



## **RESULTADOS DE EXPERIMENTOS LABORATORIAIS SIMULANDO A AÇÃO INTEMPÉRICA EM AMOSTRAS DA JAZIDA DE URÂNIO DE LAGOA REAL, BAHIA**

Scislewski, A.R.; Cruz, M.J.M.; Zuddas, P.I.; Carvalho, G. (in memoriam)  
Curso de Pós-Graduação em Geoquímica e Meio Ambiente, Universidade Federal da Bahia, Salvador

### **ABSTRACT**

This article presents the results on the geochemical behavior of certain chemical elements, mainly the uranium, in laboratory-controlled experiments using representative species of the ore and the host rocks of the Cachoeira Uranium Mine, Caetitê/Lagoa Real region, Bahia, and also samples of the solid waste from the milling plant. For this purpose, an adapted reactor was used, derived from the flow-through reactor that had simulated an induced action of weathering processes in litological matrices. It was observed, in the experiments related to samples from the milling plant, that the uranium was complexed mainly by sulfate ( $\text{SO}_4^{-2}$ ), in contrast with the non treated samples (host rock and ore), where uranium was complexed mainly by carbonate ( $\text{CO}_3^{-2}$ ), reaching similar results to those obtained in studies related to groundwater from wells drilled in rocks (albitite) that bear uranium mineralizations. These results, although preliminary, are essential to understand the importance of geochemical speciation during the water-rock interactions and even for a better analysis of the migratory behavior of the respective related chemical elements.

### **RESUMO**

Utilizando-se espécimes representativas de minério e de rocha encaixante das mineralizações de urânio da Jazida Cachoeira, região de Caetitê-Lagoa Real, Bahia, este artigo apresenta as interpretações e conclusões do comportamento geoquímico de certos elementos químicos, mormente o urânio, em experimentos laboratoriais, através do uso de um reator tipo flow-through, que simularam a ação induzida de fenômenos intempéricos, no seio destas litologias. Pode-se concluir que no minério tratado, o urânio é complexado na forma de sulfatos e no minério não tratado e na rocha encaixante, o urânio é complexado na forma de carbonatos, de forma similar aos resultados encontrados nas águas de poços perfurados em albititos portadores das mineralizações. Estes, apesar de preliminares, se mostram essenciais à compreensão do comportamento da especiação geoquímica nas alterações em da matriz rochosa e do comportamento migratório dos elementos químicos relacionados com os líquidos percolantes que controlam a composição química das águas naturais dessa região do sudoeste baiano.

### **INTRODUÇÃO**

O Distrito Uranífero de Caetitê-Lagoa Real está localizado a sul da porção central do Estado da Bahia (Figura 1), e contém a única mina de urânio atualmente em atividade no Brasil, explorada pelas Indústrias Nucleares do

Brasil S/A-INB.

A descoberta das zonas mineralizadas da região de Caetitê-Lagoa Real decorre de uma série de levantamentos aerogeofísicos realizados pelo governo brasileiro através da NUCLEBRAS, nos anos 1976/1977 (Raposo e



Figura 1 – Localização do Distrito Uranífero de Lagoa Real.

Matos, 1982). A partir destes trabalhos foram identificados cerca de 51 sítios mineralizados em urânio, dentre eles a denominada “Anomalia 13” ou Jazida Cachoeira, situada a cerca de 40 quilômetros da cidade de Caetité, próxima ao Distrito de Maniaçu (Figura 2).

O projeto básico da mina foi concluído em 1996, indicando uma lavra a céu aberto na Jazida Cachoeira, com teor médio de 3000 ppm de urânio. As atividades de produção mineira foram iniciadas em março de 2000 e, atualmente, o Distrito Uranífero de Caetité-Lagoa Real é responsável pelo suprimento do consumo doméstico de combustível nuclear com previsão de produção de cerca de 400 toneladas/ano de DUA (Diuranato de amônio ou *yellow cake*), existindo perspectivas de exportação em um futuro próximo.

Em novembro de 1998, iniciou-se o Projeto *Innovative Strategies for the Preservation of Water Quality in Mining Areas of Latin America* (WAQUAMINAR), as quais incluíam o estudo hidrogeoquímico do Distrito Uranífero de Caetité-Lagoa Real, como base para a caracterização da qualidade dos recursos hídricos existentes naquela área. O referido projeto foi subvencionado através do contrato n° ERBIC18 – CT 98 – 0284 da Comissão Européia.

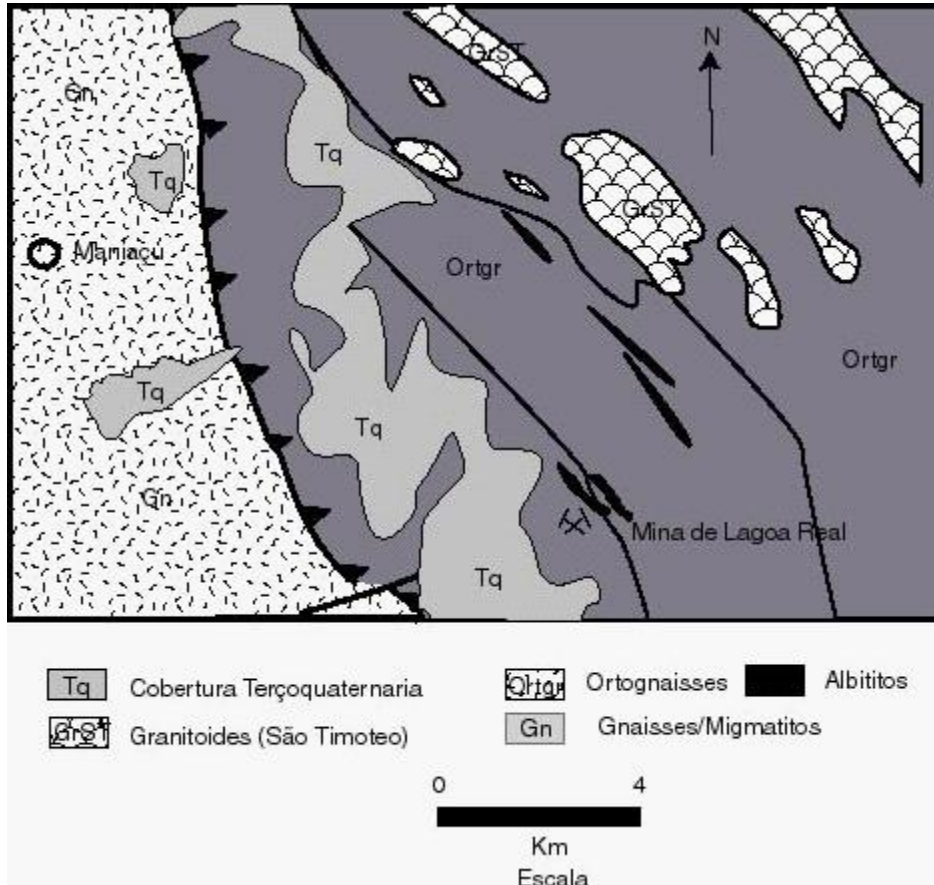


Figura 2 – Esquema geológico simplificado do Complexo Lagoa Real.

