

MODELOS ACOPLADOS DE FLUJO MULTIFÁSICO, TRANSPORTE DE SOLUTOS Y REACCIONES QUÍMICAS EN BENTONITAS

Javier Samper, Ricardo Juncosa y Ana Vázquez

Escuela de Ingenieros de Caminos. Universidad de La Coruña. (E-mail: samper@iccp.udc.es, juncosa@iccp.udc.es)

RESUMEN. En el ámbito del almacenamiento de residuos radiactivos se han desarrollado sofisticados modelos de flujo multifásico no isoterma acoplados con el transporte de un sistema multicomponente de solutos reactivos. Se presenta el modelo conceptual y numérico de un ensayo de laboratorio realizado por CIEMAT (Fernández et al., 1998) en una celda termohidráulica (celda CT23) en la que una muestra cilíndrica de bentonita compactada inicialmente seca es hidratada y sometida a un fuerte gradiente térmico (3° C/cm). El modelo numérico reproduce de forma satisfactoria los valores medidos de temperatura, contenido de humedad, volumen de agua inyectado, concentraciones acuosas de los iones mayoritarios y de los cationes de cambio.

ABSTRACT. Sophisticated nonisothermal multiphase flow and multicomponent reactive solute transport models have been developed in the context of nuclear waste disposal. Here we present the conceptual and numerical model of a heating and hydration experiment performed by CIEMAT (Fernández et al., 1998) on a laboratory cell (cell CT23) in which an initially dry sample of compacted bentonite is hydrated under the influence of strong thermal gradient (3° C/cm). The numerical model is able to fit measured values of water uptake, final water content, concentrations of dissolved species and exchanged cations.

1.- Introducción

Dentro de los estudios que la Empresa Nacional de Residuos Radiactivos (ENRESA) está realizando para el almacenamiento definitivo de residuos radiactivos en una formación geológica poco permeable, destaca el Proyecto FEBEX (Huertas et al., 2000), un proyecto internacional financiado por la Unión Europea cuyos objetivos son la demostración de la viabilidad tecnológica del diseño del almacenamiento y el desarrollo de modelos numéricos acoplados del comportamiento térmico, mecánico, hidrodinámico y geoquímico de la barrera de bentonita que rodea los contenedores. El proyecto se compone de dos ensayos a gran escala, uno realizado in situ en el laboratorio subterráneo de Grimsel (Suiza) y otro en las instalaciones del CIEMAT en Madrid y toda una amplia gama de ensayos de laboratorio. En el marco del proyecto FEBEX se han desarrollado modelos numéricos para el estudio acoplado del flujo multifásico no isoterma y del transporte de solutos con interacciones geoquímicas y microbiológicas. La formulación matemática de estos

modelos ya fue presentada en las anteriores Jornadas de ZNS (Juncosa et al., 1999; Juncosa et al., 2001a). Esta formulación se ha implementado en el código FADES-CORE^{2D} (Juncosa et al., 2000) desarrollado por Juncosa (1999) a partir del acoplamiento de un código de flujo multifásico no isoterma y deformación de suelos FADES (Navarro, 1997) y otro de flujo y transporte reactivo multicomponente, CORE^{2D} (Samper et al., 2000). Las capacidades numéricas de FADES-CORE^{2D} se describen en Juncosa et al. (2001b). Aplicaciones del código para la predicción del comportamiento a largo plazo de los ensayos del proyecto FEBEX se recogen en Samper et al. (2001).

En este trabajo se presenta la aplicación del modelo a la modelización termohidrogeoquímica (THG) de un ensayo de laboratorio de hidratación y calentamiento llevado a cabo por CIEMAT. en una celda termohidráulica (celda CT23), en la que una muestra cilíndrica de bentonita compactada inicialmente seca es hidratada y sometida a un fuerte gradiente térmico (3 °C/cm). Primeramente se describen las principales características del ensayo. A continuación se describe el modelo conceptual THG que sirve de base para la construcción del modelo numérico con el que se han interpretado los resultados del ensayo.

2.- Descripción del ensayo

2.1.- Métodos y Materiales

Se trata de un ensayo de hidratación y calentamiento en el que una muestra cilíndrica de bentonita seca es sometida al efecto combinado de la hidratación por un extremo y de calentamiento por el otro. Los datos proporcionados por este tipo de ensayos permiten estudiar el flujo de agua y vapor en la arcilla, los procesos geoquímicos y de transporte de calor y de solutos, geoquímicos, la cementación, las posibles transformaciones químico-mineralógicas, así como las interacciones entre los procesos hidrodinámicos (H), térmicos (T) y geoquímicos(G).

La muestra de bentonita compactada está confinada en una celda de acero inoxidable de 15 cm de diámetro interno, de 22.2 cm de diámetro externo, de 22.4 cm de altura y de 3.5 cm de espesor de pared (Figura 1). En la base inferior de la celda existen dos entradas de agua conectadas a una piedra porosa por donde se inyecta agua destilada a una presión de 1 MPa mediante una bomba automática. El volumen total de agua introducido se mide mediante un equipo de medida electrónico de precisión del cambio de volumen (Fernández et al., 1998).

En la parte superior de la celda se introduce un sistema de calefacción electrónicamente regulado por un controlador de temperatura que mantiene constante la temperatura de calentamiento a 100°C. Las celdas tienen 12 orificios laterales a cuatro alturas diferentes donde se colocan 12 termopares (Figura 1). Los termopares están situados a diferentes radios, orientados hacia el eje de la celda, y separados (en una misma sección horizontal) 120°.

