

# 陕西华阳川铀钍矿床中铀矿物的年代学与矿物化学研究及其对铀成矿的启示

高龙刚<sup>1, 2)</sup>, 陈佑纬<sup>1)</sup>, 毕献武<sup>1)</sup>, 胡瑞忠<sup>1)</sup>, 高成<sup>3)</sup>, 董少花<sup>1)</sup>, 骆金诚<sup>1)</sup>

1) 中国科学院地球化学研究所, 矿床地球化学国家重点实验室, 贵阳, 550081;

2) 中国科学院大学, 北京 100049; 3) 中陕核工业集团二二四大队有限公司, 西安, 710024

**内容提要:**本文在详细的野外地质工作基础上, 利用场发射扫描电镜(FE-SEM)结合能谱分析(EDS)与电子探针分析(EMPA)等手段对华阳川铀钍矿床中主要铀矿物的种类、共生组合关系及铀矿物的矿物化学与年代学开展了详细的研究工作。研究成果显示, 铀主要以铀钍铀矿的形式产出, 其次为晶质铀矿。晶质铀矿的矿物化学和电子探针年代学研究结果显示, 矿床中存在两期晶质铀矿年龄, 早期晶质铀矿的化学年龄为~201 Ma(印支期-燕山期之交), 形成于岩浆-高温热液体系, 并伴随大量早期蚀变的铀钍铀矿产出, 为矿床形成的主要成矿期; 晚期晶质铀矿的化学年龄为~129 Ma(燕山期), 形成于高温热液体系, 与少量未蚀变的铀钍铀矿产出, 仅占次要地位, 可能是区域内强烈的燕山期岩浆热液交代早期铀钍铀矿后, 淋滤出的铀再次沉淀的结果。结合区域地质关系, 认为早期的铀成矿可能主要与(霓辉石)黑云母方解石碳酸岩脉有成因联系, 是矿床形成的重要时期; 晚期的铀矿物可能只是区域内燕山期的岩浆热液交代早期铀钍铀矿后, 铀被淋滤带出后再次在有利部位沉淀的结果。因此, 华阳川铀钍矿床可能是一个主要形成于印支期-燕山期之交, 并被燕山期岩浆活动(叠加)改造的与碳酸岩脉有关的铀钍矿床。

**关键词:** 铀钍矿床; 铀钍铀矿; 晶质铀矿; 矿物化学; 年代学; 华阳川

秦岭造山带是我国中部极为重要的构造单元(Zhang Guowei et al., 1995, 1996, 2001; Dong Yunpeng et al., 2011, 2016), 不仅是我国金、钼等战略性矿产资源的重要矿集区(Mao Jingwen et al., 2005; Li Houmin et al., 2007; Li Nuo et al., 2007), 还是我国重要的铀成矿带(Liu Xingzhong et al., 1990; Zhang Jindai et al., 2012; Cai Yuqi et al., 2015; Zhu Pengfei et al., 2018)。华阳川铀矿床位于秦岭东部地区, 是一个以铀钍铀矿为主的大型铀、钍多金属矿床, 具有“规模大, 品位低, 矿种多, 易开采, 潜力大”等特征(Wang Jiangbo et al., 2013; Hui Xiaochao et al., 2017), 是我国秦岭地区最重要的铀多金属矿床之一。但由于经济价值和技术条件的限制, 以往对该矿床的研究较少, 且多集中于其岩石特征、矿石类型与产出特征以及铀的赋存状态等表现

特征研究(Yu Xuehui et al., 1992a; Hui Xiaochao et al., 2014, 2017; Gao Cheng et al., 2015, 2017; Wu Cuilian et al., 2015; He Sheng et al., 2016; Kang Qingqing et al., 2018), 而对该矿床的形成时代及成因等成矿机理方面的研究不够深入, 这极大地阻碍了对该类型矿床的成因认识以及该矿床的找矿勘查。近些年, 随着核能工业的迅猛发展, 铀资源供需关系矛盾日益加剧(IAEA, 2015; NEA-IAEA, 2016)以及难溶铀矿物浸取实验的进步(McMaster et al., 2017; Nettleton et al., 2015), 使得传统上不经济、不易浸取的潜在铀资源(如铀钍铀矿、钍铀矿等)越来越受到重视(McMaster et al., 2015, 2017; Gilligan et al., 2017), 因此, 本次研究拟以华阳川矿床中的铀矿物为研究对象, 开展系统的年代学和矿物化学工作, 探讨该矿床的成矿时代, 揭示华阳川铀

注: 本文为国家自然科学基金项目(编号: 41473049, 41103027)资助的成果。

收稿日期: 2018-10-14; 改回日期: 2019-04-09; 网络发表日期: 2019-09-12; 责任编辑: 李曼。

作者简介: 高龙刚, 男, 1995年生, 硕士研究生, 主要从事铀钍矿床地球化学研究。Email: gaolonggang@mail.gyig.ac.cn。通讯作者: 陈佑纬, 男, 1983年生, 副研究员, 主要从事铀钍矿床地球化学研究。Email: chenyouwei@mail.gyig.ac.cn。

引用本文: 高龙刚, 陈佑纬, 毕献武, 胡瑞忠, 高成, 董少花, 骆金诚. 2019. 陕西华阳川铀钍矿床中铀矿物的年代学与矿物化学研究及其对铀成矿的启示. 地质学报, 93(9): 2273~2291. doi: 10.19762/j.cnki.dizhixuebao.2019203.

Gao Longgang, Chen Youwei, Bi Xianwu, Hu Ruizhong, Gao Cheng, Dong Shaohua, Luo Jincheng. 2019. Chronology and mineral chemistry of the uranium minerals in Huayangchuan uranium-niobium deposit, Shaanxi Province and its implications for uranium mineralization. Acta Geologica Sinica, 93(9): 2273~2291.

矿床的形成机理,为该区的找矿工作提供依据。

## 1 矿床产出地质背景及样品描述

### 1.1 矿床产出地质背景

华阳川铀矿床地处华北板块南缘太华断隆区。矿床夹持于北部的太要断裂与南部的小河断裂、青岗坪-金堆城断裂之间,受近东西向的加里东期华阳川韧性剪切带(Guo Wei et al., 2008)控制,矿区出露地层主要为太古宇太华群黑云斜长片麻岩。区内岩浆岩有晚三叠世(Qiu Jiexiang et al., 1993)火成碳酸岩脉(Yu Xuehui et al., 1992a; Qiu Jiexiang et al., 1993; Wang Linjun et al., 2011)、印支-燕山期老牛山花岗岩体(Ding Lixue et al., 2011; Qi Qiuju et al., 2012)、燕山期华山花岗岩体(Guo Bo et al., 2009)及多条未明时代的花岗斑岩和花岗伟晶岩脉等(Hui Xiaochao, 2014)。火成碳酸岩脉沿太华群片麻岩中的片麻理贯入,其展布严格受华阳川断裂带控制(图1)。

