del Proterozoico Inferior (2400-1900 Ma), metamorfizados y mig-

matizados hace 1840 Ma. Estos materiales se extienden desde el SO de Finlandia hasta la zona central de Suecia, incluyendo la mina de Stripa, tan intensamente estudiada bajo el punto de vista de los almacenamientos de residuos nucleares (Fig. 1).

A partir de los datos aportados por 60 sondeos de testigo realizados durante la exploración del yacimiento, éste se ha definido como un cuerpo discontinuo, irregular y subvertical, de unos 400m de longitud por 1 a 15 m de espesor, y que contiene, hasta la profundidad explorada, aproximadamente 300 m, 10^6 toneladas de roca con una ley media de 0.1% de U (Blomqvist et al., 1995). En detalle, la mineralización se encuentra diseminada en dos tipos de pegmatitas graníticas: una, de tamaño de grano grueso y biotítica, formando un dique subvertical, y la otra, de naturaleza cuarzo-biotítica, formando otro dique próximo y subparalelo al anterior, pero intensamente cizallado (Räisänen, 1986). A pesar de que este último es el más intensamente mineralizado, su potencia es, por lo general, de tan sólo algunas decenas de centímetros. Las rocas encajantes son gneises migmatíticos, estando el conjunto (roca encajante-pegmatitas uraníferas) flanqueado por dos diques graníticos, denominados: Granito del Oeste y Granito del Este (Fig. 2) (Blomqvist et al., 2000). Las pegmatitas mineralizadas afloran en superficie, aunque en su mayor parte están cubiertas por materiales detríticos de origen glacial y bajo el lago Palmottu.

El término fuente

El término fuente del U es esencialmente la uraninita (UO_{2+x} , $0.01 < x < 0.25$), mientras que la monacita es el término fuente del Th y las REE. El circón y el apatito contienen cantidades insignificantes de elementos radiactivos.

La uraninita está en forma de cristales idiomorfos de tamaño inferior a 0.3 mm, incluida generalmente en el cuarzo y la biotita, y rodeada frecuentemente por materia orgánica muy evolucionada y rica en azufre. Dicho óxido de uranio se encuentra también, con características semejantes, en los Granitos del Este y del Oeste (Fig. 3) (Ruskeeniemi et al., 1994; Pérez del Villar et al., 1997; Blomqvist et al., 2000).

Desde el punto de vista químico, el contenido en UO_2 de la uraninita varía entre 77 y 82%, mientras que el del Th está comprendido entre 5 y 9%. El alto contenido en PbO , entre 12 y 18%, es debido a la antigüedad de este mineral, comprendida entre

1678 y 1741 Ma. Esta edad ha sido considerada mínima ya que el Pb radiogénico ha sufrido importantes procesos de difusión hacia las zonas periféricas de los cristales de uraninita (Huhma, 1994). La edad de la monacita, paragenética con la uraninita, es de 1793 Ma, edad que puede ser considerada como la de la mineralización, ya que la monacita es un sistema geoquímicamente más cerrado que el de la uraninita (Vaasjoki, 1996). Otros óxidos presentes en la uraninita son el Y_2O_3 y CaO , que no exceden del 1%.

Procesos antiguos de alteración del término fuente y procesos asociados de migración/retención de los radionucleidos naturales y otros elementos traza de interés

Además de los procesos de difusión intracristalina que afectan al Pb radiogénico, que se suele encontrar acumulado en microfisuras y en los bordes de los cristales de uraninita, ésta está afectada por un proceso más o menos intenso y generalizado de coffinitización, fundamentalmente desarrollado en los bordes y microfisuras de los cristales. La coffinita es químicamente heterogénea, de manera que su contenido en UO_2 varía entre 54 y 74% y el de SiO_2 entre 10 y 25%. Los contenidos en ThO_2 y PbO oscilan entre el 10% y por debajo del límite de detección de la microsonda electrónica (Blomqvist et al., 2000). De acuerdo con estos autores, la coffinitización de la uraninita sería el resultado de un proceso tardimagmático, durante el cual los fluidos residuales ricos en SiO_2 reaccionaría con la uraninita coffinitizándola. De acuerdo con el estado de valencia del U en dicho silicato, y su íntima asociación con sulfuros, especialmente galena y pirita, se considera que dicho proceso tuvo lugar bajo condiciones reductoras. Como consecuencia de este proceso, importantes cantidades de U y Pb radiogénico se movilizaron, dispersándose por la matriz rocosa y precipitando en forma de coffinita y galena.

Otro proceso hidrotermal que afectó a la uraninita y otros minerales accesorios, como la monacita, el zircón y el apatito, es el de carbonatación. Este proceso se ha puesto de manifiesto al observar cristales alterados de uraninita, monacita y circón rodeados por calcita secundaria con Fe y Mn, así como la neoformación de carbonatos de U, probablemente rutherfordina, silicatos de U, silicofosfatos complejos de U, Th, Zr y REE, torianita, torita y piri-

ta, todos ellos secundarios y rellenando microfisuras de la roca (Fig. 4). Estas observaciones sugieren que la roca y sus minerales fueron afectados por soluciones hidrotermales alcalinas y ricas en carbonatos, que originarían la alteración de los minerales portadores de radionucleidos y elementos trazas de interés, para ser transportados en forma de complejos carbonatados, y precipitados como carbonatos, silicatos y silicofosfatos (Pérez del Villar et al., 1997).

Aunque las condiciones fisicoquímicas de este proceso no han podido determinarse, la coexistencia de silicatos de U, probablemente coffinita, y pirita secundaria, ambas rellenando microfisuras (Fig. 5), sugiere que las soluciones alcalinas y ricas en carbonatos fueron inicialmente oxidantes, evolucionando posteriormente a reductoras (Pérez del Villar et al., 1997). En relación a la temperatura a la que tuvo lugar el proceso, el estudio de las inclusiones fluidas de los diferentes tipos de calcita que rellenan las fracturas indica que la mayoría se formaron en un intervalo comprendido entre 40 y 285°C, mayoritariamente entre 100 y 286°C (Blyth y Frape, 1999). Por consiguiente, no se puede descartar que los fluidos que dieron lugar a la calcita de los rellenos fisurales penetraran en la roca y dieran lugar a los procesos de alteración, migración y precipitación anteriormente explicados (Pérez del Villar et al., 1997).

En definitiva, se puede argumentar que, aunque las fuentes principales de los radionucleidos naturales y otros elementos trazas de interés en el sistema son los minerales accesorios incluidos en los mayoritarios de las rocas graníticas y pegmatíticas del sitio, los procesos hidrotermales antiguos que las afectaron fueron lo suficientemente intensos como para liberar U, Th, Zr y REE de sus minerales primarios. Estos elementos formaron posteriormente otros minerales secundarios, más lábiles y accesibles a las aguas subterráneas actuales.

Procesos recientes de interacción agua/roca en fracturas, en relación con la migración de los radionucleidos y otros elementos traza de interés

Dado que el objetivo principal del proyecto fue el de modelizar el transporte de radionucleidos en un sistema hidrodinámico canalizado por fracturas, las tareas posteriores al estudio del término fuente fueron:

- i) caracterizar la fracturación del sitio,
- ii) conocer el sistema de flujo subterráneo de las aguas,
- iii) establecer la evolución hidrogeoquímica de las mismas, en términos de interacción agua/roca, e incluyendo los procesos redox, y
- iv) determinar la influencia de los rellenos de fractura, la matriz rocosa, los coloides y los microorganismos en los procesos de migración "versus" los de retención.

Las fracturas del sitio

Las fracturas de Palmottu son, en su mayor parte, heredadas de la orogenia Svecofeniense, hace 1900-1800 Ma. Se formaron bajo condiciones de altas presiones y temperaturas, y se definen como zonas complejas de cizalla. Estas fracturas han sido reactivadas, como fracturas de tensión, durante la dilatada historia geológica de la región. Las fases de distensión cuaternarias, relacionadas con las épocas interglaciales, desarrollaron un sistema de fracturas subhorizontales que corta a todas las unidades geológicas del sitio y cuya importancia para el flujo de las aguas subterráneas actuales es relevante.

Sin embargo, las alteraciones en las salbandas de las fracturas son, en general y en su mayor parte, heredadas y relacionadas con las fases más antiguas de fracturación. Es decir, parece claro que las alteraciones observadas en las fracturas no están relacionadas con los procesos cuaternarios de reactivación de las mismas, por lo que los rellenos fisurales últimos pudieron formarse sobre la propia salbanda rocosa o sobre los productos antiguos de alteración. En definitiva, los rellenos fisurales observados están constituidos por un conjunto de fases minerales formadas en diferentes épocas y bajo condiciones químicas y fisicoquímicas muy diferentes.

El análisis de las orientaciones de las fracturas abiertas, las únicas interesantes desde el punto de vista hidráulico, muestra la existencia de ciertos sistemas dominantes, como son los determinados por:

- i) las fracturas subhorizontales o de bajo ángulo (10-30°) hacia el S, SO o NE,
- ii) las fracturas paralelas a la esquistosidad, y
- iii) las fracturas perpendiculares a la esquistosidad.

Este modelo implica que el flujo de las aguas subterráneas atraviese litologías muy diferentes, originándose importantes cambios en las características fisi-

coquímicas del agua, en función de la naturaleza de los rellenos de fractura.

En este marco estructural, la zona central de Palmottu se puede definir como un bloque de 2 x 2 Km, limitado por cuatro zonas de fractura de orden II, orientadas aproximadamente N-S y E-O. Este bloque está atravesado, a su vez, por zonas de fracturas de orden III, orientadas N-S, NNO-SSE, NE-SW, E-O y ESE-ONO. Sin embargo, la zona de estudio, donde se concentra la mayor parte de los sondeos antiguos y los realizados para este proyecto, es un subbloque delimitado por cuatro zonas de fractura de orden III, orientadas NNO-SSE y NE-SO (Fig. 6). El perfil de la Fig. 2 (Blomqvist et al., 1998), orientado NE-SO, muestra la disposición estructural de los materiales representados en el sitio, así como las zonas de fractura más importantes, seis subverticales (V1-V6) y una subhorizontal (H1).

Modelo hidrogeológico e hidroquímico

A partir del modelo estructural establecido, y teniendo en cuenta los resultados de los diferentes tipos de ensayos hidráulicos realizados en los sondeos, incluyendo un ensayo de trazadores, el modelo hidrogeológico de Palmottu (Blomqvist et al., 1998) está formado por las siguientes unidades hidrogeológicas:

- 1º) La fractura subhorizontal (H1), situada entre 100 y 150 m de profundidad, determina el límite entre dos sistemas hidrodinámicos bien diferentes. El primero, denominado de flujo dinámico, está situado por encima de dicha estructura y comprende un paquete rocoso intensamente fracturado, con alta conductividad hidráulica. El segundo, situado por debajo de la fractura subhorizontal, se denomina sistema de flujo profundo y comprende un paquete rocoso menos fracturado, con menor número de fracturas hidráulicamente activas y, por tanto, con menor conductividad hidráulica (ver Fig. 2).
- 2º) En el sistema hidrodinámico superior o de flujo dinámico se han distinguido cuatro unidades hidrogeológicas bien definidas:
 - i) la de los micagneises del oeste (WMG), localizado hacia el oeste de la fractura V3;
 - ii) la del granito del oeste (WG), situado entre las fracturas V4 y V5;
 - iii) la del valle del arroyo Palmottu, situada entre las fracturas V1 y V2; y

- iv) la del Granito del Este (EG), localizada al este de la fractura V6, que representa un sistema de flujo subterráneo bien definido e independiente. Este último ha sido el elegido para el ejercicio de modelización de la migración (ver Fig. 2).