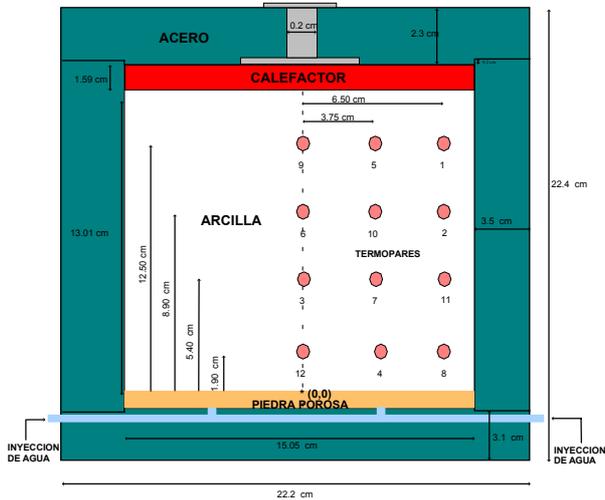


Figura 1. Celda utilizada por CIEMAT para los ensayos de hidratación (parte inferior) y calentamiento (parte superior) (Villar et. al., 1996).

2.2.- Condiciones experimentales

El ensayo consiste en someter a la muestra de arcilla compactada uniaxialmente a una densidad seca de 1.65 g/cm³ a un gradiente térmico fijando una temperatura de 100 °C en el extremo superior y simultáneamente inyectando agua destilada por la base inferior. Una vez finalizado el ensayo se extrae el cilindro y se secciona en cinco rodajas para obtener muestras en las que se determinan las siguientes características físico-químicas de la bentonita: distribución final de humedades, densidades, tamaño de poros, concentración de sales, composición química de las aguas intersticiales, cationes de cambio y composición química del extracto acuoso 1:4 (Cuevas et al., 1997).

En los laboratorios del CIEMAT se han realizado ensayos de termohidratación en diferentes celdas. Se ha modelizado la celda CT23 ya que se dispone de datos de concentraciones de las distintas especies químicas al final del ensayo. El ensayo modelizado se realizó en la celda CT23 que contenía la arcilla del proyecto FEBEX (Villar et. al., 1996; Huertas et al., 2000) cuya porosidad es 0.41. La humedad inicial de la muestra de arcilla fue del 11.23% en peso. Se hidrató y calentó durante 4394 horas.

3.- Modelo conceptual THG

3.1.- Modelo de flujo y calor

Los procesos de flujo multifásico que pueden ser relevantes en el ensayo de hidratación y calentamiento son:

a) Flujo advectivo de agua líquida, b) Flujo advectivo y difusivo de vapor, c) Flujo advectivo y difusivo de aire en fase gaseosa, d) Flujo conductivo de calor a través de las fases sólida, líquida y gaseosa, e) Flujo convectivo de calor en el líquido; y f) Flujo convectivo de calor en la fase gaseosa. Por otra parte, es necesario tener en cuenta los procesos de evaporación y condensación. Para ello, se resuelven por separado los balances de masas del agua líquida y del vapor.

Se supone que la celda es estanca al gas y que el gas puede fluir en el interior de la celda. El flujo de gas afecta a la distribución espacial de la presión de vapor y, por tanto, a la evaporación y la condensación. Para simplificar el modelo, se han supuesto las siguientes relaciones de equilibrio correspondientes a las leyes ideales que gobiernan las relaciones entre las distintas fases y componentes: 1) Equilibrio entre la fase líquida y la fase vapor (ecuación de Kelvin o ecuación psicrométrica), 2) Equilibrio térmico entre fases en cualquier punto, de forma que todas ellas se encuentran a la misma temperatura. Se supone que cualquier variación de la temperatura en una de las fases se disipa rápidamente, equilibrándose térmicamente el sistema de forma instantánea; 3) Equilibrio entre el aire en disolución y el aire de la fase gaseosa; 4) Equilibrio entre el aire disuelto y el líquido (Ley de Henry); y 5) Equilibrio entre el aire que forma parte del gas y el vapor (Ley de Dalton).

3.2.- Modelo de transporte de solutos

Los principales mecanismos de transporte de solutos son la advección y la difusión molecular. La dispersión mecánica es poco relevante ya que la bentonita ensayada fue previamente homogeneizada antes de su compactación. Su importancia relativa varía a lo largo del tiempo en respuesta a la variación del grado de saturación. Una vez que se satura la zona próxima al borde de hidratación, el transporte de solutos pasa de ser fundamentalmente advectivo a difusivo. Se ha considerado la posibilidad de que se produzca retrodifusión (difusión de solutos hacia atrás en sentido contrario al de la entrada de agua) modelizando también el transporte difusivo en la piedra porosa.

3.3.- Modelo geoquímico

Los procesos químicos considerados incluyen reacciones homogéneas como las de complejación y ácido-base, y heterogéneas (intercambio catiónico y disolución/precipitación). Las especies químicas primarias son: H⁺, Ca²⁺, Mg²⁺, Na⁺, K⁺, Cl⁻, SO₄²⁻, HCO₃⁻, y SiO_{2(aq)} mientras que las especies acuosas secundarias incluyen: OH⁻, MgCO_{3(aq)}, CaCO_{3(aq)}, CO_{2(aq)}, CaSO_{4(aq)}, CaCl⁺, MgCl⁺, CO₃²⁻, KSO₄⁻, NaCl_(aq), NaSO₄⁻, MgHCO₃⁺, NaHCO_{3(aq)}, MgSO_{4(aq)}, H₃SiO₄, y CaHCO₃⁺. También se incluyen reacciones heterogéneas de intercambio de los siguientes cationes: Mg²⁺, K⁺, Ca²⁺ y Na⁺, siendo este último el catión de referencia, y disolución-precipitación de calcita, anhidrita y calcedonia. Para modelizar este ensayo no se ha tenido en cuenta la deformabilidad del esqueleto

sólido.

