

EL PROYECTO DE EL BERROCAL: SINTESIS PRELIMINAR

P. Rivas *, L. Pérez del Villar *, B. de la Cruz *, P. Gómez *, M. Turrero *, A. Hernández *,
C. Marín *, M. García *, M. Pelayo * y J. Pardo *

RESUMEN

«El Berrocal» es un proyecto internacional de investigación sobre la migración de radionucleidos naturales en un medio granítico fisurado. Este proyecto se está desarrollando en la zona de El Berrocal, situada al norte de Nombela (Toledo), en un plutón granítico con una mineralización filoniana epitermal de uranio. El objetivo del proyecto es conocer los aspectos estructurales, litológicos, geoquímicos, hidroquímicos e hidrogeológicos del sistema granito-mineralización de U, a fin de establecer un modelo de migración de los radionucleidos naturales del medio.

La convergencia de procesos tectónicos, hidrotermales y supergénicos ha dado lugar a sucesivas removilizaciones del uranio durante las fases deutérica, hidrotermal y supergénica, que afectaron al sistema. Estas fases son las responsables de la mineralogía y distribución actual de dicho elemento en el sistema. La removilización del torio es mucho más restringida debido a su diferente comportamiento geoquímico.

Los procesos actuales de interacción agua-roca están condicionando los tipos de aguas existentes en el sistema que son: sulfatadas, en las zonas más superficiales y bicarbonatadas cálcicas, en las más profundas. Los contenidos en uranio en estas aguas están comprendidos entre 1 y 100 ppb.

La hidrogeología de la zona está controlada, a nivel local, por la topografía y la red de fracturación, siendo el dique de cuarzo mineralizado un accidente con repercusión importante en la circulación de las aguas subterráneas.

El análisis isotópico de las series del uranio y del torio en rellenos fisurales parece indicar procesos recientes de sorción-desorción de uranio y coprecipitación con carbonatos.

Palabras clave: *Migración, granito, radionucleidos, fracturación, transporte, coloides, El Berrocal.*

ABSTRACT

«El Berrocal is an international research project on the natural radionuclide migration in a fissured granitic environment. This project is being carried out in the El Berrocal zone, north of the village of Nombela (Toledo). The geological formation studied is a granitic pluton with an epithermal vein-type mineralization comprising quartz, sphalerite, pyrite and chalcopyrite; and pitchblende, pyrite, carbonates and barite.

The activities of the project are focused on the structural, lithological, geochemical, hydrochemical and hydrogeological aspects of the granite-U mineralization system, in order to establish a migration model of the natural radionuclides of the environment.

The concurrence of the tectonic, hydrothermal and supergenic processes has originated several U remobilizations during the deuteric, hydrothermal and supergenic alteration phases, which affected the system. These phases are responsible of the mineralogical species and present distribution of this element within the system. The Th remobilization is much more limited, due to its different geochemical behavior.

The present water-rock interaction processes account for the different types of water existing in the system, which are sulphatic, in the shallowest zones, and calcium bicarbonated in the deepest. The U contents in these waters vary from 1 to 100 ppb.

The hydrogeology of the zone is controlled, at a local scale, by the topography and the fracture network, and the mineralized quartz dyke plays a major role on the groundwater flow.

The isotopic analyses of the U and Th series in the infill materials seem to indicate recent sorption-desorption U processes and coprecipitation with carbonates.

Key words: *Migration, granite, radionuclides, fracturation, transport, colloids, El Berrocal.*

* CIEMAT. Dirección de Tecnología. Unidad de Técnicas Químicas y Geológicas. División de Técnicas Geológicas. Edificio 20 A. Avda. Complutense, 22, 28040 Madrid.

Introducción

Garantizar la seguridad de los almacenamientos de residuos radiactivos (R.R.) es uno de los retos más importantes asumidos por la comunidad internacional y por España. Este reto ha promovido numerosos planes de I + D, tanto a nivel nacional como comunitario, enfocados al estudio de los múltiples aspectos que convergen en la seguridad de un almacenamiento de R.R. durante un período de tiempo comprendido entre diez y cien mil años.

La seguridad de un almacenamiento de R.R. estaría garantizada si, con la perspectiva de tiempo indicada, se lograra impedir la llegada a la biosfera de los productos tóxicos almacenados. Este es, en último término, el objetivo de los modelos multibarrera de un almacenamiento, del estudio de la migración de los radionucleidos naturales en un medio rocoso y del estudio de los sistemas naturales análogos a un almacenamiento de R.R.

Los estudios sobre la migración de los radionucleidos han estado durante bastante tiempo dirigidos a conocer los principios básicos que regulan su comportamiento químico y físico-químico, basándose en la experimentación de sistemas simples en el laboratorio. Esta metodología de aproximación, que sigue teniendo gran valor, no se ha considerado suficiente para entender la complejidad de los procesos que pueden ocurrir en los sistemas naturales. Por ello, ha surgido la necesidad de estudiar el comportamiento de los radioelementos naturales bajo condiciones reales y en formaciones geológicas en las que concurren circunstancias similares a las de un hipotético almacenamiento. A esta necesidad de estudiar los sistemas naturales responde el proyecto de El Berrocal.

El batolito de El Berrocal tiene una serie de características que han servido para seleccionarlo como una estación experimental. Estas características son las siguientes: naturaleza granítica del batolito, importante diferenciación geoquímica de la masa granítica, alto contenido en U, existencia de una mineralización hidrotermal uranífera ya explotada, existencia de una cierta infraestructura minera, gran intensidad de fracturación, fuertes gradientes topográficos, pequeñas dimensiones del plutón y, desde el punto de vista logístico, proximidad a Madrid. Dichas características confieren a la zona un gran interés para estudiar la migración «in situ» de los radionucleidos naturales. Este interés es compartido también por la comunidad científica internacional especializada en temas de migración, por lo que el estudio de El Berrocal se enmarca en los Programas de I + D de ENRESA y de la CEE (*).

(*) ENRESA (Empresa Nacional de Residuos, S.A.).
CEE (Comunidad Económica Europea).

Zona de estudio

La zona de estudio, denominada El Berrocal, está situada a unos 92 Km al SO de Madrid y al N del pueblo de Nombela (Toledo), en las hojas n.º 580 (Méntrida) y n.º 579 (Sotillo de la Adrada) del MTN 1/50.000.

El objeto de estudio es un macizo granítico de unos 22 Km², que geológicamente está encuadrado en la parte central de la zona Centro-Ibérica del macizo Hespérico (Julivert *et al.*, 1974) (fig. 1A). Está situado al SO del Macizo Central, en las proximidades del límite entre la Sierra de Gredos y la Cuenca Terciaria del Tajo. Este plutón intruyó en los granitos adamellíticos porfídicos del tipo San Vicente (Doblas, 1990), que es la roca predominante en la región, y corta al dique aplítico de Escalona-Navamorcuende (fig. 1B).

La existencia de una mineralización de U, encajada en dicho plutón y explotada en los años sesenta, hace que la zona sea muy interesante bajo el punto de vista de la migración del U, y ha sido la que ha configurado los objetivos del proyecto «El Berrocal».

La infraestructura minera con que cuenta el proyecto es de una galería de acceso al dique y 19 sondeos. En la figura 1C se representan los sondeos perforados en el exterior de la galería y en la tabla 1 se señalan las características de los sondeos perforados en la Fase I.

