

# 我国最大古岩溶型铀矿床成因的 同位素地球化学研究<sup>①</sup>

闵茂中<sup>1</sup> 王湘云<sup>1</sup> 沈保培<sup>2</sup> 文光斗<sup>2</sup> 樊涛<sup>2</sup>

(南京大学地球科学系, 南京 210008)

(核工业中南地勘局 303大队, 湖南蓝山 425808)

**提 要** 据对某大型古岩溶型铀矿床中铀-铅同位素体系及硫、碳、氧、氢同位素组成的研究结果, 表明该矿床成矿物质源自矿区众多地层, 成矿流体的变质水和古岩溶水(古大气降水)的混合水; 成矿经历了古岩溶铀淋积富集, 燕山早、晚期构造运动促使两次含铀热水溶液改造、叠加成矿(135~119.65 Ma), 成矿作用与古岩溶和区域地质构造演化密切相关, 属古岩溶型热造铀矿床。

**关键词** 铀矿床 古岩溶 同位素地球化学

**分类号** P 597/P 619. 14

**第一作者简介** 闵茂中 男 53岁 副教授 铀矿床学

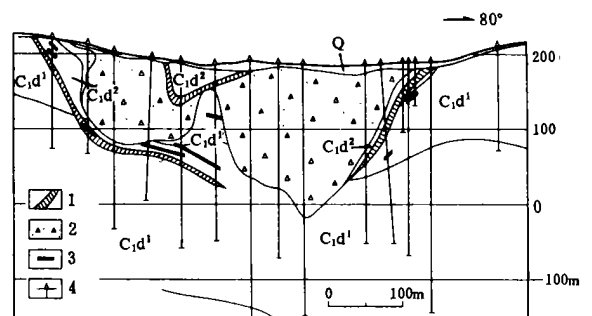
某铀矿床是我国至今发现的规模最大的古岩溶型铀矿床, 以其规模大、铀品位高、类型新、埋深小、矿体集中等显著特点<sup>②</sup>, 受到国内铀矿界关注。限于早期研究测试手段及勘探揭露程度, 前人对该矿床成因认识众说不一, 有挤贯淋积说、热造复成因说、沉积改造说<sup>③</sup>以及古岩溶淋积说<sup>①</sup>等。为了深入揭示该矿床成因, 在该矿床勘探结束并提交储量后, 在核工业中南地勘局动议和资助下, 1992~1994年间立项开展联合研究。本文是其中成果之一。

## 1 矿床地质概况

某铀矿床位于南岭地槽西北缘, 区内泥盆-石炭系碳硅泥岩沉积建造在印支期发生褶皱, 该矿床赋存于一复式向东翼次级背斜倾伏端, 铀矿体产于某印支期岩溶塌积体外缘的断裂-古岩溶复成角砾岩带及其下方层间破碎带中(图1)。成矿围岩为下石炭统大塘皆石磴子段生物屑炭泥质泥岩、白云质灰岩。矿体呈似层状、管状和透镜状。该矿床的宏观-微观古岩溶特征明显。

矿石呈角砾状、微脉浸染状构造; 矿石中铀主要呈微脉(宽0.05~1 mm)浸染状沥青铀矿产出, 少量铀呈吸附状存在于炭泥质中。矿石的矿物组合

较复杂, 金属矿物有沥青铀矿、铀石、针镍矿、锑硫镍矿、黄铜矿、闪锌矿、方铅矿、黄铁矿、镍黄铁矿、辉铜矿、红砷镍矿和硒锑矿等; 非金属矿物有方解石、白云石、绿泥石、粘土矿物等。围岩蚀变不明显, 偶见弱硅化、黄铁矿化、水云母化、碳酸盐化和退化化。成矿温度150~181°C(矿期方解石气液包裹体均一温度)。



1. 断裂-古岩溶复成角砾岩带 2. 印支期岩溶塌积体 3. 铀矿体 4. 钻孔 C<sub>1</sub>d<sub>2</sub>: 下石炭统大塘皆测水段石英粉砂岩 C<sub>1</sub>d<sub>1</sub>: 下石炭统大塘皆石磴子段炭泥质灰岩 Q: 第四系

图1 某古岩溶型铀矿床地质剖面图(据303大队)  
Fig. 1 Geological section of the paleokarst U deposit

国家教委博士点基金和中国科学院矿床地球化学开放研究实验室基金资助项目

收稿日期: 1995-03-29

② 核工业中南地勘局 303大队, X 轴矿床勘探报告, 1990年(内部印制)