4. - Modelo numérico

Los parámetros termo-hidrodinámicos del modelo se obtuvieron a partir de ensayos de laboratorio (Huertas et al., 2000). Los valores finalmente adoptados después de la calibración se encuentran dentro de los rangos de variación de los datos experimentales (véanse Tablas 1, 2 y 3). Se ha utilizado el mismo coeficiente de difusión en agua pura para todas las especies químicas primarias. Su valor es igual a $2 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$.

La conductividad térmica del medio, Λ , se calcula mediante la siguiente media ponderada lineal

$$\Lambda = \phi S_l \Lambda_l^w + \phi S_g (\Lambda_g^v + \Lambda_g^a) + H \phi S_l \Lambda_l^a + (1 - \phi) \Lambda_r$$

donde S_g y S_l son los grados de saturación del gas y del líquido, respectivamente, H es la expresión volumétrica de la ley de Henry (relación entre el volumen de aire disuelto y el volumen total del líquido), Λ_l^w es la conductividad térmica del agua en el líquido, Λ_l^a es la del aire disuelto, Λ_g^v es la de la del vapor en el gas, Λ_g^a es la del aire en el gas y Λ_r es la conductividad térmica de la matriz sólida.

Generalmente se suele suponer que $\Lambda_a = \Lambda_l^a = \Lambda_g^a$.

Tabla 1. Parámetros de flujo

PARÁMETROS DE FLUJO	
permeabilidad intrínseca del líquido	$K_{il} = 2 \cdot 10^{-21} \text{ m}^2$
permeabilidad relativa del líquido	$k_{rl} = S_l^3$
permeabilidad intrínseca del gas	$k_{ig} = 5 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2$
permeabilidad relativa gas	$k_{rl} = (1 - S_l)^3$
tortuosidad al vapor	$\tau_v = 0.5$
porosidad	$\phi = 0.41$
densidad seca	$\rho_d = 1.65 \text{ g/cm}^3$
Curva de retención (ψ = succión en kPa)	$S_l = \frac{(1 - \psi/1100000)^{1.1}}{[1 + (5 \cdot 10^{-5} \cdot \psi)^{0.82}]^{0.18}}$
viscosidad del líquido (T °K)	$\mu_l = 661.2 \cdot 10^{-3} \cdot (T - 229)^{-1.562}$
Viscosidad del gas	$\mu_g = 1.76 \cdot 10^{-5} \text{ kg/m s}$
densidad del líquido a 20° C	$\rho_l^0 = 998.2 \text{ kg/m}^3$
compresibilidad mecánica del agua	$c_w^p = 5 \cdot 10^{-7} \text{ kPa}^{-1}$
compresibilidad térmica del agua	$c_w^t = 2.1 \cdot 10^{-4} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$

Tabla 2. Parámetros térmicos.

PARÁMETROS TÉRMICOS	
calor específico agua	$c_w = 4202 \text{ J/kg }^\circ\text{C}$
calor específico aire	$c_a = 1000 \text{ J/kg }^\circ\text{C}$
calor específico vapor	$c_v = 1620 \text{ J/kg }^\circ\text{C}$
calor específico acero	$c_{ac} = 480 \text{ J/kg }^\circ\text{C}$
calor específico arcilla	$c_b = 835.5 \text{ J/kg }^\circ\text{C}$
entalpía de vaporización	$2.454 \cdot 10^6 \text{ J/kg}$
conductividad térmica agua	$\Lambda_w = 0.6 \text{ J/s m }^\circ\text{C}$
conductividad térmica aire	$\Lambda_a = 2.6 \cdot 10^{-2} \text{ J/s m }^\circ\text{C}$
conductividad térmica vapor	$\Lambda_v = 4.2 \cdot 10^{-2} \text{ J/s m }^\circ\text{C}$
conductividad térmica arcilla	$\Lambda_b = 1.23 \text{ J/s m }^\circ\text{C}$
conductividad térmica acero	$\Lambda_{ac} = 50.16 \cdot 10^{-2} \text{ J/s m }^\circ\text{C}$

El modelo considera la presencia en la bentonita de impurezas de calcita y calcedonia que se suponen en equilibrio con las aguas intersticiales. Además contempla la posibilidad de que pueda precipitar anhidrita en las zonas próximas al calentador. Para el intercambio catiónico se ha utilizado la convención de Gaines-Thomas (Appelo y Postma, 1993) con unas constantes de selectividad que se muestran en la Tabla 4.

Tabla 3. Parámetros de transporte.

PARÁMETROS DE TRANSPORTE	
coeficientes de difusión	$D_0(T) = D_0(T_0) \frac{T \mu_i(T_0)}{T_0 \mu_i(T)}$
Dispersividad longitud.	0.001 m
tortuosidad	$\tau = \frac{\theta_1^{7/5}}{\phi^2}$

Se ha utilizado un modelo unidimensional con el eje de la celda como eje de abscisas para la representación de los resultados. La calibración del modelo termohidráulico se ha realizado teniendo en cuenta que se conoce el volumen de agua inyectado (486 cm^3). El contenido gravimétrico inicial de agua es de 11.23%. Para ajustar los contenidos de agua al final del ensayo en las rodajas próximas al calentador se ha modificado las permeabilidades intrínsecas del líquido y del gas. En el modelo se calienta por la parte superior a una temperatura media de $75 \text{ }^\circ\text{C}$ correspondiente a la media de las temperaturas medidas en el calentador (condición de contorno en el extremo superior $75 \text{ }^\circ\text{C}$). Por el extremo inferior se introduce agua a una presión de 1000 kPa sin dejar salir gas. El gas se encuentra inicialmente a presión atmosférica. La temperatura inicial es de $20 \text{ }^\circ\text{C}$. Para calibrar el modelo térmico, en el extremo inferior se permite flujo de calor hacia el exterior, que se evalúa mediante la condición mixta

$$q_c = \alpha_T (T - T^*)$$

donde de $\alpha_T = 801.6 \text{ W/}^\circ\text{C}$.

