

Estudios mineralógicos y litogeoquímicos de El Berrocal

The El Berrocal mineralogical and lithogeochemical studies

L. Pérez del Villar (*), B. De la Cruz (*), J. Pardillo (*), J.S. Cózar (*), M. Pelayo (*), C. Marín (*), P. Rivas (*), M.T. Crespo (**), M. P. Galán (**), E. Reyes (***), E. Caballero (***), A. Delgado (***), y R. Núñez (***)

(*) Caracterización hidrogeoquímica, IMA, Ciemat, Avda. Complutense Nº 22, 28040 Madrid.

(**) Metrología, TECNOLOGÍA, Ciemat, Avda Complutense Nº 22, 28040 Madrid.

(***) Estación Experimental del Zaidín (CSIC). Prof. Albareda 1, 18008 GRANADA

ABSTRACT

The different materials existing in the El Berrocal pluton are characterized from a mineralogical, chemical and geochemical point of view. The influence of the alteration processes on the migration/retention of U, Th and other radionuclides is analyzed and the analogies of the hydrothermal alteration processes to those of a high level radioactive waste repository are established.

Key words: *El Berrocal pluton, migration/retention of radionuclides, mineralogy, lithogeochemistry, natural analogue.*

*Geogaceta, 20 (7) (1996), 1622-1625
ISSN: 0213683X*

Introducción

A comienzos de los años 90, se hizo patente la necesidad de estudiar los procesos de migración-retención de los radionucleidos bajo condiciones reales y en formaciones geológicas susceptibles de alojar un almacenamiento de residuos radiactivos de alta actividad (ARRAA). Con este objetivo global se realiza el Proyecto de El Berrocal.

El plutón de El Berrocal está situado en la parte central de la zona Centro-Ibérica (Julivert *et al.*, 1972), próximo al contacto entre la cuenca terciaria del río Tajo y la Sierra de Gredos. Este plutón está formado principalmente por la facies granítica denominada El Berrocal, la cual constituye la roca huésped de un dique de cuarzo mineralizado por uranio (DQMU), el cual fué explotado hace 30 años. El conjunto formado por la roca huésped granítica, por el DQMU y otros rellenos fisurales constituyen el denominado sistema granito de El Berrocal/DQMU o la Estación Experimental de El Berrocal.

Los objetivos de este estudio litogeoquímico son:

i) Caracterización mineralógica y geoquímica del sistema y establecimiento del modelo de evolución litogeoquímica.

ii) Determinación de la distribución mineralógica y geoquímica actual del U y Th y de las condiciones físico-químicas y procesos responsables de esta distribución.

iii) Establecimiento de las analogías entre los procesos, actuales y pasados, de migración-retención del U con los que pueden originarse en un ARRAA, tanto en el campo próximo como

lejano.

iv) Caracterización mineralógica y geoquímica de los rellenos fisurales, agentes principales de los procesos de interacción agua-roca.

Estación experimental de El Berrocal

En el sistema formado por la roca huésped y el DQMU se han diferenciado los siguientes materiales (Fig. 1): 1) granito de referencia (GR), 2) granito hidrotermalmente alterado (GHA), 3) GHA afectado por meteorización, 4) GR meteorizado, 5) DQMU y arcillas asociadas 6) otros rellenos fisurales.

Granito de referencia (GR)

El término "granito de referencia" define al granito menos alterado del sistema, ya que sólo está afectado por una alteración deutérica y/o postmagmática incipiente. Dado que este granito es homogéneo tanto mineralógica como químicamente hasta una profundidad de al menos 609 m, se ha tomado como la roca de referencia en todo este estudio.

Desde el punto de vista textural, el GR es holocristalino, hipidiomorfo de grano medio y, a veces, porfírico. Mineralógicamente, se clasifica como un cuarzo-granito de feldspatos alcalinos con dos micas, muy evolucionado y con una compleja asociación de minerales accesorios (Tabla 1). Entre éstos, los más importantes para los objetivos de este trabajo son: uraninita, torita-auerlita, monacita, xenotima, circón y anatasa (Pérez del Villar *et al.*, 1995a).

