

MODELOS DE FLUJO MULTIFÁSICO NO ISOTERMO Y TRANSPORTE REACTIVO MULTICOMPONENTE EN MEDIOS POROSOS:

2 APLICACIÓN A BENTONITAS COMPACTADAS.

Ricardo Juncosa, Javier Samper, Ana Vázquez y Luis Montenegro

Resumen:

En el primero de esta serie de dos artículos se presentó la formulación físico-matemática de los procesos de flujo multifásico no isoterma acoplados con el transporte de calor para un sistema multicomponente de solutos reactivos. Esta formulación matemática se ha resuelto numéricamente mediante un sofisticado código, FADES-CORE® (Juncosa et al., 2001b) desarrollado por Juncosa y Navarro (Juncosa, 1999) a partir del acoplamiento de un código termohidromecánico FADES® (Navarro, 1997) y un código de transporte de solutos reactivos CORE2D® (Samper et al., 2000). En este artículo se presenta el modelo acoplado termo-hidro-geoquímico de un ensayo de calentamiento e hidratación realizado en el marco del proyecto FEBEX (Huertas et al., 2000) con el fin de caracterizar la idoneidad de bentonitas compactadas como material de sellado y contención en un almacenamiento de residuos radioactivos en una formación granítica. Se presenta el modelo conceptual y numérico de un ensayo de laboratorio realizado por CIEMAT en una celda termohidráulica (celda CT23), en la que una muestra cilíndrica de bentonita inicialmente seca es hidratada y sometida a un fuerte gradiente térmico (3 °C/cm) durante 4394 horas. El modelo numérico reproduce satisfactoriamente los valores medidos de la temperatura, el contenido de humedad, el volumen de agua inyectado, las concentraciones de los iones mayoritarios (Cl^- , HCO_3^- , SO_4^{2-} , Na^+ , Ca^{2+} , K^+ y Mg^{2+}) y las concentraciones de los cationes de cambio.

Palabras clave: Flujo Multifásico, Transporte Reactivo, Modelo termo-hidro-geoquímico, bentonita, modelo numérico.

INTRODUCCIÓN

Dentro de los estudios que la Empresa Nacional de Residuos Radioactivos (ENRESA) está realizando para el almacenamiento definitivo de residuos radioactivos en una formación geológica poco permeable, destaca el Proyecto FEBEX, un proyecto internacional financiado por la Unión Europea en el que se pretende demostrar la viabilidad tecnológica del diseño del almacenamiento y desarrollar 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 es-

te trabajo se presenta la aplicación de la metodología presentada en el primer artículo (Juncosa et al., 2001a) a la modelización termohidrogeoquímica (THG) de un ensayo de laboratorio de hidratación y calentamiento llevado a cabo por CIEMAT. 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. El modelo numérico ha sido resuelto mediante el código FADES-CORE®, desarrollado por Juncosa y Navarro (Juncosa, 1999) a partir del acoplamiento de los códigos FADES®, (Navarro, 1997) y CORE®, (Samper et al., 2000) y cuyas capacidades numéricas se describen en Juncosa et al. (2001b). Los resultados del modelo reproducen las tendencias de los valores medidos.

Departamento de Tecnología de la Construcción. E. T. S. de Ingenieros de Caminos. Universidad de La Coruña.
Campus de Elviña s/n. 15192 La Coruña. España. Tel.: 981-167000. ext: 1431
juncosa@iccp.udc.es ; samper@iccp.udc.es, vazquez@iccp.udc.es, montenegro@iccp.udc.es

Artículo recibido el 4 de octubre de 2001, recibido en forma revisada el 18 de junio de 2002 y aceptado para su publicación el 18 de septiembre de 2002. Pueden ser remitidas discusiones sobre el artículo hasta seis meses después de la publicación del mismo siguiendo lo indicado en las "Instrucciones para autores". En el caso de ser aceptadas, éstas serán publicadas conjuntamente con la respuesta de los autores.

DESCRIPCIÓN DEL ENSAYO

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 de transporte de calor y de solutos, los procesos geoquímicos, las posibles transformaciones químico-mineralógicas, y las interacciones entre los procesos hidrodinámicos (H), térmicos (T) y geoquímicos (G).

Métodos y Materiales

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 106 Pa 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., 1998b).

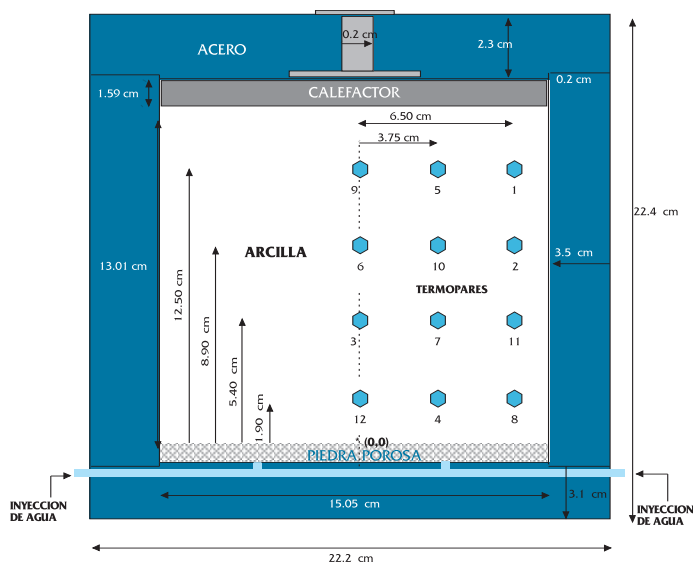


Figura 1. Representación esquemática de la celda utilizada por CIEMAT para los ensayos de hidratación (parte inferior) y calentamiento (parte superior) (Villar et. al., 1997).

En la parte superior de la celda se introduce un sistema de calefacción electrónicamente regulado por un controlador de temperatura. Dicho sistema está compuesto por una resistencia, un termopar de control de temperatura de calefacción y un controlador de temperatura. La potencia instantánea

máxima en los calentadores se varía entre 40 y 70 W, dependiendo del tipo de calentador para mantener constante la temperatura de calentamiento a 100 °C (373 K). El sistema de calefacción consiste en un calentador plano de 15 cm de diámetro y 1.59 cm de espesor. Las celdas tienen 12 orificios laterales a cuatro alturas diferentes donde se colocan 12 termopares. En la Figura 1 se muestra un esquema de la celda. Los termopares están situados a diferentes radios, orientados hacia el eje de la celda, y separados (en una misma sección horizontal) 120°. Las mediciones de temperatura en la masa de arcilla son registradas a diferentes tiempos mediante un sistema de adquisición de datos.