Tabla 4. Coeficientes de selectividad de la bentonita FEBEX.

Reacción de intercambio	Constantes de selectividad
$Na^+ + 0.5Ca-X_2 = 0.5Ca^{2+} + Na-X$	0.36
$Na^+ + 0.5Mg-X_2 = 0.5Mg^{2+} + Na-X$	0.58
$Na^+ + K-X = K^+ + Na-X$	0.22
$Na^+ + H-X = H^+ + Na-X$	$2.7 \cdot 10^{-6}$

Por el extremo inferior de la celda se inyecta agua destilada con un pH de 7. En este borde se utiliza una condición de contorno impermeable al gas y de tipo Neumann para el transporte de solutos. El modelo considera la posibilidad de que los solutos puedan difundirse hacia atrás dentro de la piedra porosa (Figura 1). El contorno superior e la celda es impermeable al líquido y al gas.

Las concentraciones iniciales de las especies primarias se obtienen a partir de los análisis realizados por CIEMAT (Fernández et al., 1998) en muestras de bentonita saturada evaporando el agua inicial hasta un 11.23% en peso (véase Tabla 5). Las concentraciones de los cationes de cambio se muestran en la Tabla 6.

Se ha utilizado un modelo unidimensional con una malla de 116 elementos y 117 nudos de los cuales los últimos 10 elementos corresponden al calentador y los 16 primeros a la piedra porosa. En cada elemento se han introducido dos puntos de Gauss coincidentes con los nudos. Para la integración temporal se ha utilizado un esquema de Crank-Nicholson para el flujo y un esquema implícito para el transporte. El cálculo del intervalo de tiempo es automático. Para facilitar la representación de los resultados se han escogido 56 tiempos de observación en el modelo unidimensional en las 4394 horas que dura el ensayo.

Tabla 5. Concentraciones iniciales de las especies químicas primarias

Especie Primaria	Concentración (mol/kg)
H ⁺	$1.019 \cdot 10^{-8}$
Ca ²⁺	$1.012 \cdot 10^{-2}$
Mg ²⁺	$1.76 \cdot 10^{-2}$
Na ⁺	$7.52 \cdot 10^{-2}$
K ⁺	$1.288 \cdot 10^{-3}$
Cl ⁻	0.2366
SO ₄ ²⁻	$2.678 \cdot 10^{-2}$
HCO ₃ ⁻	$1.014 \cdot 10^{-3}$
SiO ₂ (aq)	$5.622 \cdot 10^{-4}$

Tabla 6. Concentraciones iniciales de cationes de cambio en la bentonita de la celda CT-23.

Catión	(meq/100g)
Na ⁺	27.00
K ⁺	2.00
Ca ²⁺	50.00
Mg ²⁺	32.00
H ⁺	2.00

5.- Resultados

5.1.- Humedad

En la Figura 2 se muestran las humedades finales en % en

peso del modelo comparadas con la media obtenida experimentalmente en cada rodaja. En dicho gráfico se representa en abscisas la longitud axial con el origen de coordenadas en la fuente de hidratación y el extremo opuesto en el calentador. En la Figura 3 se muestra la distribución de temperaturas al final del ensayo.

Se puede apreciar que la humedad disminuye en cerca del calentador al producirse evaporación. En la zona próxima al extremo de hidratación se alcanza el valor de saturación 1. El vapor formado en la zona próxima al calentador se transporta por difusión y advección a zonas más frías, de forma que se condensa en una zona intermedia de la celda. Por otra parte, a medida que el frente de saturación alcanza la zona más próxima al calentador, debido a la existencia de un gradiente hidráulico ocasionado por la entrada de agua, se produce nuevamente evaporación. En consecuencia se establece un ciclo del flujo de agua y vapor no estacionario.

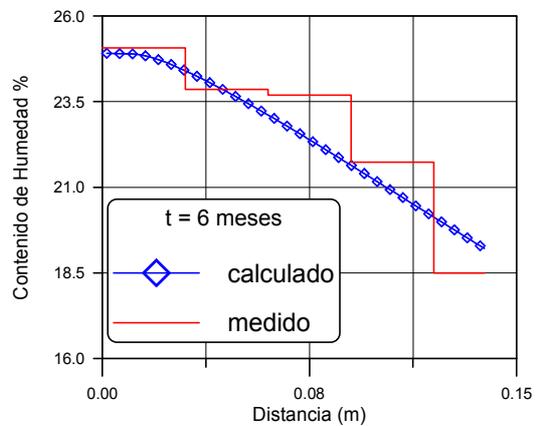


Figura 2. Distribución de humedad gravimétrica al final del ensayo.

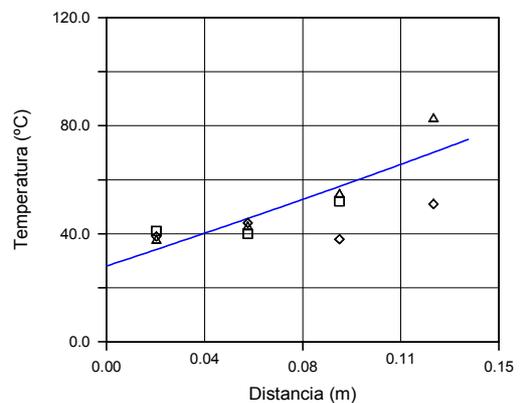


Figura 3. Distribución de temperaturas al final del ensayo en el modelo (línea continua) y valores medidos (símbolos). Los símbolos representan las medidas en cada uno de los termopares situados a distintas radiales, según se muestra en la Figura 1. Para una misma sección, los termopares situados cerca del eje de la celda muestran los valores más elevados de la temperatura.