3º) Una estructura orientada NE-SO, vertical, paralela y próxima al borde suroriental del lago Palmottu, actuaría como divisoria de las aguas en el modelo explicado, de manera que las aguas situadas al norte drenarían hacia el lago, mientras que las situadas al sur lo harían hacia el valle del arroyo Palmottu.

La interpretación conjunta de estas unidades hidrogeológicas y de los datos hidroquímicos e isotópicos de las aguas tomadas en los mismos sondeos en los que se realizaron los ensayos hidrogeológicos, ha permitido diseñar un modelo hidrogeológico-hidroquímico conceptual, en 3D, del área estudiada (Blomqvist et al., 1998). Este modelo (Fig. 7) consiste esencialmente en:

- *El Sistema de Flujo Dinámico Superficial* que, situado por encima de la fractura subhorizontal H1, comprende tres subsistemas independientes. Dos de ellos, denominados sistemas suroccidental y noroccidental, estarían separados por la divisoria de aguas NO-SE, explicada anteriormente. El primero de ellos drenaría hacia el valle del arroyo Palmottu, para hacerlo después hacia el sureste, mientras que el segundo drenaría hacia el lago Palmottu. El tercer subsistema, denominado del este, sería totalmente independiente de los dos primeros, estaría relacionado con el Granito del Este, y sería un área de recarga, con drenaje hacia el arroyo Palmottu. Este último subsistema ha sido el utilizado para el ejercicio de migración y sus características se explicarán en el apartado 5. Desde el punto de vista hidrogeoquímico, el sistema de flujo superficial está dominado por aguas bicarbonatadas cálcicas.
- *El Sistema de Flujo Dinámico Profundo*, situado por debajo de la fractura subhorizontal H1, y cuyas aguas fluyen hacia el valle del arroyo Palmottu, está, de acuerdo con los datos hidrogeológicos, conectado con el anterior. Desde el punto de vista hidrogeoquímico, la zona superior del sistema está dominada por aguas bicarbonatadas sódicas, mientras que la inferior lo está por aguas sulfatadas sódicas, moderadamente concentradas.

- *El Sistema de Flujo Estancado* se sitúa por debajo de los dos anteriores, está caracterizado por su baja conductividad hidráulica y por el dominio de aguas cloruradas sódicas, altamente concentradas. No se han observado indicios claros de comunicación entre este sistema y los dos anteriores.

Modelo hidrogeoquímico y evolución de las aguas subterráneas

El análisis factorial de los datos hidroquímicos de las aguas de Palmottu (Gimeno y Peña, 1999; Gimeno et al., 1999) permitió establecer 5 tipos bien diferenciados:

- i) aguas de recarga, ligeramente ácidas;
- ii) bicarbonatadas cálcicas, con pH entre 7 y 8;
- iii) bicarbonatadas sódicas, con pH entre 7.5 y 9;
- iv) sulfatadas sódicas, con pH entre 8.5 y 9; y
- v) cloruradas sódicas, con valores de pH parecidos a los de las aguas anteriores. La concentración de sales disueltas también aumenta con la alcalinidad.

Por otra parte, al objeto de establecer un modelo geoquímico coherente y explicativo de las características hidroquímicas de estas aguas, se han aplicado dos tipos de simulaciones geoquímicas. La primera, mediante el cálculo del balance de masas, se realizó con el fin de evaluar los posibles procesos de interacción agua/roca que tuvieron lugar en el sistema, sin tener en cuenta control termodinámico alguno. La segunda se llevó a cabo mediante la simulación de transferencia de masas, con el fin de estudiar la consistencia termodinámica de dichos procesos (Gimeno y Peña, 1999; Gimeno et al., 1999).

Los resultados, resumidos en la Figura 8, ponen de manifiesto dos procesos importantes. El primero, o de alteración supergénica del basamento cristalino, tiene lugar en los Sistemas de Flujo Dinámico Superior Profundo, y es el responsable de la línea evolutiva existente entre las aguas de recarga y las aguas bicarbonatadas sódicas. El segundo sería un proceso de mezcla entre las aguas bicarbonatadas sódicas y las del Sistema de Flujo Estancado, más profundas, antiguas, sulfatadas y clorurada sódicas, sin que se aprecien procesos importantes de interacción agua-roca.

El proceso de alteración supergénica del basamento, que da lugar a las aguas bicarbonatadas sódicas, pasa por un estadio intermedio que explicaría las aguas bicarbonatadas cálcicas, más superficiales que el término final. Este proceso de alteración supergénica estaría controlado por:

- i) la disolución de la calcita, la plagioclasa, los óxidos de uranio, la uranofana, la captación de CO₂ orgánico, el intercambio catiónico, la alteración de la biotita y la oxidación de los sulfuros, entre ellos la pirita; y
- ii) la precipitación de calcedonia, caolinita, esmectita, illita y oxihidróxidos de Fe.

Estas reacciones conllevarían el aumento de sales disueltas, el aumento del pH y la disminución progresiva de los valores de Eh del agua. Los resultados de la modelización de la evolución de estos dos últimos parámetros están de acuerdo con la evolución natural observada. Por otra parte, todos los minerales involucrados en dichas reacciones, muchos de ellos con claras evidencias de disolución, alteración y neoformación, han sido identificados en los rellenos de fractura del sistema (Pérez del Villar et al., 1997; Ruskeenemi, 1998).

En consecuencia, aunque los minerales silicatados primarios son los predominantes en el macizo rocoso de Palmottu, los minerales que intervienen mayoritariamente en las reacciones de meteorización son los secundarios de los rellenos de fractura.

Las mezclas que, en distintas proporciones, explicarían las aguas intermedias son:

- a) Aguas bicarbonatadas sódicas + aguas sulfatadas sódicas.
- b) Aguas sulfatadas sódicas + aguas cloruradas sódicas.
- c) Aguas bicarbonatadas sodo-cálcicas + aguas sulfatadas sódicas.

Los potenciales redox medidos en el sistema muestran la existencia de dos zonas diferentes: la oxidada y más superficial, situada por encima de la fractura subhorizontal H1, y la reducida, más profunda, situada por debajo de dicha fractura (Cera et al., 1999a y b).

Los potenciales redox medidos en las aguas oxidantes, entre 300 y 450 mV, son debidos a la reducción del oxígeno por procesos biológicos, característicos de las zonas superficiales. En las aguas algo más profundas, con potenciales redox comprendidos entre 0 y 150 mV, el par Fe(II)/Fe(III) es el responsable de dichos potenciales (Fig. 9).

En la zona reducida y fracturada del sistema, donde se localiza la mineralización de uranio, los potenciales redox del agua están controlados por el par UO₂/U₃O_{7(s)}, mientras que en las zonas más profundas, poco fracturadas y donde se encuentra el Sistema de Flujo Estancado, es el par S²⁻/SO₄²⁻ el encargado de controlar los potenciales redox (ver Fig. 9) (Cera et al., 1999 a y b).

El gradiente negativo de los potenciales redox observado en el sistema de Palmottu (Fig. 10) es muy similar al observado en muchos sistemas de aguas subterráneas. Así, en general, las condiciones redox iniciales reflejan unas concentraciones elevadas de oxígeno disuelto en las aguas, que alcanzan potenciales redox de alrededor de 700 mV. Estos potenciales disminuyen a medida que el agua se infiltra a través del suelo, fundamentalmente debido a la oxidación de la materia orgánica, que es el proceso que consume la mayor parte del oxígeno disuelto. A este proceso habría que añadirle otros (oxidación del amonio, de los hidróxidos de Mn(II), Fe(II), sulfuros etc.) que, si bien consumen menos oxígeno que el de la oxidación de la materia orgánica, son muy importantes para la evolución química de las aguas.

En el caso de Palmottu, los últimos procesos de oxidación anteriormente reseñados alcanzan un papel preponderante a medida que se produce la infiltración de las aguas, de manera que el par Fe(II)/Fe(III) es el que controla fundamentalmente los potenciales redox de los sistemas de Flujo Dinámico Superior y Profundo. Además, los tiempos de residencia de las aguas de estos sistemas, del orden de 10⁹ segundos, son más largos que los tiempos característicos de los procesos redox involucrados, variables entre 10² y 10⁸ segundos, por lo que se asume que estos sistemas acuosos más superficiales de Palmottu están en equilibrio redox.

Por otra parte, en sistemas acuosos cerrados, en los que exista materia orgánica y nutrientes suficientes para el desarrollo bacteriano, la reducción de los iones SO₄⁼ a S⁼ y H₂S puede producirse si se alcanzan potenciales redox suficientemente bajos. La presencia de bacterias sulfato reductoras en el Sistema de Flujo Estancado (Pedresen y Haveman, 1999) corroboran que la reducción bacteriana de los sulfatos es la responsable del control redox de estas aguas, que tiene, a su vez, tiempos de residencia muy largos. Cuando este sistema está próximo a la mineralización de uranio, los minerales reducidos de este elemento son los que controlan el potencial redox de las aguas, tal y como se ha observado en

la cuenca francesa de Lodève, también con mineralizaciones uraníferas importantes. Finalmente, los tiempos característicos de reacción de los pares redox que controlan el Sistema de Flujo Estancado, entre 10^9 y 10^{11} segundos, son de aproximadamente el mismo orden de magnitud que los tiempos de residencia de estas aguas (10^9 segundos), lo que permite también asumir que este sistema profundo está en equilibrio redox.

Aunque el origen de las aguas bicarbonatadas está relacionado con los procesos de interacción entre las aguas de recarga y los rellenos de fractura, las aguas salinas más profundas (sulfatadas y cloruradas sódicas) presentan señales isotópicas inequívocas propias de un origen glacial. Así, la presencia de aguas con este origen sugiere que, bajo altas presiones hidráulicas, como las que se originarían en los bordes de los glaciares durante su deshielo, aquellas podrían infiltrarse hasta las profundidades a las que actualmente se encuentran. Sin embargo, parece poco probable que dichas aguas mantuvieran su capacidad de oxidación hasta dichas profundidades, dada la capacidad de tampón redox de los materiales geológicos atravesados (Blomqvist et al., 2000). Los resultados de los cálculos realizados en el entorno de Äspö, sobre el transporte de oxidantes disueltos en las aguas de deglaciación, descartaron por completo que dichas aguas mantuvieran su capacidad oxidante, confirmándose así la capacidad reductora de los granitos del Escudo Escandinavo (Guimerá et al., 1999).

En este sentido, para explicar la presencia de aguas sulfatadas, circunscritas solamente a las proximidades de las zonas mineralizadas, Blomqvist et al. (2000) sugieren que la combinación de:

- i) la disolución/oxidación de los sulfuros durante fases hidrotermales,
- ii) la continua oxidación supergénica de los sulfuros durante los tiempos geológicos, incluyendo los periodos interglaciales, y
- iii) el enriquecimiento en sulfatos de las aguas de deshielo por la disolución de mirabilita formada en la superficie o en las fracturas de las rocas, podría explicar las altas concentraciones de sulfatos en dichas aguas.

Sin embargo, resta aún por dilucidar cual de estos procesos ha sido realmente el responsable de la concentración moderada en sulfatos de las aguas localizadas en las zonas profundas del sistema, con permeabilidad relativamente baja.

Factores que controlan la solubilidad del uranio en las aguas

De acuerdo con Blomqvist et al. (2000), las concentraciones de U medidas en los diferentes tipos de aguas subterráneas son la siguientes:

- En las aguas de la cobertera cuaternaria, la concentración de U varía entre 0.1 y 11.0 $\mu\text{g/l}$, correspondiendo los valores más altos a las zonas más próximas a la mineralización.
- En las aguas bicarbonatadas cálcicas y sódicas, las concentraciones de U varían entre 2.2 y 765 $\mu\text{g/l}$ y entre 0.6 y 363 $\mu\text{g/l}$, respectivamente. Al igual que en el caso anterior, las concentraciones más altas se encuentran en las aguas bicarbonatadas más oxidadas y más próximas a las zonas mineralizadas.
- En las aguas sulfatadas y cloruradas sódicas, en las que prevalecen las condiciones reducidas, la concentración de U es raramente superior a los 10 $\mu\text{g/l}$.