Desde el punto de vista geoquímico, el GR

es peraluminico e hipocálcico y rico en SiO₂ y P, pudiéndose clasificar como "fértil" de acuerdo con su contenido en U y la relación U/Th = 2.53 (Pérez del Villar *et al.*, 1992). Aproximadamente el 63% del U total está como uraninita y un 17.5% es fácilmente lixiviable. Por ello, el GR de El Berrocal se considera como una fuente primaria y permanente de U desde su intrusión. En el caso del Th no es así debido al carácter resistente de los minerales portadores de Th y de las características geoquímicas de este elemento.

Los primeros procesos de removilización/precipitación de radionucleidos en el GR se originaron durante la alteración deutérica y/o postmagmática, la cual aunque incipiente, es muy constante en (Pérez del Villar *et al.* 1995 b y c). Las alteraciones más importantes en relación con el U, Th y tierras raras (TR) son: la desestabilización parcial del apatito, uraninita, monacita y xenotima y la neoformación de fluorita. El U procedente de la uraninita migró a través de microfracturas como complejos fluorados de UO₂²⁺, precipitándose como silicofosfatos o arseniatos de U (Fig. 2A). Este U probablemente representa el total del definido como fácilmente lixiviable, por tanto el 80% del U del granito habría estado como uraninita.

La desestabilización de la uraninita implica condiciones oxidantes, las cuales pueden producirse por la presencia de F en los fluidos magmáticos residuales. Este hecho puede estar avalado por la presencia constante de fluorita secundaria (Finch, 1993). Por otra parte, algunas transformaciones minerales podrían indicar condiciones ligeramente ácidas.

De acuerdo con los estudios microtermomé-

tricos realizados por Cathelineau and Le Jarry (1993), la movilización y retención del U en el GR se habría llevado a cabo en un intervalo de temperatura entre 350 y 315°C y a una presión entre 410 y 900 bars. Las relaciones isotópicas del U y Th indican siempre equilibrio secular, esto es, no se detectan procesos recientes.

Granito hidrotermalmente alterado (GHA)

El GHA está bien representado a ambos lados del DQMU, en especial en la zona N. Sin embargo, es en esta zona donde este tipo de granito está más afectado por la percolación de las aguas meteóricas.

El GHA presenta características texto-estructurales similares al GR, si bien están sujetas a modificaciones debidas a los procesos de tectonización e hidrotermales que afectan a la mayoría de los minerales esenciales y accesorios. Mientras más próximo se sitúe el granito a las fracturas y mientras más desarrolladas sean éstas, más intensos serán los procesos de tectonización e hidrotermales (Pérez del Villar *et al.*, 1995 a).

La alteración hidrotermal se manifiesta por la sericitización generalizada de los feldespatos y por episodios de carbonatación de tipo ankerítico y de cloritización. En relación a los minerales de U, Th, TR y de Zr, este proceso queda patente por: la disolución y precipitación de apatito; la desestabilización total de uraninita y fluorita y desestabilización parcial de monacita, xenotima y circón (Fig. 2B). Consecuentemente, se produce la movilización como complejos carbonatados y la precipitación como silicofosfatos de uranilo (Fig. 2C), silicatos de Th-TR-Zr y la neoformación de carbonatos de Ca-Mg-Mn. Este es el segundo proceso hidrotermal interviene notablemente en la redistribución del U, Th y TR de acuerdo con las relaciones mineralógicas y texturales observadas.

Desde un aspecto geoquímico, estas transformaciones han tenido lugar con Si^{4+} , Al^{3+} , Mn^{2+} , Ti^{4+} , P^{5+} y S^{-2} prácticamente constantes, aumento de Mg^{2+} , Ca^{2+} , K^+ , C_{min}^{4+} , C_{org}^{4+} y OH^- y disminución de Fe^{2+} , Na^+ y O^{2-} . El grado de oxidación es superior al del GR, aunque el Fe total permanece constante.

Las transformaciones minerales observadas sugieren que el proceso se originó a 250°C (Cathelineau and Le Jarry, 1993), bajo condiciones ácidas o ligeramente ácidas y de baja salinidad, que progresivamente se hicieron más alcalinas y reductoras, como indica la neoformación de carbonatos ricos en Fe^{2+} y Mn^{2+} . Sin embargo, los datos de isótopos estables indican que la sericita neoformada se originó a 100°C y que los carbonatos ankeríticos entre 100 y 35°C. Por ello, puede interpretarse que el GHA es el resultado de tres procesos hidrotermales, solapados entre sí, o de un sólo proceso con una cola termal muy prolongada.