③ 引自下列未刊稿: 罗藩烈, 1980, 某铀矿床的控矿条件及矿化特征; 姚振凯等, 1982, 某碳酸盐岩型铀矿床控矿因素探讨; 张振华, 1982, 某铀矿床碳酸盐岩沉积相及其成矿意义探讨

## 2 同位素测定结果及其地质意义讨论

### 2.1 成矿时代

表 1 列出了该矿床铀成矿的 U-Pb 同位素年龄测定结果,可见铀成矿年龄段为 135~ 119 Ma(早白垩世)和 65 Ma(早第三纪),分别与燕山早、晚期构造运动时间相对应(稍滞后),也与该区域白垩-第三纪陆相红层中的不整合面形成期相接近。该矿区外围分布有多个 K-E 陆相红盆的风化残迹

表 1 铀成矿 U-Pb 同位素年龄测定结果

Table 1 U-Pb isotopic ages of the U deposit

序号	样号	取样位置	矿体号	测定对象	年龄 (× 10 <sup>6</sup> a)
1	79222	ZK116-5孔, 234m处	0-1	沥青铀矿	135± 2. 0
2					119± 1. 9
3	89- 26	ZK109-8孔, 181m处	I -2		65± 1. 8
4	91- 15	ZK212-7孔, 137m处	II - 1	矿石(全岩)	13± 1. 9
5	91- 34	ZK218-3孔, 241m处	0- 1		13± 1. 9
6	91- 26	ZK110-8孔, 118m处	I -6		13± 1. 9
7	91- 31	ZK222-1孔, 280m处	0-1		13± 1. 9
8	91- 69	V号带地表			13± 1. 9
9	D <sub>2</sub> -263	ZK110-10孔, 200m处	I -3		13± 1. 9

① 据姚振凯等 (1975) 资料, 采样位置不详。所有样品均由核工业北京地质研究院同位素年龄室测定。

该矿床矿岩时差达 205~ 275 Ma(下石炭统地层成岩年龄按 340 Ma 计),可见铀成矿时间远晚于成矿围岩形成,属后成矿床。

### 2.2 成矿物质来源

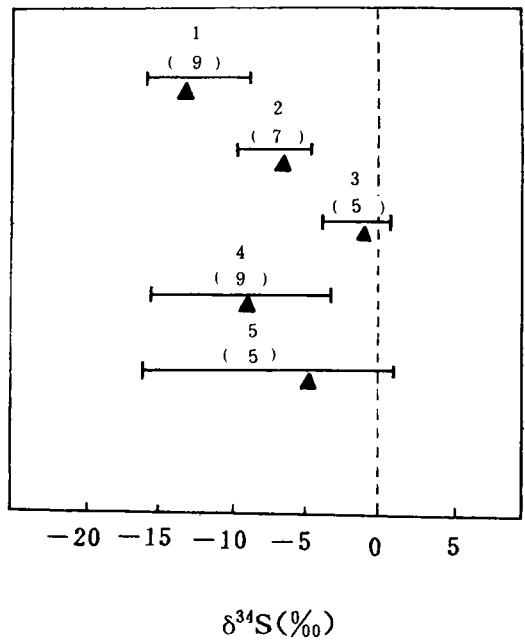
#### 2.2.1 硫

该矿床中 35个不同产状黄铁矿样品的硫同位素成分测定结果示于图 2 由此可得出以下认识: ① 矿石中脉状黄铁矿和围岩中成岩型黄铁矿的  $\delta^{34}S$  值除个别为低正值外 (+ 1. 00‰), 其余均为负值 (0‰~ - 15. 6‰), 即富轻硫 ( $^{34}S$ ), 这是生物成因硫的重要特征, 矿石和围岩中出现草莓状黄铁矿即是佐证; ② 矿石中脉状黄铁矿的  $\delta^{34}S = 1. 00‰ \sim - 15. 30‰$  (均值 - 6. 8‰), 与围岩中成岩型黄铁矿的硫同位素成分 ( $\delta^{34}S = 1. 00‰ \sim - 15. 60‰$ , 均值 - 7. 06‰) 基本相同, 表明矿石中硫由围岩中成岩型黄铁矿在无外来硫源加入情况下改造而成; ③ 矿石中黄铁矿的  $\delta^{34}S$  值由矿前期 (- 8. 30‰~ - 15. 50‰, 均值 - 11. 90‰), 成矿期 (- 4. 50‰~ - 9. 50‰, 均值 - 6. 50‰) 向矿后期 (1. 00‰~ - 4. 10‰, 均值 - 1. 00‰) 逐渐增大 (图 2), 表