Por otra parte, experiencias realizadas en la zona más superficial de la zona del Granito del Este, donde se localiza la uranofana como único mineral secundario de uranio (Ruskeeniemi et al., 1999; Pérez del Villar et al., 2000), demostraron que la concentración de U de las aguas de esta zona superficial aumentaba extraordinariamente en épocas de lluvia. Este hecho, interpretado por la mayor solubilidad de la uranofana para los valores de pH de las aguas de precipitación, comprendidos entre 4.9 y 5.8, ha sido comprobado teóricamente por Bruno et al. (1999a), teniendo en cuenta la solubilidad y la cinética de disolución de la uranofana para distintos valores de pH.

El cálculo de los índices de saturación de los distintos tipos de agua con respecto a los minerales de U existentes en el sistema (Gimeno y Peña, 1999; Gimeno et al., 1999) indica que las aguas superficiales están subsaturadas en uraninita, aunque pueden estar en equilibrio con ella en las zonas más ricas en U. Por el contrario, las aguas más profundas están sobresaturadas en dicho óxido de U(IV). Por último, todas las aguas están subsaturadas en uranofana, lo que sugiere que un silicato de uranilo y Ca, parecido a la uranofana, puede ser en realidad la fase activa en el sistema. Esto conllevaría que la constante de equilibrio de dicho silicato sería más baja que la de la uranofana en sentido estricto. Por lo tanto, de esta manera se explicaría que las muestras saturadas en el silicato de uranilo y Ca sean las menos saturadas en uraninita y viceversa.

Estos resultados pueden explicar también los procesos continuos de oxidación y disolución de la uraninita por la entrada de aguas meteóricas, así como la neoformación, casi simultánea, de uranofana, lejos del término fuente o por la transformación "in situ" de la uraninita y/o coffinita. En los periodos lluviosos se incrementaría la disolución de la uranofana, aumentándose así la concentración de U en las aguas, mientras que en los periodos secos se facilitaría la reprecipitación de dicho silicato de uranilo y Ca, principalmente en la zona no saturada (Gimeno y Peña, 1999; Gimeno et al., 1999).

Por último, los ejercicios de predicción ciega realizados a partir de las características fisico-químicas de los distintos tipos de aguas (Bruno et al., 1999 b) llegaron a resultados semejantes a los obtenidos experimentalmente y a partir de los índices de saturación. Así, en las aguas oxidadas de la zona superior del sistema, la solubilidad del U, principalmente como complejos carbonatados de uranilo, parece estar controlada por los silicatos de uranilo y Ca del tipo uranofana y/o soddiyta, mientras que, en las aguas profundas, la solubilidad de este elemento, mayoritariamente en forma de $U(OH)_4$ (aq), estaría controlada por la coffinita y la uraninita en sus diferentes estados de oxidación (Fig. 11). Esto está de acuerdo con el par que controla el potencial redox de las aguas profundas próximas a las zonas mineralizadas.

Procesos de retención/migración del U en el sistema

Los estudios de migración se realizaron a dos niveles. El primero consistió en la identificación de los procesos de migración/retención en el medio natural, así como en su cuantificación experimental en el laboratorio y/o mediante herramientas numéricas. El segundo se orientó a la modelización integrada de los datos anteriores, junto con otros procedentes de la caracterización del sitio. Este segundo nivel de estudio se tratará en el apartado 5.

Entre los procesos de retención estudiados hay que destacar los de precipitación, sorción en oxihidróxidos de Fe y en superficies de fractura, el de fijación, de una u otra forma, en calcita y el de difusión en la matriz rocosa. Los coloides y microorganismos han sido estudiados en tanto los primeros tienen capacidad de reforzar la migración, y los segundos pueden ser agentes reductores que afectan a la migración/retención de los radionucleidos.

La retención por precipitación de minerales secundarios de U es irrelevante en el sistema, ya que, sorprendentemente, dichos minerales, a excepción de la uranofana, están ausentes en este yacimiento. Además, dicho mineral está muy circunscrito a las zonas más superficiales y ricas en U y está sometido a procesos continuos de disolución y precipitación, por lo que resulta ser el principal término fuente de U en las aguas oxidadas del sistema.

Los oxihidróxidos de Fe, en su mayor parte, se localizan en la zona superficial y oxidada del sistema, a veces con cantidades significativas de U. No obstante, la escasez de estos compuestos en los rellenos de fractura hace que su papel como sumidero o fuente de U sea prácticamente despreciable, lo que ha sido comprobado por Salas y Ayora (1999), simulando que las reacciones de adsorción/desorción sobre $Fe(OH)_3$ están regidas por la ley de acción de masas.

Por lo que se refiere a la sorción en superficies de fractura, los valores de K_d obtenidos mediante experimentos en batch, así como los obtenidos "in situ", mediante cuidadosas extracciones, han permitido estimar que los procesos reversibles de adsorción afectan, aproximadamente, al 1% del U total de la roca (Blomqvist et al., 2000).

La fijación del U por la calcita de los rellenos fisurales resulta un tema controvertido por lo contradictorio de los datos experimentales. Así, la composición química de dicho mineral, tanto en lo referente a los elementos mayores como traza, es bastante constante, independientemente de su morfología y de la profundidad. Sus contenidos en MgO y FeO (expresado en Fe_2O_3) son normalmente inferiores al 0.5%, mientras que el de MnO es generalmente superior al 1% (Ruskeeniemi, 1998). Por el contrario, el contenido en U de las muestras de calcita es más variable, llegando a alcanzar algo más de 2000 ppm. Dado que estas altas concentraciones de U no podían explicarse solamente por la entrada de este elemento en la red de la calcita, estudios microanalíticos permitieron averiguar que dichas muestras de calcita contenían microinclusiones de silicatos y silicofosfatos de U, semejantes a los que se encuentran precipitados sobre otros minerales secundarios de los rellenos de fractura, como la esmectita, piritita y albita (Ruskeeniemi et al. 1994; 1999; Pérez del Villar et al., 2000 b y c). Estas observaciones mineralógicas y los resultados de los estudios sobre las inclusiones fluidas e isótopos estables (Ruskeeniemi, 1998; Blyth y Frape, 1999 y Pérez del Villar et al., 2000 b y c) sugieren que di-

chas calcitas son de origen hidrotermal y formadas en un rango de temperaturas comprendido entre 43°C y 285°C, por lo que, en su mayoría, serían bastante antiguas.

En contraposición a estos datos, sólo el 10% de las muestras presentan equilibrio secular en la parte más alta de la serie de desintegración radiactiva del ^{238}U (edad ≥ 1.7 Ma), mientras que el 50% presentan relaciones isotópicas indicativas de acumulación reciente de U. El 40% restante parecen haber sufrido procesos sucesivos de acumulación y lixiviación recientes de U o solamente de lixiviación. En este sentido, se puede argumentar que las muestras con acumulación reciente de U habrían estado aisladas desde su formación, en fracturas selladas o, al menos, con muy baja conductividad hidráulica, comportándose como sistemas geoquímicos cerrados. El cálculo de la edad absoluta de estas muestras, mediante la serie de desintegración radiactiva del ^{238}U , proporciona edades de: 40 ka en tres muestras, 60 ka en cinco, 110 ka en diez y aproximadamente 250 ka en seis. Estos datos están, en principio, en contradicción con el origen hidrotermal de estas calcitas (Suksi et al. 1999a; Pomies, 1999). Esta contradicción, que puede ser explicada porque las muestras analizadas eran mezclas de calcitas formadas en diferentes épocas, fue investigada utilizando una muestra zonada de calcita, tapizada por goethita (Suksi et al., 1999b). La separación mecánica del tapiz de goethita permitió acceder a las capas más externas de la calcita, de las que se separaron las cuatro más superficiales. Los contenidos en U de dichas capas, desde la más superficial a la más profunda, fueron de 146 ppm, 231 ppm, 117 ppm y 99 ppm, observándose además que la relación $^{234}\text{U}/^{348}\text{U}$ variaba desde 1.6, en la capa más superficial, hasta 1.02 (equilibrio secular), en la más profunda. De esta manera quedó comprobada la hipótesis de que las muestras estudiadas eran mezclas de calcitas formadas en distintas épocas y condiciones fisicoquímicas, de manera que las más antiguas sirvieron de núcleos de cristalización para las más modernas.

En paralelo, las investigaciones realizadas en el laboratorio sobre la sorción y coprecipitación del U sobre/con calcita demostraron que ambos procesos eran irrelevantes para la fijación de dicho nucleido (Cui y Ericson, 1999).

Como conclusión se puede decir que si la sorción y la coprecipitación de U en calcitas son mecanismos poco relevantes para la retención de este elemento, la formación simultánea de minerales secundarios

de U y calcita es el proceso que explica la mayor parte del U observado en dicho carbonato. Por otra parte, dado que el U del sistema fue sucesivamente removilizado bajo condiciones fisico-químicas diferentes, desde hidrotermales hasta ambientales, en un mismo relleno de calcita se puede encontrar U con edades también diferentes y fijado por distintos mecanismos (Blomqvist et al., 2000).

Por lo que se refiere al mecanismo de retención por difusión en la matriz rocosa, éste ha sido detectado, a escala de centímetros, tanto experimentalmente como por modelización numérica. La investigación de un hipotético frente redox generado por la intrusión de aguas oxidadas, desde una fractura hacia el interior reducido de la roca, ha demostrado que dicho frente puede actuar como una barrera que modera la difusión en la matriz rocosa. Así, aunque el frente redox es permeable, detrás de él la difusión se produce a velocidad decreciente (Blomqvist et al., 2000).

Por último, la concentración de coloides en las aguas del sistema es lo suficientemente baja como para que estas partículas ejerzan un papel preponderante en el transporte de los radionucleidos (Blomqvist et al., 2000).

Modelización de la migración en el sistema de flujo del granito del este

Objetivos, hipótesis y procedimiento

El objetivo fundamental de este ejercicio de modelización fue obtener un conocimiento cuantitativo de los mecanismos responsables de la liberación y migración del U a temperatura ambiente, a través de una fractura relativamente bien conocida, hidráulicamente activa y a la escala real de tiempos (<10 ka) (Blomqvist et al., 2000).

Para establecer el modelo y explicar las concentraciones de U observadas en las aguas subterráneas del sistema se chequearon una serie de hipótesis. Estas fueron:

- i) difusión del U desde la matriz rocosa,
- ii) los procesos de adsorción/desorción sobre/desde los oxihidróxidos de Fe,
- iii) disolución de los minerales primarios de U(IV);

- iv) disolución de los minerales secundarios de U(VI),
- iv) disolución de los rellenos de fractura, por ejemplo de la calcita, y
- v) la mezcla de las aguas subterráneas (Read et al., 1998).

Además de estos procesos se tuvieron en cuenta los cambios estacionales en la recarga del sistema, que afectaban notablemente a la concentración de U en las aguas y que es una característica intrínseca del sitio.

Originalmente el sistema se consideró geoquímicamente cerrado, en el que las aguas de recarga reaccionarían solamente con el sistema agua/roca existente en la fractura, y en el que la composición de las aguas de dicha fractura era el resultado de los procesos de interacción agua/roca acaecidos desde la última glaciación, hace aproximadamente 10 ka. La representación simplificada del sistema objeto de modelización, en la que se incluyen las concentraciones de U y las relaciones de actividad $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ medidas en las secciones obturadas de la fractura problema, se muestra en la Figura 12.