Características geológicas, mineralógicas y geoquímicas

Durante la Fase I se ha realizado la cartografía geológica de un área aproximada de 1 Km², en el entorno de los sondeos y la galería. Esta cartografía se extenderá a toda la superficie del plutón de El Berrocal durante la Fase II.

En la zona cartografiada están representados el granito adamellítico, tipo San Vicente, y las tres fa-

Tabla 1.—Sondeos perforados en la Fase I

Sondeo	Profundidad (m)	Fluido de Perf./Trazador	Inclinación
S-13	173,7	Agua	30°
S-14	250,0	Agua + KBr(100 mg/l)	Vertical
S-15	154,8	Agua + Kbr(100 mg/l)	20°
S-16	608,9	Agua+KI(50mg/l)*	Vertical
S-17	250,0	Agua	Vertical
S-18	233,0	Aire + agua	Vertical
S-19	125,0	Aire + agua	Vertical

* Trazador utilizado desde los 237 m.

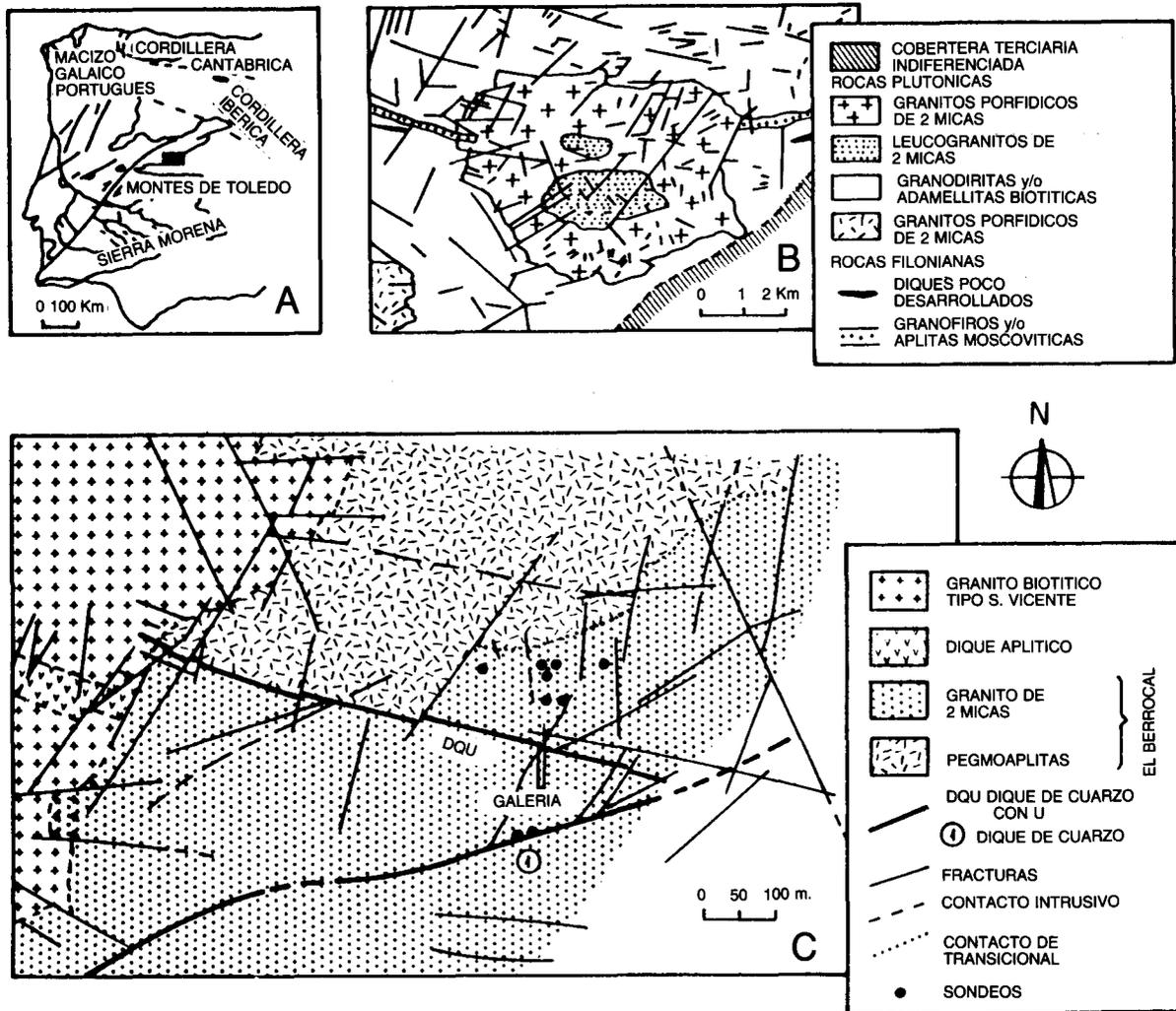


Fig. 1.—A) Mapa de situación geológica y B) Esquema geológico del plutón de El Berrocal (Julivert, *et al.*, 1974 y Varea e Iglesias, 1989). C) Mapa litológico de los alrededores de la estación experimental de El Berrocal (Pérez del Villar y Pardillo, 1992).

cias constitutivas del plutón de El Berrocal, que son: granitos de dos micas con predominio de la moscovita (Facies El Berrocal), leucogranitos y pegmoaplititas (Pérez del Villar y Pardillo, 1992). Dicho plutón parece cortar al dique aplítico Escalona-Navamorcuende y está atravesado por numerosos diques de cuarzo, entre los que destaca el mineralizado por pechblenda, con dirección N100-110E (fig. 1C).

El estudio estructural, de gran importancia por su relación con la hidrogeología de la zona, se ha enfocado para definir la red de fracturación. Para ello, se han utilizado imágenes de sensores remotos a escalas comprendidas entre 1/200.000 (Landsat) y 1/2.000 (Foto aérea), la cartografía de campo a 1/1.000, la de la galería de la mina a 1/25 y los testigos de los sondeos. Asimismo, se han realizado estudios geofí-

sicos de superficie (magnetometría y gravimetría a escala 1/2.000) y la testificación de los sondeos mediante técnicas convencionales (potencial espontáneo, resistividad, resistencia y gamma natural), y menos convencionales, como la del «televiwer» sónico.

El análisis de las cartografías realizadas muestra la existencia de 8 familias de fracturas que son: N100-110E, N55-60E, N30-45E, N15-20E, N150-175E, N80-85E, N-S, N150E.

De acuerdo con Capote (1991), estas familias de fracturas están relacionadas con una tectónica tardihercínica, desarrollada durante el Carbonífero-Pérmico (etapas Malagón e Hiendelaencina), y reactivadas durante la Orogenia Alpina (etapas Ibérica, Guadarrama y Torrelaguna). Las familias más antiguas parecen ser: N100-110E, N80-85E, y las reactivadas

más recientemente las N150-175E y N-S. Las fracturas cartografiadas en la galería de la mina parecen relacionarse con la etapa Hiendelaencina.

El análisis de la red de drenaje, de los rellenos de las fracturas atravesadas por la galería de la mina, y la identificación de las fracturas hidráulicamente activas cortadas por los sondeos, parecen indicar que las familias N100-110E, N-S, N80/85E y N150E son las que controlan, fundamentalmente, la hidrogeología de la zona experimental.

