

CARACTERIZACION DE RELLENOS FISURALES POR DESEQUILIBRIOS ISOTOPICOS DE SERIES RADIATIVAS NATURALES. EL CASO DEL BATOLITO GRANITICO DE EL BERROCAL

A. Hernández Benítez *

RESUMEN

Las relaciones isotópicas obtenidas en materiales del batolito granítico de El Berrocal muestran valores cercanos al equilibrio propios de un sistema geoquímicamente estable para la roca granítica sin alterar, mientras que en los rellenos fisurales se observan disequilibrios isotópicos que indican fenómenos actuales de movilización/retención de estos radisótopos. Los rellenos se han sometido a una lixiviación secuencial donde se observa que el uranio está asociado preferentemente a las fases adsorbidas y ricas en oxi-hidróxidos de hierro, mientras que el torio se moviliza con mayor dificultad y está asociado a la fase residual del relleno.

Palabras clave: Relaciones isotópicas, Uranio y Torio, granitos, rellenos de fractura, interacción agua/roca.

ABSTRACT

The isotopic ratios obtained for geological materials from the granitic batholith of El Berrocal show values very close to equilibrium, like in a geochemically closed system, for the fresh granitic rock. The fracture fillings studied present values with a disequilibrium between radionuclides. This is due to the existence in the system of mobilization/retention phenomena for these elements. The fracture fillings have been sequentially leached and the results show that Uranium is preferentially bound to the adsorbed and iron-rich phases. Thorium, with a lower geochemical mobility, is related mainly to the residual or detrital phases.

Key words: Isotopic ratios, Uranium and Thorium, granites, fracture fillings, rock/water interaction.

Introducción

Los países industrializados llevan a cabo actualmente programas de I + D muy completos, cuyo fin último es resolver los problemas planteados por el almacenamiento de los residuos radiactivos de alta actividad. En estos programas se contempla, de manera general, el aislamiento de los residuos mediante tres barreras, dos de ellas artificiales y la tercera natural, que no es otra que el propio medio geológico. Ante la posibilidad de que las dos primeras barreras dejaran de aislar a los residuos enterrados en un tiempo inferior al previsto (al menos 100.000 años), se originaría, en principio, la migración, hacia el medio ambiente, de los radionucleidos artificiales contenidos en los residuos. En previsión de que esta

eventualidad se produzca, es necesario conocer el comportamiento de la tercera barrera frente a la migración de dichos radionucleidos.

Dado que es imposible experimentar en el medio natural con los radionucleidos artificiales procedentes del combustible nuclear gastado, resulta necesario estudiar el comportamiento de dicho medio frente a la migración de los radionucleidos naturales presentes en el mismo. Para ello es indispensable conocer lo siguiente: a) La distribución de los radionucleidos naturales en el medio rocoso original y en las zonas alteradas por procesos hidrotermales y supergénicos naturales. b) El estado de disequilibrio entre los radionucleidos naturales existentes en la roca. c) Los contenidos y relaciones isotópicas de las aguas subterráneas como principal medio de transporte de

* División de Técnicas Geológicas, CIEMAT. Avda. Complutense, 22, 28040 Madrid, España.

los radionucleidos naturales. d) La datación de los procesos de removilización y diferenciación isotópica relacionados con los de alteración de la roca original. e) La datación de las aguas subterráneas así como la determinación de sus tiempos de residencia.

Con todo ello se pretende comprender, cuantificar y modelizar los fenómenos de interacción agua-roca que, en definitiva, son los que gobiernan los mecanismos de transporte y retención, química o física, de los radionucleidos naturales. Los resultados obtenidos en este tipo de estudios pueden ser extrapolables, por analogía, al comportamiento de los radionucleidos artificiales procedentes del combustible gastado.

Series radiactivas naturales de U y Th

En la naturaleza es posible encontrar más de 60 radionucleidos naturales (Myasoedov *et al.*, 1989) que pueden dividirse, según su origen, en dos categorías: *originales* y *cosmogénicos*. Asimismo, se conocen cuatro series radiactivas, tres de ellas naturales y una artificial. Dentro del grupo de los radionucleidos *originales* tenemos aquellos que pertenecen a las series radiactivas naturales (fig. 1) donde los radisótopos que generan cada una son: el ^{238}U (serie del uranio), ^{235}U (serie del actinio) y ^{232}Th (serie del torio).

Los radisótopos pertenecientes a las tres series radiactivas naturales se generan, a partir del ^{238}U , ^{235}U y ^{232}Th , mediante procesos de desintegración α o β . Entre los radisótopos pertenecientes a dichas series, los más interesantes son los de vida media larga, ya que esta característica facilita su determinación. Estos son: $^{238,235,234}\text{U}$ y $^{232,228}\text{Th}$ (tabla 1). Además, en estas series conviene destacar los siguientes radisótopos: ^{226}Ra , ^{222}Rn y $^{208,207,206}\text{Pb}$. El ^{226}Ra es un elemento muy soluble, lo que facilita que en presencia de aguas subterráneas se rompa el equilibrio de la cadena de desintegración del ^{238}U . El ^{222}Rn , de vida media muy corta ($t_{1/2} = 3,83$ días) es relativamente fácil de medir por ser un gas, permitiendo, en algunos casos, la determinación de su precursor, el ^{226}Ra . Los tres últimos son los isótopos estables y radiogénicos del plomo, siendo cada uno de ellos el término final de una de las tres series radiactivas naturales.