### 1.2 样品特征

野外地质工作表明,华阳川矿区的铀矿石的产出状态按赋矿岩性及围岩的不同,主要分为以下三类(表1):①以黑云母(霓辉石-重晶石)方解石碳酸

岩杂脉的形式产于太华群片麻岩中(图2a,图2b),局部见正长(方解石-钡天青石)伟晶岩脉,是矿区最主要的矿石来源。矿石中见黑云母呈团块状集合体产出,部分区域可见团簇状的霓辉石构成的脉状集合体,偶见黄铁矿与黑云母伴生。铀矿物颗粒较细,呈分散状产出,肉眼难见铀矿物,可见方铅矿呈细脉状充填于碳酸岩脉裂隙中,局部见正长(方解石-钡天青石)伟晶岩脉型矿石。较纯的方解石脉中铀矿化较弱,未风化的碳酸岩脉呈现灰白色与淡粉色。②少数铀矿化发育于碳酸岩与太华群片麻岩的接触带中(图2c),这类铀矿石手标本呈灰黑色,常伴随重晶石等矿物产出,仅占次要地位。③矿区部分花岗片麻岩片麻理中伴有微弱的细脉状铀矿化(图2d),常见铀矿脉交代黑云母后,充填于片麻理疏松的交代熔蚀孔隙中,伴有褐帘石化与钾化,暗示铀矿化的时代晚于花岗片麻岩。

本文系统分析了取自上述三种不同的矿石类型的9件样品,采样位置见(图1c)。华阳川的8件样品为钻孔样与矿洞样;华阳川矿区外围草坪沟铀矿点的1件样品为地表样,采自矿区西北方向约5km处山顶,矿石特征与华阳川的片麻岩型矿石相似。

表1 华阳川铀矿石分类

Table 1 Classification of uranium ores in Huayangchuan deposit

类别	第一类		第二类		第三类
矿石类型	黑云母(霓辉石-重晶石) 方解石 碳酸岩杂脉	局部正长-方解石- 钡天青石伟晶岩脉型	变质岩裂隙细脉型		花岗片麻岩裂隙细脉型
采样位置	华阳川矿区		华阳川矿区	草坪沟矿点	华阳川矿区
样品编号	17HD-13、17H07-26、 17H07-28、17H07-221		17HH-17		17H56-02
手标本特征描述	铀矿物颗粒较细,呈分散状产出,肉眼少见,黑云母呈团块状集合体产出,部分区域可见团簇状霓辉石,偶见黄铁矿与黑云母伴生,方铅矿呈细脉状充填于碳酸岩脉裂隙中	主要见钡天青石、方解石、长石,铀矿物少见	铀矿石手标本呈灰黑色,常伴随重晶石等矿物产出		部分花岗片麻岩片麻理中伴有微弱的细脉状铀矿化,常见铀矿脉交代黑云母后,充填于被交代的片麻理熔蚀孔隙中,伴有褐帘石化与钾化
产状	以碳酸岩杂岩脉形式产于太华群片麻岩中(主要)	以脉状或透镜状产于太华群围岩中(次要)	以脉状产于太华群片麻理中(次要)		以细脉状产于花岗片麻岩片麻理中(微弱矿化)
样品类别	钻孔样、矿洞样			地表样	钻孔样

## 2 分析方法

样品的光学显微镜鉴定、扫描电镜背散射(BSE)拍照与能谱分析工作均在中国科学院地球化学研究所矿床地球化学国家重点实验室的场发射扫描电镜实验室完成。场发射扫描电镜(FE-SEM)为日本电子(JEOL)生产,型号JSM-7800F,能谱仪为英国牛津公司生产,型号为EDAX TEAM Apollo

XL。实验条件:加速电压20kV,电流10nA,工作距离10mm。晶质铀矿电子探针分析工作在中国冶金地质总局山东局分析测试中心完成,电子探针显微分析仪(EPMA)为日本电子(JEOL)生产,仪器型号JXA8230。实验条件:加速电压15kV,电流20nA,工作距离11.3mm,束斑直径1~5 $\mu$ m,主量元素(含量大于1%):峰值积分时间20s,背景积分时间10s;次量及微量元素(含量小于1%)峰值积分时间40s,

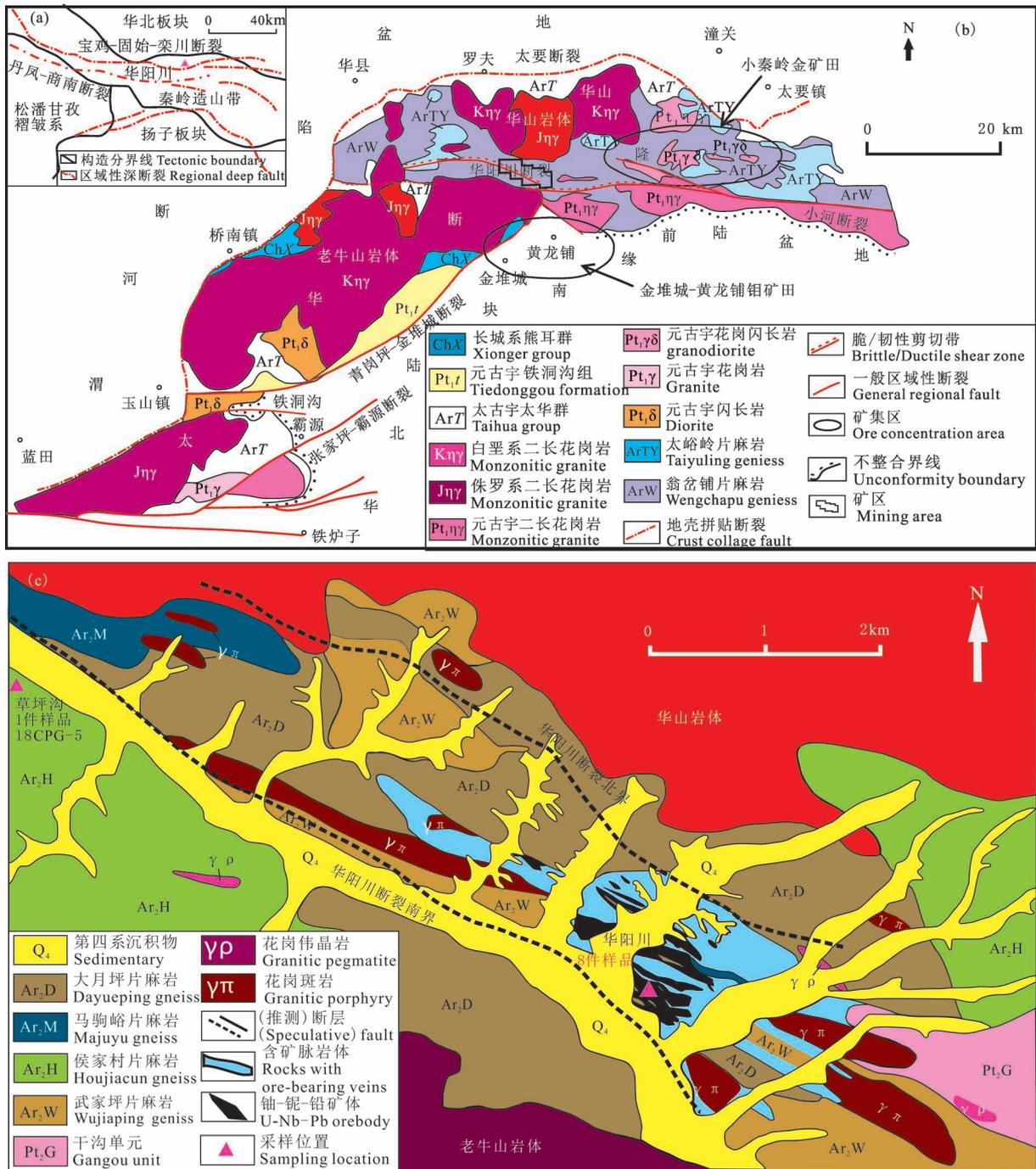


图 1 华阳川铀钼矿床地质简图(据高成等, 2017 修改)