Los procesos hidrotermales de alta tempera-

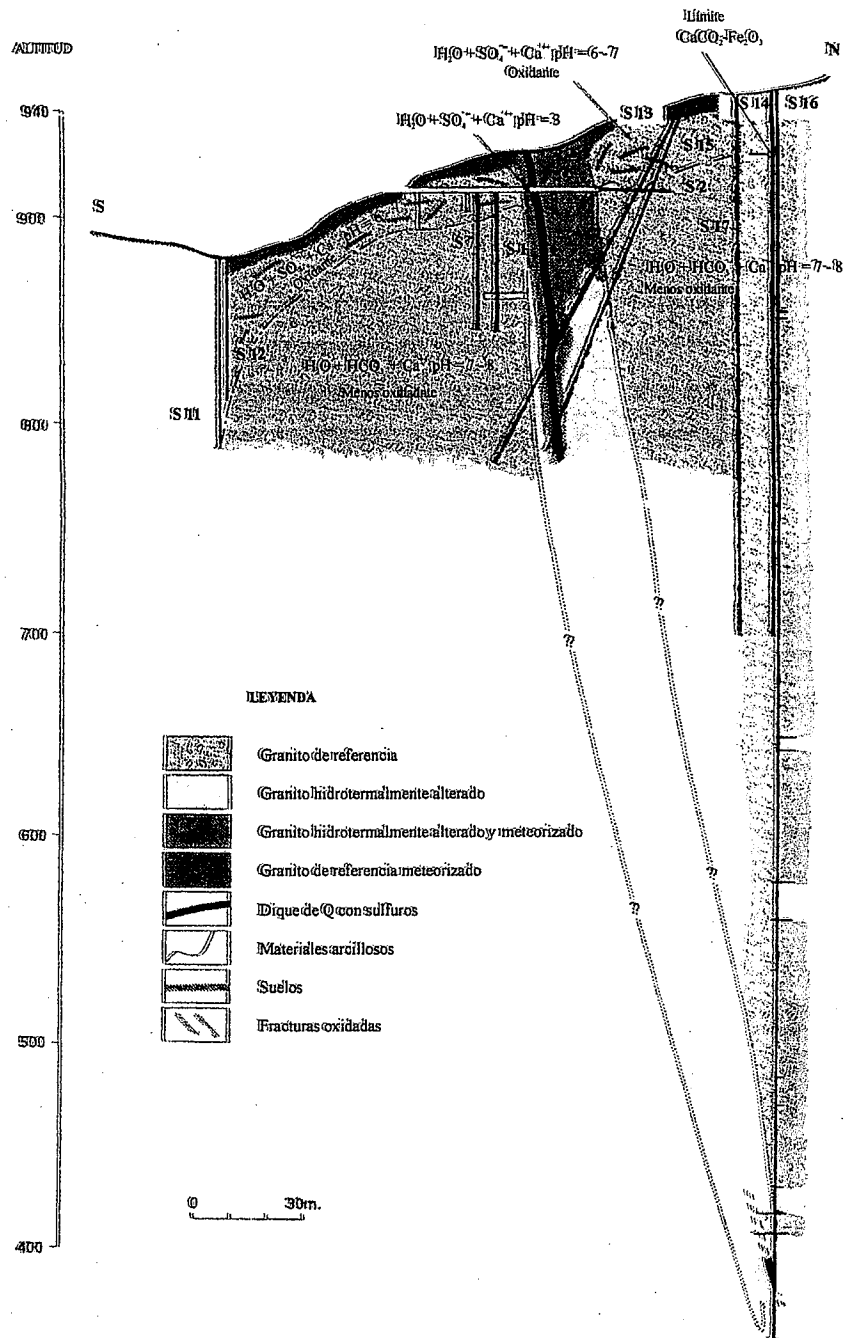


Fig. 1.- Perfil N-S del sistema granito de El Berrocal/DQMU, incluyendo algunos sondeos perforados.