La modelización del sistema se realizó en dos etapas: la primera, denominada ciega, se llevó a cabo con una cantidad muy limitada de datos hidroquímicos, mineralógicos y de migración, mientras que la segunda fue un refinamiento de la primera, a medida que se dispuso de nuevos datos experimentales.

Resultados

Los resultados correspondientes a la primera fase del ejercicio de modelización, clasificados de acuerdo con las hipótesis examinadas se pueden resumir así:

El efecto de la difusión del U a partir de la matriz rocosa, examinado mediante el código FTRANS y asumiendo como única fuente de U el disuelto en el agua intersticial de la roca y la sorción reversible de dicho elemento sobre las fases sólidas de la matriz, no explicaba, en general, las concentraciones de U medidas en el sistema. Sólo cuando la concentración de U en dichas aguas intersticiales se supone de 1500 ppb, valor excesivamente alto dado el carácter reducido de la matriz rocosa, se obtiene una buena aproximación entre las concentraciones medidas y las calculadas (Nordman y Rasilainen, 1999).

El efecto de la adsorción/desorción sobre o desde los oxihidróxidos de Fe fue estudiado por Salas y Ayora (1998), de acuerdo con el modelo propuesto por Waite et al. (1994). Estos autores consideraron que las reacciones de adsorción/desorción del U por dichos oxihidróxidos esta regida por la ley de acción de masas. No obstante, la escasez de estos compuestos en los rellenos de fractura hace que su papel como fuente o sumidero de U sea prácticamente despreciable.

El efecto de la disolución de la uraninita sobre la cantidad de U disuelto en las aguas del sistema fue también estudiado por Salas y Ayora (1998), en tanto dicho óxido es la última fuente del U del sistema, y su disolución, aparentemente activa durante un largo periodo de tiempo, podía explicar las concentraciones de U medidas en las aguas del sistema. Los modelos empleados tuvieron en cuenta el papel de los pares Fe(II)/Fe(III), U(IV)/U(VI) y $\text{H}_2\text{S}/\text{SO}_4^{2-}$ como tampones redox del sistema, estableciéndose que:

- i) el oxígeno disuelto en el agua es el responsable de los potenciales redox medidos en la parte más superficial del mismo,
- ii) el par Fe(II)/Fe(III) lo era de los potenciales medidos en la zona intermedia, y
- iii) el par U(IV)/U(VI) de los medidos en las partes más profundas.

En este contexto de potenciales redox, la disolución teórica de la uraninita ocurriría en un amplio frente del sistema, que se movería hacia las partes más profundas hasta que se agotara la fuente. En estas condiciones, la concentración de U de las aguas alcanzaría un pico a una profundidad de aproximadamente 80 m, para decrecer después hasta un valor constante. Sin embargo, las concentraciones de U así calculadas resultaron ser tres órdenes de magnitud más bajas que las medidas, por lo que habría que tener en cuenta otras fuentes adicionales de U (Salas y Ayora, 1998).

El efecto de la disolución de las calcitas ricas en uranio, descritas anteriormente, fue también estudiado por Salas y Ayora (1998), llegando a la conclusión de que si bien la disolución de este carbonato y la uraninita explicaba bien la evolución observada del pH, Eh, HCO_3^- , y Ca en las aguas del sistema, la calcita no podía constituir, por sí sola, la fuente permanente del U, ya que se agotaría muy rápidamente.

Por último, el efecto de mezcla entre los distintos tipos de aguas del sistema tampoco explicaría las

concentraciones de U observadas en la fractura seleccionada para la modelización, ya que:

- i) en el sistema predomina, en general, la estratificación de los distintos tipos de aguas frente a los procesos de mezcla,
- ii) el proceso de mezcla en la fractura seleccionada tampoco explicaría la distribución del U en las aguas ni las relaciones de actividad entre el ^{234}U y ^{238}U , y
- iii) el hecho de que las concentraciones de U de las aguas más superficiales estén en relación con los periodos de máxima pluviometría no se puede explicar por procesos de mezcla, sino por procesos de disolución mineral.

La segunda fase del ejercicio de modelización se realizó teniendo en cuenta datos hidrogeoquímicos adicionales obtenidos de los sondeos R-318, R-389 y R-390, y aplicando diferentes códigos numéricos como el ALLAN-NEPTUNIX, RETRASO y FTRANS. Los resultados se resumen como sigue:

El código ALLAN-NEPTUNIX sólo tuvo en cuenta el papel de la sorción en los procesos de migración, utilizando los datos obtenidos experimentalmente en el laboratorio. Este modelo de sorción tuvo en cuenta dos tipos de mecanismos: las reacciones superficiales de complejación ácido-base con los óxidos de Fe y arcillas, y las reacciones de cambio catiónico con las arcillas (Le Guern et al., 1999b).

En estas condiciones, las concentraciones de U calculadas variaban entre 250 y 25 ppb, observándose una disminución en dicha concentración con el tiempo (el tiempo simulado fue de 23 años). Este hecho se ha interpretado como el resultado de un empobrecimiento sucesivo del U existente en la superficie de la fractura. Los valores del pH de las aguas fueron relativamente bien reproducidos, mientras que las concentraciones simuladas de los iones mayoritarios fueron aproximadamente un orden de magnitud más bajas que las medidas.

Las discrepancias entre los datos experimentales y los calculados se pueden explicar por las siguientes razones:

- i) el modelo utilizado es una representación muy aproximada del sistema estudiado,
- ii) el control de las condiciones redox se limitó solamente al par U(IV)/U(VI) , considerándose irrelevante el control por parte del par Fe(II)/Fe(III) ,
- iii) no se consideró el papel de la difusión en la matriz rocosa ni de la mezcla de aguas, y

- iv) el modelo se calibró con los datos de laboratorio y no con las observaciones realizadas "in situ", lo que siempre conlleva incertidumbres.

Para la aplicación del código transporte-reactivo RETRASO (Salas y Ayora, 1998; 1999), la fractura estudiada se dividió en tres partes, con diferentes litologías: la primera, hasta los 10 m de profundidad, caracterizada por el Granito del Este supergénicamente alterado; la segunda, desde los 10 hasta los 100 m de profundidad y denominada "sistema superficial", caracterizada por el Granito del Este inalterado; y la tercera, desde los 100 hasta los 190 m de profundidad, denominada "sistema profundo", caracterizada por los micagneisses inalterados de la zona.

Los resultados obtenidos indican que:

- i) la disolución de la calcita, plagioclasa, biotita y uranofana tiene lugar fundamentalmente en la zona del Granito del Este alterado,
- ii) la disolución de la calcita es la responsable de la distribución de los valores de pH de las aguas,
- iii) la uranofana parece ser el término fuente fundamental del U en la zona superficial del sistema, mientras que la disolución de la uraninita es la responsable del U en la zona más profunda del mismo, y iv) los pares Fe(II)/Fe(III) y U(IV)/U(VI) son los responsables de los valores de Eh en las zonas superficial y profunda del sistema, respectivamente. En conclusión, los resultados obtenidos mediante la aplicación de este código explican muy satisfactoriamente los principales parámetros medidos en las aguas del sistema estudiado, tal y como se refleja en la Figura 13.

De acuerdo con Salas y Ayora (1999), el aumento de la concentración de U en las aguas más superficiales del sistema, después de un periodo de lluvias, se puede explicar por un aumento de la superficie reactiva de la uranofana ya que, al subir el nivel freático, más cantidad de dicho silicato de uranilo estaría en contacto con el agua.

El código FTRANS, basado en los procesos de advección-dispersión y difusión en la matriz rocosa, incluyendo los procesos de adsorción reversible, fue aplicado por Nordman y Rasilainen (1999), con el mismo objetivo que los anteriores. Es decir, para explicar las medidas de U en las aguas subterráneas del sistema. Además, con el fin de aclarar el verdadero papel de la difusión en matriz, fue necesario estudiar los efectos de la oxidación gradual de

la matriz rocosa en contacto con las aguas oxidantes de la fractura. Por todo ello, en dicho código se contempló también la difusión del oxígeno disuelto en las aguas, como agente responsable de la oxidación de la matriz rocosa, término fuente del U. La matriz de la roca se consideró reducida desde la última glaciación.

Las reacciones de oxidación responsables de la disolución del UO_2 y otros elementos reductores, principalmente el Fe(II), consumirían el oxígeno del agua y originarían un frente redox que se propagaría lentamente en la matriz rocosa. El aumento considerable de la concentración teórica de U en las aguas de la fractura, debido a la disolución del UO_2 , puso de manifiesto que la oxidación gradual de la matriz rocosa jugaba un papel importante en el control del U medido en las aguas de la fractura.

Conclusiones

La estrategia de comprobar la migración del U en el sistema estudiado, usando diferentes modelos geoquímicos, se debió al hecho de que un sólo modelo no cubría el espectro de procesos detectados experimentalmente en el sitio. Así, el modelo ALLAN-NEPTUNIX cubría la geoquímica de las aguas y los procesos advectivos, incluyendo los de adsorción; el modelo RETRASO consideraba la geoquímica de las aguas y los procesos de advección y dispersión, incluyendo disolución/precipitación y adsorción/desorción y, por último, el código FTRANS cubría los procesos de advección, dispersión y difusión en matriz.

En las áreas en las que estos tres códigos se solapaban, los resultados eran relativamente coherentes entre sí, de manera que los dos primeros daban resultados similares en lo referente al papel de los procesos de adsorción/desorción, para el intervalo de tiempo en que se solapó la modelización con ambos códigos.

El código RETRASO proporcionó datos coherentes con muchos de los parámetros medidos en el sistema. Así, los valores de Eh parecían estar controlados por el par Fe(II)/Fe(III) en la zona somera del sistema, mientras que el par U(IV)/U(VI) controlaría dichos valores en la zona más profunda del mismo. Además, dicho código indicó que la fase de uranio responsable del aumento de las concentraciones de U en el sistema, después de un periodo de lluvias, era la uranofana, mineral detectado en la zona más superficial del sistema. Por el contrario, en la zona

más profunda del mismo, la uraninita sería el mineral fuente del U de las aguas.

Dado que el código FTRANS tenía solamente en cuenta la difusión en matriz, los resultados no pudieron ser validados por los otros dos códigos. Sin embargo, dichos resultados concordaban ampliamente con los desequilibrios radiactivos medidos en el agua. En definitiva, los resultados del código FTRANS y los datos experimentales de desequilibrio radiactivo indicaban la existencia de un frente redox en la matriz rocosa, con una zona oxidada en las cercanías de la fractura y otra reducida en el interior de dicha matriz, corroborando un proceso gradual de oxidación desde la fractura hacia el interior de la roca. Desde la última glaciación la roca se ha considerado como un sistema reducido, incluso en su zona más superficial.

Conclusiones para la evaluación del comportamiento de un AGP

Dado que el objetivo fundamental del proyecto Palmottu fue el de obtener datos y herramientas de trabajo aplicables a la evaluación del comportamiento de un AGP en materiales ígneos cristalinos, el desarrollo del proyecto estuvo constantemente dirigido a la identificación de escenarios y procesos, y a la comprobación de modelos de transporte y de técnicas de estudio en el campo y laboratorio.

Identificación de escenarios

La contribución más importante del proyecto Palmottu ha sido aumentar el conocimiento sobre los efectos, a largo plazo, de los periodos glaciales/postglaciales sobre la estabilidad hidrogeoquímica del sistema, con el fin de predecir el comportamiento de un AGP en el lapso de tiempo considerado. Así, dicho proyecto ha puesto de manifiesto evidencias claras sobre la infiltración de las aguas de fusión del hielo hasta profundidades de 300-350 m, lo que no es deseable desde la perspectiva de la evaluación del comportamiento de un AGP. Sin embargo, de acuerdo con los datos obtenidos, parece improbable que estas aguas mantengan su capacidad oxidante hasta tales profundidades, dada la capacidad tampón de la propia roca del sistema, desde las zonas más superficiales a las más profundas.