Condiciones experimentales

El ensayo consiste en someter a la muestra de arcilla compactada uniaxialmente a una densidad seca de 1650 kg/m³ a un fuerte gradiente térmico fijando una temperatura de 100 °C (373 K) 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 (Villar et al., 1997).

CIEMAT ha realizado ensayos de termohidratación en diferentes celdas de las cuales se ha seleccionado la celda CT23 para la modelización, debido a que se disponía de las concentraciones experimentales de las distintas especies químicas obtenidas al final del ensayo. El ensayo modelizado se realizó en la celda CT23 que contenía la arcilla del proyecto FEBEX (Villar et. al., 1997; 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.

MODELO CONCEPTUAL THG

Modelo de flujo y calor

El agua se mueve a través del medio poroso en forma líquida en respuesta al gradiente hidráulico, y en forma de vapor, tanto en respuesta al gradiente de humedad como de forma convectiva asociada al flujo de aire. El flujo de vapor suele ser varios órdenes de magnitud inferior al flujo de agua

líquida y por ello suele despreciarse. Sin embargo, en las zonas próximas al calentador el flujo de vapor puede suponer una parte considerable del flujo total del agua.

Los flujos de vapor y de agua líquida interactúan mediante la evaporación y la condensación. Cuando un frente líquido invade una zona muy seca, parte del líquido se evapora. Por el contrario, parte del vapor de agua se puede condensar en respuesta a un descenso de la temperatura o de la presión del líquido.

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

- Flujo advectivo de agua líquida.
- Flujo advectivo y difusivo de vapor.
- Flujo advectivo y difusivo de aire en fase gaseosa.
- Flujo conductivo de calor a través de las tres fases (sólida, líquida y gaseosa).
- Flujo de calor asociado al flujo del líquido.
- Flujo de calor asociado al flujo de 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.

Se han supuesto las siguientes relaciones de equilibrio, correspondientes a las leyes ideales que gobiernan las relaciones entre las distintas fases y componentes:

- Equilibrio entre la fase líquida y la fase vapor (ecuación de Kelvin o ecuación psicrométrica).
- Equilibrio térmico entre fases en cualquier punto, de forma que todas ellas se encuentran a la misma temperatura. Cualquier variación de la temperatura en una de las fases se disipa rápidamente equilibrándose térmicamente el sistema de forma instantánea.
- Equilibrio entre el aire en disolución y el aire de la fase gaseosa.
- Equilibrio entre el aire disuelto y el líquido (Ley de Henry).
- Equilibrio entre el aire que forma parte del gas y el vapor (Ley de Dalton).

Modelo de transporte de solutos

Los principales mecanismos de transporte de solutos en la bentonita 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. La importancia relativa de estos procesos 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 ser 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.

Modelo geoquímico

Los procesos químicos considerados incluyen reacciones homogéneas como las de formación de complejos acuosos y ácido-base, y heterogéneas (intercambio catiónico y disolución/precipitación). Las especies químicas primarias son: H^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ , K^+ , Cl^- , SO_4^{2-} , HCO_3^- y $SiO_2(aq)$ mientras que las especies secundarias incluyen: OH^- , $MgCO_3(aq)$, $CaCO_3(aq)$, $CO_2(aq)$, $CaSO_4(aq)$, $CaCl^+$, $MgCl^+$, CO_3^{2-} , KSO_4^- , $NaCl(aq)$, $NaSO_4^-$, $MgHCO_3^+$, $NaHCO_3(aq)$, $MgSO_4(aq)$, $H_3SiO_4^-$ y $CaHCO_3^+$. También se incluyen reacciones heterogéneas de intercambio de los siguientes cationes: Mg^{2+} , K^+ , Ca^{2+} , H^+ 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. El comportamiento termo-hidro-mecánico de la bentonita FEBEX es analizado por otros grupos del Proyecto FEBEX (Huertas et al., 2000).

MODELO NUMÉRICO

Parámetros

Los parámetros que se han tomado para realizar el modelo están dentro de los márgenes de los datos experimentales (véanse Tablas 1, 2 y 3). El coeficiente de difusión en agua pura utilizado en el modelo de todas las especies químicas primarias es el mismo e igual al valor medio de los coeficientes de difusión de las diferentes especies, es decir, $2.10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$.

Tabla 1. Parámetros de flujo.

Permeabilidad intrínseca del líquido:	$K_{il} = 2 \cdot 10^{-21} \text{ m}^2$
Permeabilidad relativa del líquido:	$k_{rl} = S_1^3$
Permeabilidad intrínseca del gas:	$K_{ig} = 5 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2$
Permeabilidad relativa del gas:	$k_{rl} = (1 - S_1)^3$
Tortuosidad al vapor:	$\tau_v = 0.5$
Porosidad:	$\phi = 0.41$
Densidad seca:	
Curva de retención:	$S_l = (1 - \psi/1100)^{1.1} / [1 + (0.05 \cdot \psi)^{1/0.82}]^{0.18}$
	$\rho_d = 1650 \text{ kg/m}^3$
Viscosidad del líquido:	ψ : Succión en Pa.
	$\mu_l = 661.2 \cdot 10^{-3} (T - 229)^{-1.562}$
Viscosidad del gas:	T: Temperatura en K
Densidad del líquido a 293 K:	$\rho_l^0 = 998.2 \text{ kg/m}^3$
Compresibilidad mecánica del agua:	$c_w^p = 5 \cdot 10^{-10} \text{ Pa}^{-1}$
Compresibilidad térmica del agua:	$c_w^t = 2.1 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$

Tabla 2. Parámetros térmicos.