明从矿前期至矿后期, 成矿溶液中还原古海水中硫酸盐的厌氧细菌活动逐渐减弱<sup>[2]</sup>, 或因成矿溶液由成矿早期至晚期, 其温度、氧逸度逐渐变化, 使从中析出的硫化物逐渐富<sup>34</sup>S 后一种情况均多见于国内外其它矿床中<sup>[3,4]</sup>。

#### 2.2.2 碳

成矿围岩(全岩)的  $\delta^{13}C$  测定值分别为 (7个样品): 3. 30 2. 13 2. 02 - 0. 31 - 0. 46 - 1. 21 和 - 1. 76‰ (均值 0. 53‰), 具典型海相碳酸盐岩的碳同位素组成特征。角砾状矿石中 5个成矿期脉状方解石样品的  $\delta^{13}C$  测定值为 0. 34 - 0. 47 - 1. 18 - 3. 00 和 - 3. 19‰ (均值 - 1. 15‰), 它主要继承了成矿围岩的碳同位素成分, 表明成矿溶液中的碳主要就地成矿围岩中汲取



1. 矿前期黄铁矿 2. 成矿期黄铁矿 3. 矿后期黄铁矿  
4. 无矿角砾岩中黄铁矿 5. 未角砾化灰岩中黄铁矿  
括号内为分析样品数; 黑三角指示  $\delta^{34}S$  平均值  
图 2 不同产状黄铁矿的硫同位素成分

Fig. 2 Sulfur isotopic ratios of pyrites with different occurrence

#### 2.2.3 铅

矿石中黄铁矿和矿区各地层的铅同位素组成分析结果列于表 2 将 9组数据投影至  $^{207}Pb / ^{204}Pb \sim ^{206}Pb / ^{204}Pb$  坐标图上, 投影点均位于零年等时线右侧 (图 3), 属异常铅。对 9组数据作回归分析处理后显示, 地层铅和矿石铅一起构成良好的线性关系, 充分表明它们具同一铅源, 且矿石铅源于各地层铅

#### 2.2.4 铀

该矿区内无火成岩体出露, 钻孔中偶见个别脉岩。矿区各地层平均铀含量为  $4.3 \times 10^{-6}$  (表 3), 接近或略高于陆壳相应岩石中的铀均值 ( $2.8 \times 10^{-6} \sim 4.0 \times 10^{-6}$ )。为了查明成矿铀的源岩, 研究了该矿区各地层的铀-铅同位素体系, 进而按有关公式计算了各岩层形成时的原始铀含量 ( $U_0$ , 表 3) 结果表明: ① 所有样品的铀-铅同位素组成表现为不平衡关系, 呈现了以铀丢失为主的活化改造场特征; ② 该矿区不存在特定的富铀地层。若考虑到该矿床受古岩溶塌陷系统控制这一特殊地质环境, 较远岩层中的地下水也可汇集至此, 在漫长的地质年代中, 矿

区各岩层均可藉此为矿床形成提供铀源: 假设岩层平均铀含量为  $4 \times 10^{-6}$ , 铀浸出率平均为 20%, 岩石体重为  $2.5 \text{ g/cm}^3$ , 风化速率为  $5 \times 10^{-5} \text{ m/a}^{[5]}$ , 汇水区面积为  $2 \text{ km}^2$ , 则储量为 3 000t 的铀矿床只需要体积为  $2 \text{ km}^2 \times 750 \text{ m}$  (厚) 的岩层在 15 Ma 间由地下水、地表水缓慢浸出的铀量即可提供; ③ 成矿围岩石磴子段炭泥质灰岩的原始铀含量不很高, 该类富含炭、泥、黄铁矿的岩层主要起储铀层作用, 其次起部分铀源层作用。

### 2.3 成矿流体的来源和性质

表 2 矿石中黄铁矿和矿区下石炭统地层的铅同位素组成

Table 2 Lead isotopic compositions of pyrites from the ores and whole-rocks of Lower Carboniferous