Las diferencias entre las vidas medias y los mecanismos de desintegración de los isótopos de las series radiactivas naturales son las que permiten el estudio de los procesos de fraccionamiento isotópico en los medios naturales (Stein, 1973). Las relaciones isotópicas entre los isótopos de estas series naturales dan una idea de las variaciones geoquímicas producidas durante la evolución de los diferentes medios naturales (Ivanovich y Harmon, 1982; Faure, 1986).

Tabla 1.—Características más importantes de los isótopos, de vida media larga, del U y Th de las series naturales

Isótopos	$t_{1/2}$ (años)	Abundancia (%)	Energía (MeV)	Concentración (g/g)
^{234}U	$2,5 \cdot 10^5$	0,0057	α 4,77 (72 %) α 4,72 (28 %)	U, $8 \cdot 10^{-11}$
^{235}U	$7,1 \cdot 10^8$	0,7200	α 4,18-4,56 γ 0,185 (55 %) γ 0,43 (12 %)	$7 \cdot 10^{-9}$
^{238}U	$4,5 \cdot 10^9$	99,2743	α 4,19 (77 %) γ 0,05 (23 %)	$5 \cdot 10^{-6}$
^{230}Th	$8,0 \cdot 10^4$	Trazas	α 4,68 (76 %) α 4,61 (24 %) γ 0,254	Th, $2 \cdot 10^{-10}$
^{232}Th	$1,4 \cdot 10^{10}$	100,0000	α 4,01 (76 %) α 3,95 (24 %) γ 0,59 (24 %)	$1 \cdot 10^{-5}$

Estudios isotópicos de series radiactivas naturales

Actualmente los estudios de isótopos, tanto estables como radiactivos, tienen un ámbito de aplicación muy variado y se han desarrollado prácticamente en paralelo en los últimos años (Ivanovich y Harmon, 1982; Faure, 1986; Cole *et al.*, 1990). Las aplicaciones de los isótopos de las series radiactivas naturales del U y Th ($^{238,234}\text{U}$, $^{232,230}\text{Th}$, ^{226}Ra , ^{222}Rn y $^{208,207,206}\text{Pb}$) son diversas, siendo las que presentan mayor interés y las más frecuentemente utilizadas, en los estudios de migración de radionucleidos, las siguientes:

a) Datación de materiales rocosos antiguos mediante métodos de U, Th-Pb (Faure, 1986).

b) Datación de materiales rocosos recientes con edades inferiores a 1 millón de años, mediante métodos de datación basados en el desequilibrio de las series del uranio (Ivanovich y Harmon, 1982).

c) Determinación del desequilibrio de las series del U y Th en materiales geológicos y aguas subterráneas (Hubbard *et al.*, 1984; Nordstrom, 1985).

d) Desequilibrios de las series del U y Th aplicados a los procesos de migración de radionucleidos naturales (Airey e Ivanovich, 1986; Menager, 1991; Menager *et al.*, 1992; Smellie *et al.*, 1986).

La posibilidad de realizar este tipo de estudios se debe a que las vidas medias de los radioelementos padre de cada una de las series radiactivas naturales son mucho mayores que las de sus descendientes. Por ello, en los sistemas naturales cerrados las series radiactivas naturales pueden alcanzar el equilibrio secular (Stein, 1973), ya que la tasa de desintegración