Fig 1 Geologic map of the Huayangchuan uranium-niobium deposit (modified after Gao Cheng et al. , 2017)

(a)—秦岭造山带构造简图; (b)—研究区区域地质简图; (c)—华阳川铀钼矿床地质图

(a)—Simplified tectonic map of the Qinling orogenic belt; (b)—simplified geological map of the study area;

(c)—geological map of the Huayangchuan uranium-niobium deposit (modified after Gao Cheng et al. , 2017)

背景积分时间 20s, 采用 ZAF 法校正。标准样品选用 SPI Supplies(USA) 矿物标准、金属标准和中国国家标准样品 GSB; Si、Na 标样为硬玉, Al 标样为斜长石 (An<sub>65</sub>), Ca 标样为透辉石, Fe 标样为赤铁矿, Mn 标样为蔷薇辉石, Mg 标样为橄榄石, Ti 标

样为金红石, U 标样为纯度 99.7% 的金属铀片 (Johnson Matthey Chemicals, UK), Y 标样为钇铝石榴石, Ce 标样为独居石, Th 标样为纯度 99.5% 的金属钍片 (Goodfellow Inc. , USA), Pb 标样为方铅矿, Nb 标样为纯度 99.96% 的金属铌丝 (Alfa

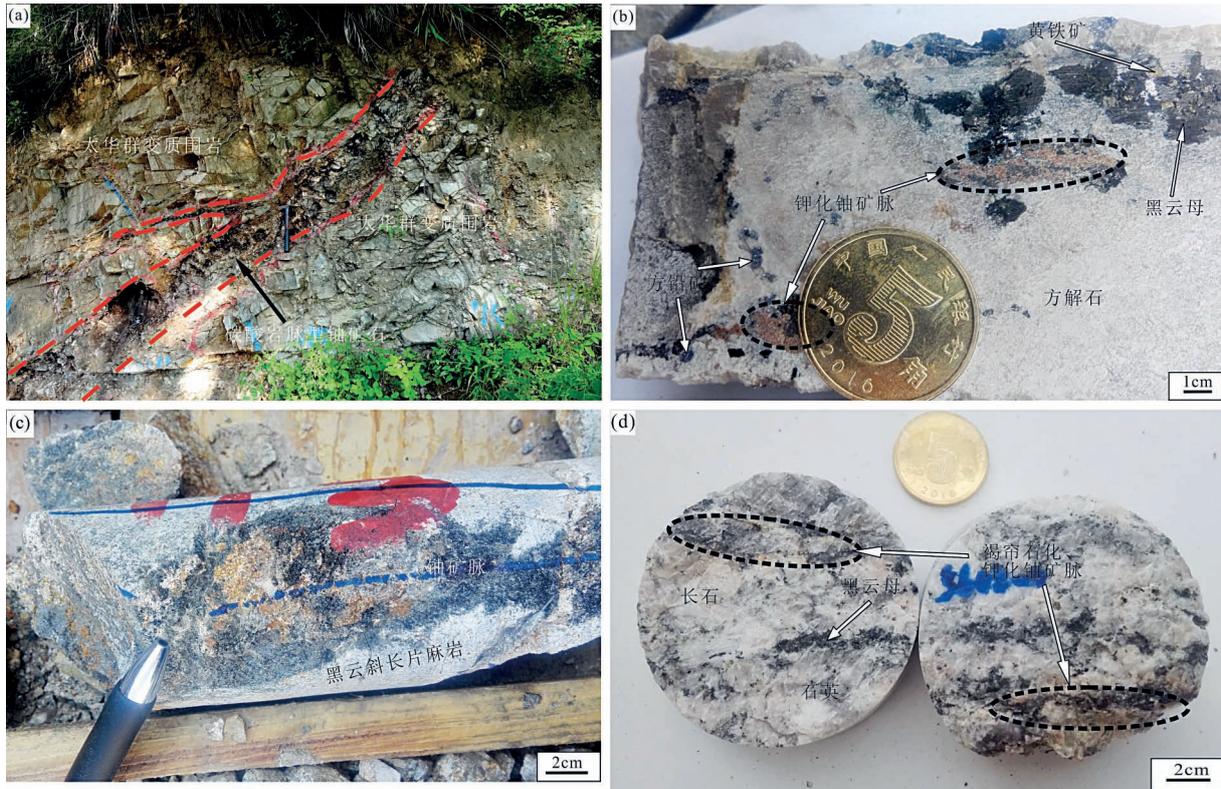


图2 华阳川富铀矿石照片

Fig. 2 Photographs of the studied uranium-rich showings on the Huayangchuan

- (a)—(石英)方解石碳酸岩脉野外露头,部分区域(含黑云母)石英伟晶岩;(b)—黑云方解石碳酸岩中发育钾化铀矿脉;  
(c)—黑云斜长片麻岩裂隙中发育铀矿脉;(d)—花岗片麻岩发育热液铀矿脉
- (a)—(Quartz) calcite carbonatitic veins outcrop, part of the area is associated with (biotite) quartz pegmatite;  
(b)—uranium veins in biotite calcite carbonatite (sövite) associated with potassic alteration; (c)—uranium veins associated with biotite plagioclase gneiss; (d)—granitic gneiss develops hydrothermal uranium veins

Aesar, USA)。

### 3 分析结果

#### 3.1 主要含铀矿物产出特征

光学显微镜结合扫描电镜矿物学特征与能谱分析结果显示,矿床中铀主要以铌钽铀矿[矿物式: $(Ca,U)_2(Ti,Nb,Ta)_2O_7$  (McMaster et al., 2017)]形式产出,存在多种不同的铀矿组合形式:

(1)黑云母(霓辉石)方解石碳酸岩脉型矿石中,黑云母熔蚀边缘或方解石颗粒间隙中,见铌钽铀矿-褐帘石-独居石-磷灰石等矿物组合(图3a),部分铌钽铀矿与黑云母一同产于方解石颗粒的裂隙间(图3b)。背散射结合能谱研究发现,晶质铀矿与铌钽铀矿(能谱特征见图5)、褐帘石具有紧密的空间关系,充填于霓辉石与方解石裂隙之中(图4a)。铌钽铀矿呈他形粒状产出,其内部亮暗程度不一,普遍发生了强烈的后期热液蚀变,边缘被熔蚀,在其颗粒边缘与晶质铀矿内部常充填晚期长白矿[矿物式:

$PbNb_2O_6$  (通化地质和吉林地质所, 1978)](图4b)。样品中至少存在两类不同产状的晶质铀矿,第一类晶质铀矿晶型较好,粒径在 $100\ \mu\text{m}$ 左右(图4c),少见。BSE图像显示,晶质铀矿颗粒内部可见灰黑色(DGZ)与灰白色(WGZ)两个区域,暗示两区域的晶质铀矿在成分上存在差异。第二类晶质铀矿呈细小的粒状分散于蚀变的铌钽铀矿的熔蚀边缘,粒径常 $<10\ \mu\text{m}$ ,与长白矿共生产出(图4b),暗示其形成时间较晚。部分样品中还见少量铀钍石、铀石、褐帘铌矿/铀易解石等(富)铀矿物,文中未予以展示。

(2)黑云斜长片麻岩型矿石中,铌钽铀矿以脉状形式产于碳酸岩与黑云斜长片麻岩之间的裂隙中,见方解石-独居石-磷灰石-铌钽铀矿-晶质铀矿-方铅矿-长石-石英等矿物组合(图3c,图4d)。铌钽铀矿内部或边部也可见两类不同产状的晶质铀矿(图4e)。第一类晶质铀矿与铌钽铀矿共生产出,内部均发育裂隙,自形程度较高,粒径约 $50\ \mu\text{m}$ ;第二类晶质铀矿呈细小颗粒状与方解石共生产出,自形程度

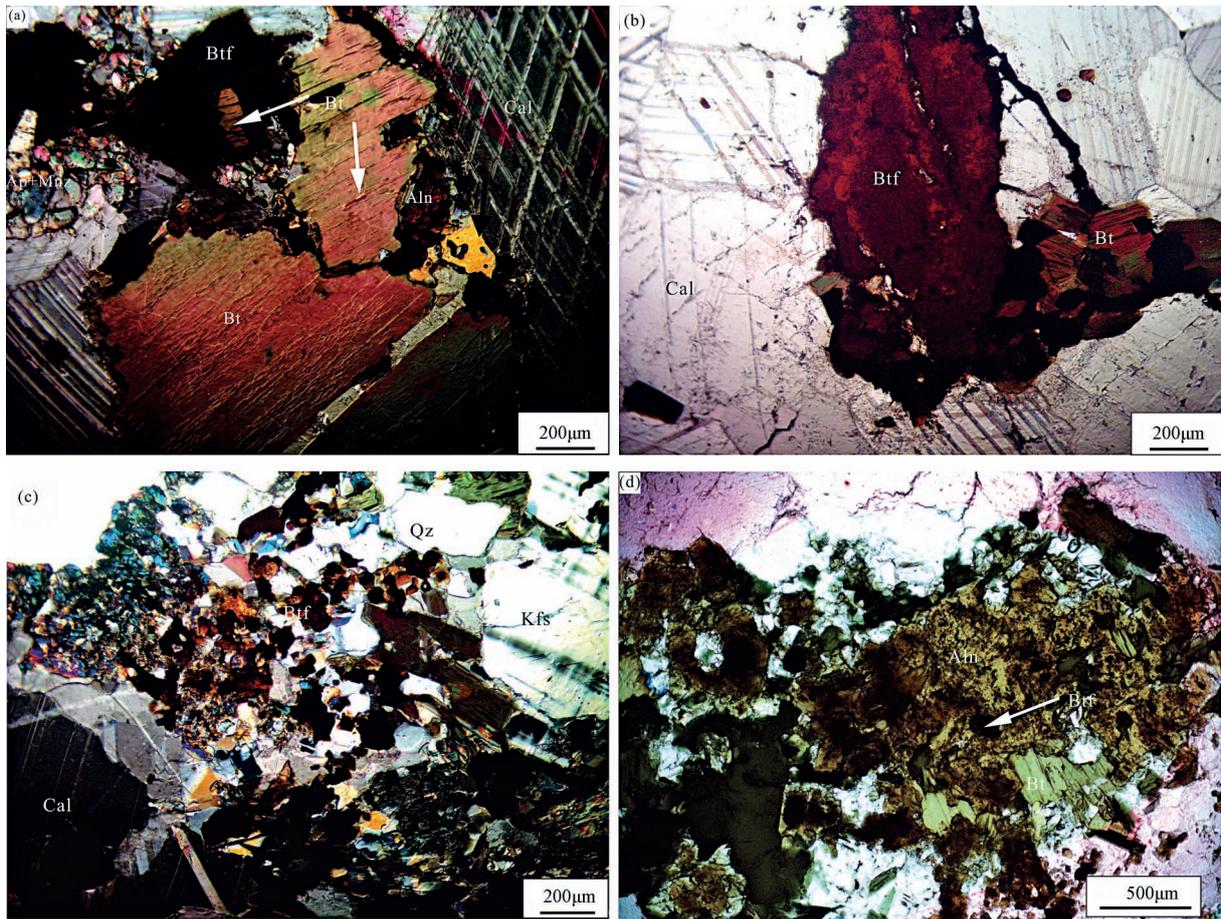


图 3 华阳川富铀矿石中典型铀钼矿床产出的矿物组合特征

Fig. 3 Photomicrograph images of typical mineral assemblages observed in U-rich samples from the Huayangchuan uranium deposit

(a-b)—黑云母(霓辉)方解石碳酸岩型矿石矿物组合特征;(c)—黑云斜长片麻岩中的热液脉型矿石矿物组合特征;(d)花岗片麻岩中的热液脉型矿石矿物组合特征。Btf—铀钼矿;Bt—黑云母;Qz—石英;Cal—方解石;Aln—褐帘石;Kfs—钾长石;Ap—磷灰石;Mnz—独居石

(a-b)—Mineral assemblage in biotite (aegirine-augite) calcite carbonatitic type ore; (c)—mineral assemblage of the hydrothermal veins in biotite plagioclase gneiss type ore; (d)—mineral assemblage of the hydrothermal veins in granitic gneiss type ore; Btf—betafite; Bt—biotite; Qz—quartz; Cal—calcite; Aln—allanite; Kfs—K-feldspar; Ap—apatite; Mnz—monazite

较低,内部无裂隙,粒径仅几微米。草坪沟黑云斜长片麻岩型样品中,见钠长石-榍石-铀钼矿-晶质铀矿的矿物组合。晶质铀矿与早期铀钼矿共生,铀钼矿内部发育微裂隙与蚀变,晶质铀矿颗粒粒径仅  $10\mu\text{m}$ ,颗粒外侧有被交代的现象(图 4f,图 4g)。

(3) 花岗片麻岩中发育的脉型矿石内,见褐帘石-钾长石-石英-褐帘石-铀钼矿-晶质铀矿-黑云母的矿物组合(图 3d,图 4h)。铀钼矿呈不规则长条状或其他形粒状产出,基本未发生热液蚀变,与之共生的晶质铀矿的粒径仅数微米到十几微米(图 4h)。

综上,华阳川矿床(含外围草坪沟铀矿点)的主要铀矿物为铀钼矿,其次为晶质铀矿,部分铀钼矿发生了不同程度的蚀变。铀钼矿与晶质铀矿紧

密共生,为矿床开展铀钼矿物化学与年代学研究提供了重要的矿物学依据。

### 3.2 铀矿物的矿物化学分析

研究表明,晶质铀矿的化学成分特征能指示其形成的环境与后期地质演化过程(Alexandre et al., 2015)。尽管前人对华阳川铀钼矿床中的铀钼矿、晶质铀矿等铀矿物开展过少量研究(Hui Xiaochao, 2014; Wu Cuilian et al., 2015),但针对铀钼矿与不同类型的晶质铀矿的系统性分析工作仍较缺乏。