Hay que hacer constar que los datos experimentales medidos después de enfriar y desmantelar la celda se han conseguido a partir del agua extraída por estrujamiento de las rodajas y considerando un sistema abierto, con posibilidad de que se produzcan cambios en las distintas fases minerales y en los complejos acuosos. Por ello, dichas medidas (realizadas a 20°C) fueron corregidas mediante el

código EQ3/6 considerando sistema abierto con el fin de cotejarlas con los valores obtenidos con el modelo que supone sistema cerrado con las condiciones de presión y temperatura al cabo de las 4394 horas.

5.2.- Cloruros

Los resultados proporcionados por el modelo muestran que las concentraciones de la mayoría de las especies acuosas aumentan varios órdenes de magnitud en las proximidades del calentador como consecuencia de la evaporación inicial del agua intersticial. Por otra parte, en las zonas próximas a la fuente de hidratación, se observa inicialmente un importante proceso de dilución como consecuencia de la entrada de agua, que se atenúa progresivamente con el tiempo (Figura 4). En la Figura 4 se muestran además los valores medidos de Cl⁻ al final del experimento. En la Figura 5 se muestran las evoluciones temporales de la especie conservativa Cl⁻ y de la humedad en el nudo de la malla más próximo al calentador. Se puede observar que la concentración aumenta a medida que se evapora el agua (disminución de la humedad) hasta el cabo de un mes en que aumenta el contenido de agua debido a la llegada del frente de saturación. El agua que llega transporta la especie cloruro por advección, lo que ocasiona que, al contrario de lo que cabría esperar, continúe aumentando la concentración del cloruro. Este aumento se produce hasta que se alcanza un gradiente de concentraciones tal que el transporte difusivo en sentido contrario al frente de saturación es mayor que el transporte advectivo. Como consecuencia, se produce la difusión hacia zonas más alejadas del calentador debido al gradiente de concentraciones.

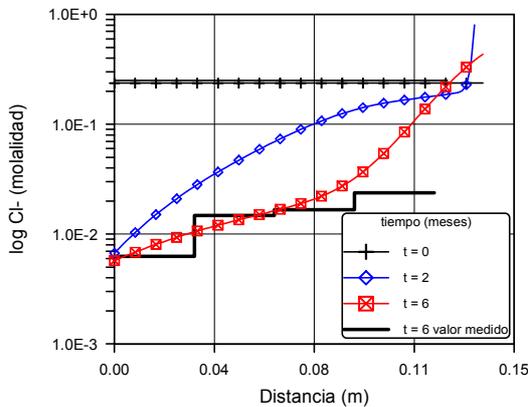


Figura 4. Distribución espacial de la especie Cl⁻ a distintos tiempos

5.3.- Cationes

Los resultados de la distribución espacial de los cationes muestran unas tendencias similares a las del cloruro: 1) un notable incremento de la concentración en las zonas próximas al calentador, 2) dilución en las zonas próximas a la fuente de hidratación debida a la entrada de agua, 3) una ligera dilución en la zona donde se produce la condensación del vapor en los primeros tiempos del ensayo (Figuras 6, 7 y 8). Estos cationes están además afectados por el intercambio con los cationes del complejo de cambio y por

la disolución de fases minerales.

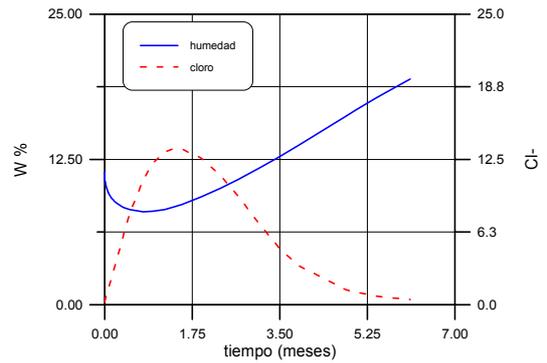


Figura 5. Evolución temporal de la especie Cl⁻ y de las humedades en el nudo próximo al calentador.

La entrada de agua produce la disolución de calcita y, en consecuencia, un aumento de la concentración de calcio en disolución que desplaza al sodio del intercambiador. Por otra parte, el sodio en disolución se equilibra con el complejo de cambio y, consecuentemente, tiene lugar una redistribución del contenido de los diferentes cationes entre las fases acuosa y sólida (bentonita), de forma que disminuye ligeramente el contenido de sodio en disolución, en tanto que aumenta la concentración de calcio y magnesio.

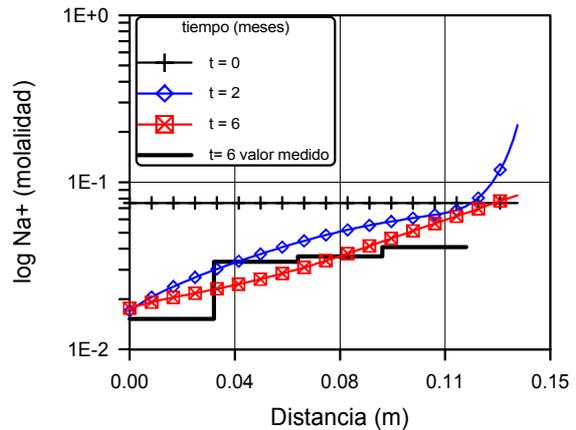


Figura 6. Distribución espacial de Na⁺ a distintos tiempos.