Además, aunque las observaciones mineralógicas e hidrogeoquímicas demostraron la existencia de pro-

cesos continuos de oxidación, la mayor parte del U del sistema ha permanecido formando fases de U(IV), tales como uraninita y coffinita, desde la formación del yacimiento hace 1700-1800 Ma. Este hecho indica que las condiciones reductoras del sistema han permanecido durante periodos muy largos de tiempo, lo que aumenta la confianza en la estabilidad de un repositorio de combustible gastado en un medio rocoso ígneo cristalino.

Identificación de procesos

Entre los procesos geoquímicos más importantes identificados merecen citarse las reacciones geoquímicas y los procesos de mezcla que rigen la evolución y composición de las aguas subterráneas de infiltración. Así, el proyecto Palmottu a proporcionado una visión coherente de los procesos involucrados en la evolución de las características hidrogeoquímica de las aguas en un área de infiltración. La coherencia de los procesos redox que controlan el Eh de las aguas ha validado la interpretación global de la hidrogeoquímica del sistema. Así mismo, ha corroborado la importancia de medir correcta e inequívocamente, "in situ y en sondeos, los potenciales redox de las aguas, uno de los parámetros fundamentales para predecir la evolución geoquímica de un AGP. En definitiva, la identificación y coherente interpretación de dichos procesos garantiza, por un lado, la credibilidad de los modelos geoquímicos aplicados en los ejercicios de PA, y por otro, la habilidad de los equipos de investigación para caracterizar los controles redox de un sistema natural determinado.

Por otro lado, el proyecto Palmottu, como otros muchos, ha demostrado que: si bien el U procedente de la desestabilización de UO_2 puede fijarse y concentrarse en forma de minerales secundarios, retrasando así su migración, dichos sumideros pueden actuar, a su vez, como fuentes secundarias de este radioelemento, hecho lo suficientemente importante como para tenerse en cuenta en los ejercicios de PA.

Comprobación de modelos de transporte

Los ejercicios de modelización llevados a cabo durante el proyecto, así como los resultados obtenidos, tienen un gran interés para la evaluación del comportamiento de un repositorio. Así, la combinación de modelos hidrogeológicos e hidrogeoquímicos proporcionó una poderosa herramienta para

obtener un conocimiento coherente de las aguas subterráneas del sitio, herramienta que ya está siendo aplicada con éxito en el programa finlandés de residuos nucleares.

Los modelos de migración aplicados han proporcionado una excelente explicación de la evolución de las características químicas más importantes de las aguas subterráneas en un área de infiltración, así como del comportamiento del U. No obstante, se ha demostrado que, si se quieren obtener resultados simulados de calidad, el modelo utilizado debe de tener en cuenta todos aquellos procesos de liberación, migración y retención del U que se consideren activos y relevantes en el sistema a estudiar.

Por otra parte, el valor de los ejercicios de modelización realizados en el proyecto no debe minimizarse, aunque el sistema estudiado difiera de un almacenamiento de residuos radiactivos en:

- i) que la fuente del U esté dispersa en el sistema, y
- ii) que el sistema esté sometido a las condiciones químicas propias de un ambiente subsuperficial.

Por último, el ejercicio de modelización ciega, llevado a cabo para comprobar la capacidad de predecir el comportamiento del U y otros elementos traza, verificó el conocimiento conceptual que se tiene sobre el ciclo geoquímico de algunos elementos traza de interés, así como las bases de datos y códigos que permiten calcular la solubilidad de los radionucleidos y que son los aplicados normalmente en los ejercicios de PA.

Comprobación de métodos de campo y técnicas analíticas

El proyecto Palmottu ha proporcionado un buen sistema natural para comprobar una gran variedad de métodos normalmente utilizados en las investigaciones para caracterizar sitios previamente seleccionados. Los métodos de campo y las técnicas analíticas comprobados han sido:

- i) la perforación poco contaminante de un sondeo profundo para fines hidrogeoquímicos,
- ii) la medición "in situ", por diferentes métodos, de las características redox de las aguas subterráneas,
- iii) la determinación, en el laboratorio y por diferentes métodos, del estado de oxidación del U y

- iv) la comparación de diferentes métodos de laboratorio para medir los valores de Kd.

En definitiva, los estudios realizados en Palmottu han confirmado la existencia de numerosos procesos responsables de la movilización y retención del U, ya observados en otros yacimientos análogos. Sin embargo, Palmottu constituye el único ejemplo hasta el momento estudiado donde se han podido estudiar los efectos de las glaciaciones y los periodos postglaciales. Al demostrarse que la dispersión del U fue muy limitada durante millones de años, los estudios realizados en Palmottu aumentan la confianza en la seguridad de un almacenamiento profundo de residuos radiactivos en rocas ígneas cristalinas. Sin embargo, es necesario subrayar las limitaciones que tienen las herramientas para modelizar y evaluar el comportamiento de un AGP, cuando éstas se utilizan para describir la migración del U en un sistema geoquímico natural, generalmente complejo.

Referencias

- Blomqvist, R., Suksi, J., Ruskeeniemi, T., Ahonen, L., Niini, H., Vuorinen, U. y Jakobsson, K. (1995).- The Palmottu natural analogue project. The behaviour in and around uranium deposits. Summary Report 1992-1994. Finnish Centre for Radiation and Nuclear Safety, STUK-YTO-TR 84, 73 pp.
- Blomqvist, R., Kaija, J., Lampinen, P., Paananen, M., Ruskeeniemi, T., Korkealaakso, J., Pitkänen, P., Ludvigsson, J.-E., Smellie, J., Koskinen, L., Floría, E., Turrero, M.J., Galarza, G., Jakosson, K., Laaksoharju, M., Casanova, J., Grundfelt, B. y Hernán, P. (1998).- The Palmottu Natural Analogue Project.- Hydrogeological evaluation of the site. E.C. Nuclear Science and Technology Series, Luxembourg. EUR 18202 EN, 95 pp.
- Blomqvist, R., Ruskeeniemi, T., Kaija, J., Ahonen, L., Paananen, M., Smellie, J., Grundfelt, B., Pedersen, K., Bruno, J., Pérez del Villar, L., Cera, E., Rasilainen, K., Pitkänen, P., Suksi, J., Casanova, J., Read, D. y Frape, S. (2000).- The Palmottu Natural Analogue Project (Phase II).- Transport of radionuclides in a natural flow system at Palmottu. E.C. Nuclear Science and Technology Series, Luxembourg. EUR 19611 EN 174 pp.
- Blyth, A. y Frape, S. (1999).- Assessment of the past thermal and chemical history of fluids at the Palmottu research site, by combining fluid inclusion and isotopic investigations of fracture calcites. The Palmottu Natural Analogue Project. Technical Report, 99-07.
- Bruno, J., Cera, E. y Grivé, M. (1999a).- Uranophane solubility evolution with pH. The Palmottu Analogue Project. Technical Note. 8 pp.
- Bruno, J., Cera, E., Duro, L., Rollin, C., Gimeno, M.J., Peña, J., Ahonen, L., Luukkonen, A. y Kaija, J. (1999b).- Blind prediction modelling in the Palmottu system. The Palmottu Analogue Project. Technical Report, 99-17.
- Cera, E., Bruno, J., Grivé, M., Rollin, C., Ahonen, L., Kaija, J., Blomqvist, R., El Aamrani, F.Z., Casas, I. y De Pablo, J. (1999a).- Redox processes in the Palmottu uranium deposit. The Palmottu Analogue Project. Technical Report, 99-19.
- Cera, E., Ahonen, L., Rollin, C., Bruno, J., Kaija, J. y Blomqvist, R. (1999b).- Redox processes in the Palmottu uranium deposit. In: "Eighth EC Natural Analogue Working Group Meeting". Procc. of an international workshop held in Strasbourg, France from 23 to 25 March 1999. (Eds. H. von Maravic and R. Alexander) EC, Nuclear Science and Technology Series, Luxembourg. EUR 19118 EN (en prensa).
- Cui, D. y Eriksen, T. (1999).- Fracture-filling minerals as uranium sinks and sources, a natural analogue study at Palmottu, Finland (submitted to *Radiochimica Acta*).
- Guimerà, J., Duro, L., Jordana, S. y Bruno, J. (1999).- Effects of ice melting and redox front migration in fractured rocks of low permeability. SKB Technical Reports 99-19.
- Gimeno, M.J. y Peña, J. (1999a).- Geochemical modelling of groundwater evolution in the Palmottu natural system. The Palmottu Analogue Project. Technical Report, 99-04.
- Gimeno, M.J., Peña, J. y Pérez del Villar, L. (1999b).- Geochemical modelling of groundwater evolution in the Palmottu natural system. In: "Eighth EC Natural Analogue Working Group Meeting". Procc. of an international workshop held in Strasbourg, France from 23 to 25 March 1999. (Eds. H. von Maravic and R. Alexander) EC, Nuclear Science and Technology Series, Luxembourg. EUR 19118 EN (en prensa).
- Le Guern, C., Baranger, Ph. y Casanova, J. (1999).- Modelling exercise: Role of sorption processes-Coupled transport modelling. The Palmottu Natural Analogue Project. Technical Report, 99-09.
- Nordman, H. y Rasilainen, K. (1999).- Migration modelling exercise of the Palmottu Project-PA approach. The Palmottu Natural Analogue Project Technical Report 99-18, 47 pp.
- Pedersen, K. y Haveman, S. (1999).- Analysis of diversity and distribution of microorganisms in Palmottu groundwater and evaluation of their influence on the redox potential and radionuclide migration. The Palmottu Natural Analogue Project. Technical Report 99-24.
- Pérez del Villar, L., Campos R., Pelayo, M., Pardillo, J., Cózar, J.S. y Labajo, M. A. (1997).- Structural, litho-