Calor específico del agua:	$c_w = 4202 \text{ J/kg K}$
Calor específico del aire:	$c_a = 1000 \text{ J/kg K}$
Calor específico del vapor:	$c_v = 1620 \text{ J/kg K}$
Calor específico del acero:	$c_{ac} = 480 \text{ J/kg K}$
Calor específico de la arcilla:	$c_b = 835.5 \text{ J/kg K}$
Entalpía de vaporización:	$h_0 = 2.454 \cdot 10^6 \text{ J/kg}$
Conductividad térmica del agua:	$\Lambda_w = 0.6 \text{ J/s m K}$
Conductividad térmica del aire:	$\Lambda_a = 2.6 \cdot 10^{-2} \text{ J/s m K}$
Conductividad térmica del vapor:	$\Lambda_v = 4.2 \cdot 10^{-2} \text{ J/s m K}$
Conductividad térmica de la arcilla:	$\Lambda_b = 1.23 \text{ J/s m K}$
Conductividad térmica del acero:	$\Lambda_{ac} = 50.16 \cdot 10^{-2} \text{ J/s m K}$

Tabla 3. Parámetros de transporte.

Coefficientes de difusión:	$D_0(T) = D_0(T_0) \frac{T}{T_0} \frac{\mu_1(T_0)}{\mu_1(T)}$
Dispersividad longitudinal:	0.001 m
Tortuosidad:	$\tau = \frac{\theta_1^{7/3}}{\phi^2}$; θ_1 : Contenido en humedad

En el modelo la conductividad térmica del medio se calcula linealmente con una media ponderada

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

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 , Λ_g^v , Λ_l^a , Λ_g^a (con $\Lambda_a = \Lambda_l^a = \Lambda_g^a$) y Λ_r son las conductividades térmicas del agua, del vapor, del aire y de la matriz sólida, respectivamente.

Tabla 4. Constantes de selectividad de la bentonita FEBEX.

REACCIÓN	CONSTANTES DE SELECTIVIDAD
$\text{Na}^+ + 0.5\text{Ca} - \text{X}_2 \Leftrightarrow 0.5\text{Ca}^{2+} + \text{Na} - \text{X}$	0.36
$\text{Na}^+ + 0.5\text{Mg} - \text{X}_2 \Leftrightarrow 0.5\text{Mg}^{2+} + \text{Na} - \text{X}$	0.58
$\text{Na}^+ + \text{K} - \text{X} \Leftrightarrow \text{K}^+ + \text{Na} - \text{X}$	0.22
$\text{Na}^+ + \text{H} - \text{X} \Leftrightarrow \text{H}^+ + \text{Na} - \text{X}$	$2.7 \cdot 10^{-6}$

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. Las constantes de selectividad para el intercambio catiónico según el modelo de Gaines-Thomas se muestran en la Tabla 4.

Condiciones iniciales y de contorno

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 cm³). El contenido gravimétrico inicial de agua es de 11.23%. Se calibraron las permeabilidades intrínsecas del líquido y del gas para ajustar los contenidos de agua al final del ensayo en las rodajas próximas al calentador.

En el modelo se calienta por la parte superior a una temperatura media de 75 °C (348 K) correspondiente a la media de las temperaturas medidas en el calentador (condición de contorno en el extremo superior 75°C (348 K)). Por el extremo inferior se introduce agua a una presión de 10⁶ Pa sin dejar salir gas. El gas se encuentra inicialmente a presión atmosférica. La temperatura inicial es de 20 °C (293 K). 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 $\alpha_T = 801.6 \text{ W/K}$ y T^* es la temperatura exterior (20 °C ó 293 K).

Por el extremo inferior se inyecta agua destilada. Se utiliza una condición de contorno de transporte de solutos de tipo Neumann con concentraciones casi nulas para todos los solutos y un pH de 7. En este contorno no se permite la salida del gas, pero sí de los solutos. El contorno superior 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., 1998a) 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.

Tabla 5. Concentraciones iniciales de las especies químicas primarias.

ESPECIE PRIMARIA	MOLALIDAD
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)	$5.622 \cdot 10^{-4}$

La malla de elementos finitos del modelo unidimensional contiene 116 elementos y 117 nudos. 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-Nicolson 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 6. Concentraciones de cationes de cambio en la bentonita de la celda CT-23.

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

INTERPRETACIÓN DE LA CELDA TERMOHIDRÁULICA CT23

Modelo termohidráulico en 1-D

En este ensayo únicamente se conoce el volumen total de agua en la celda al final del mismo. 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 en abscisas se representa la longitud axial donde en el origen de coordenadas está la fuente de hidratación y en el extremo opuesto el calentador. En la Figura 3 se representa la evolución temporal del volumen de agua de entrada y en la Figura 4 la distribución de temperaturas al final del ensayo.

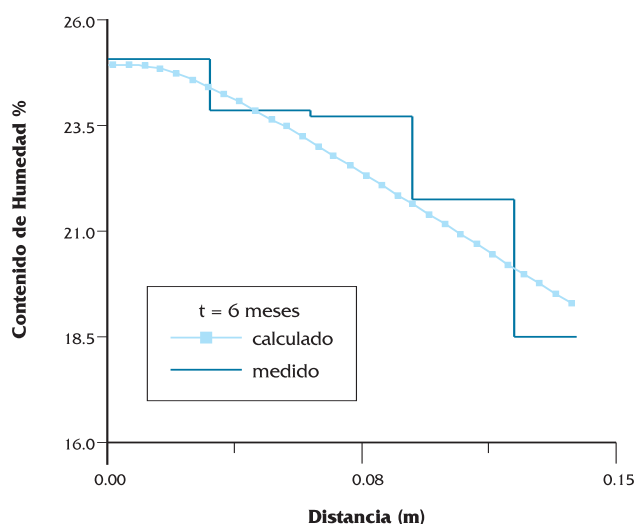


Figura 2. Valores calculados (símbolos) y medidos (líneas) del contenido de humedad gravimétrica al final del ensayo.

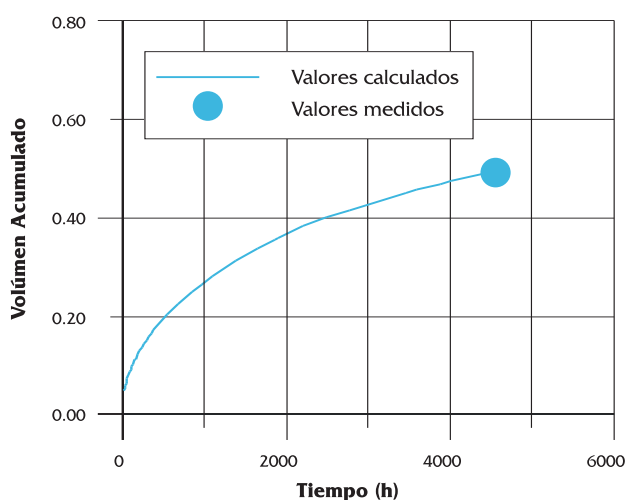


Figura 3. Entrada de agua durante el ensayo.