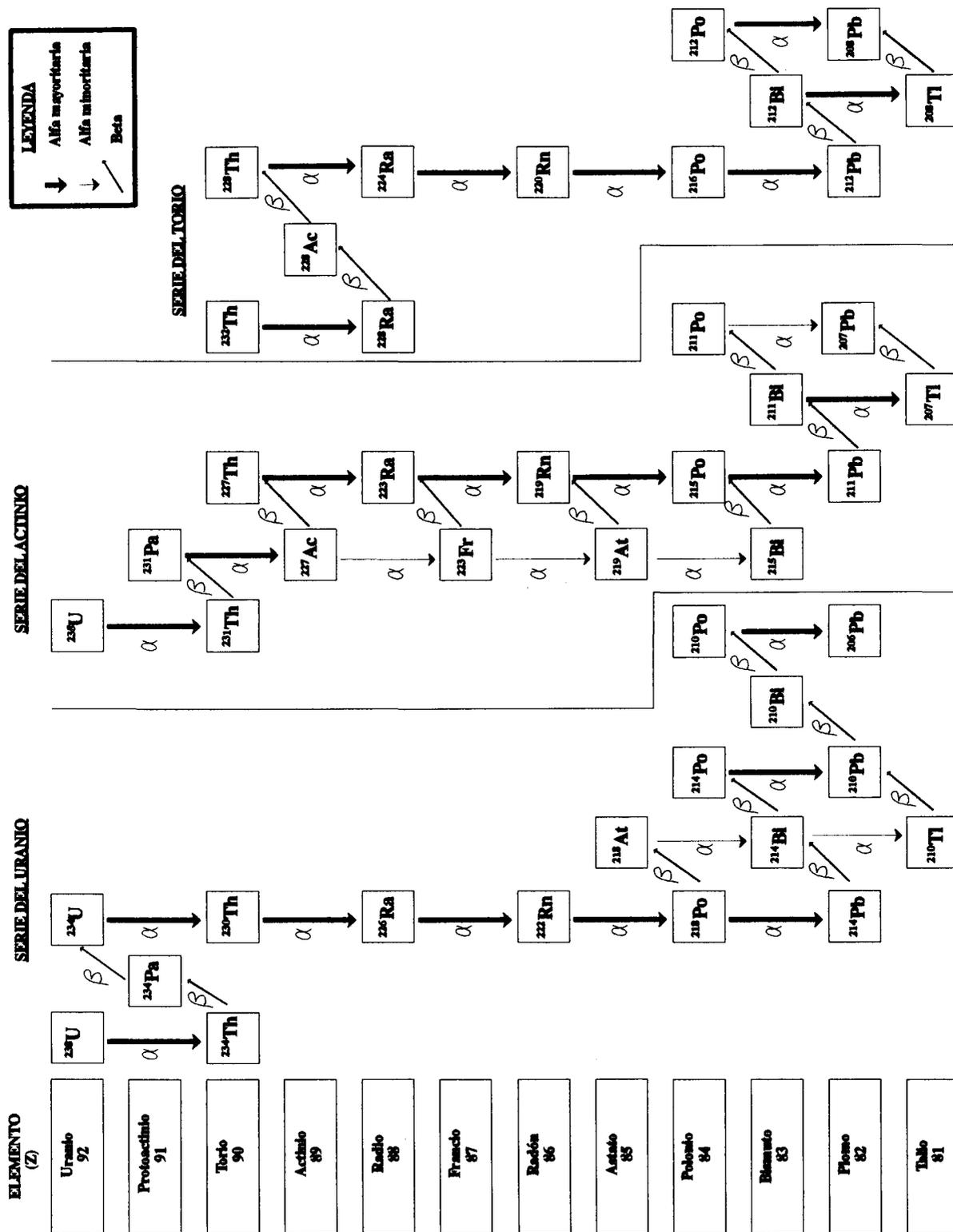


Fig. 1.—Series radiactivas naturales; secuencia de desintegración y tipos de radiación dominantes.

de todos los términos de la serie es igual a la tasa de desintegración del radioelemento padre.

Las cadenas de desintegración de las series radiactivas naturales del ^{238}U y ^{235}U se rompen por procesos geológicos, ya que los radioelementos descendientes son isótopos de otros elementos con propiedades químicas diferentes.

Datación por métodos de U, Th-Pb (U-Pb, Th-Pb o Pb-Pb)

Al igual que el sistema Rb-Sr, estos tres se utilizan (Faure, 1986), como métodos alternativos, para datar rocas y mineralizaciones de U y Th antiguos. Estos métodos son útiles para datar materiales rocosos antiguos, y se basan en determinar las relaciones isotópicas entre los radioelementos padres de cada una de las cadenas y el isótopo estable final, que en todos los casos es de Pb. Así, las tres cadenas radiactivas naturales tienen asociado un isótopo de Pb radiogénico, estable y específico: ^{238}U (^{206}Pb), ^{235}U (^{207}Pb) y ^{232}Th (^{208}Pb).

No obstante, a pesar de la dificultad de que un sistema permanezca cerrado para el U, dada su movilidad geoquímica, la posible combinación de los tres sistemas mencionados, así como la representación en diagramas concordia y discordia de los sistemas U-Pb y Th-Pb, facilita la datación absoluta de sistemas abiertos para el U. En cualquier caso, el sistema Pb-Pb (isocronas Pb-Pb, $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ «versus» $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$) es el más recomendable dada la poca movilidad geoquímica de este elemento y la rapidez con que se realizan las medidas por espectrometría de masas.

Datación por desequilibrio de las series del U

El desequilibrio radiactivo entre el isótopo padre y uno de sus descendientes, puede emplearse para datar períodos de tiempo comprendidos entre algunas decenas de años y algo más de un millón de años (Ivanovich y Harmon, 1982; Ivanovich *et al.*, 1992c). Así la desintegración del ^{230}Th o del ^{231}Pa permite medir las velocidades oceánicas de sedimentación. Los carbonatos, marinos o continentales, pueden datarse por la desintegración del exceso de ^{234}U o por el aumento de su contenido en ^{230}Th . La desintegración del ^{210}Pb removilizado y posteriormente inmovilizado, puede emplearse para la datación de hielos de procedencia diversa (glaciares alpinos, capas de hielo continentales), así como para determinar las velocidades de sedimentación en lagos y zonas marinas costeras. Finalmente, las relaciones entre los diversos términos de las series radiactivas naturales pue-

den emplearse para la datación de rocas volcánicas recientes, siendo el Pleistoceno el período más antiguo posible de datar (Faure, 1986).

Estudios de los desequilibrios de las series del U y el Th

Cuando se consideran los diferentes factores que pueden influir en los desequilibrios isotópicos entre los miembros de las series naturales, la mayoría de los autores (Edis, 1992; Golian, 1992; Ivanovich y Harmon, 1982) llegan a la conclusión de que los de mayor relevancia son los siguientes:

- Las propiedades químicas de cada isótopo.
- La composición de las aguas subterráneas.
- Las condiciones redox del medio.
- La radiogénesis y vida media de los isótopos.

Los estudios isotópicos de las series radiactivas naturales tienen aplicaciones inmediatas en el estudio de las aguas subterráneas (Bottomley *et al.*, 1990; Davis, 1989; Hubbard *et al.*, 1984), en el de la matriz rocosa (Karlsson, 1989; Menager, 1991) y en los estudios de los rellenos fisurales de las fracturas que afectan a las rocas (Golian, 1992; Ivanovich *et al.*, 1992a,b,c). Asimismo, pueden utilizarse para la datación de materiales geológicos recientes, siempre y cuando dichos materiales hayan permanecido como sistemas geoquímicos cerrados y, por lo tanto, sin aportes o pérdidas de los radisótopos pertenecientes a las series radiactivas naturales.