Inserido no escopo do projeto em epígrafe, o presente trabalho sintetiza os resultados do estudo do comportamento geoquímico de alguns elementos químicos, inclusive do urânio, durante o intemperismo de amostras de rochas provenientes do Distrito Uranífero de Lagoa Real, utilizando-se experimentos laboratoriais que simularam o intemperismo natural dessas rochas.

## GEOLOGIA REGIONAL E LOCAL

A geocronoestratigrafia da região do Distrito Uranífero de Lagoa Real é ainda questionável, em decorrência do caráter policíclico das deformações e do elevado estágio de retrometamorfismo das unidades envolvidas.

Moraes (1980) procuraram estabelecer um empilhamento das unidades litoestratigráficas, engendrando uma evolução, onde os dados geocronológicos parecem diagnosticar fases policíclicas deformantes, que se impuseram em fases posteriores, com uma tendência de homogeneização isotópica para o último evento tectonotermal.

Geisel Sobrinho *et al.* (1980) definiram os *albititos* de Lagoa Real, como uma suíte de rochas geradas por fenômenos geológicos metamórfico-metassomáticos.

Prates & Fuzikawa (1982), com base em descrições petrográficas, adotaram um critério de classificação para as rochas albitíticas mineralizadas em urânio. Estes critérios foram aprofundados por Lobato *et al.* (1983).

Cordani (1982) mostrou que os dados geocronológicos disponíveis (datações pelo método Rb-Sr em rocha total), indicavam épocas de mobilização química acompanhada de rehomogeneização isotópica do Sr para as rochas da região de Caetité.

Costa *et al.* (1985) definiram outros tipos de concentrações de urânio na região de Caetité, associadas aos litotipos denominados de microclinitos e leucodiorito albitizado, no entanto estas rochas não teriam os mesmos teores de urânio verificados nos albititos.

Maruejol (1989) descreveu três litotipos albitizados: i) gnaisses albitizados; ii) albititos com quartzo subdividido em (a) predominância de anfibólio e (b) predominância de piroxênio e/ou granada; e iii) albitito sem quartzo, com piroxênio-granada e, propôs uma seqüência para o processo de metassomatização, caracterizando a formação dos albititos pela sucessão mineralógica marcada pelo desaparecimento de feldspato potássico, oligoclásio/albiclásio, biotita, anfibólio, dissolução do quartzo e o aparecimento/cristalização da albita e minerais cálcicos anidros.

Arcanjo (1999), no Projeto Vale do Paramirim, argumentaram que as rochas arqueanas/paleoproterozóicas da Suíte Lagoa Real, seriam compostas por litotipos polimetamórficos e polideformados, sucedidos por coberturas metavulcanossedimentares, rochas intrusivas ácidas (granitóides) e básicas (gabróicas), posicionadas no intervalo Mesoproterozóico-Neoproterozóico.

Costa *et al.* (1985) definiram o Complexo Lagoa Real como o conjunto de rochas graníticas isotrópicas (granito São Timóteo), associadas aos litotipos ígneos gnaissificados (ortognaisse Lagoa Real), que foram submetidos aos fenômenos de metamorfismo dinâmico e metassomático e geraram vários tectono-fácies, dentre eles os níveis albitíticos mineralizados em urânio.

A Província Uranífera de Lagoa Real é posicionada em rochas do Complexo Lagoa Real, se dispõe numa faixa alongada de direção NNW-SSE, nos domínios geográficos de Caetité, e englobam rochas de idade isotópica em torno de 1,7Ga, (Arcanjo, 1999), encaixadas no contexto do ortognaisse Lagoa Real. Este ortognaisse granítico apresenta faixas cataclásticas, metassomatizadas a albita e albita-oligoclásio, definidos por Geisel Sobrinho *et al.* (1980) como albititos, portadores de mineralizações de urânio (Figura 2).

Os albititos hospedeiros da mineralização uranífera ocorrem sob a forma de corpos tabulares descontínuos, estruturados aproximadamente NW/SE, encaixados concordantemente e com contatos bruscos nos

ortognaisses. Geisel Sobrinho *et al.* (1980) descreveram como uma rocha metassomática constituída por albita em percentagem igual ou superior a 70% e com segregação ou faixas ricas em minerais máficos (piroxênio, anfibólio, biotita).

Os albitos, de uma maneira geral, são rochas faneríticas de granulação fina a média, tonalidades esbranquiçadas, com alguns tons róseos. Apresentam em duas variedades: ii) as equigranulares, onde é presente albita poligonizada, em contatos retos e junções triplíces, engendrando uma textura sacaróide à rocha e ii) as variedades porfiroclásticas, com megaxenoblásticos de albita, muitas vezes são fortemente deformados. Análises em microsonda eletrônica mostraram que a composição do plagioclásio varia entre  $An_0$  a  $An_{7-15}$ . O quartzo raramente ultrapassa 5% em volume.

Ocorre associada a seguinte paragênese mineral: aegirina-augita (0-25%), ferrostastingsita ou hornblenda (0-25%), granada (0-20%), calcita (0-10%), biotita (0-15%), epidoto (0-3%), magnetita (0-5%), titanita (0-2%) e uraninita (0-4%).

No *Institut de Physique du Globe de Paris-IPGP-Laboratoire de Géochimie des Eaux*, França, foi obtida uma imagem em microscópio de varredura e análises pontuais por espectrometria EDS, para se ter uma aproximação da composição dos minerais das amostras analisadas. Observou-se que os grãos de plagioclásio, por vezes se encontravam em um estágio de transição para oligoclásio, mas com porções puras em albita; o clinopiroxênio e o anfibólio são sempre estáveis, com variações mais magnesianas ou mais cálcicas; a biotita apresentou um estado transicional para vermiculita.

## O PROCESSO DE CONCENTRAÇÃO DE URÂNIO E AS AMOSTRAS UTILIZADAS

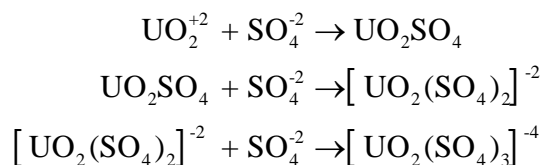
No jazimento de Lagoa Real, a concentração do urânio é obtida através da solubilização pelo ataque do minério por solução aquosa de ácido sulfúrico de concentração inicial

de 3g de  $H_2SO_4/L$  (pH=1,5), na qual é adicionada, como agente oxidante, uma solução aquosa de 1g de  $NaClO_3/L$ . Com o desenvolvimento do processo, a concentração do ácido sulfúrico é gradativamente aumentada para 40 g/L (pH=0,5), mantendo-se em recirculação até a estabilização da concentração de urânio.

Após atingir um estado de concentração constante, as pilhas são submetidas a duas lavagens ácidas consecutivas (água acidulada com pH=1,5) e em seguida, uma terceira lavagem com água neutra. A terceira lavagem produz soluções com concentração de urânio abaixo de 5ppm de  $U_3O_8$ .