Fig. 1.- N-S cross section of the El Berrocal granite/uranium quartz vein system, including some boreholes drilled in the site.

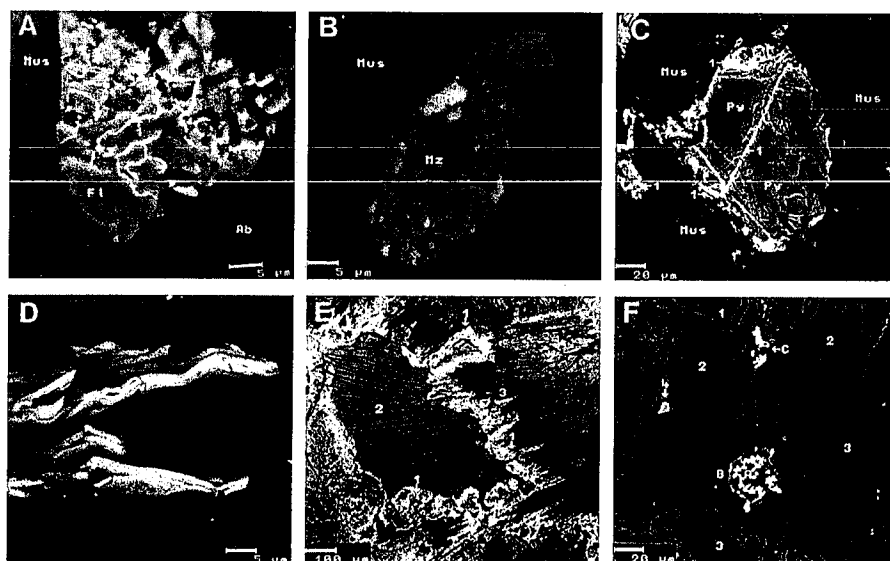
tura (350-250°C) podrían considerarse como procesos análogos a los del campo próximo de un ARRAA dependiendo del concepto y condiciones de almacenamiento.

Dique de cuarzo mineralizado (DQMU) y arcillas asociadas

El dique de cuarzo con sulfuros y U tiene ≈2m de espesor y queda separado del GHA por salbandas de arcillas de unos 15 cm de espesor.

El DQMU se forma durante un proceso hidrotermal (170-60°C), en el que se han diferenciado tres etapas: emplazamiento del dique de cuarzo con sulfuros, fracturación-brechificación del dique y emplazamiento de la mineralización de uranio.

El DQMU con pequeñas cantidades de pirita, esfalerita, galena y barita, se emplazó durante la etapa distensiva de la fase de fracturación, a temperaturas comprendidas entre 85 y 106°C, según los valores del $\delta^{18}O$ del cuarzo, y a partir



de soluciones para las que se estima un Eh del orden de -200 a -300 mV, dada la coexistencia de pirita-barita. Las temperaturas de formación son congruentes con las determinadas en la sericita del GHA, en la ilita de las salbandas, en la ilita y algunas caolinitas de otros rellenos de fracturas y en las inclusiones fluídas del cuarzo.

La mineralización uranífera está constituida por pechblenda, pirita (melnicovita), jaspe, carbonatos ankeríticos y barita. El emplazamiento se produjo después de la brechificación del dique, a temperaturas muy bajas, a partir de soluciones ligeramente alcalinas y bajo condiciones reductoras. En este proceso intervienen aguas meteóricas recalentadas según parece indicar el $\delta^{13}C$ de los carbonatos de la mineralización. Las soluciones carbonatadas de UO_2^{2+} serían desestabilizadas por la acción reductora de H_2S y se produciría la precipitación de la pechblenda, carbonatos y pirita por reducción y descenso de la temperatura y de la presión en la fase convectiva del proceso de transporte.

Las arcillas asociadas al DQMU están constituidas por ilita, esmectita, cuarzo, feldespato K y apatito. La caolinita aparece con contenidos significativos sólo dentro del DQMU.