#### 3.2.1 铀钼矿能谱特征分析

黑云母(霓辉石)方解石碳酸岩脉型矿石中,铀钼矿颗粒(BSE)内,弱蚀变区与未蚀变区之间存

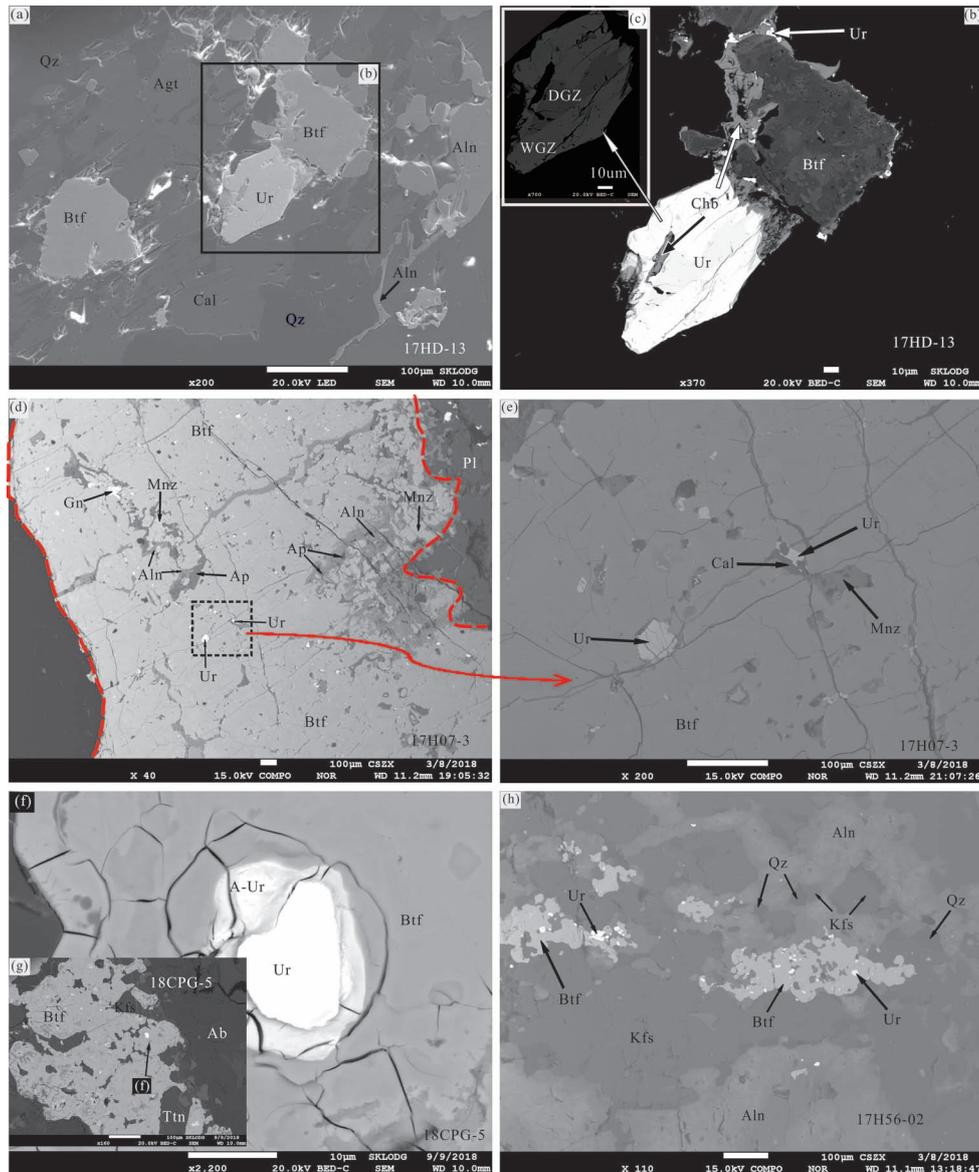


图4 华阳川富铀样品中的典型矿物共生组合的BSE图像

Fig. 4 BSE images of typical mineral assemblages observed in U-rich samples from the Huayangchuan

(a)—黑云母(霓辉)方解石碳酸岩型矿石中发育铈钛铀矿、晶质铀矿、霓辉石、褐帘石、方解石、石英等矿物组合;(b)—黑云母(霓辉)方解石碳酸岩型矿石铈钛铀矿颗粒内部明暗程度不一,晶质铀矿内部与熔蚀铈钛铀矿边缘发育长白矿,见与之共生的晚期晶质铀矿;(c)—晶质铀矿内部可见明暗程度不同的灰黑色区域(DGZ)与灰白色区域(WGZ);(d)—黑云斜长片麻岩型矿石发育铈钛铀矿、晶质铀矿、磷灰石、褐帘石、独居石、方铅矿等矿物组合;(e)—两类不同形态的晶质铀矿;(f)—晶质铀矿颗粒边缘发生了后期热液蚀变;(g)—草坪沟铀矿点的黑云斜长片麻岩型矿石中发育铈钛铀矿、晶质铀矿、榍石、钠长石等矿物组合为特征;(h)—花岗片麻岩裂隙中发育铈钛铀矿、晶质铀矿、褐帘石、钾长石、石英等矿物组合;Btf—铈钛铀矿;Mnz—独居石;Chb—长白矿;Agt—霓辉石;Cal—方解石;Aln—褐帘石;Ab—钠长石;Kfs—钾长石;Bt—黑云母;Ap—磷灰石;Gn—方铅矿;Qz—石英;A-Ur—(蚀变)晶质铀矿;Ttn—榍石 DGZ—灰黑色区域;WGZ—灰白色区域

(a)—Biotite (aegirine-augite) calcite carbonatite-type ore consists of betafite, uraninite, aegirine-augite, allanite, calcite and quartz; (b)—betafite grains in biotite (aegirine-augite) calcite carbonatite-type ore be altered and the margin of the altered betafite and the inside of uraninites filled with Changbaiite grains, which is associated with the late uraninites; (c)—dark gray zone (DGZ) and white gray zone (WGZ) exist in the BSE image of the uraninite indicate that the different compositions between them; (d)—mineral assemblages of the uranium veins in biotite plagioclase gneiss type ore are composed of betafite, uraninite, apatite, allanite, monazite and galena; (e)—two different types of morphology of uraninite grains are found in uranium veins; (f)—the margin of the uraninite has been altered; (g)—mineral assemblages of the uranium veins in biotite plagioclase gneiss type ore in Caopinggou ore occurrence are composed of betafite, uraninite, titanite and albite; (h)—betafite, uraninite, allanite, K-feldspar and quartz developed in uranium veins of the granitic gneiss fissure; Btf—betafite; Mnz—monazite; Chb—changbaiite; Agt—aegirine-augite; Cal—calcite; Aln—allanite; Ab—albite Kfs—K-feldspar; Bt—biotite; Ap—apatite; Gn—galena; Qz—quartz; A-Ur—altered-uraninite; Ttn—titanite; DGZ—dark gray zone; WGZ—white gray zone