样号	样品产状 性质	铅同全素组成 (%)				U ( $10^{-6}$ )	Pb ( $10^{-6}$ )	$\frac{206\text{Pb}}{204\text{Pb}}$	$\frac{207\text{Pb}}{204\text{Pb}}$	$\frac{208\text{Pb}}{204\text{Pb}}$
		$^{206}\text{Pb}$	$^{207}\text{Pb}$	$^{208}\text{Pb}$	$^{204}\text{Pb}$					
B-52	岩关皆上段泥灰岩 (全岩)	25.23	21.21	52.21	1.35	5.3	15.41	18.69	15.71	38.67
B-53	石磴子段微晶灰岩 (全岩)	25.11	21.24	52.30	1.35	3.1	19.04	18.60	15.73	38.74
B-54	石磴子段炭泥质灰岩 (全岩)	25.06	21.25	52.36	1.34	3.6	25.18	18.70	15.86	39.08
B-55	石磴子段生物屑页岩 (全岩)	25.00	21.26	52.40	1.35	4.5	27.23	18.52	15.75	38.82
B-56	梓门桥段白云岩 (全岩)	24.96	21.26	52.42	1.35	3.5	13.65	18.51	15.75	38.82
B-57	测水段炭质页岩 (全岩)	25.00	21.24	52.41	1.35	4.4	14.07	18.52	15.73	38.81
B-58	角砾状富矿石中黄铁矿	26.57	22.15	49.87	1.41	100	212.84	18.84	15.71	35.37
B-59	角砾状富矿石中黄铁矿	24.97	20.80	52.91	1.32	86	98.48	18.90	15.76	40.08
B-60	细脉浸染状富矿石 (全岩)	25.02	21.28	52.36	1.36	0.3%	678.12	18.78	15.72	38.70

测定者: 核工业北京地质研究院; 质谱法分析结果

表 3 矿区各石炭系地层 (全岩) 的铀-铅同位素组成

Table 3 U-Pb isotopic compositions of the Carboniferous in the U ore field

样号	层位及岩性	U ( $10^{-6}$ )	Pb ( $10^{-6}$ )	铅同全素组成 (%)				$\frac{206\text{Pb}}{204\text{Pb}}$	$\frac{207\text{Pb}}{204\text{Pb}}$	$\frac{208\text{Pb}}{204\text{Pb}}$	原始铀含量 ( $U_0, 10^{-6}$ )	$\Delta U$ (%)
				$^{206}\text{Pb}$	$^{207}\text{Pb}$	$^{208}\text{Pb}$	$^{204}\text{Pb}$					
B-51	岩关皆下段泥晶灰岩	4.3	17.36	26.09	21.00	51.62	1.30	20.07	16.15	39.71	6.2	-30.6
B-52	岩关皆上段泥灰岩	5.2	15.41	25.23	21.52	21.52	1.35	18.69	15.71	38.67	7.8	-33.3
B-53	石磴子段微晶灰岩	3.1	19.04	25.11	21.24	52.30	1.35	18.60	15.73	38.74	4.8	-35.4
B-54	石磴子段炭泥质灰岩	3.6	25.18	25.06	21.25	52.36	1.34	18.70	15.86	39.08	5.1	-29.4
B-55	石磴子段生物屑页岩	4.5	27.23	25.00	21.26	52.40	1.35	18.52	15.75	38.82	6.7	-32.8
B-56	测水段炭质页岩	4.4	14.07	25.00	21.24	52.41	1.35	18.52	15.73	38.82	5.2	-15.4
B-57	梓门桥段白云岩	3.5	13.65	24.96	21.26	52.42	1.35	18.51	15.75	38.82	4.1	-14.6
B-58	壶天群白云岩	3.3	11.35	25.42	21.75	52.11	1.31	19.41	16.16	39.78	4.0	-17.5

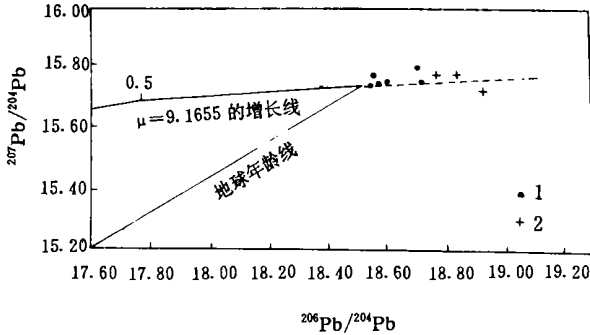
测定者: 核工业北京地质研究院; 质谱法测定结果

据对矿期脉状方解石包裹体水中氢、氧同位素成分分析结果 (表 4), 成矿溶液的  $\delta^{18}\text{O} = 1.53\text{‰} \sim 7.38\text{‰}$ ,  $\delta\text{D} = -30.43\text{‰} \sim -84.86\text{‰}$ ; 将 7 组数据投影至图 4 上, 投影点落在围岩建造水和变质水范围内, 实际上为古岩溶水 (古大气降水) 和构造变质水的混合水。在由断裂活动造成的动力变质过