En el caso de un sistema geológico determinado, los radisótopos descendientes de las series naturales estarán en equilibrio con los padres en función de dos factores: i) el aislamiento del sistema y ii) el tiempo transcurrido desde su formación. Así, será necesario que un sistema geológico permanezca aislado más de 1 millón de años para que la serie del ^{238}U alcance el equilibrio secular.

Desde el punto de vista geoquímico, un sistema aislado puede ser una roca que no haya sido afectada por procesos de alteración. En estas condiciones, el comportamiento geoquímico del U y el Th es similar, ya que los dos se encuentran en el estado de oxidación 4^+ y sus radios iónicos son muy próximos (0,99 Å para el U^{4+} y 1,05 Å para el Th^{4+}). Por ello la relación U/Th del sistema inalterado permanece constante desde su origen. En sistemas alterados, las variaciones de los valores primitivos de la relación U/Th se deben a que el U^{4+} es fácilmente oxidable a U^{6+} , catión que es más estable en medios oxidados como el catión complejo UO_2^{2+} que es muy soluble. En contraposición, el Th presenta un único estado de oxidación (Th^{4+}) siendo muy insoluble en agua. Asimismo el Ra, producto de la desintegración de las

tres series radiactivas naturales, es muy soluble y susceptible a salir del sistema. Así, la pérdida del U y/o la de Ra, son los mecanismos fundamentales en la ruptura de los equilibrios seculares entre los miembros de las series radiactivas naturales.

Otros casos de desequilibrio entre los miembros de las series naturales son los que involucran a los isótopos de un mismo elemento. Este es el caso del desequilibrio entre ^{238}U , ^{235}U y ^{234}U o entre el ^{232}Th y el ^{228}Th . Estos desequilibrios se dan, igualmente, por procesos de lixiviación preferencial, bien favorecidos por la existencia, en algunos casos, de radisótopos intermedios más móviles, como el ^{228}Ra en la serie del Th, o por fenómenos físicos como es el efecto de «retroceso radiactivo». Este efecto hace que el ^{234}U pueda salir fácilmente de la estructura de un mineral, favoreciendo así su movilización preferencial.

Para el estudio de los procesos de interacción agua-roca (Ivanovich *et al.*, 1992a,c) suelen determinarse principalmente las relaciones isotópicas siguientes: U/Th, $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$, $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ y $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ cuyos valores están relacionados directamente con el comportamiento geoquímico de cada radisótopo en el medio rocoso.

La relación U/Th para una roca inalterada es constante y está en relación con su origen. Los procesos posteriores de alteración que afecten a dicha roca, especialmente los de meteorización, suelen producir una disminución del valor de dicha relación, debido a la oxidación y removilización del U. El Th es un elemento con muy baja movilidad geoquímica. Las aguas en contacto directo con estas rocas pueden presentar valores muy altos para esta relación por ser el agente solubilizante por excelencia del U procedente de la roca.

El estudio de la relación $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$, acompañado por el de la relación $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$, permite determinar los procesos de movilización o adsorción preferencial del U. Esto se basa en la movilización preferencial del ^{234}U frente al ^{238}U , debido fundamentalmente al efecto del «radioactive recoil» en las estructuras minerales. Este hecho hace que, en general, el sólido presente valores de la relación $^{234}\text{U}/^{238}\text{U} < 1$, mientras que en las aguas subterráneas sean > 1 . En el caso del sólido puede ocurrir que se encuentren valores de la relación $^{234}\text{U}/^{238}\text{U} > 1$ debidos a fenómenos de precipitación o adsorción del U disuelto en las aguas, enriquecidas previamente en ^{234}U . La relación $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ permite conocer si el proceso de retención del U es reciente e incluso la continuidad del mismo. Todos estos procesos están regulados por las características físico-químicas y los regímenes de flujo de las aguas.

La relación $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ que, en principio, no debería aportar información sobre la interacción

agua/roca, por la alta inmovilidad geoquímica del Th, permite obtener datos sobre dichos procesos ya que el ^{228}Ra , radisótopo de vida media corta y gran movilidad geoquímica en aguas bicarbonatadas, es el precursor del ^{228}Th que es más fácilmente medible. De esta manera la relación $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ es indicativa de la ruptura de la serie de desintegración natural del Th, por lixiviación o precipitación del ^{228}Ra .

En el caso del ^{222}Rn , radisótopo de un gas noble, su permanencia en el medio geológico, o en las aguas subterráneas, depende de factores tales como la fugacidad del gas, la presencia de ^{226}Ra que lo genera y las características de la red fisural, que es la que permite su salida.

Determinaciones de relaciones isotópicas

El método más adecuado para la determinación de las relaciones isotópicas entre los miembros de las series radiactivas naturales es el de espectrometría alfa (Aceña *et al.*, 1986), por su resolución y sensibilidad. Para algunos isótopos, como el ^{226}Ra , se emplea también la espectrometría gamma. Otros, como el ^{222}Rn (y por él su precursor el ^{226}Ra) pueden analizarse mediante contadores proporcionales (Ivanovich y Harmon, 1982).

Para obtener resultados precisos, las técnicas de análisis por espectrometría alfa requieren tener en cuenta los factores siguientes:

- Tratamiento químico cuidadoso de las muestras con el objeto de separar aquellos radisótopos cuyas energías de emisión α interfieren entre sí (caso del ^{234}U , ^{230}Th y ^{226}Ra).