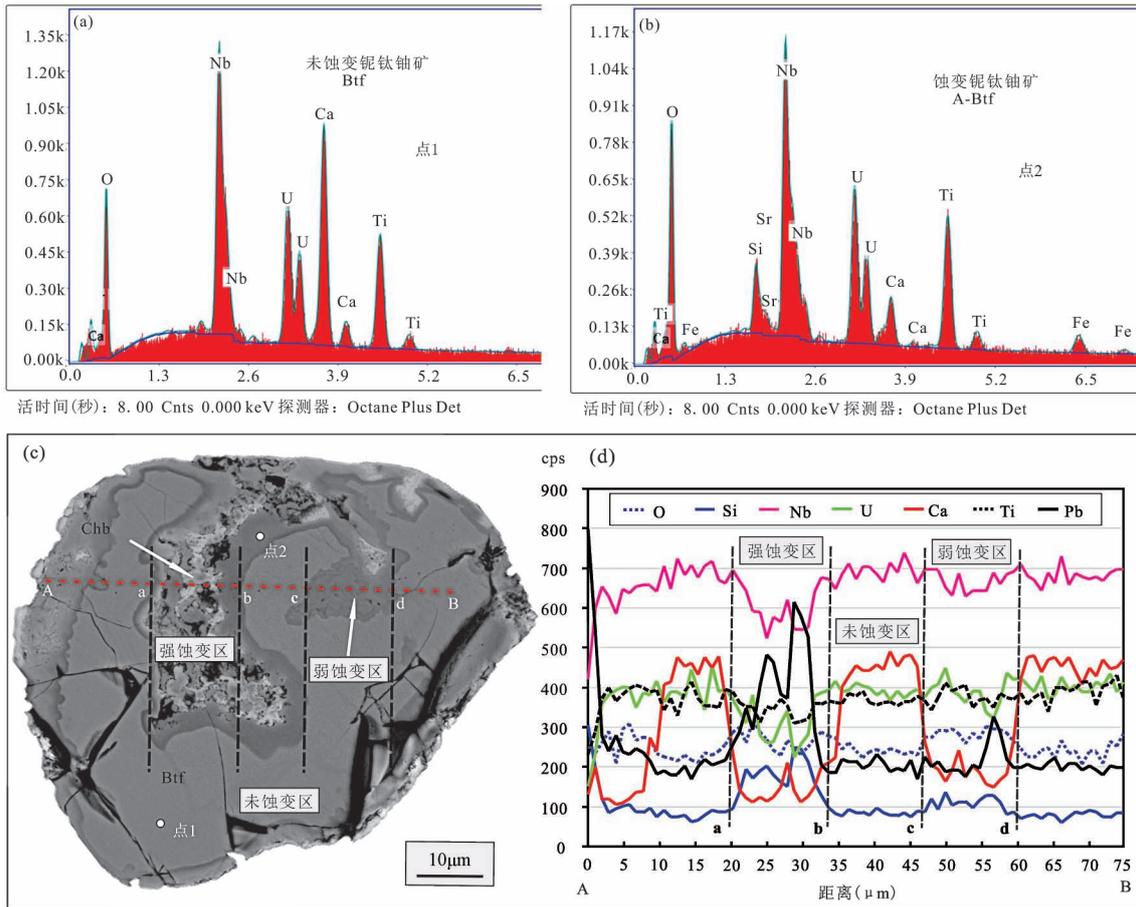


图 5 华阳川典型钼铀钼矿(BSE)蚀变前后元素变化特征

Fig 5 A BSE image of typical betafite with their different element changes between altered and unaltered zones from the Huayangchuan deposit

(a) — 未蚀变钼铀钼矿能谱特征; (b) — 蚀变钼铀钼矿相对未蚀变钼铀钼矿而言能谱以出现 Si、Sr、Fe 峰为特征; (c) — 典型钼铀钼矿不同程度蚀变的背散射图像; (d) — 对应线扫描特征

(a) — The characteristics of energy spectrum of the unaltered part of betafite grains; (b) — the characteristics of energy spectrum of the altered part of betafite grains are characterized by the Si, Sr, Fe peaks; (c) — BSE image and the line scan (d) between altered and unaltered zones of the typical betafite

在较为明显的能谱特征差异(图 5a, 图 5b), 蚀变区的钙峰显著低于未蚀变区, 且出现了 Si、Sr、Fe 的信号峰(图 5b)。线扫描结果显示(图 5c, 图 5d), 相对于未蚀变的区而言, 弱蚀变区的 Si、O、Pb 含量略有升高, 钙含量降低, Nb、U 含量稍有降低, Ti 基本保持不变。强蚀变区, 钼铀钼矿被后期热液交代后, 在裂隙中沉淀形成了长白矿( $PbNb_2O_6$ )。线扫描结果显示出 Si、O 含量升高, 钙显著降低, Nb、U 含量显著降低, Ti 含量降低, Pb 含量显著升高的趋势。基于钼铀钼矿的蚀变特征, 结合黑云母(霓辉石)方解石碳酸岩型矿石中钼铀钼矿颗粒边缘长白矿与第二类晶质铀矿共生的矿物学特征(图 4b), 暗示晶质铀矿与长白矿可能是钼铀钼矿中的铀被热液淋滤带出后再次沉淀的结果。此外, 前人研究认为, 钼铀钼矿

为难以浸取的铀矿物 (McMaster et al., 2015, 2017), 此次线扫描研究结果显示, 不同程度的热液蚀变均会导致钼铀钼矿发生铀的丢失, 甚至可以被后期流体彻底交代。因而, 探究使钼铀钼矿发生蚀变的热液流体性质及蚀变机制也许能为钼铀钼矿的浸取工艺提供新的思路。

### 3.2.2 晶质铀矿电子探针分析

晶质铀矿进行电子探针分析前, 为确保获得较为可靠的数据, 测点均先在背散射模式下进行详细的观察, 避开颗粒内部裂隙发育与成分不均一的区域, 所有晶质铀矿测点的电子探针分析数据详见附表 1。

数据结果显示, 晶质铀矿  $UO_2$  含量在 80.06% ~ 97.48% 之间,  $SiO_2$ 、 $MgO$ 、 $Al_2O_3$ 、 $MnO$ 、 $TiO_2$ 、

Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、Na<sub>2</sub>O 含量均在检出限附近;FeO 含量最高为 0.36%,多数测点的 FeO 含量在检测限附近;CaO 含量在 0.09%~1.48%之间,含量变化基本不大。ThO<sub>2</sub> 含量 < 4.88%,最低则低于检出限;Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 的含量在 0.02%~3.37%之间;Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 含量

最低为 0.89%,最高为 5.66%之间,平均含量为 2.59%;Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> + Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 含量在 1.12%~6.32%之间,平均值为 3.57%,PbO 含量为 1.19%~2.67%。不同样品中晶质铀矿的分析结果(平均值)见表 2。

表 2 晶质铀矿电子探针分析结果(%)  
Table 2 Analyses results of uraninites by EMPA (%)