La densidad de fracturación, que es, en último término, la que determina la permeabilidad del macizo rocoso, es del orden de 600 F/Km² en el entorno de la estación experimental. En la galería de la mina la densidad es de unas 11 F/m² y, en los sondeos, de 1,8 F/m. No obstante, en la galería y los sondeos, la distribución de las fracturas no es homogénea sino zonal, con grandes diferencias en la densidad de fracturación.

Una aproximación a la configuración de la red de fracturas en la zona de estudio está representada en la figura 2A.

El granito de la facies de El Berrocal corresponde, de acuerdo con su composición mineralógica modal, a un cuarzogranito de feldespato alcalino y dos micas, predominando la moscovita sobre la biotita. La asociación de minerales accesorios está formada por: corindón, andalucita, ilmenita, circón, apatito, monacita, auerlita-torita, apatito, uraninita, casiterita, pirita, esfalerita y fluorita. Desde el punto de vista geoquímico, se trata de un granito de feldespato alcalino, rico en sílice, peraluminico, hipocálcico, rico en P₂O₅ y con una tendencia evolutiva que va desde un polo potásico a otro más sódico. Está enriquecido en elementos incompatibles como el U (16,5 ppm), Li, F y Sn; el contenido medio en Th es de 7 ppm y la relación U/Th > 2 (Pérez del Villar, de la Cruz, 1989, 1990).

El granito está afectado por un proceso de alteración deutérica y/o tardimagmática constante que se manifiesta, fundamentalmente, por la cloritización de la biotita, la oxidación de ilmenita a anatasa, la sericitización incipiente de los feldespatos, principalmente de la albita, y la albitización intersticial.

De acuerdo con Pérez del Villar *et al.* (1992a), el 65 % aproximadamente del U total se encuentra en forma de uraninita, el 5 % en los minerales esenciales, el 13 % en los minerales refractarios y el 17 % restante como U fácilmente lixiviable.

Los estudios petrográficos y geoquímicos indican una notable homogeneidad del granito hasta los 600 m de profundidad.

Los procesos hidrotermales que afectaron a este granito están relacionados con los sistemas de fracturación mencionados anteriormente, observándose siempre las mismas transformaciones mineralógicas.

La alteración más intensa está relacionada con la familia N100-110E, en cuyas proximidades se observa la sericitización casi total de la fracción feldespática de la roca, así como la de la biotita, y la neoformación de cuarzo, clorita y carbonatos. En las zonas próximas al dique de cuarzo mineralizado por U, el granito se encuentra enriquecido en este elemento, por un factor de 4, con respecto al granito sano. En estos casos, la mayor parte del U se encuentra en forma de minerales de uranilo debido a los procesos supergénicos de alteración.

La mineralogía de los rellenos fisurales es muy constante e independiente de la familia de fracturas a la que están asociados. Los minerales más frecuentes son: el cuarzo, el feldespato potásico, la albita, la moscovita y la biotita cloritizada, todos ellos heredados del granito. La illita y la beidellita son los productos de la transformación de los feldespatos. El cuarzo, los sulfuros, la barita, la calcita rica en Mn, la dolomita y los minerales primarios de U son minerales neoformados. Los oxi-hidróxidos de Fe y Mn, la jarosita, los minerales de uranilo (torbernita, autunita, sabugalita y uranocircita) y la caolinita son minerales originados por la alteración supergénica de los anteriormente mencionados. La presencia esporádica de caolinita en rellenos fisurales situados por debajo del nivel de alteración supergénica parece indicar fracturas que son y/o han sido hidráulicamente activas (Pérez del Villar, *et al.*, 1992b y Pelayo *et al.*, 1993).

En la figura 2B se muestra el modelo litogeoquímico de la estación experimental de El Berrocal.

Hidrogeoquímica y estudio de coloides

El agua es el medio natural por el que se transfieren los contaminantes y componentes químicos en la geosfera. Sus características químicas y físico-químicas están básicamente determinadas por los procesos de interacción agua-roca y reguladas por el equilibrio químico entre las fases presentes.

El estudio hidrogeoquímico que se lleva a cabo en El Berrocal, en relación con la migración de radionucleidos naturales, tiene como objetivos: 1) Establecer las facies hidroquímicas existentes en la zona de estudio; 2) Analizar los procesos geoquímicos determinantes de las características químicas de cada hidrofacies; 3) Conocer la especiación de los radionucleidos disueltos en cada una de ellas y 4) Contribuir a desarrollar y validar un modelo de flujo y transporte.

Para conseguir estos objetivos se ha desarrollado una metodología de trabajo consistente en la selección previa de las zonas preferentes de muestreo de agua. Para ello se recurre a la descripción de los tes-

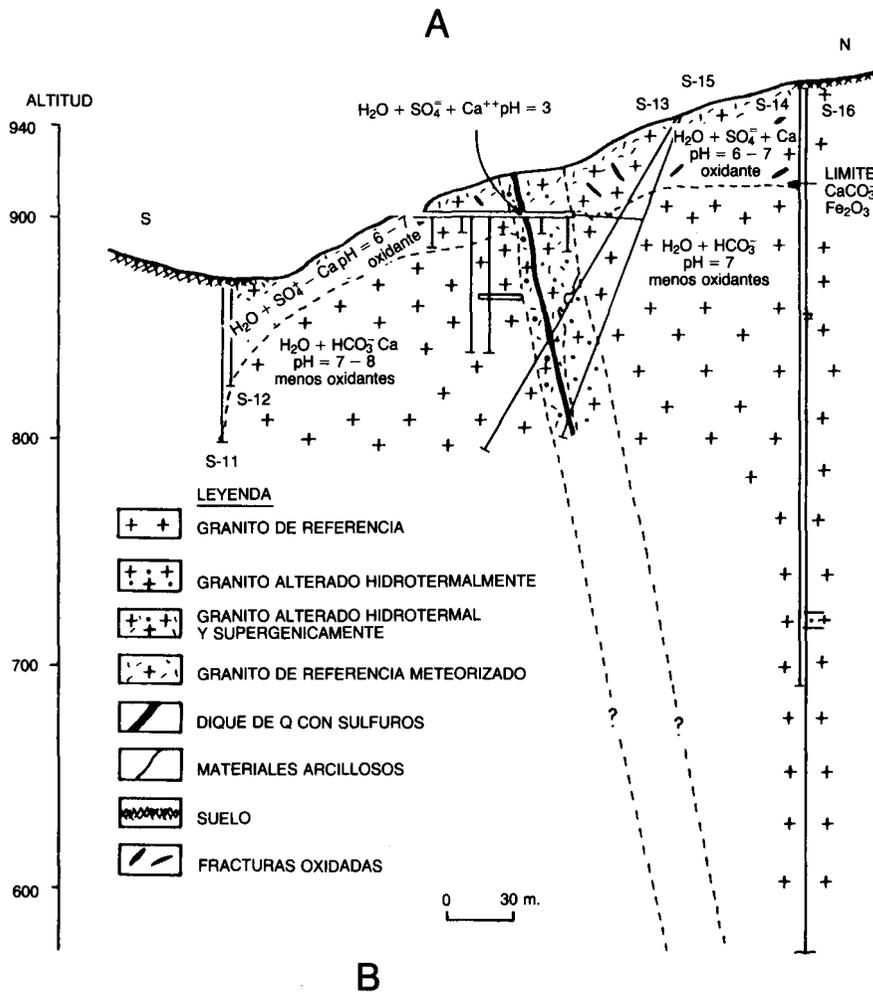
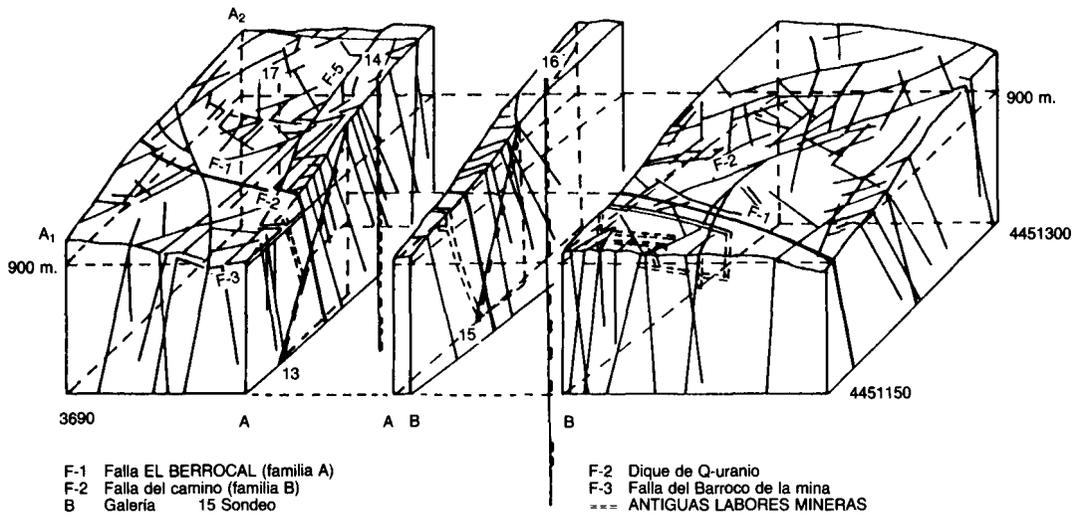