El proceso de arcillización del granito comienza por la transformación a ilita de los feldespatos del granito a temperaturas entre 120 y 70°C. Posteriormente, la ilita se transforma en esmectita, probablemente durante los procesos de meteorización antiguos y/o actuales. Por último, en aquellas zonas donde la meteorización fuera más intensa, con lixiviación fuerte de K^+ , se formaría caolinita (Pérez del Villar *et al.*, 1993).

En relación con los radionucleidos naturales, el U se precipita como fosfatos de UO_2^{2+} , principalmente autunita, torbernita y uranocircita, y/o se coprecipita con mineraloides no identificados de Th-U-TR. También se encuentra, en menor proporción, adsorbido en

oxihidróxidos de Fe. El U está también presente en monacita y apatito, minerales heredados del granito. El Th, se presenta principalmente en la monacita y/o queda retenido por los mineraloides antes mencionados.

Rellenos fisurales

Los rellenos fisurales estudiados en los sondeos son representativos tanto de zonas de fracturas con una conductividad hidráulica alta como baja. Este material se considera como el resultado del solapamiento de varios procesos de tectonización, hidrotermales y supergénicos (Pérez del Villar *et al.*, 1995 d).

Los rellenos fisurales están constituidos principalmente por cuarzo, feldespatos, minerales de la arcilla, carbonatos y, en menor cantidad, por pirita y oxihidróxidos de Fe. Esta asociación mineralógica es muy constante e independiente de la dirección y buzamiento de las fracturas. Los óxidos de U^{4+} , heredados del granito, son poco frecuentes a diferencia de los fosfatos y silicatos de uranilo, contenidos, a veces, Th y TR (Fig. 2D). Por ello, la precipitación se considera como el proceso principal de retención, aunque otros, como la adsorción y/o coprecipitación del U en oxihidróxidos de Fe, también se han observado. En comparación con el GR los rellenos de las fracturas presentan enriquecimientos en U y Th por factores de hasta 60 y 3, respectivamente.

Los estudios de isótopos estables en minerales de la arcilla, cuarzo y carbonatos indican que el cuarzo, ilita y caolinita se formaron en condiciones hidrotermales a una temperatura mínima de 100°C, mientras que la esmectita, así como una segunda generación de caolinita, se formaron a temperatura ambiente (18-30°C). En los carbonatos se han detectado dos generaciones, una meteórica y otra hidrotermal, formadas entre 15 y, al menos, 65°C. Los diferentes valores de la relación de actividad $^{234}U/^{238}U$ muestran que ac-

tualmente se puede estar produciendo fijación o lixiviación de U, lo que estaría de acuerdo con la naturaleza abierta del sistema.

Meteorización

Los procesos de meteorización que afectan al sistema son, probablemente, los más importantes en relación con la migración/retención de los radionucleidos bajo condiciones naturales subactuales. Mientras más alterada esté la roca, más acentuados serán los efectos de la meteorización, llegando a las máximas profundidades en el DQMU.

La meteorización del DQMU produce la disolución de los carbonatos, oxidación de la pirita, formación de jarosita, y alteración de la pechblenda a minerales secundarios de uranilo (uranocircita, torbernita y autunita) (Fig. 2E). La meteorización en el granito afecta a la uraninita principalmente. El U procedente de la uraninita se precipita como silicofosfatos de U y, en menor proporción, queda adsorbido en los oxihidróxidos de Fe, al contrario que el Th y las TR que permanecen inmóviles durante la meteorización (Fig. 2F).

Desde el aspecto de análogo natural, los efectos de la meteorización tanto en DQMU como en el granito pueden corresponder a procesos análogos a temperatura ambiente, en los que el U^{6+} migra a partir de las dos fuentes (DQMU y GR) y se precipita o se adsorbe en zonas próximas a dichas fuentes.

Los efectos de la meteorización en los rellenos de fractura son similares a los del DQMU y a las arcillas asociadas. Así, la transformación de los feldespatos heredados y de ilita neoformada a beidellita, la oxidación de pirita a oxihidróxidos de Fe y la neoformación de oxihidróxidos de Mn, son también fenómenos frecuentes. Sin embargo, en las zonas más profundas del sistema se observan, al menos, dos generaciones de carbonatos, así como la formación de paligorskita en ambientes muy restringidos. También debe destacarse la neoformación de minerales accesorios tales como: yeso, witherita, pirita idiomórfica, carbonatos de Ca-Fe, smithsonita, hemimorfita y mineraloides complejos de S y otros metales.