- Utilización de trazadores. En el caso de que esto no fuera posible, se utilizaría un radisótopo presente en la muestra, que se denomina patrón interno. Este método recibe el nombre de determinación isotópica mediante patrón interno (Aceña *et al.*, 1986).

- Preparación de fuentes homogéneas y con espesor muy reducido.

- Elección de un detector adecuado con bajo fondo, alta resolución en energía y alta eficiencia para actividades bajas.

Análisis isotópicos de series de U en rellenos de fractura

Dentro de las actividades realizadas en el plutón granítico de El Berrocal, se han llevado a cabo las determinaciones isotópicas de radisótopos de las series de U y Th en muestras de rellenos fisurales (Ivanovich *et al.*, 1992b). La finalidad de estos estudios es

Tabla 2.—Procedimiento de extracción secuencial para muestras de El Berrocal

Fase	Extractante empleado
Intercambiable iónicamente (IE)	MgCl ₂ 1M agitado durante 24 horas.
Adsorbidos (AD)	Na ₄ EDTA 1M NaCO ₃ agitado durante 24 horas.
Oxidos amorfos Fe y Mn (TAOD)	Oxalato ácido de Tamm agitado en la oscuridad por 24 horas.
Oxidos cristalinos de Fe y Mn (TAOL)	Oxalato ácido de Tamm en reposo a la luz por 1 ó 2 días.
Residual (RES)	HF/HClO ₄ hasta la disolución total.

intentar comprender los fenómenos de interacción agua/roca que afectan a la movilización de los radisótopos naturales presentes en este tipo de rocas.

Los resultados de este tipo de estudios, aún en curso, se emplearán para una mejor comprensión y modelización de los fenómenos de movilización/retención de los radisótopos naturales presentes en este tipo de sistema geológico. Para ello es imprescindible conocer las relaciones isotópicas de las series del U y Th en los materiales geológicos y las aguas que circulan por el sistema de fracturas del batolito.

Resultados

Las muestras se han tomado en los testigos de los sondeos S-1, S-7, S-13, S-14 y S-16. Asimismo, se tomó una muestra de granito sano del sondeo S-7 como referencia de la roca granítica inalterada. Las muestras han sido molidas, tamizadas por 125 µm y disueltas químicamente (ataques sucesivos con HNO₃, HClO₄ y HF). Tras la adición de trazadores, el U y Th fueron separados mediante columnas de cambio (DOWEX 100-200) y electrodepositados para su contaje por espectrometría α.

Los tipos de relleno fisurales que se han encontrado corresponde, *grosso modo*, a cuatro clases diferentes que son las siguientes: a) ricos en cloritas; b) arcillas con óxidos de Fe y Mn; c) arcillas empobrecidas en Fe y d) rellenos carbonatados.

Para estudiar la asociación de los radisótopos con las diversas fases de los rellenos, se ha empleado una técnica de lixiviación secuencial (tabla 2) para los tres primeros tipos de rellenos, mientras que los de carbonatos han sido analizados por separado. En el caso de los carbonatos se ha analizado tanto la fase carbonatada, disuelta en NO₃H, como el residuo silíceo presente en los mismos.

Los datos radiométricos obtenidos están reflejados en la tabla 3 para las muestras totales y en las ta-

blas 4 a 8 para las diversas fases extraídas por lixiviación secuencial.

El granito sano analizado muestra valores de las relaciones ²³⁴U/²³⁸U, ²³⁰Th/²³⁴U y ²²⁸Th/²³²Th cercanos al equilibrio, como sería de esperar en una muestra de roca no alterada. Los valores de U y Th son cercanos a los valores medios en estos granitos, siendo de 20 y 7 ppm respectivamente.

De los resultados obtenidos se observa que para el relleno de la fractura a 48,52 m del Sondeo 1 (tablas 3 y 4), de tipo clorítico, hay un exceso de ²³⁴U frente al ²³⁸U, mientras que las relaciones isotópicas ²³⁰Th/²³⁴U y ²²⁸Th/²³²Th dan valores cercanos al equilibrio. Las fases extraídas por lixiviación secuencial presentan distintas distribuciones para el Th y el U, estando este último presente mayoritariamente en la fase adsorbida (AD).

En el caso del Sondeo 7 (tablas 3 y 5), el relleno de tipo clorítico de la fractura a 45,45 m presenta una distribución similar para el Th y el U en las diferentes fases de la extracción secuencial, el U está asociado principalmente a la fase adsorbida (AD) y a los óxidos amorfos de Fe y Mn (AM). Además hay una pérdida de ²³⁴U frente al ²³⁸U, pero las relaciones isotópicas ²³⁰Th/²³⁴U y ²²⁸Th/²³²Th tienen valores cercanos al equilibrio.

En el caso del Sondeo 14, se ha estudiado una zona con múltiple fracturación localizada en el tramo situado entre 216,3 y 216,5 m de profundidad. En este caso el tipo de relleno es claramente arcilloso con un aspecto pulverulento y coloración blanquecina. En esta zona se han identificado varias fracturas, identificadas con las letras A, B y C que han sido muestreadas y analizadas por separado.

Los resultados se muestran en las tablas 3, 6, 7 y 8 y en ellas se observa el parecido entre los rellenos. Todas las muestras presentan exceso de ²³⁴U frente al ²³⁸U y en algunos casos una ligera pérdida de ²³⁰Th frente al ²³⁴U. Los valores de la relación ²²⁸Th/²³⁰Th son cercanos a la unidad excepto para la fractura B donde es menor.