En las figuras adjuntas se puede apreciar que en el extremo donde se representa el calentador la humedad disminuye al producirse evaporación y en la zona próxima al extremo de hidratación la humedad de la rodaja correspondiente 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 tal manera que se condensa (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.

Resultados del modelo de transporte

En los gráficos de distribución espacial se muestra la concentración de las especies a diferentes tiempos, a fin de interpretar los procesos químicos que tienen lugar en el transcurso del ensayo. 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 han tenido que ser corregidas con el fin de cotejarlas con los valores obtenidos con el modelo, el cual supone el sistema cerrado con las condiciones de presión y temperatura al cabo de las 4394 horas.

Transporte conservativo

Los resultados proporcionados por el modelo muestran que las concentraciones 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 5). En la Figura 6 se muestran las evoluciones temporales de la especie química conservativa Cl^- y de la humedad en el nudo de la malla más próximo al calentador. En dicha figura se puede observar que la concentración aumenta a medida que se evapora el agua (disminución de la humedad), pero, llega un instante que ya no disminuye el contenido de agua y comienza a aumentar debido a que el frente de saturación ha alcanzado dicha zona y llega más agua de la que se evapora. El agua que llega transporta la es-

pecie 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. En la Figura 5 se muestran además los valores medidos de Cl^- al final del experimento.

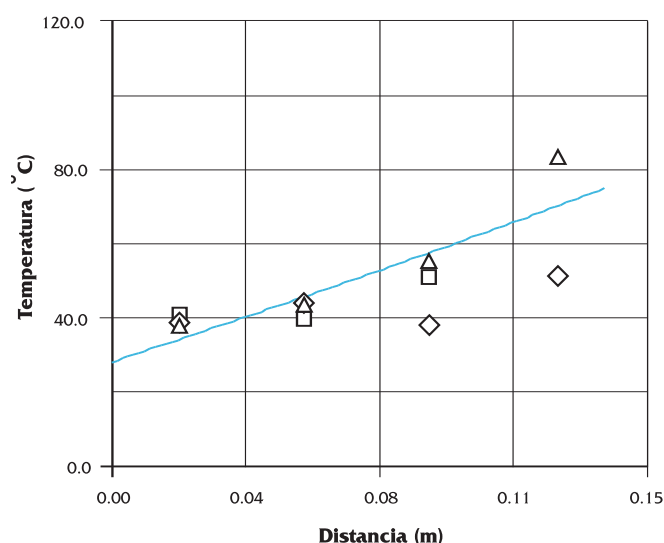


Figura 4. Distribución de temperaturas al final del ensayo en el modelo (línea continua) y valores medidos (símbolos).

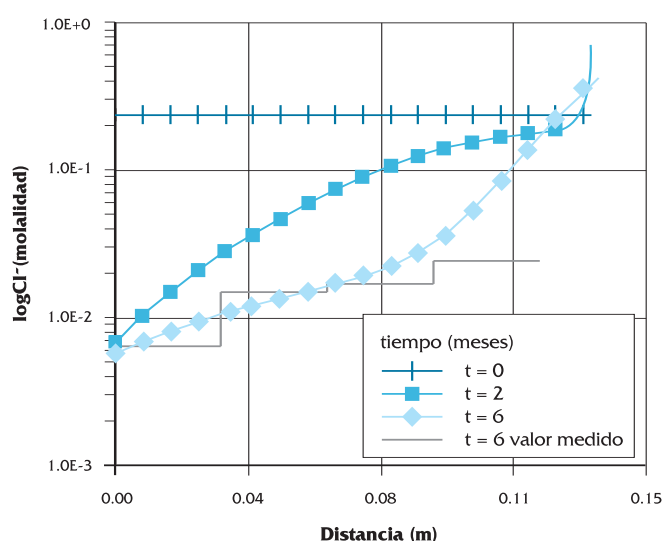


Figura 5. Distribución espacial de la especie Cl^- a distintos tiempos.

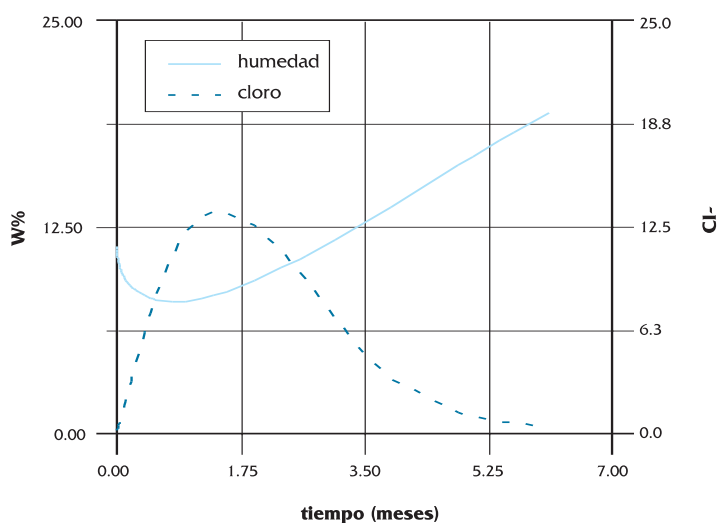


Figura 6. Evolución temporal de la especie Cl^- y de las humedades en el nodo próximo al calentador.

En la Figura 7 se ha representado la distribución espacial de la especie Cl^- en los tiempos en los cuales aún no ha llegado el frente de saturación a la zona próxima del calentador. Se puede apreciar cómo la concentración aumenta en la zona donde existe evaporación y disminuye en la zona adyacente donde se produce la condensación y en el extremo por donde se está hidratando.