Experimentos realizados pela INB (RFAS, 2000) mostraram que a acidez livre final da umidade restante na pilha corresponde a valores de pH=3-4, com a concentração de urânio próxima 0,02g/L de  $U_3O_8$ .

As reações de complexação da uranila, durante o processo de lixiviação, podem ser descritas como:



As amostras utilizadas no experimento foram divididas em duas categorias: (a) amostras tratadas (usina de beneficiamento) e (b) amostras não-tratadas que representam os litotipos mineralizados caracterizados como “albitito sem quartzo, piroxênio-granada” por Maruejol (1989). As amostras são provenientes da Mina de Urânio da Jazida Cachoeira (Anomalia 13) – Unidade de Concentrado de Urânio (URA), pertencente às Indústrias Nucleares do Brasil (INB).

As amostras da categoria (a) consistem no minério processado na planta de beneficiamento para recuperação do urânio. Estes espécimes foram submetidos à rotina tecnológica de beneficiamento químico engendrado pelo ataque de ácido sulfúrico

através do processo de lixiviação em pilhas por gotejamento.

Na categoria (a) constam duas espécies: a amostra MT1 – representante do minério tratado da primeira pilha utilizada no processo de lixiviação do minério de urânio da URA e a amostra MT2 – representante da segunda pilha. Ambas as amostras foram coletadas no depósito de rejeitos/estéril, em uma área de 2500 m<sup>2</sup>, em diversos pontos de cada pilha disposta.

A categoria (b) se refere às amostras não tratadas do minério (amostra MN1) e do rejeito estéril (amostra ES1).

A amostra MN1 representa a espécie de britagem da planta de beneficiamento antes do transporte para a área de lixiviação de pilhas e a amostra ES1 rocha encaixante do minério, coletada no depósito de rejeito/estéril da mina.

Urge salientar que todas espécies foram coletadas nas mesmas condições das amostras tratadas, escolhendo-se uma área específica e realizando uma amostragem superficial representativa do material. As características químicas e a massa das amostras são apresentadas na Tabela 1.

A preparação das amostras seguiu o

**Tabela 1** – Características químicas das amostras utilizadas no experimento.

Componente	Concentração ( %, exceto ThO <sub>2</sub> , indicado em mg/kg)			
	MN1 ( minério) Amostra não tratada	MT1 ( rejeito) Amostra tratada	MT2 ( rejeito) Amostra tratada	ES1* ( estéril) Amostra não tratada
U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>	0,115 ± 0,002	0,022 ± 0,001	0,125 ± 0,001	0,0070
ThO <sub>2</sub>	33 ± 3	25 ± 2	30 ± 2	---
SiO <sub>2</sub>	58,5 ± 0,7	58,4 ± 0,1	56,4 ± 0,8	69,1
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	5,8 ± 0,1	6,0 ± 0,1	7,0 ± 0,1	4,33
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	16 ± 1	16 ± 1	16 ± 1	10,4
TiO <sub>2</sub>	0,68 ± 0,01	0,52 ± 0,01	0,57 ± 0,01	0,50
CaO	2,5 ± 0,1	3,3 ± 0,1	2,3 ± 0,1	1,59
MgO	3,5 ± 0,4	1,7 ± 0,1	2,1 ± 0,1	0,30
MnO <sub>2</sub>	0,159 ± 0,002	0,111 ± 0,001	0,139 ± 0,001	0,04
Na <sub>2</sub> O	6,67 ± 0,08	7,13 ± 0,11	7,33 ± 0,04	3,42
K <sub>2</sub> O	1,37 ± 0,10	0,970 ± 0,110	0,791 ± 0,007	3,88
SO <sub>4</sub> <sup>-2</sup>	0,086 ± 0,06	0,024 ± 0,08	0,905 ± 0,007	---
PPC**	2,93 ± 0,01	1,87 ± 0,09	4,2 ± 0,4	---
Umidade-100 °C	0,79 ± 0,01	0,85 ± 0,09	1,47 ± 0,08	---
Massa ( g)	444,4	517,2	444,7	389,2

\* Devido a problemas com a amostra ES1, durante análise, os dados referentes a esta amostra foram retirados do RFAS ( 2000, e incorporados ao trabalho como referenciais.  
\*\* Perda por calcinação a 900°C.  
Métodos de Análise:  
Espectrofotometria com arsenato: U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> e ThO<sub>2</sub>  
Espectrofotometria de absorção atômica: Na<sub>2</sub>O e K<sub>2</sub>O  
Gravimetria com BaCl<sub>2</sub>: SO<sub>4</sub><sup>-2</sup>  
Espectrometria por plasma ICP: demais espécies

seguinte processo. Inicialmente foram secas, e depois peneiradas em um intervalo de tamanho ( $x$ ) entre 0,800 e 0,350 mm e as partes restantes ( $x > 0,800$  mm e  $x < 0,350$  mm), separadas e estocadas. Após este tratamento, as amostras foram pesadas, e colocadas no interior de cada coluna de vidro (reator), para o início do experimento.

## ASPECTOS EXPERIMENTAIS

A solução efluente de cada coluna foi amostrada utilizando-se seringas (3 unidades de 100mL e 1 unidade de 20mL, esta última utilizada apenas na coluna da amostra MT2), sendo que para cada amostragem foram utilizados 5 tubos tipo *Falcon*. Três destes tubos foram acidificados ( $\text{pH} < 2$ ) com ácido nítrico Suprapur (Merck), para conservação das amostras, evitando-se assim a adsorção de íons na parede de polietileno.

As amostras destinadas à determinação de elementos maiores, elementos traços e urânio foram filtradas com filtro Millipore 0,45 mm e distribuídas da seguinte forma: i) Tubo 1 – filtrada e acidulada – elementos maiores; ii) Tubo 2 – filtrada e acidulada – elementos-traço (não utilizado); iii) Tubo 3 – filtrada e acidulada – urânio; iv) Tubo 4 – filtrada – Cl e  $\text{SO}_4^{2-}$ ; e v) Tubo 5 – solução natural para medição de pH.

As medidas de pH foram realizadas à temperatura ambiente e corrigidas para 25° C, utilizando-se um medidor de pH METTLER TOLEDO MP125, calibrado com 2 soluções tampão ( $\text{pH} = 4$  e 7); os ânions foram determinados por cromatografia e os cátions por espectrometria de absorção atômica com atomização eletrotérmica (com forno de grafite), SOLLAR M6 UNICAM.

O urânio foi determinado através do procedimento analítico do SCINTREX UA-3 Analyzer (metodologia de Padrões Externos); neste procedimento apenas a concentração do íon uranila foi determinada.

Foi utilizada no experimento uma versão simplificada e modificada do reator *flow-through*

(Brantley & Chen, 1995). Basicamente este aparato experimental consiste de quatro colunas de *Pirex* (reatores), cada uma com aproximadamente 0,5 cm de diâmetro com um filtro do tipo de placa de vidro porosa em sua porção inferior e um tubo de vidro adaptado em sua porção superior para amostragem e eliminação de efluentes.