Como consecuencia de la entrada de agua tiene lugar la disolución de calcita en las zonas próximas a la fuente de hidratación. De este modo, a medida que transcurre el ensayo tiene lugar una mayor entrada de agua en la celda, de manera que el frente de disolución de calcita se desplaza hacia el calentador. Asimismo, en los primeros tiempos del ensayo la evaporación en la zona próxima al calentador provoca la precipitación de calcita. Por otra parte, el incremento de las concentraciones del catión de calcio y el anión de bicarbonato, debido al transporte de las mismas a lo largo de la celda, provoca que tenga lugar la precipitación de calcita en las zonas próximas a la fuente de hidratación.

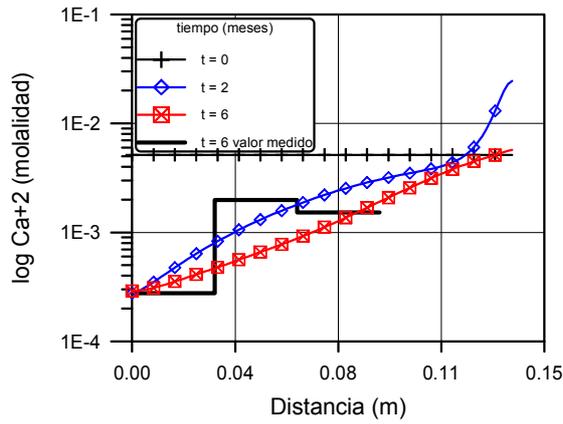


Figura 7. Distribución espacial de Ca²⁺ a distintos tiempos.

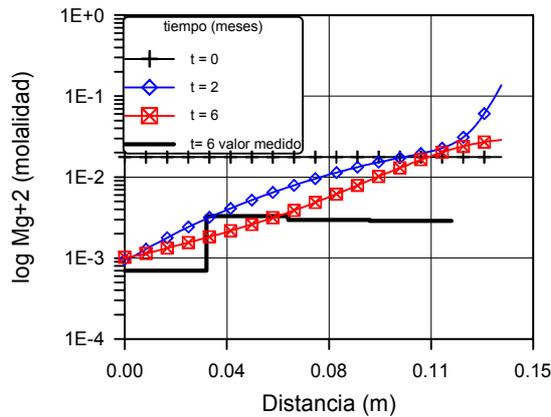
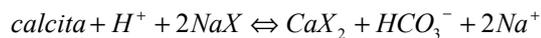
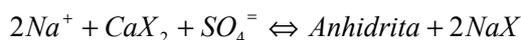


Figura 8. Distribución espacial de Mg²⁺ a distintos tiempos.

En la Figura 9 se muestra el contenido de calcio presente en posiciones de cambio en la bentonita durante el ensayo. Como consecuencia de la entrada de agua tiene lugar una importante disolución de calcita y aporte de calcio en las zonas próximas a la fuente de hidratación de manera que el calcio se incorpora a las posiciones de cambio de la bentonita, desalojando al sodio de acuerdo con:



Consecuentemente, el frente de incorporación de calcio a la bentonita avanza paralelamente al frente de disolución de calcita. En las zonas próximas al calentador, la precipitación de anhídrita en los primeros tiempos del ensayo como consecuencia de la evaporación inicial, provoca que la bentonita restituya el calcio perdido por el agua intersticial a través del intercambio Na/Ca, de manera que disminuye el contenido de calcio en la bentonita:



Sin embargo, a medida que el frente de hidratación llega a la zona cercana al calentador, tiene lugar la disolución de anhídrita, de manera que el calcio aportado se incorpora nuevamente a las posiciones de cambio de la bentonita.

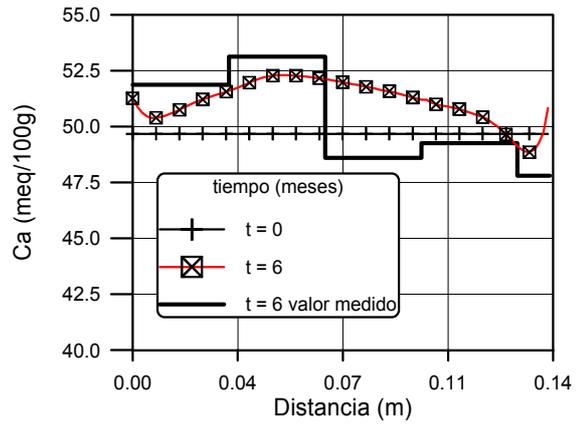


Figura 9. Distribución espacial del calcio en el intercambiador a distintos tiempos.

En la Figura 10 se muestra el contenido de sodio en el complejo de cambio. En la zona próxima a la fuente de hidratación el sodio es desalojado por el calcio proporcionado por la disolución de calcita. Cerca del calentador la precipitación de anhídrita en los primeros tiempos del ensayo provoca la liberación de calcio desde el intercambiador que es restituido por el sodio. Sin embargo, a medida que el frente de hidratación llega a la zona cercana al calentador, tiene lugar la disolución de anhídrita, de manera que el calcio se incorpora nuevamente a las posiciones de cambio de la bentonita, desalojando de las mismas al sodio.

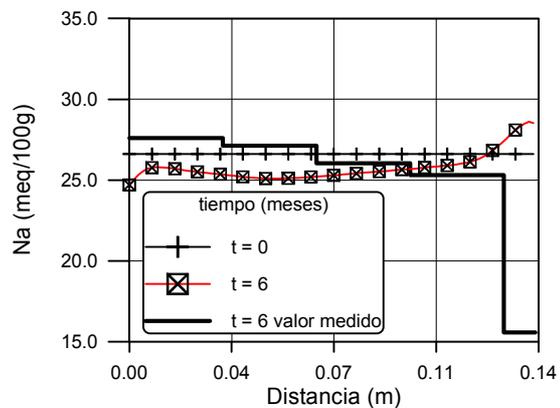


Figura 10. Distribución espacial del sodio en el intercambiador a distintos tiempos.