Agradecimientos

Este proyecto fue financiado conjuntamente por ENRESA, CIEMAT y la UE. Damos las gracias a todas las personas que contribuyeron a llevar a cabo un proyecto de esta magnitud.

Referencias

- Arribas, A. (1965). - *Not. Com. Inst. Geol. Min. España* 77, 67-92.
 Cathelineau, M. & Le Jarry, A. (1993): *In: Rock*

TABLA 1. RESUMEN/COMPARACIÓN DE LAS CARACTERÍSTICAS PRINCIPALES DE LOS GRANITOS, DQMU, ARCILLAS Y RELLENOS FISURALES						
	GR	GHA	DQMU	ARCILLAS ASOCIADAS AL DQMU		RELLENOS FISURALES
				< 60µm	< 2µm	
CARACTERÍSTICAS FÍSICAS						
Porosidad(%)	0.738	2.430	-	-	-	-
Peso específico (g/cm ³)	2.65	2.668	-	-	-	-
Bulk densidad (g/cm ³)	2.63	2.662	-	-	-	-
Area superficial de poros (m ² /g)	0.0647	0.3120	-	-	-	-
Dirección/huz	-	-	N110E/70°N	-	-	-
Espesor (m)	-	-	1.5-2	-	-	-
MINERALOGÍA						
Mín. esenciales (%)	Q (41.5), alb (30), FdK (16.5), mos +biot. cloritizada (9)	Q (56.4), alb (3.8), FdK (0.8), filosilicatos totales (39.3)	Q, pirita, calcopirita	filosilic(ser+il+sm= 43-74), Q,FdK, alb	min. arcilla (il, sm: 60-91), Q, FdK,	Q, FdK, alb, filosilic., CO ₃ ²⁻
Mín. accesorios (%)	circón, anatasa, monacita, xenotima, apatito, uraninita, thorio-aucrilita	min secundarios de U, Th y TR	pechblenda asoc. con Q, pirita, barita, carbonatos anquerita, min. uranio, yeso	apatito, cao.	apatito, cao., oxyhydrox. Fe, jarosita, yeso, barita, monacita, torbernita	Numerosos compuestos químicos complejos. Mín. heredado: uraninita, torianita, uranotorianita, uranotorita Mín neoformados: pechblenda, UO ₂ ²⁺ silicatos, fosfatos & silicofosfatos
GEOQUÍMICA						
Elem. mayores (%)	Fe ₂ O ₃ (0.47), FeO (0.58), K ₂ O (4.52), Na ₂ O (4.14), CaO (0.52)	Fe ₂ O ₃ (0.57), FeO (0.26), K ₂ O (3.89), Na ₂ O (0.18), CaO (0.50)		Alto P ₂ O ₅ y K ₂ O	Alto P ₂ O ₅ y K ₂ O CO ₂ : > alto	Na ₂ O: muy variable. Indicador del grado de alteración. CO ₂ orgánico: alto (0.76)
Elem. traza (ppm)	U (16.28), Th (6.44)	U (20), Th (8.5) Concentración general de elem. traza por precipitación		Enriquecido en U & Th en relación al GR y GHA	Enriquecimiento acentuado en relación a la fracción < 60µm	U (13-962), Th (<2-19). Concentrados en relación al GR.
PROCESOS DE ALTERACIÓN						
	GR	GHA	DQMU	ARCILLAS ASOCIADAS AL DQMU		RELLENOS FISURALES
Hidrotermal	Deutérico y/o postmagmático (315-350°C). Desestabilización parcial de uraninita, apatito, monacita, xenotima. Neoformación de fluorita. Movilización & precipitación de U, Th, REE. Incipiente sericitización de albita.	Varios procesos solapados (250° ambiente). Condiciones ácidas oxidantes a ligeram. alcalinas y más reductoras. Movilización y precipitación de U, Th, TR. Fuerte sericitización de albita. Precipitación de carbonatos anqueríticos.	Formación de diques de cuarzo con sulfuros (= 170°C). Mineralización uranifera epitermal (= 60°C)	- Formado por interacción entre las harinas de falla y soluciones hidrotermales asociadas con la formación de los diques de Q. - Dos procesos de arcillización: 1) illita (120-70°C) y 2) esmectita. - Los min. Accesorios y mineraloides tienen un papel más importante en la retención de los radionucleidos procedentes del granito y del DQMU que los minerales de arcilla.		- Precipitación domina sobre la adsorción. - Formación de illita y de casi toda la caolinita a 100°C, simultáneo a la formación del DQMU. - Primera generación de carbonatos (50-100°C) asociada a los min. de U.
Meteorización	Uraninita fuertemente alterada si no está protegida de las soluciones. U precipitado como silicofosfatos o adsorbido en oxihidróxidos de Fe.	Redistribución del U: grandes cristales de autinita y adsorbido en oxihidróxidos de Fe.	Disolución de carbonatos, oxidación de pirita, formación de jarosita, uranocircita, autinita, y torbernita.	Esmectización de illita y feldespatos residuales, principalmente albita. Formación de caolinita.		- Disolución de carbonatos. - Oxidación de sulfuros. - Neoformación de oxihidróxidos Fe-Mn. - Precipitación de silicatos de uranio, fosfatos y silicofosfatos. - Formación de polygorskita.