Durante o experimento, água destilada/deionizada saturada com uma mistura gasosa (reagente) de 5% de  $\text{CO}_2$  e 95% de  $\text{O}_2$ , foi introduzida através de uma bomba peristáltica (*Gilson Miniplus 3*) a uma velocidade constante, nos suportes de vidro *Fritte* na base das colunas. Mais precisamente, bombeou-se a mistura gasosa ao reservatório de água deionizada até o pH estabilizar entre 4,56 e 4,60, sendo que este reservatório foi conectado a uma bomba peristáltica que permitia um fluxo contínuo de solução da porção inferior à porção superior da coluna, a uma velocidade média de 10 mL/h.

A especiação química e os índices de saturação calculados das soluções efluentes foram modelados através do código geoquímico *PHREEQC* (Parkhurst & Appelo, 1999), utilizando-se o banco de dados *wateq4f.dat* (Dzombak & Morel, 1990) e complementado com dados termodinâmicos da fase sólida uranofano (Grenthe *et al.*, 1992).

Devido ao alumínio ser praticamente insolúvel no intervalo de pH dos ambientes normais da superfície (4,5 a 9,5) (Toledo *et al.*, 2000), assumiu-se nas amostras MN1 e ES1 a concentração de  $10^{-8}$  Mol/L. Nas amostras de minério processado (MT1 e MT2), o alumínio não foi utilizado para cálculo de índices de saturação.

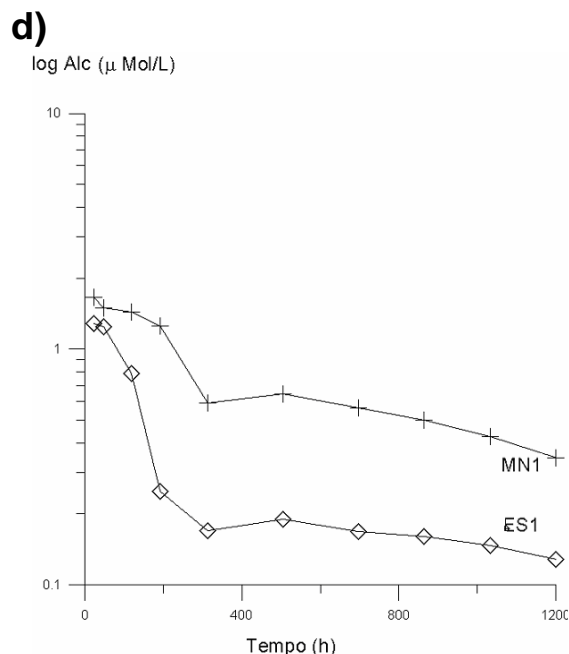
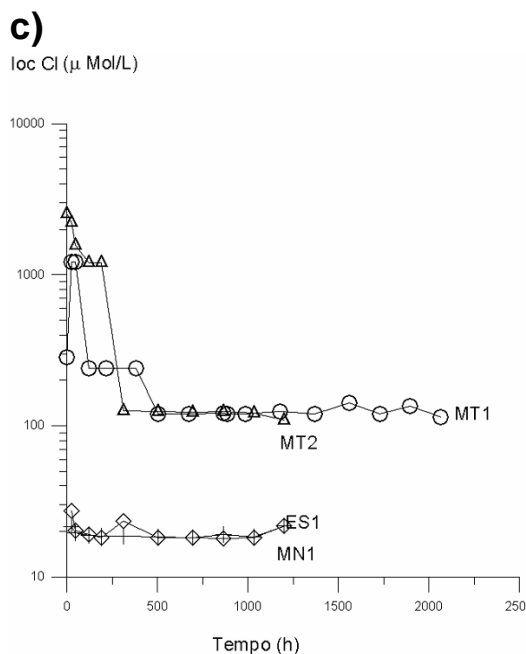
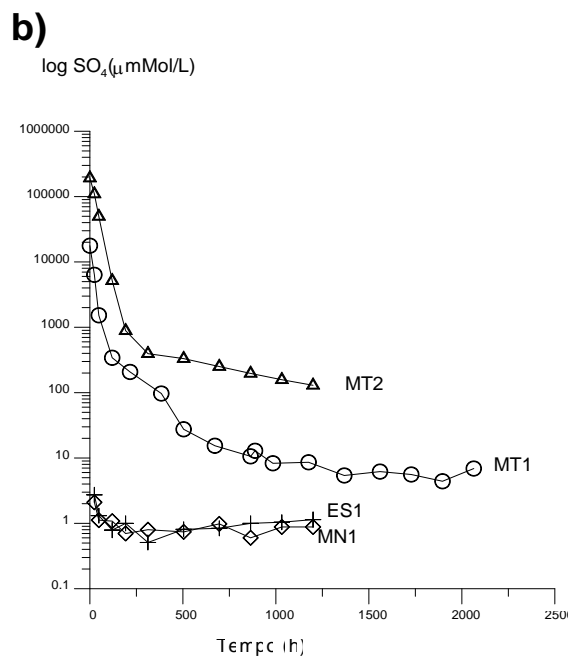
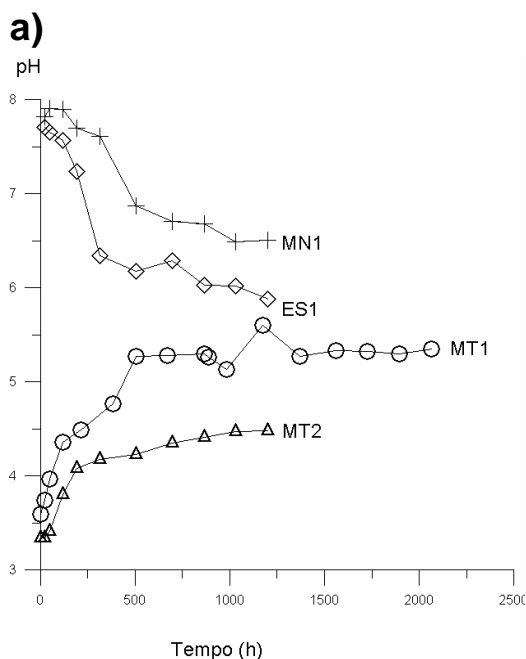
As amostras foram lixiviadas durante 1200 horas, cerca de cinquenta dias, exceção do rejeito, lixiviado por 2064 horas, aproximadamente 86 dias. As composições representativas da solução efluente das amostras MN1, ES1, MT1 e MT2 estão apresentadas na Tabela 2, os cálculos das fases saturadas estão apresentadas na Tabela 3 e da especiação nas Tabelas 4 e 5.

### DISCUSSÕES E CONCLUSÕES

A Figura 3(a) apresenta valores do pH em função do tempo, em horas. Para as amostras do minério tratado (MT1 e MT2), o pH medido no início de experimento é em torno de 3,3 a 3,6 passando para valores da ordem de 4,2 a 4,8 em torno das 350 horas. Observa-se que nas amostras de minério não tratado e estéril (MN1 e ES1), o pH inicial é em torno de 8, passando para valores em torno de 6 após 1200 horas. Constatou-se

também que para as amostras não tratadas, mesmo com a aplicação de água neutra (pH=7), no experimento o pH permanece sempre abaixo do valor do pH da solução lixiviante inicial, o que pode ser devido a acidez residual.