程中, 成矿围岩强烈挤压破碎, 岩石片理化、糜棱化, 有机碳变为石墨、半石墨, 使受挤压岩石析水。此外, 成矿溶液  $\delta^{18}\text{O}$  值由矿化早期至晚期, 随成矿温度降低而变小, 表明成矿晚期地下水渗和作用加剧。

据矿物包裹体测温、包裹体溶液成分分析和热

力学计算结果, 该矿床成矿流体的性质为:  $181\sim 150^{\circ}\text{C}$ ,  $\text{pH}= 8.12\sim 8.20$ ,  $E_h(180^{\circ}\text{C}) = -0.63\sim -0.98$ ,  $\Sigma U = 3.5\times 10^{-5}$ ,  $\text{HCO}_3^- = 21.36\times 10^{-6}\sim 29.44\times 10^{-6}$ ,  $\text{SO}_4^{2-} = 3.07\times 10^{-6}\sim 6.10\times 10^{-6}$ ,  $\text{CO}_2 = 1.79\sim 3.80\text{ ml}/100\text{ g}$  成矿流体中铀的运移形式基本为  $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$  ( $> 99\%$ )



1. 地层铅 2. 矿石铅

图 3 矿石铅和地层铅的  $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}\sim^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  坐标图

Fig. 3  $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}\sim^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$  plot of ores and strata

表 4 成矿期脉状方解石包裹体溶液的氢氧同位素组成

Table 4 Hydrogen and Oxygen isotopic compositions of the inclusion solution in calcites from the ores

样号	产状	均一温度 ( $^{\circ}\text{C}$ )	$\delta^{18}\text{O}$ 矿物 ( $\text{‰}$ , SMOW)	$\delta^{18}\text{O}$ ( $\text{‰}$ , SMOW)	$\delta\text{D}$ ( $\text{‰}$ )
B-1	成矿早期	181 (3) <sup>①</sup>	15.94	5.81	-38.60
B-3	成矿早期	178 (3)	17.66	7.38	-30.43
B-6	成矿早期	180 (4)	13.65	3.49	-54.76
B-2	成矿期	172 (4)	14.66	5.55	-36.54
B-4	成矿期	168 (2)	16.38	5.47	-84.86
B-5	成矿期	155 (1)	16.90	5.11	-78.02
B-9	成矿晚期	150 (3)	18.67	1.53	-48.31

① 括号内为测定样品数。分析者: 南京大学地科系实验室质谱组

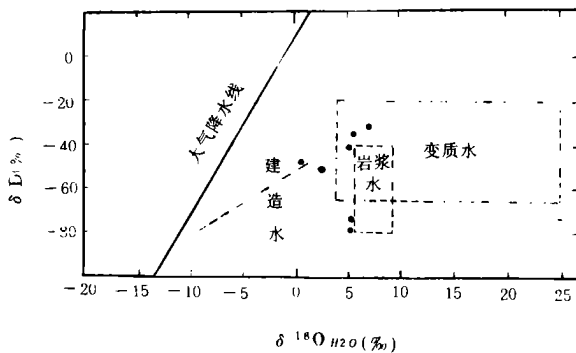


图 4 某铀矿床成矿水性质的投影图

(仿 Sheppard, 1986)<sup>[4]</sup>

Fig. 4 Plot of hydrogen and oxygen isotopic compositions on  $\delta\text{D}-\delta^{18}\text{O}$  diagram for the U deposit

### 3 成矿模式

印支期构造运动使该矿区晚古生代地层褶皱, 形成复向斜及次级背斜; 印支期岩溶沿次级背斜倾伏转折端的岩层断裂破碎带发育, 致使碳酸盐岩部分溶塌, 并伴生溶塌体周围的环状张性断裂; 继之沿诸环形断裂发育古岩溶, 使古岩溶系统中的炭泥质(富含黄铁矿)吸附地下水中铀, 局部富集可达工业品位; 燕山早期构造运动不仅复活改造原环形断裂, 而且又在该矿区产生多组新华夏系断裂, 岩层普遍不同程度片理化。这样, 一方面可沿新断裂破碎带继续发生古岩溶和铀的吸附, 局部富集, 另一方面, 由地热、构造热加温的变质水、深部地下水, 在其深循环和向浅部运移过程中, 广泛发生水-岩反应, 汲取围岩和炭泥质中的成矿物质, 生成含铀热水溶液; 当后者运移至浅部角砾岩带、层间破碎带等有利部位, 因温压降低或遇冷岩溶水(大气降水), 其中铀酰碳酸盐络合物解体, 析出沥青铀矿, 即第一次热水叠造铀成矿作用(135~119 Ma); 燕山晚期构造运动再次造成该矿床的热造铀成矿作用(65 Ma), 形成该大型、高品位古岩溶型热造铀矿床, 它有别于古岩溶(淋积)铀矿床。含铀上升变质热水与古岩溶地下水混合, 对该铀矿床矿质沉淀起有重要作用<sup>[6,7]</sup>