Fig. 2.—A) Bloque diagrama de la zona de la estación de El Berrocal (Marín, 1993). B) Esquema litogeoquímico de la estación de El Berrocal (Pérez del Villar, *et al.*, 1993).

tigos de los sondeos, al estudio de los rellenos fisurales, a los registros geofísicos, testificación hidráulica y a los perfiles geoquímicos (Idronaut) (fig. 3A). Posteriormente se aíslan las fracturas seleccionadas mediante sistemas de doble obturación y se extrae el agua bien por bombeo, bien por elevación con gas N₂ de alta pureza. La representatividad de las muestras se garantiza «in situ» mediante el control de la concentración del trazador empleado durante la perforación de los sondeos y el de los parámetros físico-químicos del agua que son medidos en celdas de flujo continuo manteniendo las condiciones inertes en una cámara de guantes (fig. 3B).

El análisis químico de las muestras de agua se está realizando mediante técnicas analíticas convencionales: AA, ICP, IC, Espectrofotometría UV-Vis, fluorimetría y analizador de carbono orgánico.

El estudio y caracterización de los coloides ha sido planteado dada su importancia en la migración de radionucleidos (Moulin *et al.*, 1992). La obtención de muestras de coloides representativas de la formación en estudio, plantea una serie de problemas debido a la presencia y posible generación de artefactos en la manipulación de las aguas, que pueden enmascarar los coloides naturales presentes en el medio. El muestreo se realiza «in situ». En la caracterización de coloides se han empleado las técnicas siguientes: espectroscopía de correlación fotónica (PCS), espectrofotometría UV-Vis, SEM + EDAX y TEM.

Los resultados obtenidos de las sondas geoquímicas Idronaut y Chromatolab indican la probable existencia de dos hidrofacies diferentes, estando el límite entre ambas hacia la cota de 800 m, al N del dique mineralizado, y hacia los 850 m, al S del mismo. La hidrofacies más superficial se caracteriza por valores de pH comprendidos entre 6 y 7 y Eh entre 400-500 mV. En la hidrofacies más profunda, el pH tiende hacia 8 y el Eh hacia valores negativos. Sin embargo, la zonalidad mineralógica definida por la existencia de oxi-hidróxidos de Fe y Mn y la aparición de la piritita y los carbonatos en los rellenos fisurales, se produce a cotas superiores.

Estos resultados, junto con los obtenidos a partir de los análisis químicos de aguas tomadas en superficie y en profundidad, han permitido establecer una aproximación del modelo hidroquímico conceptual de la zona de estudio (fig. 3C). En este modelo están representados los cinco tipos de aguas identificadas hasta el momento, que son: 1) Oxidantes, ácidas, sulfatadas-cálcicas, con un contenido en U < 1 ppb. 2) Oxidantes, ligeramente ácidas, bicarbonatadas-cálcicas y con menos de 1 ppb de U. 3) Oxidantes, neutras, bicarbonatadas-cálcicas y con más de 100 ppb de U. 4) Oxidantes, muy ácidas, sulfatadas-cálcicas, con más de 100 ppb de U. 5) Reduc-

toras, neutras, bicarbonatadas-cálcicas, con unas 3 ppb de U.

El resultado de la aplicación de los códigos geoquímicos WATEQ4F y PHREEQE indican que las aguas estudiadas están próximas al equilibrio con los minerales detectados en los rellenos fisurales (Pérez del Villar *et al.*, 1992 b; Pelayo *et al.*, 1993). Entre las fases próximas al equilibrio se encuentran la alofana, calcedonia, gibsita, smithsonita, caolinita, beidellita, illita e hidróxidos de hierro (Gómez *et al.*, 1993).

La concentración de coloides en las aguas analizadas es del orden de 10¹⁰ partículas/l, en las aguas oxidantes, y de 10⁸ partículas/l, en las aguas reducidas, valores que son normales en aguas graníticas similares, como las de Grimsel (Degueldre *et al.*, 1988, 1989). El tamaño de estas partículas varía entre 208 y 342 nm.

La naturaleza de la mayor parte de estas partículas coloidales es inorgánica, predominando los aluminosilicatos (arcillas), la sílice, y los oxi-hidróxidos de Fe y Al. En las aguas reducidas del S-7 se han identificado partículas coloidales constituidas fundamentalmente por S, Fe, Zn y Ba (Gómez *et al.*, 1993).

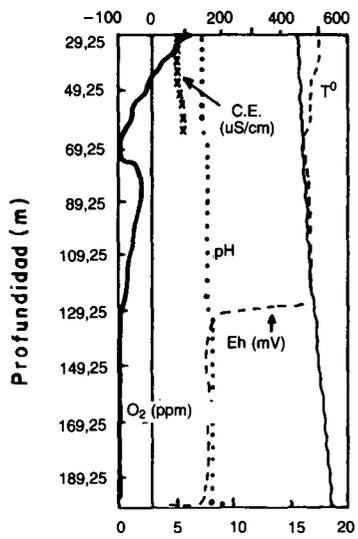
Los valores de la relación isotópica ²³⁴U/²³⁸U, medidos en las partículas, los coloides y la solución procedentes de las zonas de fractura del sondeo S-7 son constantes e iguales a 2,54 ± 0,09 y a 2,19 ± 0,06, respectivamente. Estos valores indican que los coloides, las partículas y las soluciones están en equilibrio químico con respecto a los isótopos del U. La distribución del U entre la fase coloidal y el agua de la que proceden es la siguiente: el 88 % del U total está en solución verdadera, mientras que el 12 % restante está en las partículas. Ello parece indicar que los coloides no son un vehículo importante para el transporte del U en el Berrocal (Ivanovich, 1992).