矿石类型	黑云母(霓辉石)方解石碳酸岩(局部正长(方解石-钽天青石)伟晶岩)脉型矿石											黑云斜长片麻岩内的脉型矿石			花岗岩片麻岩内脉型矿石	
	17HD-13					17H-07				18HH-17	18CPG-5	17H20-4	17H-07-3	17H56-02		
样号	2	3(1)	3(2)	平均值	2	26-14	26	28	221							
类型	第一类晶质铀矿					第一类	第二类					第一类		第二类		
	WGZ				BGZ											
测点数	21	9	5	35	14	1	8	14	4	1	4	3	1	1	3	33
MgO	bdl	bdl	bdl	bdl	bdl	bdl	bdl	bdl	0.01	bdl	bdl	bdl	bdl	bdl	bdl	bdl
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	bdl	bdl	bdl	bdl	bdl	bdl	bdl	bdl	bdl	bdl	bdl	bdl	bdl	bdl	0.49	bdl
SiO <sub>2</sub>	0.02	0.01	0.02	0.02	0.01	0.03	0.02	0.05	0.04	0.01	0.01	bdl	0.04	0.03	0.52	0.01
MnO	bdl	bdl	0.01	0.01	bdl	bdl	0.00	bdl	0.01	0.01	0.01	0.03	0.01	bdl	0.02	bdl
FeO	0.04	0.06	0.02	0.04	0.01	0.06	0.02	0.02	0.04	0.15	0.01	0.02	0.03	0.01	0.04	0.04
CaO	0.38	0.22	0.27	0.32	0.42	0.22	0.38	0.27	0.38	1.48	0.33	0.18	0.64	0.43	0.18	0.73
TiO <sub>2</sub>	bdl	bdl	bdl	bdl	bdl	0.04	0.03	bdl	bdl	1.47	bdl	bdl	0.16	bdl	0.01	bdl
Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.01	0.01	bdl	0.01	0.01	0.05	0.03	0.02	0.03	2.43	0.01	0.03	0.59	0.02	bdl	0.01
ThO <sub>2</sub>	0.21	0.30	0.39	0.26	0.04	3.16	1.08	1.69	2.36	2.30	2.84	1.87	2.56	2.84	2.67	0.21
Na <sub>2</sub> O	bdl	bdl	0.01	bdl	bdl	bdl	0.03	0.01	0.01	0.05	bdl	bdl	bdl	bdl	0.03	0.02
UO <sub>2</sub>	89.42	90.89	90.84	90.00	81.46	82.25	88.05	89.08	89.61	83.85	87.18	90.25	86.32	83.44	92.06	95.09
Ce <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.83	0.81	0.97	0.84	0.70	2.41	2.48	1.87	1.91	1.07	1.54	0.97	0.34	1.38	1.07	0.40
PbO	1.57	1.55	1.54	1.56	2.19	2.26	1.52	1.53	1.64	1.41	1.50	2.59	2.31	2.19	1.64	1.65
Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3.07	2.96	2.59	2.98	5.33	2.73	2.04	1.80	1.44	1.44	2.06	1.37	2.96	2.79	1.29	1.80
Σ(Ce+Y)	2.9061	2.8073	2.5999	2.8398	4.6386	3.5023	2.9900	2.4635	2.1981	1.7369	2.4898	1.6261	2.5492	2.9846	1.6172	1.6563
Total	95.57	96.82	96.65	96.04	90.17	93.22	95.66	96.35	97.48	95.67	95.48	97.29	95.96	93.14	100.02	99.99
晶质铀矿阳离子系数(基于 2 个氧原子计算),含量低于检出限时,系数为 0																
Mg <sup>2+</sup>	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0003	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000
Al <sup>3+</sup>	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0247	0.0000
Si <sup>4+</sup>	0.0009	0.0005	0.0009	0.0009	0.0005	0.0014	0.0007	0.0023	0.0017	0.0004	0.0005	0.0000	0.0018	0.0014	0.0225	0.0004
Mn <sup>2+</sup>	0.0000	0.0000	0.0004	0.0004	0.0000	0.0000	0.0001	0.0000	0.0003	0.0004	0.0004	0.0012	0.0004	0.0000	0.0006	0.0000
Fe <sup>2+</sup>	0.0015	0.0023	0.0008	0.0015	0.0004	0.0024	0.0006	0.0008	0.0016	0.0053	0.0004	0.0008	0.0011	0.0004	0.0013	0.0015
Ca <sup>2+</sup>	0.0186	0.0107	0.0132	0.0156	0.0214	0.0111	0.0187	0.0134	0.0184	0.0672	0.0163	0.0088	0.0308	0.0217	0.0082	0.0345
Ti <sup>4+</sup>	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0014	0.0009	0.0000	0.0000	0.0468	0.0000	0.0000	0.0054	0.0000	0.0004	0.0000
Nb <sup>5+</sup>	0.0002	0.0002	0.0000	0.0002	0.0002	0.0011	0.0006	0.0004	0.0007	0.0465	0.0002	0.0006	0.0120	0.0004	0.0000	0.0002
Th <sup>4+</sup>	0.0022	0.0031	0.0040	0.0027	0.0004	0.0338	0.0112	0.0176	0.0243	0.0222	0.0298	0.0195	0.0262	0.0304	0.0262	0.0021
Na <sup>+</sup>	0.0000	0.0000	0.0009	0.0000	0.0000	0.0000	0.0030	0.0012	0.0009	0.0041	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0025	0.0017
U <sup>4+</sup>	0.9105	0.9166	0.9191	0.9131	0.8634	0.8590	0.8983	0.9066	0.9027	0.7901	0.8943	0.9210	0.8640	0.8726	0.8823	0.9326
Ce <sup>3+</sup>	0.0139	0.0134	0.0161	0.0140	0.0122	0.0414	0.0416	0.0313	0.0317	0.0166	0.0260	0.0163	0.0056	0.0237	0.0169	0.0065
Pb <sup>2+</sup>	0.0193	0.0189	0.0189	0.0191	0.0281	0.0286	0.0188	0.0189	0.0200	0.0161	0.0186	0.0320	0.0280	0.0277	0.0191	0.0196
Y <sup>3+</sup>	0.0748	0.0714	0.0627	0.0723	0.1351	0.0682	0.0497	0.0438	0.0347	0.0325	0.0505	0.0334	0.0709	0.0698	0.0295	0.0422
Total	1.0420	1.0371	1.0369	1.0400	1.0617	1.0482	1.0441	1.0362	1.0373	1.0481	1.0370	1.0336	1.0462	1.0481	1.0342	1.0412
Σ(Ce+Y)系数	0.0887	0.0848	0.0788	0.0863	0.1473	0.1096	0.0913	0.0752	0.0664	0.0490	0.0765	0.0497	0.0765	0.0935	0.0464	0.0487
Th/U	0.0024	0.0034	0.0044	0.0030	0.0005	0.0393	0.0125	0.0194	0.0269	0.0281	0.0333	0.0212	0.0303	0.0348	0.0297	0.0023
Ce/Y	0.1860	0.1883	0.2577	0.1939	0.0904	0.6073	0.8364	0.7142	0.9125	0.5112	0.5143	0.4871	0.0790	0.3403	0.5721	0.1529
Ce	0.7086	0.6916	0.8282	0.7172	0.5976	2.0576	2.1173	1.5965	1.6307	0.9135	1.3148	0.8282	0.2903	1.1782	0.9135	0.3415
Y	0.5580	0.5446	0.6521	0.5647	0.4706	1.6202	1.6673	1.2572	1.2841	0.7194	1.0353	0.6521	0.2286	0.9278	0.7194	0.2689