Los resultados correspondientes a las distintas fases de la extracción secuencial en este grupo de fracturas muestran una distribución muy similar del U y Th en las mismas, lo que indica una historia geoquímica común. Entre el 50 al 70 % del U está asociado con la fase adsorbida (AD). Para el Th más del 50 % se encuentra en la fase detrítica (RES) lo que es indicativo de las distintas movilidades geoquímicas de ambos.

Discusión

Los resultados preliminares obtenidos dan una idea de la historia geoquímica del U en estos rellenos

Tabla 3.—Resultados radiométricos en rellenos fisurales de «El Berrocal». [Muestras totales Sondeos S-1, S-7 y S-14]

Muestra (Harwell #)	U (ppm)	Th (ppm)	Th/U RM*	²³⁴ U/ ²³⁸ U RA	²³⁰ Th/ ²³⁴ U RA	²²⁸ Th/ ²³² Th RA
S7 (44,35 m) -6722	20,2 ±0,3	7,14 ±0,22	0,35 ±0,01	0,99 ±0,01	1,00 ±0,02	0,95 ±0,04
S7 (45,45 m) -6721	114,4 ±4,6	13,70 ±1,39	0,12 ±0,01	0,89 ±0,02	1,02 ±0,06	1,16 ±0,16
S1 (48,52 m) -6723	105,3 ±4,8	11,49 ±1,27	0,11 ±0,01	1,38 ±0,03	0,95 ±0,06	0,86 ±0,21
S14 (216,3 m) A -6724	404,6 ±20,0	9,69 ±1,21	0,024 ±0,003	1,32 ±0,02	0,88 ±0,06	0,95 ±0,20
S14 (216,3 m) B -6725	209,1 ±12,4	7,16 ±1,21	0,034 ±0,006	1,14 ±0,03	0,92 ±0,08	0,60 ±0,34
S14 (216,3 m) C -6726	154,2 ±7,2	5,29 ±0,82	0,034 ±0,006	1,20 ±0,03	0,86 ±0,05	1,17 ±0,42

Tabla 4.—Resultados radiométricos en rellenos fisurales de «El Berrocal». [Sondeo S-1, 48,52 m Relleno rico en clorita]

Fase ES (Harwell #)	U (ppm)	Th (ppm)	Th/U RM*	²³⁴ U/ ²³⁸ U RA	²³⁰ Th/ ²³⁴ U RA	²²⁸ Th/ ²³² Th RA	U (%)	Th (%)
IE (6731-IE)	0,08 ±0,27	0,07 ±0,05	0,88 ±3,10	19,00 ±65,66	0,21 ±0,08	—	0,1	0,4
AD (6731-AD)	33,29 ±1,37	2,42 ±0,41	0,07 ±0,01	1,83 ±0,05	0,93 ±0,05	1,81 ±0,39	47,4	14,6
AM Fe/Mn (6731-TAOD)	4,73 ±0,35	3,22 ±0,43	0,68 ±0,10	1,59 ±0,18	0,96 ±0,08	1,08 ±0,20	6,7	19,4
CR Fe/Mn (6731-TAOL)	14,01 ±0,43	0,42 ±0,09	0,03 ±0,01	0,99 ±0,03	1,03 ±0,04	1,94 ±0,60	20,0	2,5
RES (6731-RES)	18,10 ±1,40	10,46 ±2,74	0,58 ±0,16	1,00 ±0,09	1,14 ±0,16	0,95 ±0,41	25,8	63,1
TOTAL 6723	105,28 ±4,77	11,49 ±1,27	1,38 ±0,03	1,38 ±0,03	0,959 ±0,06	0,86 ±0,21	100,0	100,0

nos de fractura, indicando en algunos casos cuáles han podido ser los fenómenos de removilización/retención que han afectado a estos radisótopos.

En el caso del Sondeo 1 las relaciones isotópicas y la asociación mayoritaria del U con la fase AD sugieren la conclusión, basada en el exceso de ²³⁴U, de que en este nivel del Sondeo 1 está teniendo lugar actualmente la acumulación de U a partir de las aguas subterráneas.

En cambio, en el Sondeo 7 se pueden interpretar los datos obtenidos como que se está produciendo

una ligera lixiviación preferencial del U o pérdida por retroceso radiactivo del ²³⁴U.

En cuanto a las tres fracturas (A, B y C) analizadas en el Sondeo 14 a 216,3 m, las relaciones isotópicas obtenidas son indicativas de que se está produciendo una retención del U presente en la solución en los materiales arcillosos de las fracturas. La asociación mayoritaria del U con la fase adsorbida está relacionada con el origen secundario del mismo. La relación ²³⁰Th/²³⁴U y ²²⁸Th/²³²Th indica que la retención está teniendo lugar muy lentamente ya que los valores son cercanos al equilibrio.