La Figura 11 muestra la distribución espacial del contenido de magnesio. En las zonas próximas a la fuente de hidratación tiene lugar la disolución de calcita, proporcionando un aporte de calcio que se incorpora a las posiciones de cambio de la bentonita, desalojando al magnesio. En las zonas próximas al calentador donde tiene lugar la precipitación de anhídrita en los primeros tiempos del ensayo, la bentonita libera calcio e incorpora magnesio a las posiciones de cambio (Figura 11). Sin embargo, a medida que el frente de hidratación llega a la zona cercana al calentador, tiene lugar la disolución de anhídrita, de manera que el calcio se incorpora nuevamente a las posiciones de cambio de la bentonita, desalojando de las mismas al magnesio.

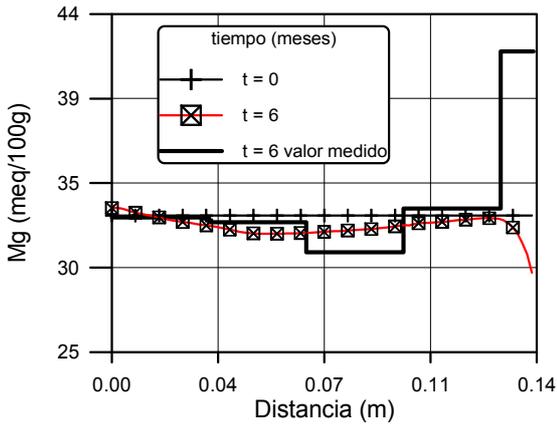


Figura 11. Distribución espacial del magnesio en el intercambiador a distintos tiempos.

5.4.- Bicarbonato

En la Figura 12 se muestra la distribución espacial del anión bicarbonato. Como consecuencia de la entrada de agua tiene lugar la disolución de calcita en las zonas próximas a la fuente de hidratación, proporcionando un incremento en la concentración de bicarbonato. Sin embargo, el producto de solubilidad de la calcita limita la concentración del bicarbonato en disolución, alcanzándose un máximo en las proximidades de la fuente de hidratación (Figura 12) que coincide espacialmente con el inicio de la precipitación de calcita en la celda para cada uno de los tiempos considerados.

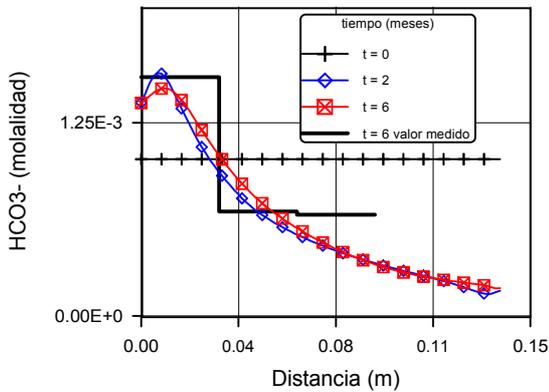


Figura 12. Distribución espacial de bicarbonato a distintos tiempos.

A medida que transcurre el ensayo y entra más agua en la celda el máximo del bicarbonato se desplaza hacia el calentador (Figura 12). Asimismo, los fenómenos de transporte incrementan la concentración de calcio a lo largo de la celda, de forma que la concentración de bicarbonato disminuye correlativamente, como consecuencia de la reacción de precipitación de calcita.

5.5.- pH

En la Figura 13 se muestra la distribución espacial del pH. Se observa que el pH aumenta respecto al valor inicial debido a la entrada de agua y la disolución de calcita en las

zonas próximas a la fuente de hidratación. En los primeros tiempos del ensayo se observa un descenso progresivo del pH en la zona próxima a la fuente de hidratación (Figura 13) como consecuencia de una menor disolución de calcita y posterior precipitación de la misma, hasta alcanzar un valor constante e inferior al pH inicial debido al efecto del incremento de la temperatura.

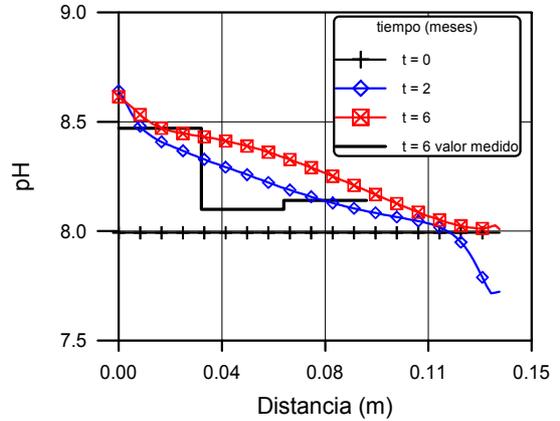


Figura 13. Distribución espacial del pH a distintos tiempos.

5.6.- Sulfato

El comportamiento de la anhidrita es similar al que presenta la calcita. La precipitación tiene lugar en las proximidades del calentador como consecuencia de la evaporación en los primeros tiempos del ensayo, así como del acusado incremento de temperatura en esa zona. Posteriormente, con la llegada del frente de hidratación, tiene lugar la disolución de anhidrita.

La Figura 14 muestra el efecto de la precipitación de anhidrita en la distribución espacial del anión sulfato. En las proximidades de la fuente de hidratación se muestra el efecto de dilución provocado por la entrada de agua, especialmente importante en los primeros tiempos del ensayo. En las proximidades del calentador se observa la disminución brusca de la concentración de sulfato como consecuencia de la precipitación de anhidrita que es especialmente importante en los primeros tiempos del ensayo. Sin embargo, a medida que llega el frente de hidratación la anhidrita se disuelve y, por tanto, aumenta la concentración de sulfato en los últimos tiempos del experimento.