O sulfato nas amostras MN1 e ES1 apresenta valores baixos e uniformes, em torno de 0,9 mMol/L. Nas amostras MT1 e MT2 ocorre um decréscimo brusco nas primeiras horas, sendo depois a redução gradual (Figura 3(b)).



**Figura 3** - Diagrama do (a) pH, (b) sulfatos, (c) cloretos, (d) alcalinidade em função do tempo da solução efluente para as diversas amostras utilizadas no experimento.

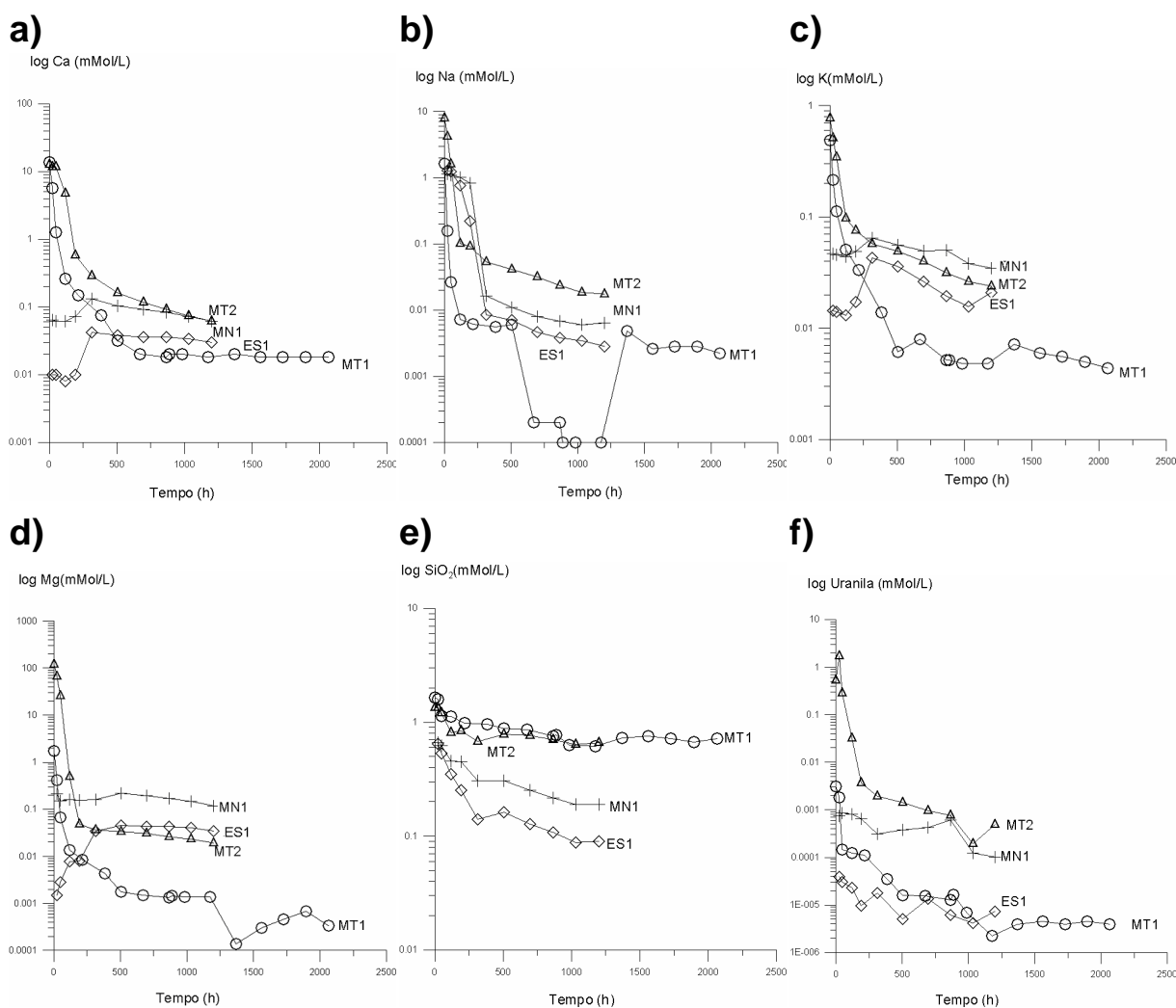
Nas amostras MT1 e MT2, a concentração de cloreto decresceu nas primeiras 384 horas de experimento, atingindo então um valor constante. Nas amostras MN1 e ES1, os valores são menores e uniformes. A Figura 3(c) apresenta o comportamento do Cl durante o experimento.

A alcalinidade foi medida apenas para uma amostra não tratada MN1 e para a amostra do estéril ES1. A Figura 3(d) apresenta as respectivas curvas, que possuem formato similar, indicando em geral, decréscimo de concentração com comportamento exponencialmente decrescente com o tempo.

A evolução da concentração de Ca em função do tempo (em horas) está apresentada na Figura 4(a). Observa-se que as amostras do minério tratado (MT1 e MT2) evoluíram de

forma similar, ocorrendo um forte decréscimo no conteúdo do Ca durante as primeiras 312 horas do experimento. O minério tratado da segunda pilha (MN1) e estéril (ES1) no início do experimento apresenta um ligeiro enriquecimento em Ca, sofrendo em seguida redução com o tempo.

O comportamento do Na apresenta padrão inicial abruptamente decrescente para todas as amostras, até atingir o padrão de redução gradual em torno das 400 horas do experimento (Figura 4(b)). A amostra MT1 que apresenta inicialmente um padrão similar ao das demais espécies, em torno das 600 a 1100 horas apresenta uma forte redução dos teores em Na. Este comportamento pode estar relacionado à fase sólida neogênica precipitada durante o processo de lixiviação e/ou ser devido a possíveis/prováveis alterações na estrutura



**Figura 4** - Diagrama do (a) cálcio, (b) sódio, (c) potássio, (d) magnésio, (e) sílica e (f) uranila em função do tempo da solução efluente para as diversas amostras utilizadas no experimento.



**Tabela 2** – Composição representativa da solução efluente. Ca, Na, K, Mg, SiO<sub>2</sub> e uranila em mMol/L; Cl e SO<sub>4</sub> - μMol/l; Alc, calculada como HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> em mMol/L.