Durante la Fase II se analizarán en el agua los isótopos estables (δ ¹⁸O, δ ²H y δ ¹³C) y radiactivos (δ ³H, δ ¹⁴C y algunos de los isótopos de las series naturales de desintegración radiactiva), los cuales permitirán evaluar tiempos de residencia de las aguas y discernir y datar los procesos subactuales de interacción agua-roca.

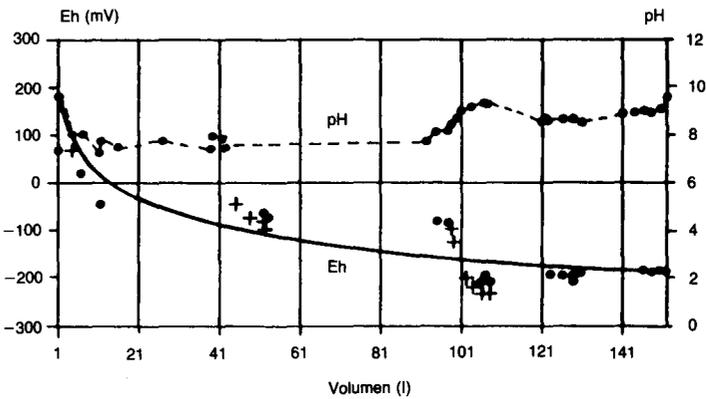
Interacción agua-roca

La investigación de la interacción agua-roca abarca desde el estudio de los procesos de alteración y neoformación subactuales de los minerales de los rellenos fisurales, hasta los de intercambio isotópico entre el agua y dichos rellenos.

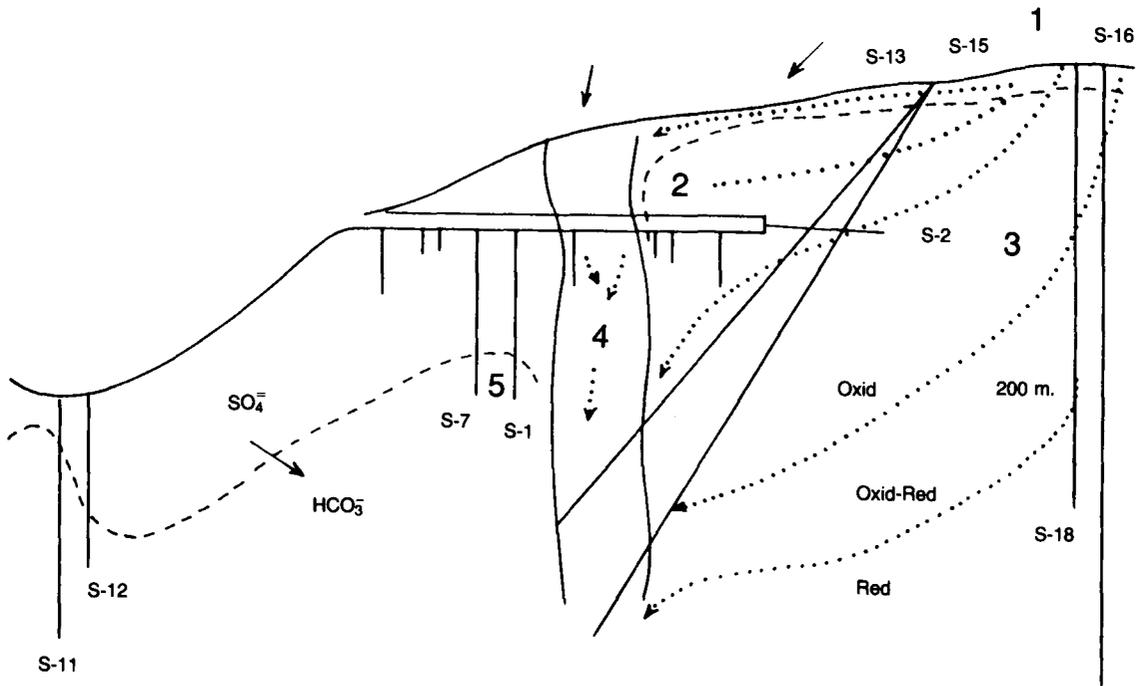
Durante la Fase I del proyecto, los estudios isotópicos se han limitado a determinar el estado del de-



A



B



C

Fig. 3.—A) Registro del sondeo S-18 mediante la sonda Idronaut, en el que se observa la variación del contenido en O₂, la conductividad eléctrica, el pH, el Eh y la temperatura del agua en función de la profundidad. B) Variación del pH y el Eh del agua procedente de la fractura a 213-218 m del sondeo S-14, en función del volumen bombeado de agua. C) Modelo conceptual hidroquímico de la zona de estudio (Gómez *et al.*, 1993).

sequilibrio de las series naturales de desintegración radiactiva. Este estudio tiene por objetivo establecer, y en lo posible datar, los fenómenos de sorción-desorción de los isótopos del U en los sistemas formados por los rellenos fisurales y el agua, dentro de las fracturas hidráulicamente activas. Hasta el momento, la investigación se ha centrado en el estudio del desequilibrio radiactivo de la fase sólida de algunas fracturas (Ivanovich *et al.*, 1992); y durante la Fase II del proyecto este estudio se ampliará a las aguas y a los isótopos estables, tanto en las aguas como en los rellenos fisurales.

Ivanovich *et al.* (1992) han estudiado cuatro tipos de rellenos fisurales constituidos por arcillas ricas en óxidos de hierro, arcillas pobres en óxidos de hierro, carbonatos, predominantemente calcita, y clorita, correspondientes a trece facturas cortadas por los sondeos S-1, S-7, S-13, S-14 y S-15 (tabla 2).

El contenido en U y Th de estos rellenos varía entre 20 y 600 ppm y entre 0,25 y 15 ppm, respectivamente. Los valores observados para la relación Th/U, siempre < 1, indican un enriquecimiento en U con relación al Th. Si bien en alguno de los rellenos fisurales los valores de la relación $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ (≈ 1) indican un equilibrio secular del U, en otros, estos valores varían entre 1,2 a 1,5, lo que indica un aporte

de U a la fase sólida. En otros rellenos fisurales, la relación $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ presenta valores comprendidos entre 0,95 y 0,86, lo que significa pérdidas relativamente recientes de U. Estos procesos parecen confirmarse con los valores observados para la relación $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$. Finalmente, se ha detectado una movilización de Ra, de acuerdo con los valores de la relación $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$.

Los resultados de la lixiviación secuencial realizada sobre los rellenos fisurales indican que la mayor parte del U secundario se encuentra absorbido en la fracción arcilla, en los óxidos amorfos de Fe/Mn y en posición de cambio. En este último caso, los valores de las relaciones $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ($\gg 1$) y $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ ($\ll 1$) parecen indicar un proceso reciente de enriquecimiento en U de la fase sólida. En el residuo insoluble permanece aproximadamente el 10 % del U total y el 50 % del Th, lo que está de acuerdo con la diferente movilidad geoquímica de ambos elementos (Ivanovich, 1992).