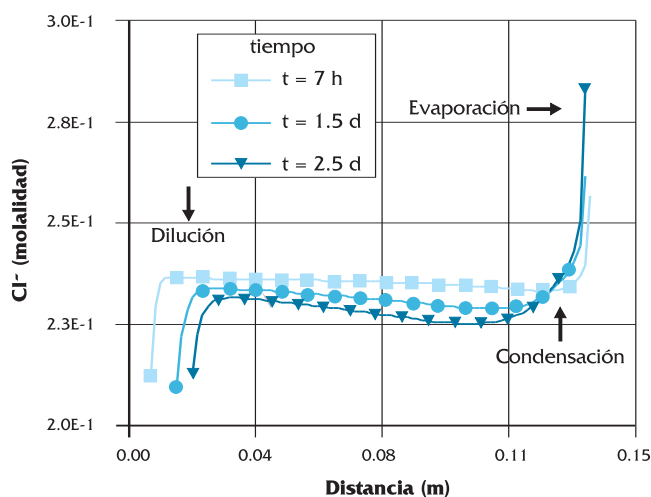


Figura 7. Distribución espacial de la especie Cl^- en tiempos iniciales.

Transporte reactivo

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 di-

lución en la zona donde se produce la condensación del vapor en los primeros tiempos del ensayo (Figuras 8, 9, 10 y 11). Estos cationes están además afectados por el intercambio con los cationes del complejo de cambio y por la disolución de fases minerales.

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.

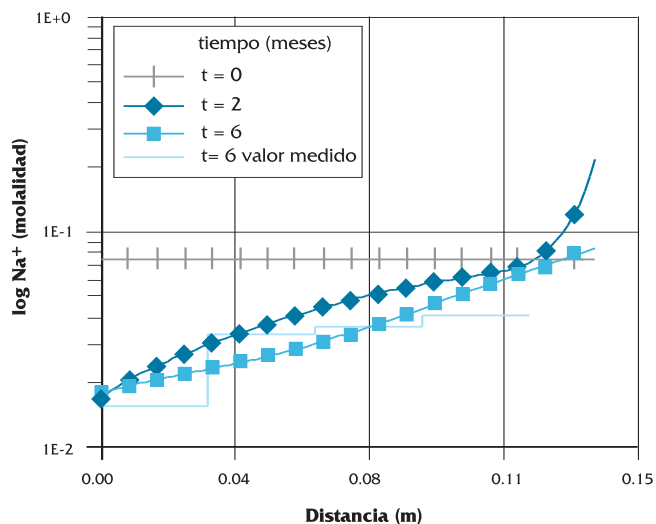


Figura 8. Distribución espacial de Na^+ a distintos tiempos.

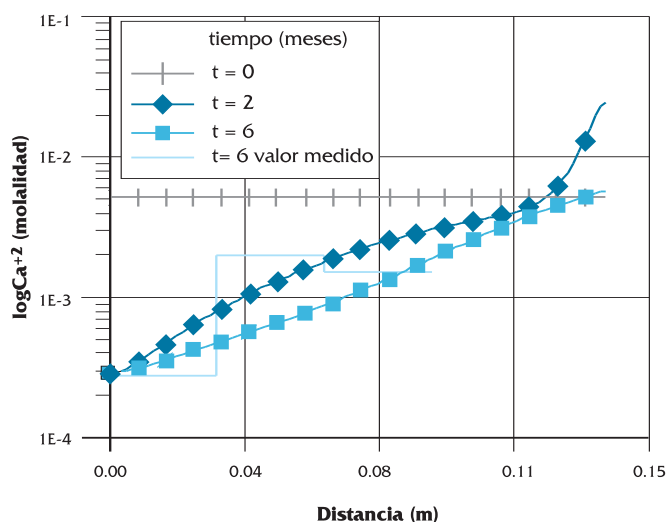


Figura 9. Distribución espacial de Ca^{+2} a distintos tiempos.

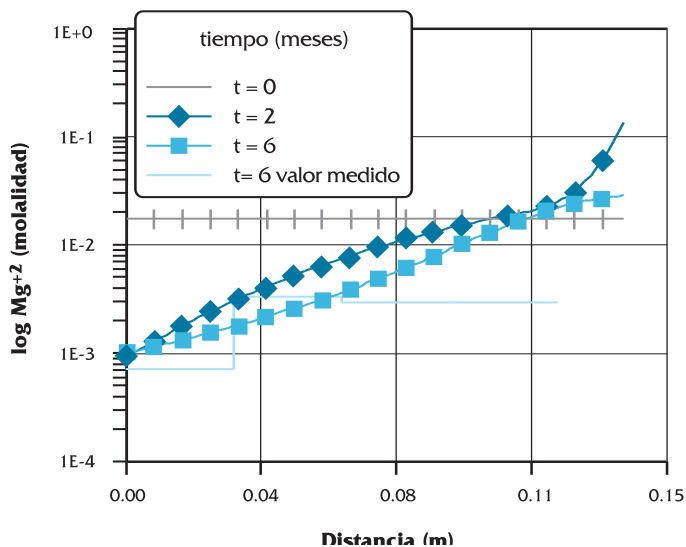


Figura 10. Distribución espacial de Mg^{+2} a distintos tiempos.

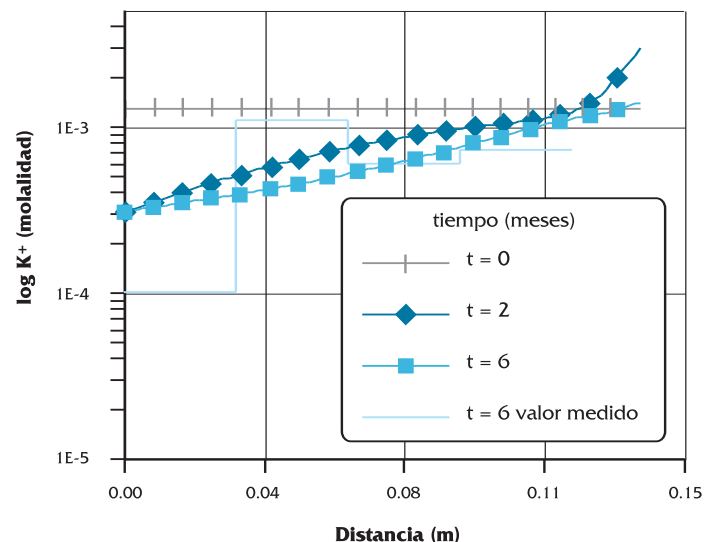


Figura 11. Distribución espacial de K^+ a distintos tiempos.