Amostra	Data	Tempo (h)	pH	Temp. (°C)	Ca	Na	K	Mg	SiO <sub>2</sub>	Uranila	Cl	SO <sub>4</sub>	Alc (a)
MN1-02	16/2/2001	24	7,82	21,8	0,064	1,13	0,0468	0,212	0,658	0,000737	21,46	2,73	1,659
MN1-03	17/2/2001	48	7,91	19,5	0,062	1,095	0,0454	0,15	0,623	0,000844	19,5	1,31	1,501
MN1-04	20/2/2001	120	7,9	20,7	0,062	1,01	0,0442	0,16	0,456	0,000806	18,82	0,79	1,438
MN1-05	23/2/2001	192	7,7	21,2	0,072	0,82	0,049	0,154	0,447	0,000638	18,69	1	1,256
MN1-06	28/2/2001	312	7,61	21,8	0,132	0,0164	0,0648	0,162	0,307	0,000314	18,55	0,51	0,591
MN1-07	8/3/2001	504	6,87	24,4	0,104	0,011	0,056	0,22	0,305	0,000375	18,4	0,81	0,644
MN1-08	16/3/2001	696	6,71	23,2	0,092	0,008	0,0498	0,193	0,253	0,000421	18,22	0,84	0,563
MN1-09	23/3/2001	864	6,68	23,6	0,084	0,0068	0,05	0,171	0,216	0,000612	19,06	1	0,5007
MN1-10	30/3/2001	1032	6,49	21,4	0,072	0,006	0,038	0,147	0,189	0,000123	18,33	1,04	0,427
MN1-11	6/4/2001	1200	6,51	22,9	0,062	0,0064	0,0348	0,1184	0,189	0,000102	21,87	1,14	0,346
ES1 02	16/2/2001	24	7,71	22,7	0,01	1,28	0,0144	0,00148	0,649	3,91E-05	27,4	2,1	1,28
ES1 03	17/2/2001	48	7,65	19,5	0,01	1,23	0,014	0,00284	0,535	3,01E-05	20,34	1,12	1,24
ES1 04	20/2/2001	120	7,57	21,8	0,008	0,77	0,013	0,00778	0,351	2,32E-05	19,01	1,08	0,79
ES1 05	23/2/2001	192	7,24	23,3	0,01	0,22	0,0172	0,00804	0,254	9,66E-06	18,23	0,7	0,25
ES1 06	28/2/2001	312	6,34	21,1	0,042	0,0084	0,043	0,0344	0,14	1,77E-05	23,4	0,8	0,17
ES1 07	8/3/2001	504	6,18	23,9	0,038	0,007	0,036	0,0458	0,163	5,02E-06	18,27	0,74	0,19
ES1 08	16/3/2001	696	6,29	24,2	0,036	0,0046	0,0262	0,0431	0,128	1,35E-05	18,12	0,98	0,168
ES1 09	23/3/2001	864	6,03	23	0,036	0,0038	0,0194	0,0425	0,107	6,18E-06	17,99	0,6	0,161
ES1 10	30/3/2001	1032	6,02	21,2	0,034	0,0034	0,0156	0,0401	0,088	4,15E-06	18,08	0,88	0,147
ES1 11	6/4/2001	1200	5,88	22,4	0,03	0,0028	0,0208	0,0344	0,09	7,19E-06	21,85	0,88	0,128
MT1 1	10/1/2001	0	3,59	21,8	13,8	1,62	0,4868	1,719	1,65	0,003109	284,94	17728	
MT1 2	11/1/2001	24	3,74	22,2	5,63	0,1575	0,2139	0,4108	1,58	0,0018	1219,1	6353,4	
MT1 3	12/1/2001	48	3,97	21,8	1,265	0,0267	0,1123	0,06762	1,14	0,000148	1210	1528,3	
MT1 4	15/1/2001	120	4,36	17,2	0,258	0,00716	0,0509	0,01356	1,12	0,000123	240	342	
MT1 5	19/1/2001	216	4,49	21,3	0,15	0,00618	0,03354	0,008462	0,98	0,000112	240,8	207,3	
MT1 6	26/1/2001	384	4,77	20,7	0,075	0,0056	0,0139	0,00432	0,96	3,47E-05	240,1	97,1	
MT1 7	31/1/2001	504	5,27	19,7	0,032	0,00598	0,00616	0,001756	0,88	1,6E-05	120	27,5	
MT1 8	7/2/2001	672	5,28	21,4	0,02	0,0002	0,008	0,00148	0,86	1,57E-05	119,4	15,4	
MT1 9	15/2/2001	864	5,3	21,1	0,018	0,0002	0,0052	0,00134	0,754	1,28E-05	121	10,6	
MT1 10	16/2/2001	888	5,26	20,7	0,02	0,0001	0,0052	0,00146	0,772	1,66E-05	120	12,9	
MT1 11	20/2/2001	984	5,13	21,1	0,02	0,0001	0,0048	0,00136	0,631	6,87E-06	120,4	8,3	
MT1 12	28/2/2001	1176	5,6	20,1	0,018	0,0001	0,0048	0,00138	0,618	2,23E-06	124	8,6	
MT1 13	8/3/2001	1368	5,27	22,9	0,02	0,0048	0,0072	0,00014	0,725	3,91E-06	120	5,4	
MT1 14	16/3/2001	1560	5,33	23,5	0,018	0,0026	0,006	0,0003	0,756	4,47E-06	142,4	6,2	
MT1 15	23/3/2001	1728	5,32	22,3	0,018	0,0028	0,0056	0,00046	0,716	3,91E-06	120	5,6	
MT1 16	30/3/2001	1896	5,3	21,2	0,018	0,0028	0,005	0,00068	0,668	4,47E-06	134,8	4,4	
MT1 17	6/4/2001	2064	5,35	22,3	0,018	0,0022	0,0044	0,00034	0,716	3,91E-06	114	6,9	
MT2 01	15/2/2001	0	3,34	18,8	12,6	7,88	0,772	118	1,34	0,522557	2534,25	192215	
MT2 02	16/2/2001	24	3,34	20,4	11,6	4,2	0,512	65,4	1,34	1,72191	2206,3	109710	
MT2 03	17/2/2001	48	3,41	17,9	11,6	1,6	0,344	25,2	1,21	0,280611	1569,25	49795	
MT2 04	20/2/2001	120	3,8	20,6	4,7	0,102	0,0976	0,491	0,811	0,031342	1202,7	5167,6	
MT2 05	23/2/2001	192	4,08	22,1	0,58	0,092	0,0756	0,0484	0,844	0,003652	1201,6	888,2	
MT2 06	28/2/2001	312	4,18	21	0,29	0,053	0,0574	0,0364	0,68	0,001924	125,14	395,1	
MT2 07	8/3/2001	504	4,23	22,1	0,162	0,0408	0,0492	0,0331	0,786	0,00143	123,68	332	
MT2 08	16/3/2001	696	4,35	23,9	0,116	0,032	0,04	0,0308	0,762	0,000958	122,82	251	
MT2 09	23/3/2001	864	4,41	22,1	0,092	0,0236	0,0316	0,026	0,698	0,000754	123,46	197,3	
MT2 10	30/3/2001	1032	4,47	21,3	0,074	0,0186	0,0264	0,0232	0,64	0,000191	120,49	157,8	
MT2 11	6/4/2001	1200	4,48	22,4	0,062	0,0172	0,0238	0,0193	0,663	0,000488	108,96	129,6	