本研究得到核工业中南地勘局以及所属 303 大队的指导、支持, 特致谢忱。

### 参 考 文 献

- [1] 刘立钧. 387地洼型古岩溶铀矿床成因探讨. 铀矿地质, 1985, 1(6): 1~10.
- [2] Shelton K L and Rye D M. Sulfur isotopic compositions of ores from mines Cape, Quebec: an example of sulfate-sulfide isotopic disequilibria in ore-forming fluids with applications to other porphyry-type deposits, Economic Geology, 1982, 77: 1688~1709.
- [3] 刘裕庆等. 德兴斑岩铜(钼)矿田硫同位素地质特征初步研究. 中国地质科学院矿床地质研究所刊(第1号), 1982, 58~65.
- [4] Sheppard S M F. Characterization and isotopic variations in natural waters. Rev Mineralogy, 1986, 16: 165~183.
- [5] El Sharkawi W A, El Aref M M and Motelib A A. Manganese deposits in a Carboniferous paleokarst profile, Um Bogma Region, West-central Sinai, Egypt, Mineralium Deposita, 1990, 25: 34~43.
- [6] Olson R A. Genesis of paleokarst and strata-bound zinc-lead

sulfide deposits in a Proterozoic dolostone. Northern Baffin Island, Canada, *Economic Geology*, 1984, 79: 1056-1103.

eralized solution breccia. *Economic Geology*, 1989, 84: 274-190.

[7] Wallace A R. The relief canyon gold deposit, Nevada: a min-

## Isotopic Geochemistry of Metallogeny for the Largest Paleokarst Uranium Deposit in China

*Min Maozhong*<sup>1</sup> *Wang Xiangyun*<sup>1</sup> *Shen Baopei*<sup>2</sup> *Wen Guangdou*<sup>3</sup> and *Fan Tao*<sup>2</sup>

<sup>1</sup> (Department of Earth Sciences, Nanjing University, Nanjing 210008)

<sup>2</sup> (No. 303 Geological Party, Bureau of Geology and Exploration of Central-South China, Hunan 425808)

### Abstract

A uranium deposit is the largest paleokarst type U deposit in both scale and tonnage in China. The deposit is formed below a fossil cave and in a faulting-solution breccia system in the Lower Carboniferous limestone. The temperature of mineralizing fluids ranges from 181°C to 150°C. Four U-Pb ages for pitchblende and whole-rock ores, 135, 131, 119 and 65 Ma, have been determined, which are obviously younger than those of the wall rocks. Sulfur isotope data show that the  $\delta^{34}\text{S}$  values of pyrites from the ores range from 1.00‰ to -15.30‰ with a mean value of -6.87‰, close to those of pyrites from the wall rocks (1.00‰ ~ -15.60‰, mean -7.06‰), suggesting that the wall rocks are the source of sulfur for mineralization. The five analyzed samples of calcites from the ores have  $\delta^{13}\text{C}$  values between 0.34‰ and -3.19‰ (mean -1.50‰). The similarity between the average carbon isotope composition of the ores (-1.50‰) and the wall rocks (0.53‰) is interpreted to result from an isotope exchange between the wall rock and mineralizing fluid. The lead isotope composition of pyrites from the ores and whole-rock of Lower Carboniferous suggests that the source of lead and uranium in the deposit is various in strata of the ore field. The values of  $\delta^{18}\text{O}$  and  $\delta\text{D}$  for mineralizing fluids range from 1.5‰ to 7.3‰ and from -30.4‰ to -84.9‰, respectively, indicating that the mineralizing fluid is a mixed water of metamorphic and meteoric waters. The mineralizing process is closely related to development history of regional tectonic movements and multi-episode paleokarstification. Thus, it is named as hydrothermal reworked paleokarst-type uranium deposit.

**Key Words** uranium ore deposit paleokarst isotope geochemistry