Q: cuarzo; alb: albita; FdK: feldespato potásico; mos: moscovita; biot.: biotita; filosilic.: filosilicatos; ser.: sericitita; il.: illita; sm: esmectita; cao.: caolinita; GR: granito de referencia; GHA: granito hidrotermalmente alterado; DQMU: dique de cuarzo mineralizado por U

Tabla 1.- Resumen/comparación de las características principales de los granitos, DQMU, Arcillas y rellenos fisurales

Table 1.- Summary of the main features of the reference and hydrothermally-altered granites, mineralized u quartz vein and associated clays and the fracture fillings.

matrix diffusion as a mechanism for radionuclide retardation: natural radioelement migration in relation to the microfractography and petrophysics of fractured crystalline rock. 5th Progress Report, 40 pp. Earth Resources Centre, Univ. of Exeter (U.K.).
Finch, R.J. (1993).- Ph. Thesis, Univ. of New Mexico, 259pp
Julivert, M.; Fontboté, J. M.; Ribero, D. & Conde, L. (1972).- Mapa Tectónica de la Península Ibérica y Baleares. E. 1:10⁶ Serv. Publ. del I.G.M.E.
Pérez del Villar, L.; de la Cruz, B.; Pardillo, J. & Cózar, J.S. (1992).- Bol. Soc. Esp. Min., 15,

123-136.
Pérez del Villar, L., De la Cruz, B., Cózar, J.S., Pardillo, J., Gómez, P., Turrero, M.J., Rivas, P., Reyes, E., Delgado, A. & Caballero, E. (1993).- *Estudios Geol.*, 49(3-4), 199-222.
Pérez del Villar, L.; de la Cruz, B.; Pardillo, J.; Cózar, J.S.; Pelayo, M.; Marín, C.; Rivas, P.; Reyes, E.; Caballero, E.; Delgado, A.; Núñez, R.; Crespo, M.T. and Galán, M.P. (1995a).- *El Berrocal Project, Topical Report 2* (en prensa).
Pérez del Villar, L., Cózar, J.S., de la Cruz, B., Pardillo, J. & Fernández, A.M. (1995b).- In: *Mineral deposits: from their origin to their*

environmental impacts. (Pasava, Kribek & Zak Ed.) A.A. Balkema, Rotterdam. 689-692.
Pérez del Villar, L.; Cózar, J.S.; de la Cruz, B.; Pardillo, J.; Crespo, M.T. & Reyes, E. (1995c).- Fifth International Conference on the Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere. St. Malo, France, September (en prensa).
Pérez del Villar, L., Pelayo, M., Cózar, J.S., de la Cruz, B., Pardillo, J.; Rivas, P.; Reyes, E.; Caballero, E.; Delgado, A.; Núñez, R.; Crespo, M.T.; Jiménez, A.; Quejido, A. and Sánchez, M. (1995d).- *El Berrocal Project, Topical Report 3* (en prensa).