**Tabela 3** – Fases saturadas da solução efluente.

Fase Mineral	Ref	Amostra
Pirofilita, leonardita, uranofano ( $SI > 0$ ), Kmica, talco, quartzo, cristobalita, calcedônia	1	MN1 02, MN1 03
Pirofilita, uranofano ( $SI = 2 > 0$ ), leonardita, Kmica, talco, quartzo, cristobalita, calcedônia	2	MN1 04
Pirofilita, uranofano ( $SI > 0$ ), leonardita, Kmica, quartzo, cristobalita, calcedônia, diásporo	3	MN1 05
Uranofano ( $SI > 0$ ), pirofilita, leonardita, Kmica, quartzo, diásporo, cristobalita, calcedônia	4	MN1 06
Pirofilita, Kmica, uranofano ( $SI > 0$ ), leonardita, caolinita, diásporo, quartzo, cristobalita, calcedônia	5	MN1 07
Pirofilita, Kmica, uranofano ( $SI > 0$ ), caolinita, diásporo, quartzo, leonardita	6	MN1 08
Pirofilita, Kmica, uranofano ( $SI > 0$ ), diásporo, caolinita, quartzo	7	MN1 09
Pirofilita, Kmica, diásporo, caolinita, quartzo, uranofano ( $SI < 0$ )	8	MN1 10, MN1 11
Pirofilita, leonardita, Kmica, quartzo, cristobalita, calcedônia, diásporo, caolinita	7	ES1 02, ES1 03
Pirofilita, Kmica, quartzo, diásporo, cristobalita, calcedônia	10	ES1 04
Pirofilita, Kmica, diásporo, quartzo, caolinita	11	ES1 05, ES1 08
Pirofilita, Kmica, diásporo, caolinita, quartzo	12	ES1 06, ES1 07
Pirofilita, diásporo, caolinita, Kmica, quartzo	13	ES1 09, ES1 10,
Pirofilita, diásporo, caolinita, quartzo	14	ES1 11
Quartzo, cristobalita, calcedônia, silicagel, gipso	15	MT1 01, MT1 02, MT1 03, MT1 04, MT1 05, MT1 06, MT1 07, MT1 08, MT1 09, MT1 10, MT1 11, MT1 12, MT1 13, MT1 14, MT1 15, MT1 16, MT1 17, MT2 01, MT2 02, MT2 03, MT2 04, MT2 05, MT2 06, MT2 07, MT2 08, MT2 09, MT2 10, MT2 11

cristalina da albita (média de 65% da rocha), devido ao ataque químico do minério com ácido sulfúrico e clorato de sódio (agente oxidante), não previamente detectadas na planta de beneficiamento.

A Figura 4(c) apresenta a curva da evolução do K em função do tempo. Observa-se que as amostras de minério não tratado e do estéril apresentam uma elevação de concentração no início de experimento, até as 312 horas, similarmente com o que acontece com o cálcio. Quanto às amostras do minério tratado (MT1 e MT2), a curva mostra acentuada redução da concentração inicial até as 312 horas, entretanto, o teor em K da amostra MT1 continua decrescente até as 500 horas, atingindo a partir deste um valor praticamente constante, com pequenas variações.

A Figura 4(d) apresenta a curva da evolução do Mg em função do tempo. As amostras de minério tratado e minério não tratado

apresentam uma forte redução inicial, a qual passa a ser gradual, com exceção de MT1 que exhibe redução abrupta após cerca de 1200 horas. A amostra de estéril (ES1), apresenta um comportamento ímpar, pois a concentração de magnésio aumentou nas primeiras 500 horas, atingindo então, um valor em torno de 0,04 mMol/L. O comportamento do magnésio está relacionado com a dissolução de minerais ferromagnesianos, defeitos cristalinos, geminações e microfraturas dos materiais estudados.

O comportamento do  $SiO_2$  está ilustrado no diagrama da Figura 4(e), sofrendo em geral, esse óxido redução de concentração de acordo com o tempo de lixiviação.

O urânio apresenta também concentrações que decrescem com o tempo, as quais exibem ligeiras oscilações até o final do experimento (Figura 4(f)). O comportamento do urânio indica a participação de fases

Tabela 4 – Especificação calculada para as amostras MT1 e MT2.

Amostra	Tempo ( h )	Complexos( %)				
		UO <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	UO <sub>2</sub> <sup>+2</sup>	UO <sub>2</sub> ( SO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> <sup>+2</sup>	UO <sub>2</sub> OH <sup>+</sup>	Outros
MT1 01	0	71,8	13,31	8,61		0,28
MT1 02	24	66,76	29,33		3,17	0,74
MT1 03	48	48,59	48,44		2,23	0,74
MT1 04	120	22,84	68,32		8,73	0,11
MT1 05	216	15,66	71,64		12,64	0,06
MT1 06	384	7,59	68,69		23,66	0,06
MT1 07	504	1,57	46,38		81,95	0,1
MT1 08	672	0,89	45,97		53,05	0,09
MT1 09	864	0,64	44,92		54,4	0,04
MT1 10	888	0,76	41,15		52,00	0,09
MT1 11	984	1,6	10,68		87,52	0,2
MT1 12	1176	0,31	29,3		70,41	0,15
MT1 13	1368	0,32	46,75		52,89	0,04
MT1 14	1560	0,35	43,05		56,54	0,06
MT1 15	1728	0,31	43,88		55,75	0,06
MT1 16	1896	0,25	45,06		54,62	0,06
MT1 17	2064	0,37	42,17		57,41	0,05
MT2 01	0	48,34	4,82	46,79		0,05
MT2 02	24	57,76	7,45	34,73		0,06
MT2 03	48	67,62	11,54	20,72		0,12
MT2 04	120	64,36	32,16	2,5		0,98
MT2 05	192	39,4	56,59		3,53	0,48
MT2 06	312	25,65	68,41		5,72	0,22
MT2 07	504	23,34	69,78		6,66	0,22
MT2 08	696	18,92	71,75		9,15	0,18
MT2 09	864	15,66	73,33		10,85	0,16
MT2 10	1032	13	74,25		12,71	0,04
MT2 11	1200	13,32	75,73		11,08	0,07

diferenciadas durante o experimento de dissolução (por exemplo, grãos/aglomerados de uraninita/petchblenda e inclusões de uraninita em outros minerais como albita e piroxênios (Oliveira *et al.* 1983).

Durante o experimento de dissolução das amostras MN1 e ES1, o U<sup>+6</sup> foi complexado pelo carbonato formando dois complexos importantes, UO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub><sup>-2</sup> (geralmente acima de 50% de abundância, e máximo de 88%) e UO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub><sup>-4</sup> (sempre abaixo de 30% de abundância). Apenas após 192 horas (amostra MN1 e 504 amostra ES1), o complexo UO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>) atingiu uma abundância maior que a do complexo

UO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub><sup>-4</sup>. Até 864 horas, a solução efluente da amostra MN1 apresentava-se supersaturada com relação à fase mineral uranofano, situação observada em amostras de água subterrânea coletada de dois poços perfurados no local do albitito (hospedeiro da mineralização); a concentração de urânio nas águas desses poços excedem 250 mMol/L (Carvalho & Perrin, 2001). A importância do complexo UO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>3</sub><sup>-4</sup> é inferior à do complexo UO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub><sup>-2</sup>, nas amostras MN1 e ES1, alcançando abundância de 71-88%, posteriormente são mais importantes os complexos UO<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>), seguidos dos complexos UO<sub>2</sub>(OH)<sub>3</sub><sup>+</sup> UO<sub>2</sub>OH<sup>+</sup>.