Tabla 5.—Resultados radiométricos en rellenos fisurales de «El Berrocal». [Sondeo S-7, 45,45 m Relleno rico en clorita]

Fase ES (Harwell #)	U (ppm)	Th (ppm)	Th/U RM*	²³⁴ U/ ²³⁸ U RA	²³⁰ Th/ ²³⁴ U RA	²²⁸ Th/ ²³² Th RA	U (%)	Th (%)
IE (6731-IE)	4,87 ±0,46	0,05 ±0,05	0,01 ±0,01	1,75 ±0,18	0,03 ±0,01	0,00 ±0,00	4,7	0,3
AD (6730-AD)	23,36 ±0,97	4,05 ±0,44	0,17 ±0,02	0,97 ±0,04	1,51 ±0,08	1,83 ±0,24	22,5	22,6
AM Fe/Mn (6730-TAOD)	19,70 ±0,99	5,47 ±0,66	0,28 ±0,04	0,53 ±0,03	1,51 ±0,12	0,76 ±0,16	19,0	30,5
CR Fe/Mn (6730-TAOL)	11,87 ±0,39	1,16 ±0,15	0,10 ±0,01	0,46 ±0,02	1,18 ±0,07	0,68 ±0,17	11,4	6,5
RES (6730-RES)	44,05 ±3,16	7,18 ±2,16	0,16 ±0,05	0,92 ±0,07	1,12 ±0,12	1,18 ±0,53	42,4	40,1
TOTAL 6721	114,43 ±4,59	13,70 ±1,39	0,12 ±0,01	0,08 ±0,02	1,02 ±0,06	1,164 ±0,164	100,0	100,0

Tabla 6.—Resultados radiométricos en rellenos fisurales de «El Berrocal». [Sondeo S-14, 216,3 m Fractura A Relleno rico en arcilla]

Fase ES (Harwell #)	U (ppm)	Th (ppm)	Th/U RM*	²³⁴ U/ ²³⁸ U RA	²³⁰ Th/ ²³⁴ U RA	²²⁸ Th/ ²³² Th RA	U (%)	Th (%)
IE (6732-IE)	30,72 ±1,78	0,12 ±0,08	0,004 ±0,003	1,97 ±0,09	0,11 ±0,01	6,71 ±5,25	11,9	1,1
AD (6732-AD)	199,59 ±6,73	3,59 ±0,37	0,018 ±0,002	1,32 ±0,01	1,16 ±0,05	1,67 ±0,24	77,3	32,6
AM Fe/Mn (6732-TAOD)	7,68 ±0,51	2,20 ±0,34	0,29 ±0,05	1,03 ±0,08	1,82 ±0,14	0,95 ±0,23	3,0	20,0
CR Fe/Mn (6732-TAOL)	5,40 ±0,22	0,31 ±0,10	0,06 ±0,02	0,93 ±0,05	1,18 ±0,07	1,56 ±0,88	2,1	2,8
RES (6732-RES)	14,68 ±1,24	4,78 ±1,98	0,33 ±0,14	1,16 ±0,12	1,41 ±0,19	—	5,7	43,5
TOTAL 6724	404,61 ±19,96	9,68 ±1,21	0,02 ±0,003	1,32 ±0,02	0,88 ±0,06	0,95 ±0,20	100,0	100,0

Tabla 7.—Resultados radiométricos en rellenos fisurales de «El Berrocal». [Sondeo S-14, 216,3 m Fractura B Relleno rico en arcilla]

Fase ES (Harwell #)	U (ppm)	Th (ppm)	Th/U RM*	²³⁴ U/ ²³⁸ U RA	²³⁰ Th/ ²³⁴ U RA	²²⁸ Th/ ²³² Th RA	U (%)	Th (%)
IE (6736-IE)	16,94 ±1,02	0,20 ±0,08	0,01 ±0,01	1,44 ±0,08	0,10 ±0,01	1,03 ±1,82	8,5	2,5
AD (6736-AD)	143,32 ±6,15	2,27 ±0,25	0,02 ±0,002	1,13 ±0,02	1,16 ±0,06	2,11 ±0,32	71,6	29,1
AM Fe/Mn (6736-TAOD)	18,75 ±0,81	0,75 ±0,20	0,04 ±0,01	0,79 ±0,03	1,38 ±0,09	2,43 ±0,03	9,4	9,6
CR Fe/Mn (6736-TAOL)	4,767 ±0,28	0,26 ±0,10	0,06 ±0,02	0,56 ±0,05	1,24 ±0,12	24,22 ±9,48	2,4	3,4
RES (6736-RES)	15,98 ±0,86	4,31 ±0,96	0,27 ±0,06	1,12 ±0,07	1,14 ±0,10	3,15 ±0,83	8,1	55,4
TOTAL 6725	209,05 ±12,35	7,16 ±1,21	0,03 ±0,01	1,14 ±0,03	0,92 ±0,08	0,60 ±0,34	100,0	100,0

Tabla 8.—Resultados radiométricos en rellenos fisurales de «El Berrocal». [Sondeo S-14, 216,3 m Fractura C Relleno rico en arcilla]

Fase ES (Harwell #)	U (ppm)	Th (ppm)	Th/U RM*	²³⁴ U/ ²³⁸ U RA	²³⁰ Th/ ²³⁴ U RA	²²⁸ Th/ ²³² Th RA	U (%)	Th (%)
IE (6733-IE)	11,74 ±0,66	0,14 ±0,08	0,01 ±0,01	1,61 ±0,09	0,13 ±0,01	10,41 ±7,50	12,1	1,7
AD (6733-AD)	68,58 ±2,82	1,18 ±0,18	0,02 ±0,003	1,31 ±0,03	1,03 ±0,05	5,11 ±0,89	70,5	14,7
AM Fe/Mn (6733-TAOD)	6,76 ±0,37	1,82 ±0,28	0,27 ±0,04	0,79 ±0,05	1,76 ±0,13	1,64 ±0,32	7,0	22,8
CR Fe/Mn (6733-TAOL)	1,72 ±0,16	0,15 ±0,07	0,09 ±0,04	0,59 ±0,09	0,94 ±0,15	4,77 ±2,90	1,7	1,9
RES (6733-RES)	8,47 ±1,07	4,70 ±1,91	0,56 ±0,24	1,28 ±0,20	1,06 ±0,20	2,16 ±1,51	8,7	58,9
TOTAL 6726	154,20 ±7,16	5,29 ±0,82	0,03 ±0,01	1,20 ±0,03	0,86 ±0,065	1,17 ±0,42	100,0	100,0