- logical and mineralogical analyses of borehole R-385 (386) from the Palmottu Site. The Palmottu Natural Analogue Project. Technical Report, 97-05, 34 pp.
- Pérez del Villar, L., Cózar, J.S. y Labajo, M. A. (2000 a).- Uranium mineral characterisation in the weathered zone of the Palmottu natural system (Finland). CIEMAT/DIAE/5432/4/00, 22 pp.
- Pérez del Villar, L., Crespo, M.T., Delgado, A., Cózar, J.S., Reyes, E. y Labajo, M. A. (2000 b).- Mineralogical and isotopic characterisation of U-rich calcites from the upper part of the Palmottu Natural System (Eastern Granite). CIEMAT/DIAE/54321/2/00, 17 pp.
- Pérez del Villar, L., Cózar, J.S., Labajo, M. A., Gimeno, M.J., Peña, J., Turrero, M.J., Gómez, P., Delgado, A., Reyes, E. y Núñez, R. (2000 c).- Caracterización mineralógica, isotópica, hidroquímica y modelización hidrogeoquímica de los tramos hidráulicamente activos del sondeo profundo R-385 (Palmottu, Finlandia). CIEMAT/DIAE/54321/1/00, 45 pp.
- Pomies, C. (1999).- Traçage isotopique des migrations d'uranium dans l'environnement granitique de la minéralisation uranifère de Palmottu (Sud-Ouest Finlande). Unpublished PhD. Thesis. Université de Montpellier II, Physique et Chimie de la Terre, France, 221 pp.
- Read, D., Rasilainen, K., Blomqvist, R., Ruskeeniemi, T., Kaija, J. y Paananen, M. (1998).- Experimental database for the migration modelling exercise at Palmottu. The Palmottu Natural Analogue Project. Technical Report 98-07, 15pp.
- Ruskeeniemi, T. (1998).- Mineralogical and geochemical database of the Palmottu site. The Palmottu Natural Analogue Project. Technical Report, 98-10.
- Ruskeeniemi, T., Blomqvist, R. y Ahonen, L. (1994).- Uraninite and its alteration at Palmottu U-Th deposit- A possible natural analogue for spent fuel under reducing conditions. In: "The Palmottu Analogue Project, Progress Report 1993" (Eds. T. Ruskeeniemi, J. Suksi, H. Niini, and R. Blomqvist). Geological Survey of Finland, Nuclear Waste Disposal Research, Report YST-85, 53-64.
- Ruskeeniemi, T., Lindberg, A., Pérez del Villar, L., Blomqvist, R., Suksi, J., Blyth, A. y Cera, E. (1999).- Uranium mineralogy with implications for mobilisation of uranium at Palmottu.. In: "Eighth EC Natural Analogue Working Group Meeting". Procc. of an international workshop held in Strasbourg, France from 23 to 25 March 1999. (Eds. H. von Maravic and R. Alexander) EC, Nuclear Science and Technology Series, Luxembourg. EUR 19118 EN (en prensa).
- Räisänen, E. (1989).- Uraniferous granitic veins in the Svecofennian schist belt in Nummi-Pusula, Southern Finland. IAEA Technical Committee Meeting on Uranium Deposits in Magmatic and Metamorphic Rocks (Salamanca, 1986). Report IAEA-TC-571 (Vienna), 12 pp
- Salas, J. y Ayora, C. (1998).- Migration modelling exercise at Palmottu. Preliminary results. The Palmottu Natural Analogue Project. Technical Report, 98-09.
- Salas, J. y Ayora, C. (1999).- Migration modelling exercise at Palmottu: Phase 2. Progress report. The Palmottu Natural Analogue Project. Technical Report 99-20, 19 pp.
- Suksi, J. et al. (1999 a).- U-series support for migration modelling. The Palmottu Natural Analogue Project. Technical Note 8 pp.
- Suksi, J., Juntunen, P. y Ervannen, H. (1999 b).- Study of natural uranium sorption and fixation. The Palmottu Natural Analogue Project. Technical Report, 99-25.
- Vaasjoki, M. (1996).- U-Pb dating of monazite from Palmottu. Geological Survey of Finland, Unpublished report, 15, 8, 96, 2 pp.
- Waite, B., Davis, J.A., Payne, T. E., Waychunas, G.A. y Xu, N. (1994).-Uranium (VI) adsorption to ferrihydrite: Application of a surface complexation model. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 58, 5465-5478.

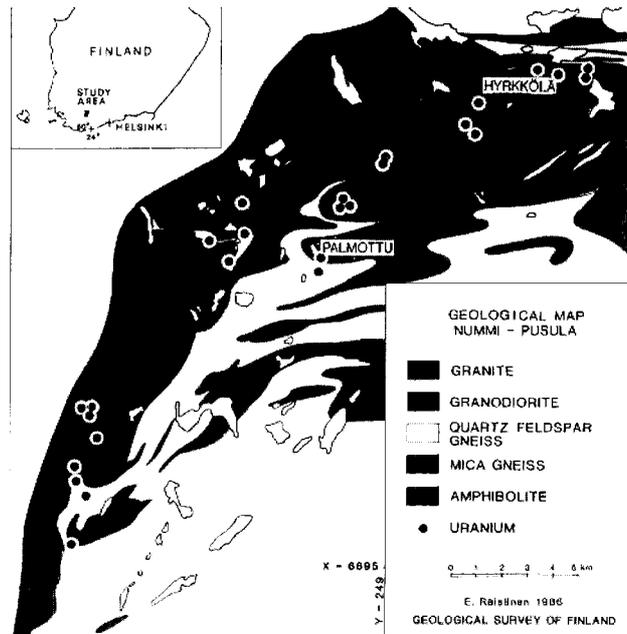


Figura 1. Mapa de situación del yacimiento de Palmottu.

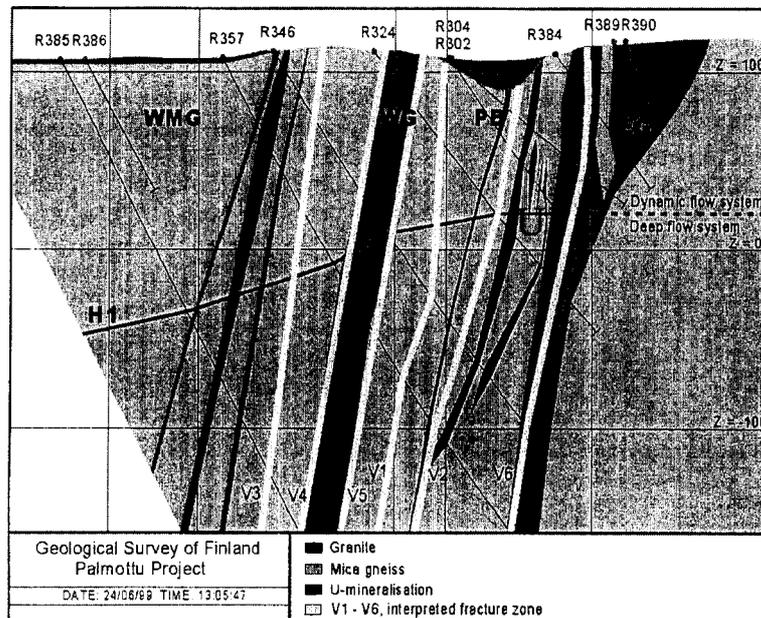


Figura 2. Corte geológico en el que se muestra la situación de la mineralización de U entre WG y EG.

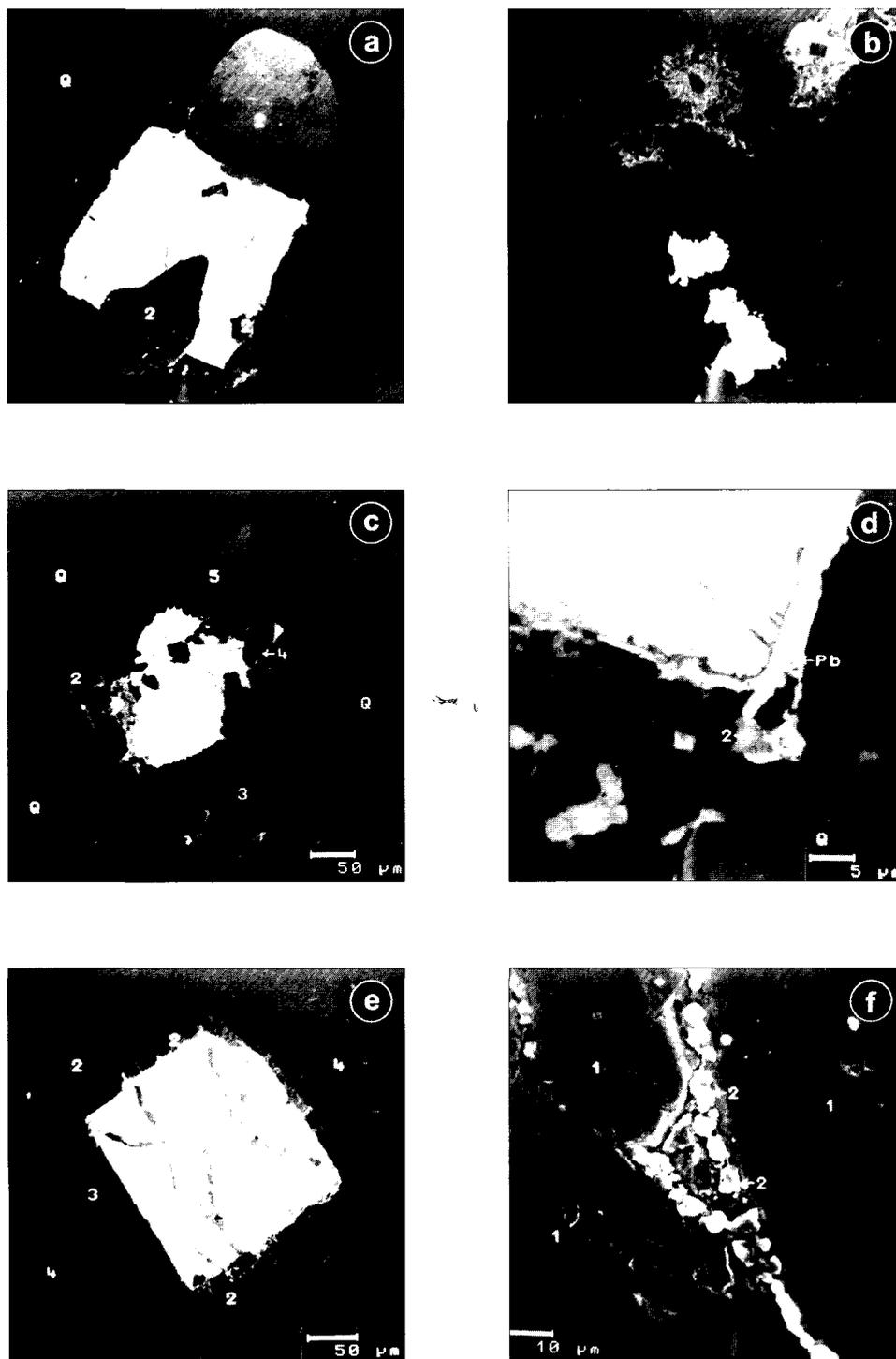


Figura 3. a) Cristal de uraninita asociado a circón. b) Uraninita rodeada por materia orgánica. c) Uraninita alterada a silicatos de U y rodeada por materia orgánica. d) Uraninita parcialmente alterada, rodeada por galena y silicatos de U. e) Uraninita idiomorfa y microfisurada. f) Microfisuras aumentadas, rellenas por galena idiomorfa.