De acuerdo con dicho autor, las edades de dos costas carbonatadas, calculadas por el método de las series naturales de desintegración radiactiva, son $64,0 \pm 1,8$ Ka y $174,7^{+8,4}_{-7,9}$ Ka. La fiabilidad de estos resultados depende de que se cumplan los siguientes requisitos: 1) Que la calcita haya permanecido como un sistema cerrado desde su formación. 2) Que no haya habido incorporación de ^{230}Th durante la precipitación de la calcita. 3) Que la precipitación de la calcita y de los carbonatos de uranilo se haya producido simultáneamente.

Además, estos valores deberán ser validados mediante el estudio mineralógico, químico e isotópico ($\delta^{13}\text{C}$ $\delta^{18}\text{O}$) de dichas muestras carbonatadas.

Caracterización Hidrogeológica preliminar y modelo conceptual de flujo

La caracterización hidrogeológica preliminar de la estación de El Berrocal se ha realizado mediante: a) El análisis de los niveles del agua en los sondeos; b) La caracterización hidráulica de los sondeos profundos; c) El control de los caudales en los puntos de descarga y d) El análisis de la evolución de los trazadores del agua de perforación, en varias zonas de la estación.

La testificación hidráulica de los sondeos, realizada mediante «slug tests», ensayos de pulso y de carga constante en secciones aisladas con obturadores neumáticos, ha permitido definir algunas zonas de fracturas hidráulicamente activas, en las que se ha programado el muestreo hidrogeoquímico. Los ensayos preliminares entre sondeos han dado información cualitativa de la existencia de conexiones entre los pares: S-13→S-2, S-15→S-2, S-14→S-16,

Tabla 2.—Datos Radiométricos de los rellenos de fractura

Muestra (m)	U (ppm)	Th (ppm)	Th/U	Relación de actividad		
				$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	$^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$	$^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$
S1						
48,52	105,3	11,5	0,11	1,38	0,95	0,86
S7						
44,35	20,3	7,14	0,35	1,00	0,95	
44,75	30,0	8,51	0,28	1,02	0,95	0,70
45,45	114,4	13,70	0,12	0,89	1,02	1,16
48,52	105,3	11,50	0,11	1,38	0,95	0,86
S13						
101-101,25.....	42,4	11,80	0,28	0,86	1,13	1,00
S14						
216,3-216,5 ^a	404,6	9,69	0,024	1,32	0,88	0,95
216,3-216,5 ^b	209,1	7,16	0,034	1,14	0,92	0,60
216,3-216,5 ^c	154,2	5,29	0,034	1,20	0,86	1,17
S15						
110,66.....	30,8	7,29	0,24	1,50	1,22	1,11
140,79-141,77*	452,0	0,26	0,001	0,95	1,48	0,24
141,77-143,37.	605,0	2,71	0,005	1,06	1,23	1,37
142,37-143,37.	145,0	0,38	0,003	1,02	0,97	
143,72-143,96.	71,3	0,55	0,008	1,22	0,89	
146,94-147,35.	21,0	2,07	0,10	1,21	2,56	3,24

^{a,b,c} corresponden a diferentes muestras de la misma fractura.

* Resultado preliminar.

S-14→S-18, S-15→S-18, S-18→S-2 (BGS, 1993). La testificación de los sondeos ha permitido establecer que la conductividad hidráulica en la zona de estudio varía entre 10^{-10} m/s y 10^{-4} m/s.

Los datos obtenidos en las actividades anteriormente citadas permiten deducir: a) Un gradiente horizontal de 0,4 entre los sondeos S-1 y S-7 y de 0,4 a 0,6 entre los sondeos S-14 y S-16; b) El control que parece ejercer el dique de cuarzo sobre los sondeos S-13 y S-15; c) La existencia de una zona superficial más permeable, de 20 a 30 m de espesor, de acuerdo con el flujo de las aguas de perforación, trazadas con Br; d) La transmisividad hidráulica de la formación (Guimerá *et al.*, 1993).

De acuerdo con lo establecido anteriormente y la situación topográfica del área de estudio, se propone el modelo conceptual de flujo representado en la figura 4A. El flujo regional parece tener un fuerte control topográfico, con gradiente subvertical de 0,5 en la zona de los sondeos, gradiente que está de acuerdo con las medidas realizadas en los sondeos S-14 y S-16.

Los flujos locales están controlados por la red de fracturas, los rellenos fisurales y diques de cuarzo del área de estudio. Las hipótesis sobre el flujo local están basadas en el papel que puede jugar el dique de cuarzo de la mina, en función de que su permeabilidad sea igual, inferior o mayor que la del granito. De las posibles hipótesis, las más coherentes son las representadas en las figuras 4B y C y que están basadas en que la $K_{\text{dique}} > K_{\text{granito}}$. En la primera hipótesis (fig. 4B), el dique de cuarzo permitiría el paso del agua hacia el S, siempre y cuando no estuviese conectado con una zona de menor presión. En la segunda, el dique actuaría como un elemento de drenaje, en el caso de que existiese una conexión entre éste y una zona inferior de descarga (fig. 4C). En la primera hipótesis, el agua de recarga pasaría por el granito sano situado al N, atravesaría el dique y descargaría, fundamentalmente, en el valle de la Tarica, situado al S. En la segunda, el agua de recarga de la zona N descargaría, a través del dique, en otra área del macizo, mientras que la de la zona S, que se produciría por infiltración a través del granito, descargaría al S del valle de la Tarica. En este caso, el agua de la zona N del dique no llegaría a dicho valle.

Estudios de Migración en el laboratorio

Los estudios de migración en el laboratorio tienen como objetivo contribuir a entender los términos químicos de la ecuación de transporte. Los trabajos realizados hasta este momento han tenido un doble objetivo: a) Conocer los procesos de interacción de los radionucleidos críticos y el sistema agua-granito,

mediante la experimentación en batch y columnas, en condiciones controladas y b) Estudiar el comportamiento específico de determinados trazadores, conservativos o no, y seleccionar alguno de ellos para los ensayos de trazadores «in situ».

Se han estudiado algunos radionucleidos que, por su toxicidad y/o período de semidesintegración largo, pueden contribuir al riesgo que conlleva, a largo plazo, todo almacenamiento de residuos radiactivos en formaciones geológicas. Estos radionucleidos son: Pu, Am, Np, U, Se, Tc, Sr, Cs y Co. Se ha prestado un especial énfasis a la influencia de las sustancias húmicas, el pH y las condiciones redox en los procesos de sorción-desorción.