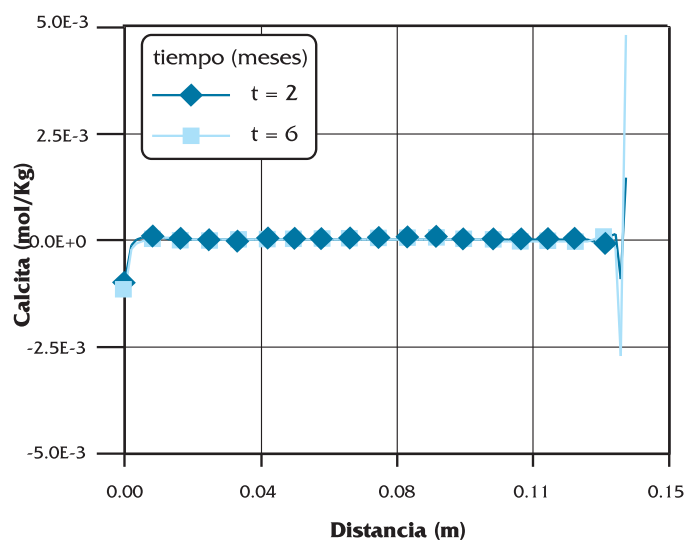


Figura 12. Distribución espacial de la calcita a diferentes tiempos.

Como consecuencia de la entrada de agua tiene lugar la disolución de calcita en las zonas próximas a la fuente de hidratación (Figura 12). 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 tiene lugar la precipitación de calcita como consecuencia de la evaporación en la zona próxima al calentador. 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.

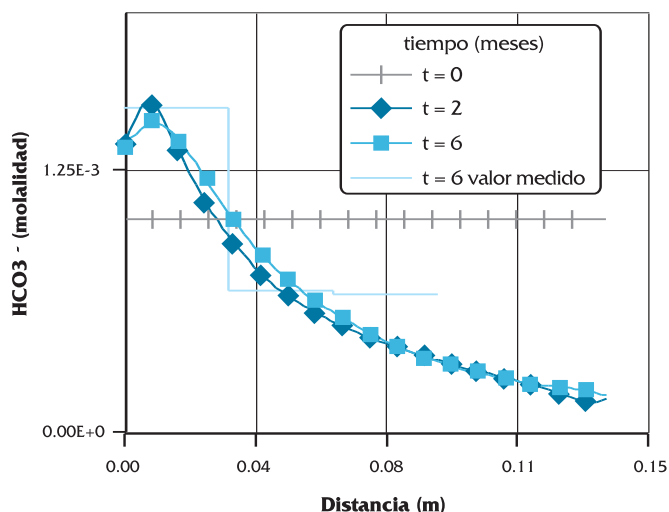


Figura 13. Distribución espacial de bicarbonato a distintos tiempo.

En la Figura 13 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 13) que coincide espacialmente con el inicio de la precipitación de calcita en la celda para cada uno de los tiempos considerados (figura 12). A medida que transcurre el ensayo y entra más agua en la celda el máximo del bicarbonato se desplaza hacia el calentador (Figura 13). 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.

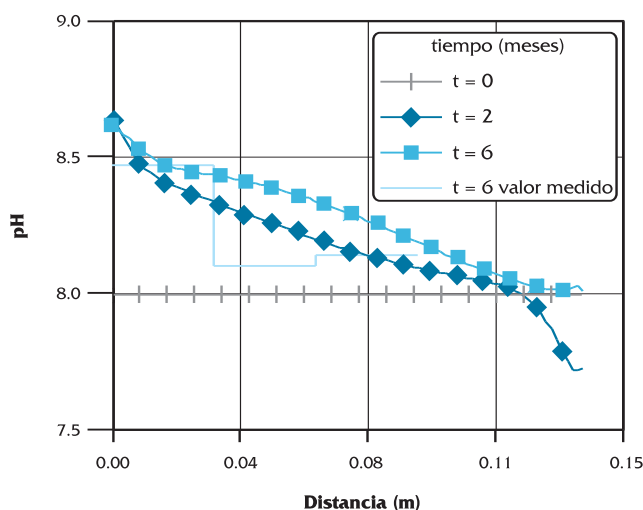


Figura 14. Distribución espacial del pH a distintos tiempos.

En la Figura 14 se muestra la distribución espacial del pH. Como consecuencia de la entrada de agua y la disolución de calcita en las zonas próximas a la fuente de hidratación el pH aumenta en relación al valor inicial. Para los primeros tiempos del ensayo se observa un descenso progresivo del pH en la zona próxima a la fuente de hidratación (Figura 14), 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.

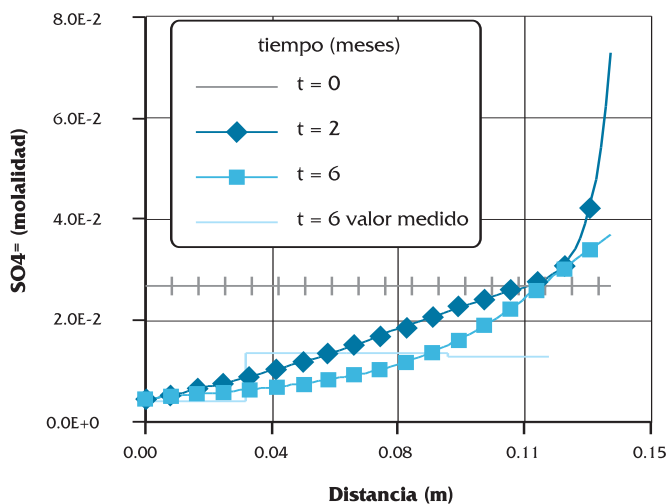


Figura 15. Distribución espacial del anión sulfato a distintos tiempos.

La Figura 15 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 impor-

tante 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.

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.