**Tabela 5** – Especificação calculada para as amostras MN1 e ES1.

Amostra	Tempo ( h )	Complexos ( % )					
		$UO_2(CO_3)_2^{-2}$	$UO_2(CO_3)_3^{-4}$	$UO_2CO_3$	$UO_2(OH)_3^+$	$UO_2(OH)^+$	Outros
MN1 02	24	81.55	16.68				1.77
MN1 03	48	83.69	14.38				1.93
MN1 04	120	81.75	16.99				1.26
MN1 05	192	76.39		14.94	5.86		2.81
MN1 06	312	27.48		60.14	10.98		1.4
MN1 07	504	22.03		65.25	11.19		1.52
MN1 08	696	58.28		29.76	5.79	5.79	0.38
MN1 09	864	14.01		69.54	14.07		2.38
MN1 10	1032	12.51		69.51		15.34	2.64
MN1 11	1200	8.02		70.21		17.64	4.01
ES1 02	24	72.22	26.74				1.04
ES1 03	48	70.63	28.15				1.22
ES1 04	120	72.00	26.68				1.32
ES1 05	192	81.80	16.37				1.83
ES1 06	312	87.81	6.07				6.12
ES1 07	504	83.29		14.33		1.17	1.21
ES1 08	696	75.19		21.75		1.31	1.04
ES1 09	864	72.24		25.1		1.69	0.97
ES1 10	1032	59.08		37.35		2.93	0.64
ES1 11	1200	54.42		40.85		3.93	0.80

Para a amostra MT1 até 48 horas, o complexo  $UO_2SO_4$  e o íon uranila ( $UO_2^{+2}$ ) foram os mais abundantes. A partir de 48 horas até 384 horas o íon uranila ( $UO_2^{+2}$ ) se tornou cada vez mais abundante, sendo acompanhado pelo crescimento gradual da abundância do complexo  $UO_2OH^+$ , que, a partir de 384 horas até o fim do experimento, se tornou o íon mais abundante, alcançando proporções de mais de 50% dos complexos formados.

Para a amostra MT2, até 48 horas, os complexos  $UO_2SO_4$  e  $UO_2(SO_4)_2^{-2}$  foram os mais abundantes (aproximadamente 90% dos complexos formados), decrescendo em

importância até 192 horas, quanto o íon uranila ( $UO_2^{+2}$ ) passando a se tornar cada vez mais importante até o fim do experimento, pois, alcança proporção de mais de 70% dos complexos formados.

### AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem aos Professores Sergio Nascimento, Osmário Resende Leite e João Batista Texeira, pelas correções sugeridas ao manuscrito. Obrigado muito especial aos dois revisores anônimos, pelas correções, comentários e sugestões de modificações pertinentes.

### REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- ARCANJO, J.B.A. (1999). Projeto Vale do Paramirim: Estado da Bahia. CPRM Salvador, 103 p.
- BRANTLEY, S.L. & CHEN, Y. Chemical Weathering Rates of Pyroxenes and Amphiboles. *Rev. Mineral.* **31**: 119-168.
- CARVALHO, Ilson G. & PERIN, H.M. (2001). Hydrogeochemistry in de U – District of Lagoa Real, Brazil. *Water – Rock Interaction*, Cidu (ed), 2001.

- CHEN, Y. & BRANTLEY, S.L. (1997) Temperature and pH dependence of albite dissolution rate at acid pH. *Chem. Geol.* **135**: 275-292.
- CORDANI, U.G. (1982). Relatório Integrado: Interpretação Geocronológica da Região de Lagoa Real. Convênio USP/NUCLEBRAS, São Paulo.
- COSTA, P.H.O.; ANDRADE, A.R.F. de; LOPES, A.G.; SOUZA, S.L. (1985). Projeto Lagoa Real: Mapeamento Geológico 1:25.000 textos e mapas. vol. 1. Companhia Baiana de Pesquisa Mineral, Salvador.
- DZOMBAK, D.A. & MOREL, F.M.M. (1990). Surface Complexation Modeling; Hydrous Ferric Oxide, Wiley-Interscience, New York.
- GEISEL SOBRINHO, R.; Cláudio, A.J.; BRITO, W.; VASCONCELOS, T. (1980). O Distrito Uranífero de Lagoa Real, Bahia. *In: Congr. Brasil. Geol., Camboriú, 1980.* **1**: 1499-1512.
- GRENTHE, I.; FUGER, J.; KOMINGS, R.J. (1992) Chemical Thermodynamics of Uranium. *In: Chemical Thermodynamics.* NEA. vol. 1. Wonne and Forest eds. Elsevier, Amsterdam.
- HELGESON, H.C.; BROWN, T.H.; LEEPER, R.H. (1969). Handbook of Theoretical Activity Diagrams Depicting Chemical Equilibria in Geologic Systems Involving an Aqueous Phase at 1 Atm and 0°C to 500 °C. Freeman Cooper & Company.
- LOBATO, L.M.; FORMAN, J.M.A.; FUZIKAWA, K.; FYFE, W.S.; KERRICH, R. (1983). Uranium in Overthrust Archean Basement. Bahia, Brazil. *Canad. Mineral.*, **21**: 647-654.
- MARUEJOL, P. (1989). Metasomatose alcaline et mineralisations uranifères: les albitites du gisement de Lagoa Real (Bresil). *Memoires Geologie et Geochimie des Matieres Premieres et Energetiques* n° 18, Paris.
- MORAES, L.C. (1980). Projeto Brumado-Caetité: Mapeamento Geológico. DNPM/CPRM, Salvador.
- OLIVEIRA, A.G.; FUZIKAWA, K.; MOURA, L.A.M.; RAPOSO, C. (1983). Relatório Especial – Provincia Uranífera de Lagoa Real. NUCLEBRÁS, Rio de Janeiro.
- PARKHURST, D.L. & APPELO. C.A.J. (1999). User's Guide to Phreeqc (version 2) – A Computer Program for Speciation, Batch-Reaction, One-Dimensional Transport, and Inverse Geochemical Calculations. U. S. Department of the Interior/U.S. Geological Survey, Denver.
- PRATES, S.P. & FUZIKAWA, K. (1982). Aspectos petrográficos da jazida uranífera de Lagoa da Rabicha, Bahia. Nota Técnica EBH. pm n° 6, Salvador.
- RFAS (2000). Relatório Final de Análise de Segurança. Usina: Processo. vol. 4, NUCLEBRÁS, Rio de Janeiro.
- RAPOSO, C. & MATOS, E.C. (1982). Distrito Uranífero de Lagoa Real – A História de um Exemplo. *An. XXXII Congr. Brasil. Geol., Salvador*, **5**: 2035-2061.
- TOLEDO, M.C.; OLIVEIRA S.M.B.; MELFI, A.S. (2000). Decifrando a Terra. Oficina de Textos, São Paulo.