La importancia de la presencia de materia orgánica en el medio de experimentación sobre los resultados de los coeficientes de distribución (K_d) del ^{238}Pu , y ^{239}Np ha sido puesta de manifiesto por García et

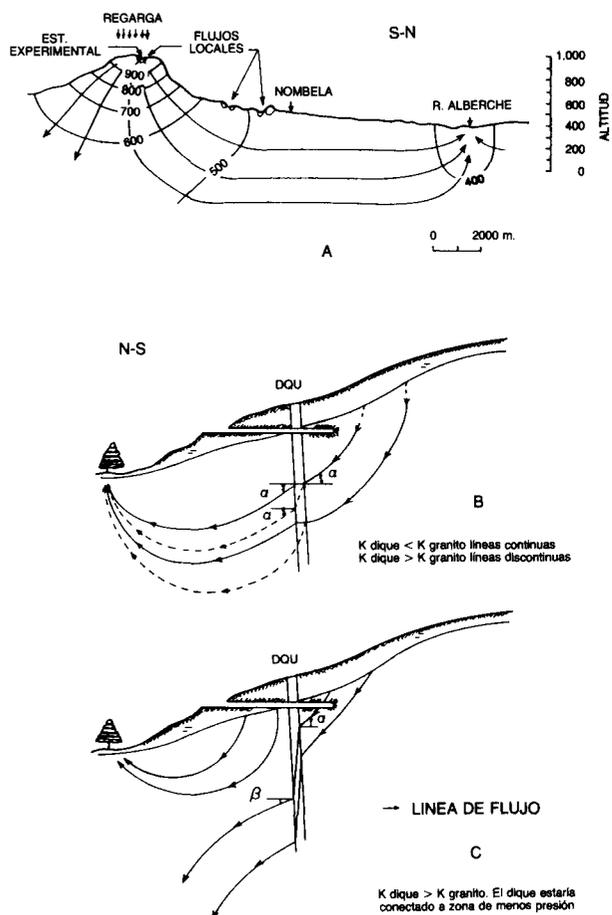


Fig. 4.—A) Modelo conceptual del flujo de las aguas a escala regional. B y C) Posibles modelos de flujo a escala de la estación experimental de El Berrocal.

al. 1991. Así, el valor del K_d para el ^{238}Pu se reduce 20 veces cuando en el medio hay 25 ppm de sustancias húmicas (SH), mientras que el del ^{239}Np se reduce a la mitad. Asimismo, los ultrafiltrados de las soluciones utilizadas en la experimentación anterior muestran un incremento de coloides formados por Np-SH y Pu-SH.

De acuerdo con García *et al.* (1992), los ensayos dinámicos realizados en columna, utilizando ^{239}Np y SH, muestran que la velocidad de migración del radionucleido aumenta al hacerlo la concentración en SH (figs. 5A y B). Asimismo, la recuperación del Np es doble al duplicar la concentración de SH, lo que pone de manifiesto la formación de complejos móviles entre el Np/SH. No obstante, parte de los complejos Np-SH neoformados son retenidos en las posiciones de cambio disponibles en el granito.

Otro fenómeno observado en este tipo de experiencias es que, en general, los elementos oxidados se mueven más rápidamente que sus homólogos reducidos. No obstante, los resultados obtenidos con el Np^{4+} , en condiciones anóxicas (fig. 5B), muestran que este radionucleido, en su forma reducida, experimenta un aumento considerable en su velocidad de migración en presencia de SH. Así, el factor de retardo (Rf) del Np^{4+} es de ≈ 12 , con 5 ppm de SH; 7,7 con 10 ppm de SH; 5,8, con 20 ppm de SH. No obstante, los dos últimos valores se han observado en condiciones óxicas, en las que la especie predominante es Np^{5+} en forma de catión NpO_2^+ , en condiciones ambientales. La velocidad de migración tan alta para el Np^{4+} (Rf = 12) podría indicar que la movilidad de los radionucleidos en el medio natural no sería dependiente, solamente, de las condiciones termodinámicas del sistema.

Las experiencias de migración del Se^{4+} y Se^{6+} , en columnas de granito fracturado y en condiciones oxidantes, ponen de manifiesto que el Se^{6+} no se absorbe, como ocurre también en las pruebas en batch, pero sí se reduce a Se^{4+} , forma mucho más reactiva con el medio, durante su paso a través de la columna. Este proceso de reducción, de cinética rápida, puede explicarse por la estructura, a escala atómica, y la microtopografía de la superficie de los sulfuros existentes en el relleno fisural y/o el granito (Biddoglio *et al.*, 1993) (figs. 5E, F).

Las figuras 5C y D representan las curvas de salida del ^3H y ^{137}Cs , respectivamente, de una columna que contenía 4.755 gr. de granito molido. El Rf que se deduce de la posición de los picos de dichas curvas es de 178, lo que indica que la velocidad del agua es 178 veces mayor que la del ^{137}Cs (García *et al.*, 1993). El mecanismo de adsorción del ^{137}Cs es de interacción electrostática, el cual, al ser reversible, permite que la desorción pueda llegar a ser del 100 %.

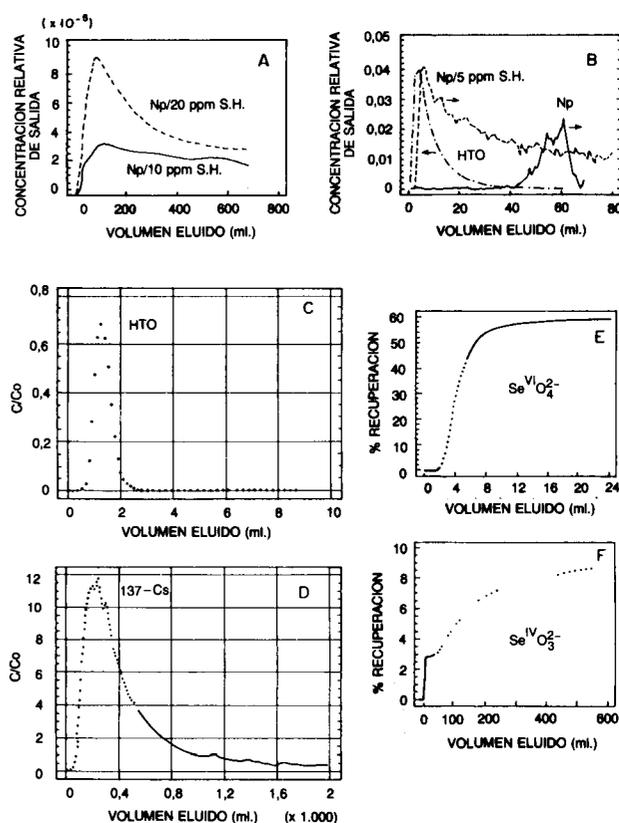


Fig. 5.—Curvas de salida de radionucleidos en columnas de granito. A-D según García *et al.*, (1991, 92 y 93); E y F, según Biddoglio *et al.* (1993).

El estudio del comportamiento de los trazadores conservativos, ^3H , ^{36}Cl , ^{79}Br y ^{125}I ha permitido seleccionar el ^{79}Br para los ensayos «in situ», por las razones siguientes: a) Su interacción física con la roca es menor por efecto de su menor tamaño; b) Por no ser reactivo con el medio; c) Por ser muy soluble, estable químicamente, y no degradable por la actividad bacteriana y d) Por ser fácilmente detectable por ICP-MS de alta sensibilidad e inocuo para las personas y el medio, en las concentraciones utilizadas.

El estudio de los trazadores no conservativos, $^{58}\text{Co}^{2+}$, $^{51}\text{Cr}^{6+}$ y $^{75}\text{Se}^{4+,6+}$, indica que el Co y el Cr podrían ser utilizados en ensayos de migración «in situ», pero habría que movilizarlos con SH. El Se, por el contrario, es lo suficientemente móvil como para obtener una curva de salida en un tiempo de experimentación razonablemente corto. De cualquier forma deberán considerarse los efectos redox que puedan inducir la mineralogía del relleno fisural y/o los microorganismos (Sposito, 1992).

Conclusiones

El granito de referencia de El Berrocal es homogéneo en cuanto a su composición mineralógica y química hasta una profundidad de 609 m. Las heterogeneidades están limitadas a la zona de alteración meteórica, y las zonas de fractura, siempre afectadas, con mayor o menor intensidad, por procesos hidrotermales de alteración.