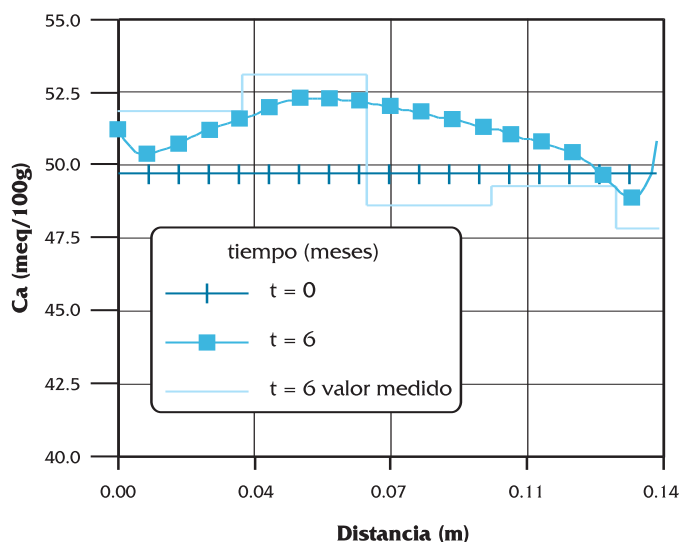
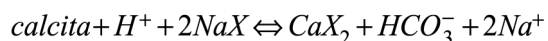


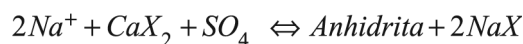
Figura 16. Distribución espacial del calcio en el intercambiador a distintos tiempos.

En la Figura 16 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 proporcionado 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 anhidrita en los primeros tiempos del ensayo como consecuen-

cia 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 anhidrita, de manera que el calcio aportado se incorpora nuevamente a las posiciones de cambio de la bentonita.

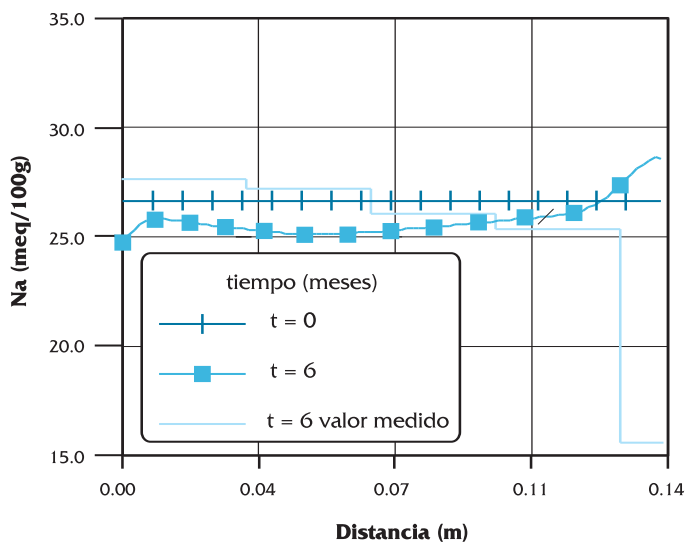


Figura 17. Distribución espacial del sodio en el intercambiador a distintos tiempos.

En la Figura 17 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 anhidrita en los primeros tiempos del ensayo provoca la liberación de calcio 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 anhidrita, de manera que el calcio se incorpora nuevamente a las posiciones de cambio de la bentonita, desalojando de las mismas al sodio.

Las Figuras 18 y 19 muestran la distribución espacial del contenido de magnesio y potasio en la bentonita, respectivamente. Asimismo, 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 también magnesio y potasio. En las zonas próximas al calentador, tiene lugar la precipitación de anhidrita en los primeros tiempos del ensayo, liberando la bentonita parte del

calcio contenido e incorporando también magnesio y potasio a las posiciones de cambio. Sin embargo, a medida que el frente de hidratación llega a la zona cercana al calentador, tiene lugar la disolución de anhidrita, de manera que el calcio se incorpora nuevamente a las posiciones de cambio de la bentonita, desalojando de las mismas al magnesio y potasio.

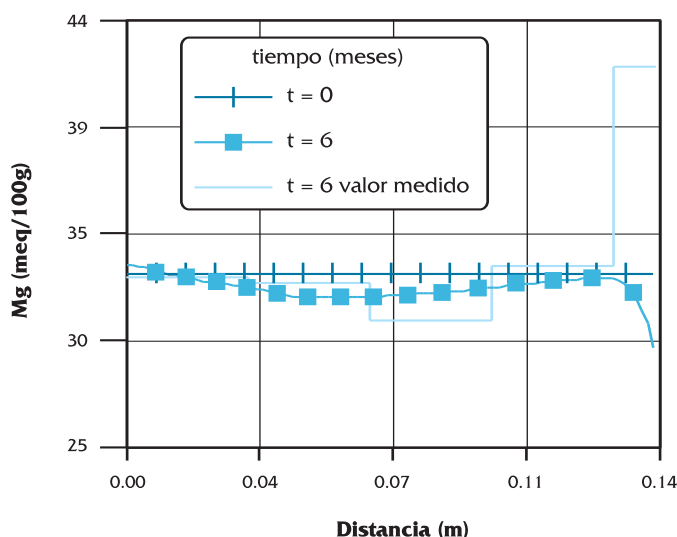


Figura 18. Distribución espacial del magnesio en el intercambiador a distintos tiempos.

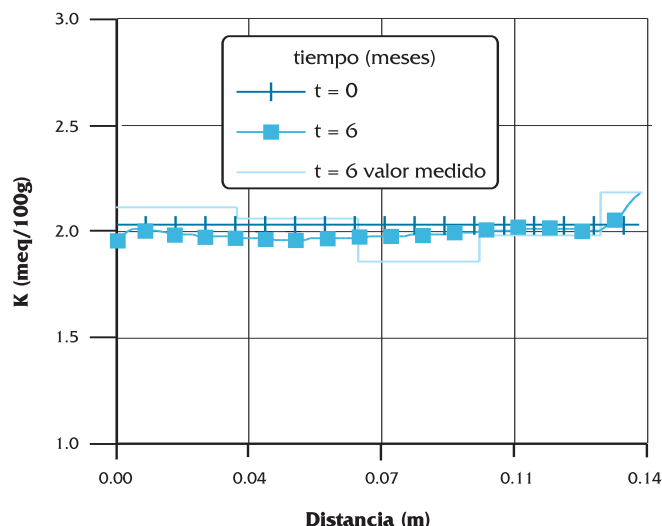


Figura 19. Distribución espacial del potasio en el intercambiador a distintos tiempos.