Referencias

- Aceña, M. L., García-Toraño, E. y Crespo, M. T. (1986). Espectrometría de Radiación Alfa. Instituto de Estudios de la Energía, CIEMAT.
- Airey, P. L. e Ivanovich, M. (1986). Geochemical Analogues of High-Level Radioactive Waste Repositories. *Chemical Geol.*, 55, 203-213.
- Bottomley, D. J., Gascoyne, M. y Kamineni, D. C. (1990). The geochemistry, age and origin of groundwater in a mafic pluton, East Bull Lake, Ontario, Canadá. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 54, 993-1008.
- Cole, D. R., Curtis, D. B., DePaolo, D. J., Gerlach, T. M., Laul, J. C., Shaw, H., Smith, B. M. y Sturchio, N. C. (1990). Isotope Geochemistry: A critical Component of Energy Research. Los Alamos National Laboratory, La-11849-MS.
- Davis, S. N. (1989). Use of isotope techniques in the study of the hydrogeology of fractured rock aquifers. *Proceedings of the Advisory Group on Application of Isotope techniques in the Study of Fractured and Fissured Rocks*, IAEA-AG-329.2, Viena, 1-4.
- Edis, R. (1992). Uranium Series Disequilibria in Accessible Phases. *Alligator Rivers Analogue Project, 3.º Annual Report 1990-91* (P. Duerden, edit.), ANSTO, 215-222.
- Faure, G. (1986). *Principles of Isotope Geology*, John Wiley & Sons, New York, 589 págs.

- Golian, C. (1992). Interpreting the Uranium Series Activity Ratio Development Along the Chosen Horizon of the Weathered Zone. *Alligator Rivers Analogue Project 3.rd Annual Report 1990-91* (P. Duerden, edit.), ANSTO, 115-130.
- Hubbard, N., Laul, J. C. y Perkins, R. W. (1984). The use of natural radionuclides to predict the behavior of radwaste radionuclides in far-field aquifers. *Materials Research Society Symposia Proceedings 26 (Scientific Basis for Nuclear Waste Management VII)* (G. L. McVay, edit.), 891-897.
- Ivanovich, M., Blomqvist, R. y Frapé, K. S. (1992a). Rock/Water Interaction Study in Deep Crystalline Rocks Using Isotopic and Uranium Series Radionuclide Techniques. *Radiochim. Acta*, 58/59, 401-408.
- Ivanovich, M. y Harmon, R. S. (edit.) (1982). *Uranium Series Disequilibrium: Applications to Environmental Problems*, Clarendon Press, Oxford, 571 págs.
- Ivanovich, M., Longworth, G., Hasler, S. E., Gardiner, M. P. y Hernández Benítez, A. (1992b). Geochemical characterisation and migration studies. El Berrocal Report EB-AEA(92)9, UKAEA HARWELL.
- Ivanovich, M., Tellam, J. H., Longworth, G. y Monaghan, J. J. (1992c). Rock/Water Interaction Timescales involving U and Th Isotopes in a Permo-Triassic Sandstone. *Radiochim. Acta*, 58/59, 423-432.
- Karlsson, F. (1989). The Swedish research programme on radioactive waste disposal: Experience gained with the use of isotope techniques in fractured rocks. *Proceedings of the Advisory Group on Application of Isotope Techniques in the Study of Fractured and Fissured Rocks*, IAEA-AG-329.2, Vienna, 69-86.
- Menager, M. T. (1991). Etude de la migration de l'uranium, du thorium et des terres rares au sein de'un gisement d'uranium intragranitique: analogie avec un stockage en formation granitique de déchets radioactifs de haute activité. Commission des Communautés Européennes, Rapport Final contrat FI1W/0149-F; EUR 13529 FR, Bruxelles.
- Menager, M. T., Menet, C., Petit, J. C., Chatelineau, M. y Côme, B. (1992). Dispersion of U, Th and REE by water-rock interaction around an intragranitic U-vein, Jallerys Mine, Morvan, France. *Geochemistry of Radioactive Waste Disposal: a French Contribution* (J. C. Petit, and M. Gascoyne, edit.) *Applied Geochemistry*, Supplementary Issue No. 1.
- Myasoedov, B. F. y Pavlotskaya, F. I. (1989). Measurement of Radioactive Nuclides in the Environment. *Analyst*, 114, 255-263.
- Nordstrom, D. K. (1985). Hydrogeological and Hydrogeochemical Investigations in Boreholes. Final report of the phase I geochemical investigations of the Stripa groundwaters. SKB Technical Report 85-06, Estocolmo.
- Smellie, J. A. T., Mackenzie, A. B. y Scott, R. D. (1986). An analogue validation study of natural radionuclide migration in crystalline rocks using Uranium-Series Disequilibrium Studies. *Materials Research Society Symposia Proceedings 50 (Scientific Basis for Nuclear Waste Management IX)* (L. O. Werme, edit.), 91-98.
- Stein, J. (1973). *Isótopos radiactivos*. Ed. Alhambra, Madrid.