Los rellenos fisurales tienen una composición mineralógica bastante constante e independiente de las familias de fracturas a las que están asociados.

Los sistemas de fractura detectados son siempre los mismos, independientemente de la escala a la que se haya realizado el estudio. No se ha detectado variación significativa en la intensidad de la fracturación ni en la porosidad del granito de referencia con la profundidad (609 m), a excepción de las zonas adyacentes a las fracturas.

Las fracturas con mayor repercusión en la hidrogeología de la zona son las de dirección N100-110E, N-S, N80-85E y N30E.

Las aguas del área de estudio son sulfatadas-cálcicas, en la zona más superficial, y bicarbonatadas cálcicas, en las zonas más profundas. El contenido en U de ambas varía entre 1 a > 100 ppb.

Los coloides de las aguas de El Berrocal son fundamentalmente de naturaleza inorgánica, y parecen tener escasa influencia en la movilización del U y Th.

El dique de cuarzo mineralizado es la estructura que parece tener mayor influencia en la hidrogeología a nivel local, en el que la dirección preferente de flujo parece ser N-S.

La primera fuente de U del sistema es el granito de referencia.

La mayor movilización del U se produjo durante los procesos tectónicos e hidrotermales que afectaron al granito, especialmente durante la fase que dio lugar a las fracturas y diques de cuarzo, con dirección N100-110E.

La movilización más reciente del U es debida, fundamentalmente, a los procesos supergénicos de alteración que afectan al granito y a las zonas de fractura, en las que la mayor parte del U está como minerales de uranio, absorbido en fases silicatadas e hidróxidos de Fe y Mn y coprecipitado con los carbonatos.

AGRADECIMIENTOS

Este trabajo se está realizando con financiación de ENRESA y CEE. Damos las gracias a todo el personal de la División de Técnicas Geológicas y de Químicas del CIEMAT y a todas las organizaciones participantes en este proyecto, por su entusiasta y eficaz colaboración.

Referencias

- Bidoglio, G., Cole, T. G., Soupioni, M., García, M., y Yllera de Llano, A. (1992). Advective and diffusive transport of trace metals in soil-water systems as studied by radiotracer methodologies. JRC/Ispra (Italy). *Appl. Geofis.*, in press.
- Capote, R. (1991). Estudio de la fracturación en el emplazamiento «El Berrocal». Contrato E/30034 del CIEMAT. Informe privado. CIEMAT, ENRESA, Prospección e Ingeniería. 50 págs.
- D'Alessandro, M. y Mousty, F. (1992). JRC project for a second cross-hole migration test with conservative tracers. El Berrocal Project. Phase I. Third Six-Monthly Progress Report, 1st March to 31st August., 2, EB-JRC-04, 398-404.
- Doblas, M. M. (1990). *Estudio de las deformaciones tardihercinicas de los granitoides de un sector del Sistema Central Español. (Zona Central de Gredos y áreas adyacentes)*. Colección Tesis Doctorales de la Universidad Complutense de Madrid, 59-90: 465 págs.
- García, M., Bidoglio, G., Avogadro, A. y Mingarro, E. D., M. (1991). Experimental investigations of radionuclide transport through cored granite samples. *Radiochim. Acta*, 52-53: 213-217.
- García, M., Bidoglio, G., Avogadro, A. e Yllera de Llano, A. (1992). Studies on hydrogeochemical controls of Neptunium and Selenium migration in granitic columns. *Radiochim. Acta* 58-59: 277-280.
- García, M., Salamanca, E., Zueco, J. L. y Hernández, A. (1993). Sorption/desorption processes and column migration experiments. El Berrocal Project. EB-CIEMAT (93) 3. Interim Report.
- Gómez, P., Turrero, M. J., Mingarro, M., Tejedor, E. y Collado, P. (1993). First approach to the hydrochemical model. El Berrocal Project. EB-CIEMAT (93) 9. Interim Report.
- Guimerá, J., Carrera, J., Holmes, D., Rivas, P., Tallos, A. y Bajos, C. (1993). Preliminary analysis of the hydrogeology of «El Berrocal» Experimental Site. Interim Report. El Berrocal Project.
- Ivanovich, M., Longworth, G., Hasler, S. E., Gardiner, M. P. y Hernández, A. (1992). Geochemical characterisation and migration studies. El Berrocal Project. Phase I. Third Six Monthly Progress Report. 1st March to 31st August 1992, 2: 350-382.
- Julivert, M., Fontboté, J. M., Ribeiro, A. y Conde, L. (1974). Mapa tectónico de la Península Ibérica y Baleares. E: 1/1.000.000. Serv. Publ. IGME., Madrid.
- Marín, C. (1993). Analysis of the fracture systems identified in borehole 16. El Berrocal Project. Progress Report EB-CIEMAT (93) 5.
- Pelayo, M., Pardillo, J., Fernández, A. M., de la Cruz, B. y Pérez del Villar, L. (1993). Mineralogy of the fracture infill materials from boreholes 13, 14, 15 and 16 in the «El Berrocal» experimental site (S. Gredos, Spain). Topical Report EB-CIEMAT (93) 1, 21 págs.
- Pérez del Villar, L. y de la Cruz, B. (1989). Caracterización mineralógica y geoquímica del granito sano y alterado del macizo de El Berrocal (Sierra de Gredos, Provincia de Toledo). *Stud. Geol. Salmant.*, 26: 47-80.
- Pérez del Villar, L., de la Cruz, B. y Cózar, J. S. (1990). Estudio mineralógico, petrográfico y geoquímico del granito de El Berrocal (Sierra de Gredos, Provincia de Toledo). Informe inédito CIEMAT. Madrid, 72 págs.

- Pérez del Villar, L. y Pardillo, J. (1992). Lithological map of El Berrocal site. Topical Report EB-CIEMAT (92) 46 (I), 23 págs.
- Pérez del Villar, L., de la Cruz, B., Pardillo, J. y Cózar, J. S. (1992a). Cálculo de la distribución mineralógica del uranio y torio en el granito sano del plutón de El Berrocal. (Sierra de Gredos, Provincia de Toledo). *Bol. Soc. Esp. Miner.*, 15: 123-136.
- Pérez del Villar, L., de la Cruz, B., Cózar, J. S., Pardillo, J., Gómez, P. y Turrero, M. J. (1992b). The clayey materials associated with N100-110E fractures at the «El Berrocal» site (Gredos, Spain). Genesis and U, Th and other elements retention capacity. CIEMAT. Topical Report EB-CIEMAT (92) 34, 50 págs.
- Pérez del Villar, L., de la Cruz, B., Pardillo, J., Pelayo, M., Turrero, M. J., Gómez, P. y Rivas, P. (1993). Preliminary lithogeochemical model of the «El Berrocal» site (S. de Gredos, Provincia de Toledo). EB-CIEMAT (93) Topical Report, Madrid. 58 págs.
- Sposito, G., Yang, A., Neal, R. H. y Mackzum, A. (1991). Selenate reduction in an alluvial soil. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 55: 1597-1602.
- Varea, R. y Iglesias, A. (1981). Proyecto «Río Alberche». Investigación de U en los materiales graníticos de un sector del Sistema Central. Informe previo 281/6. 2 Tomos 131 y 252 págs. ADARO-JEN.