CONCLUSIONES

En el primer artículo de esta serie de dos se presentó el modelo numérico termo-hidrodinámico con transporte reactivo que se ha implementado en

el código FADES-CORE®, mostrando los diferentes acoplamientos existentes entre flujo multifásico, transporte de solutos y reacciones químicas. En este segundo artículo se describe el modelo numérico termo-hidro-geoquímico que se ha aplicado para la simulación del ensayo de hidratación y calentamiento sobre una muestra de bentonita inicialmente seca sometida a hidratación por un extremo y a un fuerte gradiente térmico por el otro. El modelo numérico reproduce satisfactoriamente los valores medidos de la temperatura, el contenido de humedad, el volumen de agua inyectado, las concentraciones de los iones mayoritarios (Cl^- , HCO_3^- , SO_4^{2-} , Na^+ , Ca^{2+} , K^+ y Mg^{2+}) y las concentraciones de los cationes de cambio.

Hay que hacer constar la importancia que tienen los procesos de evaporación y condensación producidos en el ensayo de la celda sobre la distribución final de las distintas especie químicas disueltas, cationes de cambio y fases minerales. Por otra parte, el papel que juega el intercambiador como regulador en los contenidos de los cationes en disolución es importante para calibrar las distribuciones al final del ensayo de los mismos.

Para cotejar los resultados experimentales medidos con los aportados por el modelo se han tenido en cuenta las condiciones experimentales de desmantelamiento de la celda con el propósito de reproducir lo más fielmente posible el modelo del ensayo.

AGRADECIMIENTOS

Este trabajo se ha desarrollado dentro del Proyecto FEBEX financiado por ENRESA a través de un Convenio Marco con la Universidad de La Coruña y la Fundación de Ingeniería Civil de Galicia (Proyecto FEBEX, código 703231). El conjunto del Proyecto forma parte de un Proyecto financiado por la Comisión Europea (Proyecto F14W-CT95-006 del Programa de Fisión Nuclear). Una parte de los trabajos también ha sido realizado dentro del Proyecto CICYT HID98-282. Los ensayos de calentamiento e hidratación de la celda CT23 y los resultados experimentales conseguidos han sido realizados por CIEMAT. Por ello hay que agradecer a CIEMAT y en concreto a Pedro Rivas y Ana M^a Fernández la colaboración prestada. Agradecemos a Jordi Delgado su labor de revisión de las primeras versiones de este artículo.

LISTA DE SIMBOLOS

TÉRMINOS GRIEGOS

α_T	flujo de calor por unidad de medio y por °C
ϕ	porosidad
μ_l	viscosidad dinámica del líquido
μ_g	viscosidad dinámica del gas
θ_l	contenido de agua por unidad de medio
ρ_d	densidad seca
ρ_1^0	densidad del líquido a la temperatura de referencia T_0
τ	tortuosidad
τ_v	tortuosidad del vapor
ψ	succión
Λ	conductividad térmica media
Λ_f^w	conductividad térmica del agua
Λ_g^v	conductividad térmica del vapor
Λ_1^a	conductividad térmica del aire en la fase líquida
Λ_g^a	conductividad térmica del aire en la fase gas
Λ_a	conductividad térmica del aire
Λ_r	conductividad térmica de la matriz sólida
Λ_w	conductividad térmica del agua
Λ_b	conductividad térmica de la bentonita
Λ_{ac}	conductividad térmica del acero
Λ_v	conductividad térmica del vapor

TÉRMINOS LATINOS

c_w	calor específico del agua
c_a	calor específico del aire
c_{ac}	calor específico del acero
c_b	calor específico de la bentonita
c_v	calor específico del vapor
c_w^p	compresibilidad mecánica del agua
c_w^t	compresibilidad térmica del agua
$D_0(T)$	coeficiente de difusión molecular en agua a la temperatura T
h_0	calor latente de vaporización
H	expresión volumétrica de la ley de Henry
k_{rg}	permeabilidad relativa del gas
k_{rl}	permeabilidad relativa del líquido
K_{ig}	permeabilidad intrínseca del gas
K_{il}	permeabilidad intrínseca del líquido
q_c	flujo de contorno
S_l	grado de saturación del líquido
S_g	grado de saturación del gas
T	temperatura
T^*	temperatura de referencia

- Fernández A. M., Carretero, P., Cuevas, J., Delgado, J., Rivas, P., Samper, J. (1998a), Estudio del agua intersticial de la arcilla FEBEX. Informe Técnico Proyecto FEBEX. (70-IMA-L-0-44). CIEMAT-Universidad de La Coruña.
- Fernández A. M., Villar, M. V., Cuevas, J., Martín, P.L., Rivas, P. (1998b), 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., Fuentes-Cantillana, J.L., Jullien, F., Rivas, P., Linares, J., Fariña, P., Ghoreychi, M., Jockwer, N., Kickmaier, W., Martínez, M.A., Samper, J., Alonso, E.E., Elorza, F.J. (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 isotermino y de transporte reactivo multicomponente en medios porosos. Tesis Doctoral. Universidad Politécnica de Madrid. 346 pp.
- Juncosa, R., Samper, J., Navarro, V. y Delgado, J., (2001a), Modelos de flujo multifásico no isotermino y de transporte reactivo multicomponente en medios porosos. Formulación físico-matemática. Artículo enviado a Ingeniería del agua. (Aceptado).
- Juncosa, R., Samper, J., Navarro, V., Delgado, J., (2001b), Formulación numérica en elementos finitos de problemas de flujo multifásico no isotermino y transporte de solutos en medios porosos deformables. Artículo enviado a La Revista de Métodos Numéricos Internacionales. (Aceptado)
- 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, F.J., Juncosa, R., Delgado, J., Montenegro, L. (2000) CORE2D,, A code for nonisothermal water flow and reactive solute transport. Users manual Version 2, Publicación Técnica de ENRESA 6/2000, 125 pp.
- Villar, M. V., Cuevas, J., Martín, P.L., Campos, R., Fernández, A.M. (1997), Caracterización geoquímica de bentonita compactada: efectos producidos por flujo termohidráulico. Informe 70-IMA-M-0-2.

REFERENCIAS