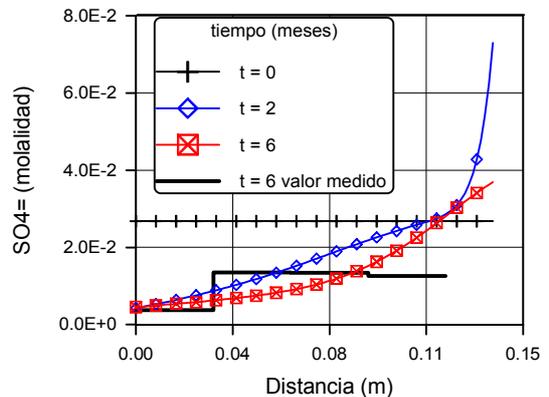


Figura 14. Distribución espacial del anión sulfato a distintos tiempos.

6.- Conclusiones

El modelo acoplado termo-hidrodinámico-geoquímico de la celda de hidratación y calentamiento proporciona resultados excelentes. El modelo reproduce adecuadamente las entradas de agua, los contenidos de humedad al final del ensayo y las concentraciones de las especies disueltas e intercambiadas.

Agradecimientos. Para la realización de los trabajos realizados se ha contado con financiación de ENRESA y de la Unión Europea (Proyectos FI4W-CT95-0006 y FIKW-CT-2000-00016.). En la elaboración de los modelos hidrogeoquímicos han colaborado Luis Montenegro, Pablo Carretero y Jorge Delgado. Los ensayos de calentamiento e hidratación de la celda CT23 y los resultados experimentales han sido realizados por CIEMAT. Por ello se agradece al CIEMAT y en concreto a Pedro Rivas, Ana M^a Fernández y M. Victoria Villar la colaboración prestada. Una parte de los trabajos también ha sido realizado dentro del Proyecto CICYT HID98-282

7.- Referencias

- Appelo, C.A.J., y D. Postma. 1993 *Geochemistry, Groundwater and Pollution*. Balkema. Amsterdam.
- Cuevas, J., Villar, M.V., Fernández, A.M., Gómez, P. y Martín, P.L. 1997. Pore waters extracted from compacted bentonite subjected to simultaneous heating and hydration, *App. Geoch.*, 12, 473-481.
- Fernández A. M., M. V. Villar, J. Cuevas, P. L. Martín y P. Rivas. 1998. Celda termohidráulica: Ensayos CT22 y CT23. Distribución y balance de masas en arcillas compactadas sometidas a procesos de hidratación y calentamiento y a la extracción de agua intersticial. Informe Técnico FEBEX. 70-IMA-L-0-41. CIEMAT.
- Huertas, F, J.L., Fuentes-Cantillana, F. Jullien, P. Rivas, J. Linares, P. Fariña, M. Ghoreychi, N. Jockwer, W. Kickmaier, M.A. Martínez, J. Samper, E. Alonso, F.J. Elorza, 2000. Full-scale engineered barriers experiment for a deep geological repository for high-level radioactive waste in crystalline host rock (FEBEX project). Informe EUR 19147 EN. Bruselas. 362 pp
- Juncosa, R. 1999. Modelos de flujo multifásico no isoterma y de transporte reactivo multicomponente en medios porosos. Tesis Doctoral. Universidad Politécnica de Madrid. 346 pp.
- Juncosa, R., Samper, J., Navarro, V., Delgado, J., y P. Carretero. 1999. Modelos de flujo multifásico no isoterma con reacciones químicas. En: *Estudios de la Zona no Saturada del Suelo*. Eds. R. Muñoz Carpena, A. Ritter, C. Tascón. ICIA. Tenerife, pp. 169-174.
- Juncosa, R., V. Navarro y J. Samper. 2000. Manual del usuario de FADES-CORE (Versión 0.0a), E.T.S.I. Caminos, Canales y Puertos. Universidad de La Coruña. Informe FEBEX 70-ULC-H-5-006. 150 pp.
- Juncosa, R., Samper, J. y Navarro V. 2001a. Modelos de flujo multifásico no isoterma y de transporte reactivo multicomponente en medios porosos. Formulación físico-matemática. Enviado a Ingeniería del Agua.
- Juncosa, R., Navarro V., Samper J. y Delgado J. 2001b. Formulación numérica en elementos finitos de problemas de flujo multifásico no isoterma y transporte de solutos en medios porosos deformables. Artículo aceptado en *La Revista Internacional de Métodos Numéricos para el Cálculo y Diseño en Ingeniería*.
- Navarro, V. 1997. Modelo de comportamiento mecánico e hidráulico de suelos no saturados en condiciones no isotermas. Tesis Doctoral. Universidad Politécnica de Cataluña. 329 pp.
- Samper, J., Juncosa, R., Delgado, J. & Montenegro, L. 2000. CORE^{2D}. A code for non-isothermal water flow and reactive solute transport. Users Manual version 2. Publ. Técnica 06/2000. ENRESA.
- Samper, J., Juncosa, R., Navarro V., Delgado, J. & Montenegro, L. 2001. Coupled thermo-hydro-geochemical models of engineered barrier systems: the Febex project. Scientific Basis for Nuclear Waste Disposal, MRS, Sydney. pp. 1-13. (en prensa).
- Samper, J., Juncosa, R., Molinero, J., Montenegro, L., Vázquez, A. 2001. Update of the thermo-hydro-geochemical model of the mock-up test. Informe técnico FEBEX 70-ULC-L-5-022.
- Villar, M. V., J. Cuevas, y A. M. Fernández. 1996. Caracterización geoquímica de bentonita compactada. Efectos producidos por flujo termohidráulico, Informe Técnico 54A15/2/96, CIEMAT, 70-IMA-L-0-12.