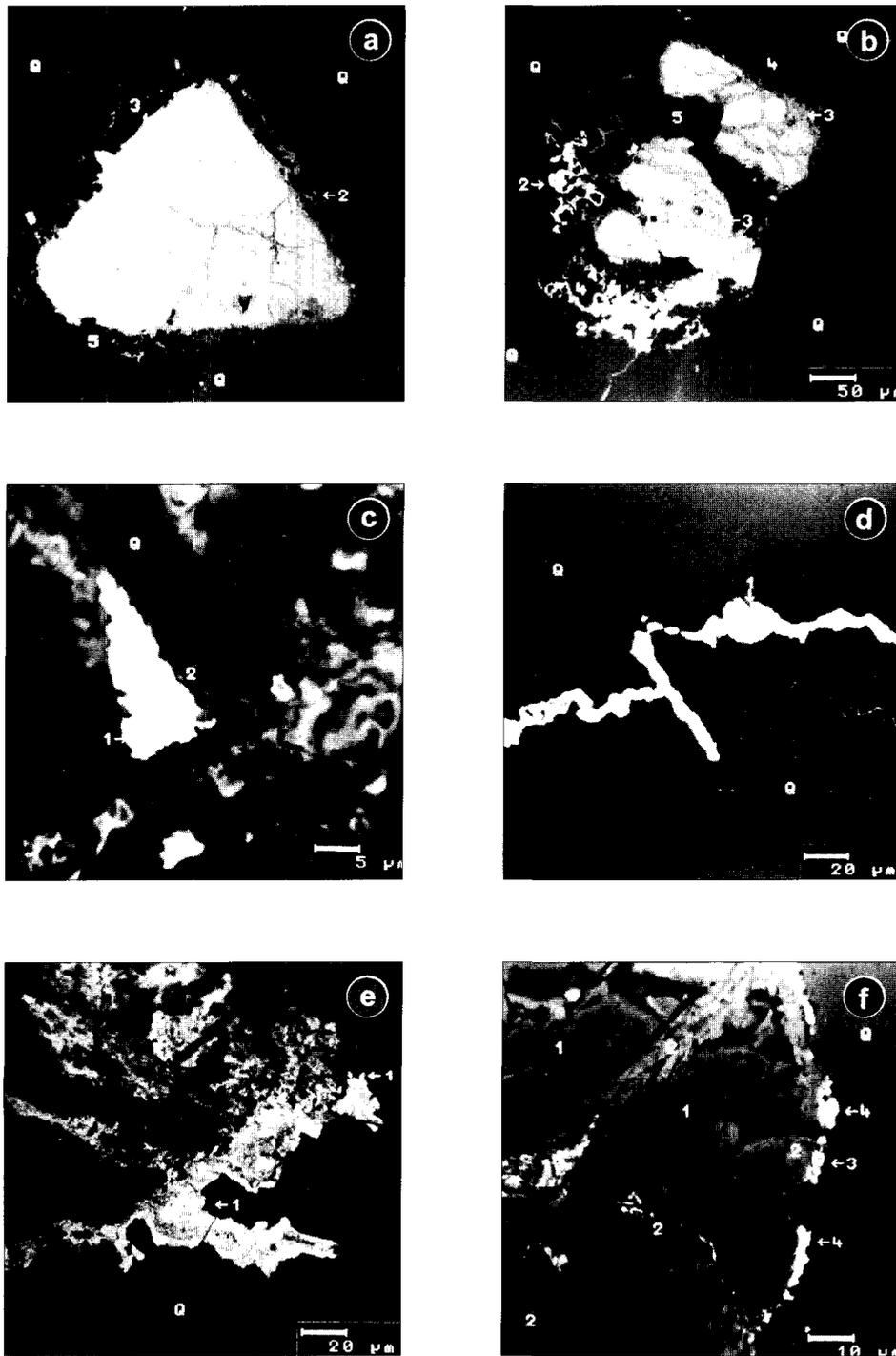


Figura 4. a) Uraninita idiomorfa, rodeada por silicatos de U, materia orgánica y calcita. b) Uraninita alterada a silicatos de U y rodeada por galena y calcita. c) Ídem en un estado más avanzado de alteración. d) Microfisuras en cuarzo, rellenas por carbonatos de uranilo. e) Microfisuras en cuarzo rellenas por carbonatos de uranilo, probablemente rutherfordina, con textura concrecionada. f) Silicatos complejos, cuyas fisuras están rellenas por Mn-calcita y silicatos complejos de U, Ca y Pb.

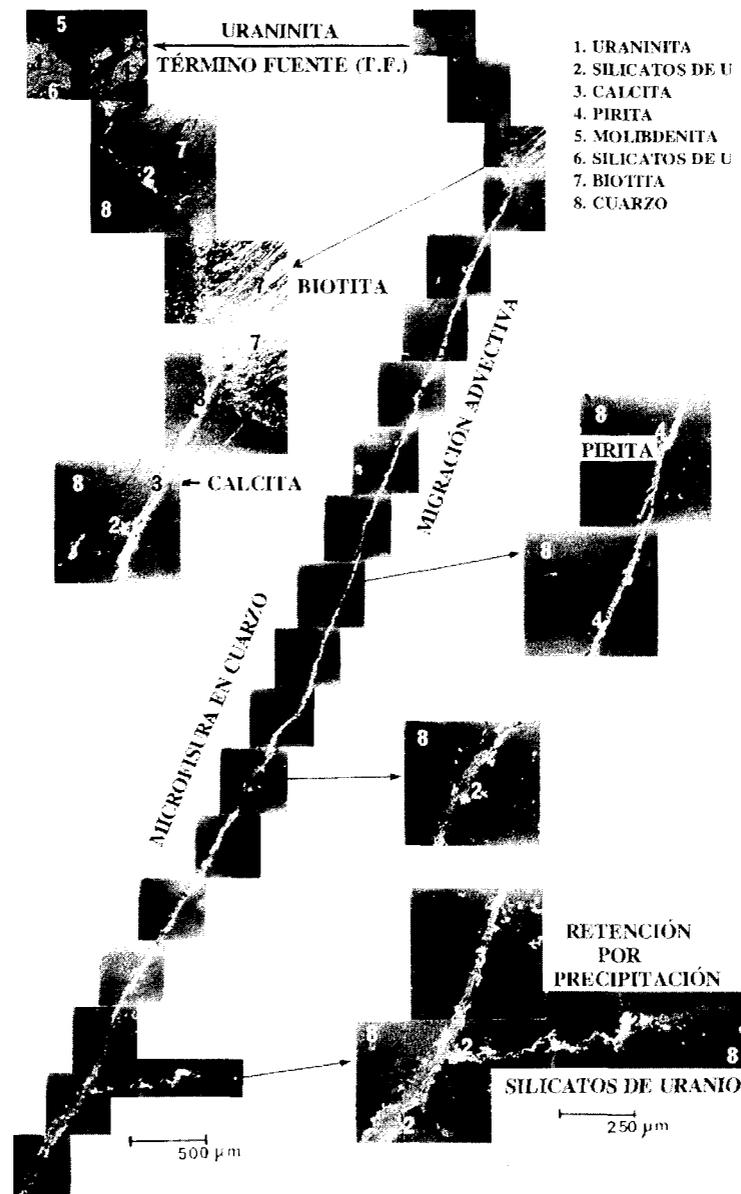


Figura 5. Procesos antiguos de migración del U a partir del término fuente y siguiendo microfisuras del granito.

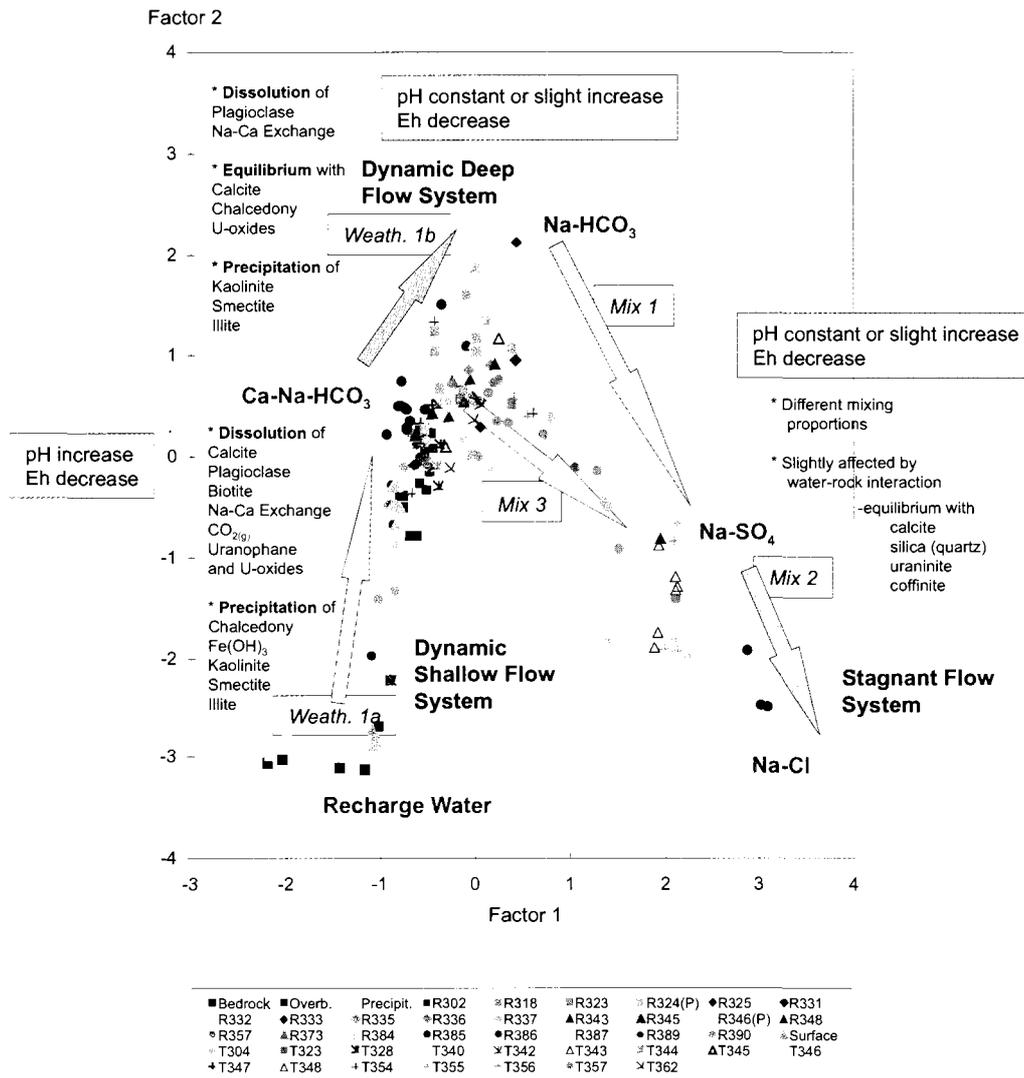


Figura 8. Representación de las aguas del sistema en el espacio factorial F1-F2, mostrando los principales procesos responsables de su evolución hidrogeoquímica.

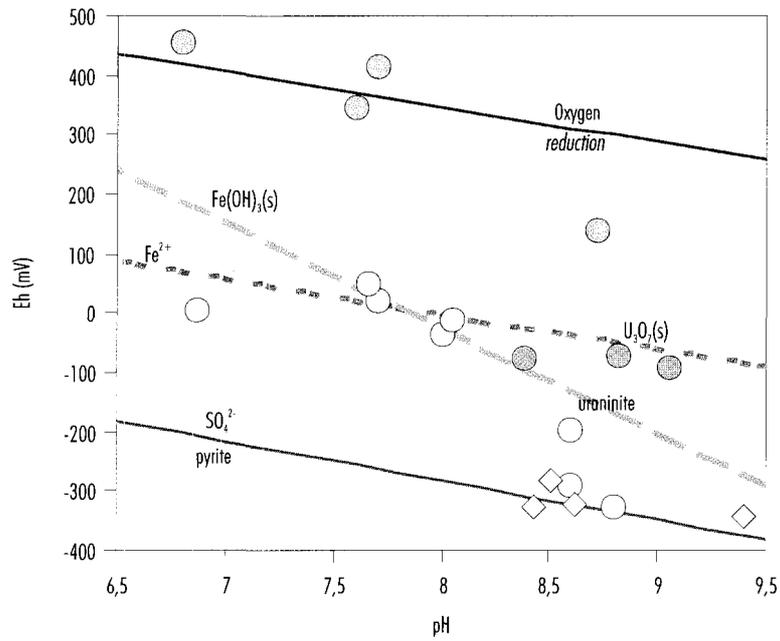


Figura 9. Diagrama Eh/pH mostrando los potenciales redox medidos en el sistema de Palmottu.

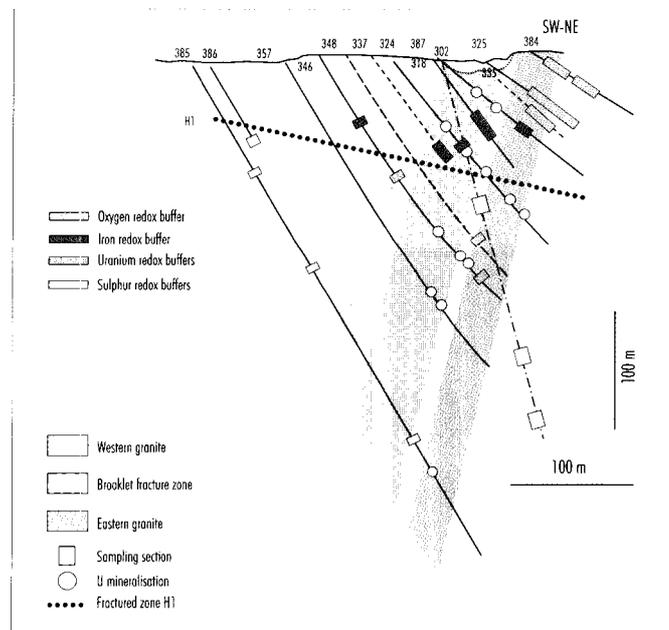


Figura 10. Sección transversal en la que se muestran los distintos tampones redox que controlan el sistema de Palmottu.

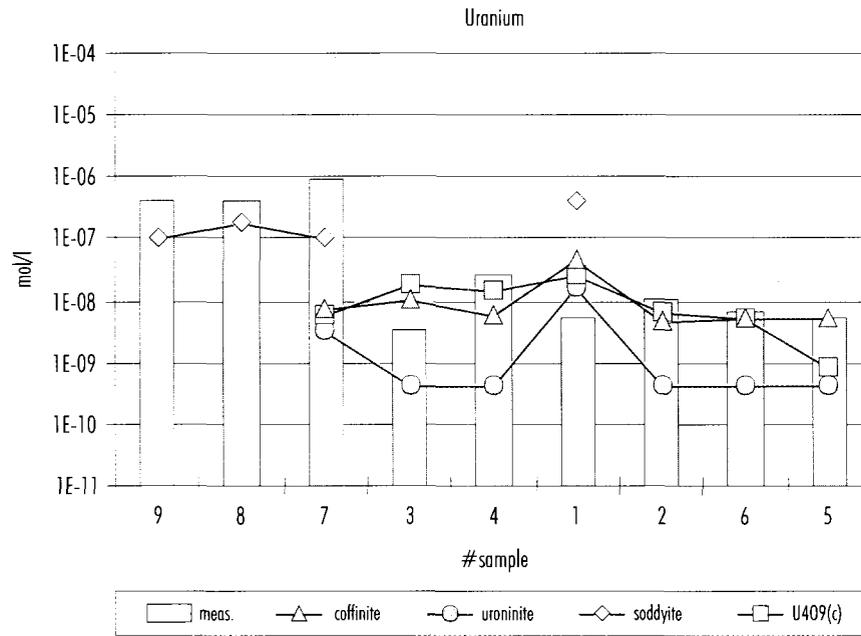


Figura 11. Comparación entre las concentraciones de uranio medidas y calculadas. De izquierdo a derecha, sondeos de menos a más profundos.

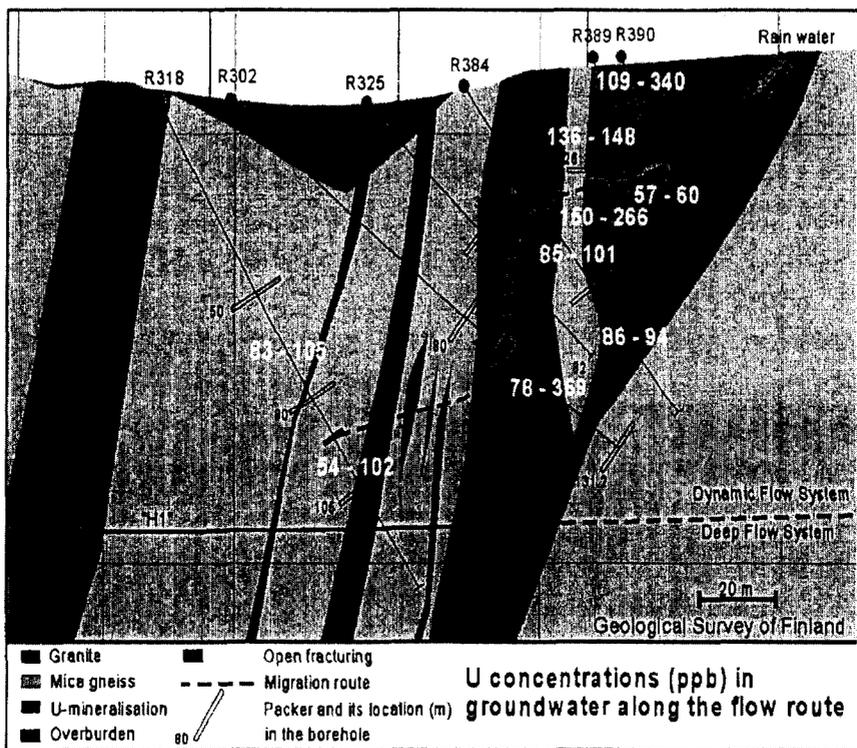
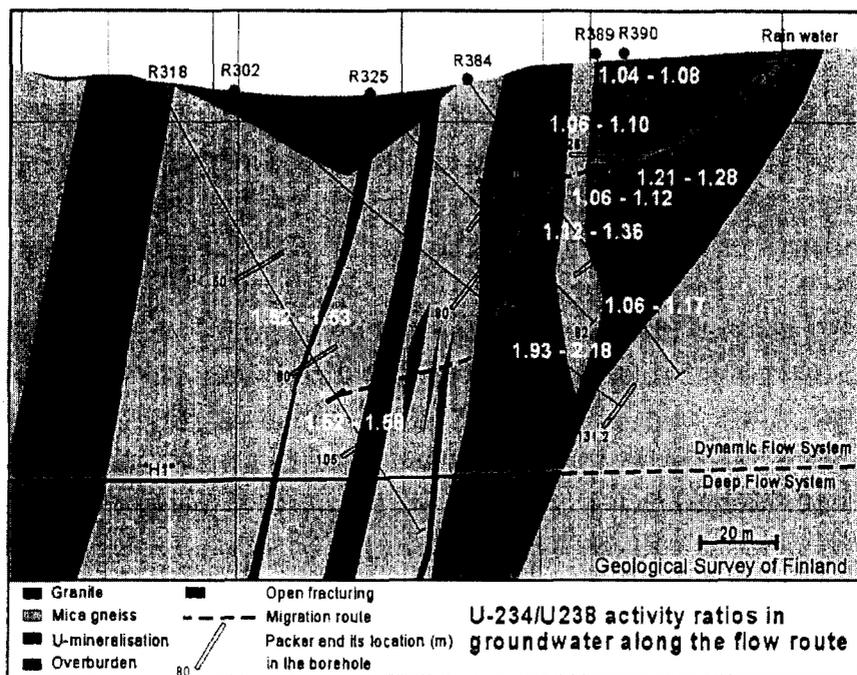


Figura 12. Sistema de flujo del granito del Este, en el que están representados las relaciones $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ y las concentraciones de U medidas en las aguas, objeto de modelización.

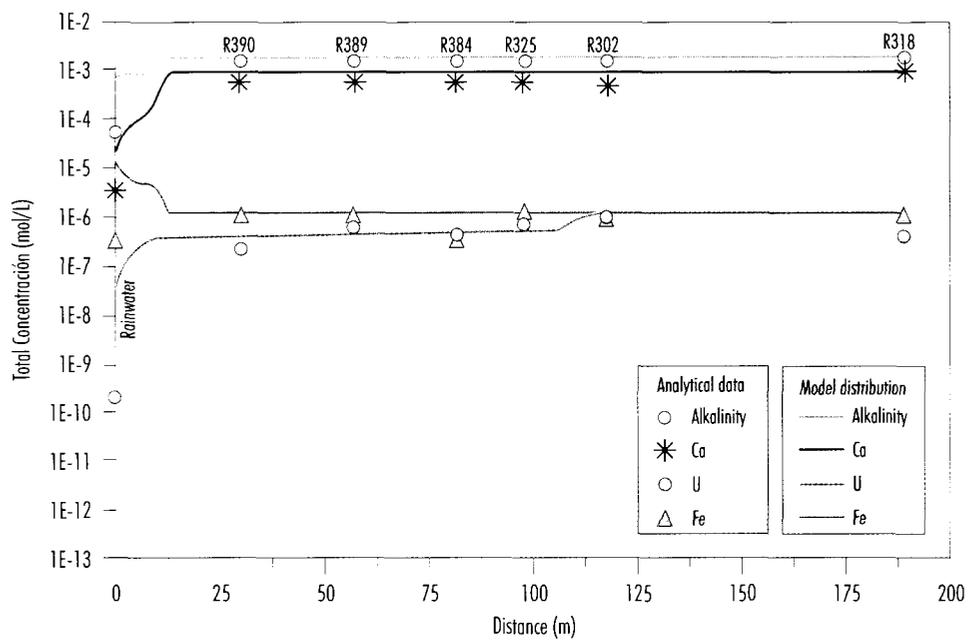


Figura 13. Resultados de la modelización del sistema de flujo del Granito del Este, utilizando el código RETRASO.

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 CTM-UPM TO THE PSACOIN 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 glacial, 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 AGPARCILLA. 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 foses sólidas.

- 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 HIDROTHERMAL DE SAPONITAS.
- 06 ALTERACIÓN HIDROTHERMAL 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 RADIOACTIVIDAD ALTA. Caracterización y comportamiento a largo plazo de los 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. Posters 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 radioactivos 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 UO₂(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 RECARGA.
- 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 CÁLCULO 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.
- 11 PROGRAMA DE INVESTIGACIÓN PARA ESTUDIAR LOS EFECTOS DE LA RADIACIÓN GAMMA EN BENTONITAS CÁLCICAS ESPAÑOLAS.
- 12 CARACTERIZACIÓN Y LIXIVIACIÓN DE COMBUSTIBLES NUCLEARES IRRADIADOS Y DE SUS ANÁLOGOS QUÍMICOS.

2001

- 01 MODELOS DE FLUJO MULTIFÁSICO NO ISOTERMO Y DE TRANSPORTE REACTIVO MULTICOMPONENTE EN MEDIOS POROSOS.
- 02 IV JORNADAS DE INVESTIGACIÓN Y DESARROLLO TECNOLÓGICO EN GESTIÓN DE RESIDUOS RADIACTIVOS. RESÚMENES Y ABSTRACTS.
- 03 ALMACENAMIENTO DEFINITIVO DE RESIDUOS DE RADIATIVIDAD ALTA. CARACTERIZACIÓN Y COMPORTAMIENTO A LARGO PLAZO DE LOS COMBUSTIBLES NUCLEARES IRRADIADOS (II).
- 04 CONSIDERATIONS ON POSSIBLE SPENT FUEL AND HIGH LEVEL WASTE MANAGEMENT OPTIONS.
- 05 LA PECHBLENDA DE LA MINA FE (CIUDAD RODRIGO, SALAMANCA), COMO ANÁLOGO NATURAL DEL COMPORTAMIENTO DEL COMBUSTIBLE GASTADO. Proyecto Matrix I.
- 06 TESTING AND VALIDATION OF NUMERICAL MODELS OF GROUNDWATER FLOW, SOLUTE TRANSPORT AND CHEMICAL REACTIONS IN FRACTURED GRANITES: A QUANTITATIVE STUDY OF THE HYDROGEOLOGICAL AND HYDROCHEMICAL IMPACT PRODUCED.
- 07 IV JORNADAS DE INVESTIGACIÓN Y DESARROLLO TECNOLÓGICO EN GESTIÓN DE RESIDUOS RADIACTIVOS. Volumen I.

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.

**IV Jornadas
de investigación y
desarrollo tecnológico
en gestión de
residuos radiactivos**

Volumen II

PUBLICACIÓN TÉCNICA 08/2001

Para más información, dirigirse a:

enresa

Dirección de Comunicación
C/ Emilio Vargas, 7
28043 MADRID

<http://www.enresa.es>

Agosto 2001