注:类型基于镜下特征划分, bdl 表示低于检出限, 所给结果为同一类型晶质铀矿多个测点的平均值, WGZ 为灰白色区域, BGZ 为灰黑色区域。

### 3.3 晶质铀矿电子探针 U-Th-Pb 定年

前人的研究(Hui Xiaochao et al., 2014, 2016; Gao Cheng et al., 2017)及本次研究结果均显示, 铈铀矿是矿床中最主要的铀矿物, 晶质铀矿为次要的铀矿物。由于铈铀矿存在放射性辐射损伤, 矿物容易发生蜕晶化作用(Geisler et al., 2005), 加之后期热液流体对铈铀矿的蚀变作用, 极易导致铈铀矿的封闭体系被破坏, 发生铀与放射性成因的铅丢失(Lumpkin et al., 1996)。本次研究也证实矿床中的铈铀矿发生了不同程度的热液蚀变(图 4b; 图 5), 此外, 因铈铀矿缺乏定年的方法及标样, 故目前无法直接对其开展定年工作。鉴于矿床中的晶质铀矿与铈铀矿之间有紧密的共生关系, 结合晶质铀矿的多期性与颗粒较小(一般 $<10\ \mu\text{m}$ )等特点, 直接针对晶质铀矿开展 U-Pb 同位素定年不具可行性。

近年来, 许多学者已经利用电子探针铀矿床中的晶质铀矿开展了一系列原位 U-Th-Pb 化学定年, 并获得了较好的年代学数据(Kempe, 2003; Mercadier et al., 2013; Zhao Huibo et al., 2014; Wei Longming et al., 2014; Zhang Long et al., 2016; Tang Ao et al., 2017)。Tang Ao et al. (2017)对紫云山花岗岩中的焦坑单元及庙前单元中的晶质铀矿开展化学定年时, 获得的晶质铀矿化学加权平均年龄分别为  $161.8 \pm 2.4\ \text{Ma}$ 、 $159.7 \pm 3.2\ \text{Ma}$ , 与 Zhang Wenlan et al. (2009)对其开展锆石 U-Pb 同位素分析分别获得的  $161.8 \pm 1.0\ \text{Ma}$ 、 $155.7 \pm 1.8\ \text{Ma}$  年龄较为一致。Mercadier et al. (2013)对加拿大不整合面型铀矿床中的晶质铀矿开展同位素与化学年代学研究, 获得未蚀变晶质铀矿 SIMS U-Pb 年代学年龄为  $1805 \pm 11\ \text{Ma}$ , 与  $1.9 \sim 1.8\ \text{Ga}$  的化学年龄较为一致。尽管晶质铀矿单点化学年龄在精度上不及相应的同位素年龄, 然而该方法对复杂、多期、极细的晶质铀矿颗粒而言无疑是较好的选择(Bowles, 2015)。本次分析结果显示, 晶质铀矿中  $\text{SiO}_2$ 、 $\text{MgO}$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{CaO}$ 、 $\text{FeO}$ 、 $\text{MnO}$ 、 $\text{Na}_2\text{O}$  等含量较低, 表明其形成后受热液蚀变的影响较弱(Alexandre et al., 2005), 故化学年龄的加权平均值可代表晶质铀矿的形成年龄, 这为解决华阳川铀铈矿床成矿时代提供了较好的途径。

基于不同类型晶质铀矿的 U、Th、Pb 含量分析结果, 计算获得了一系列的 U-Th-Pb 化学年龄, 具体结果见表 3, 部分测点位置及年龄见图 6, 计算方法见文献(Bowles, 1990, 2015)。

结果显示, 晶质铀矿的年龄在  $99 \sim 217\ \text{Ma}$  之间, 22 个晶质铀矿点年龄为  $188 \sim 217\ \text{Ma}$ , 108 个晶质铀矿数据点年龄为  $99 \sim 139\ \text{Ma}$ 。黑云母(霓辉石)方解石碳酸岩脉型矿石(图 6a)见两组测点年龄, 分别为  $188 \sim 210\ \text{Ma}$  与  $99 \sim 139\ \text{Ma}$ 。黑云斜长片麻岩中的脉型矿石(图 6b)中, 可分析的晶质铀矿颗粒极少, 仅获得  $121\ \text{Ma}$ 、 $192\ \text{Ma}$ 、 $135\ \text{Ma}$ 、 $138\ \text{Ma}$  等 4 个测点年龄; 花岗片麻岩型中的脉型矿石中(图 6c, 6e), 晶质铀矿(Ur2)的测点年龄  $114 \sim 137\ \text{Ma}$ , 平均值为  $129\ \text{Ma}$ 。草坪沟铀矿点中(图 6d), 与铈铀矿共生的晶质铀矿给出的 3 个化学年龄分别为  $205\ \text{Ma}$ 、 $208\ \text{Ma}$ 、 $217\ \text{Ma}$ 。

## 4 讨论

### 4.1 晶质铀矿元素变化特征

分析结果表明, 不同产状矿石中的晶质铀矿, 元素含量差异较大(图 7)。晶质铀矿  $\text{UO}_2$  含量较高, 在  $80.06\% \sim 97.48\%$  之间,  $\text{FeO}$ 、 $\text{CaO}$  含量较低(表 2), 表明矿床中的多数晶质铀矿蚀变程度较弱。不同矿石类型中的  $\text{ThO}_2$  含量的变化范围较大, 在低于检出限到  $4.88\%$  之间。由于  $\text{U}^{4+}$  与  $\text{Th}^{4+}$  具有相似的地球化学行为, 岩浆或高温还原的热液体系中,  $\text{Th}^{4+}$  容易以类质同象的形式进入晶质铀矿的晶格中, 而在低温富含挥发分、氧化的热液体系中, U 主要以  $\text{U}^{6+}$  进行迁移, 而  $\text{Th}^{4+}$  在氧化性流体中的溶液度较低, 无法进行迁移, 使得 U、Th 发生分离。因此, 一般认为, 温度相对偏低的热液晶质铀矿中 Th 含量偏低(Liu Yingjun et al., 1984; Keppler et al., 1990)。研究表明, 相对较高的 Th/U 比值( $>0.01$ )的晶质铀矿通常被视为高温( $>350^\circ\text{C}$ )岩浆或岩浆-热液环境下的产物(Macmillan et al., 2016), 而低温( $<250^\circ\text{C}$ )热液晶质铀矿的 Th 含量较低(Hazen et al., 2009), 因此, 根据 Th/U 值判断, 黑云母(霓辉石)碳酸岩脉型(除 17HD-13)矿石(局部为(方解石-钡天青石)正长伟晶岩脉型)与黑云斜长片麻岩中的热液脉型矿石整体形成于高温环境( $>350^\circ\text{C}$ ), 而晶质铀矿的  $\text{ThO}_2$  含量差异, 指示不同产状的矿石形成条件可能存在差异(图 7a)。  $\text{Ce}_2\text{O}_3$  的含量在  $0.02\% \sim 3.37\%$  之间, 黑云母(霓辉石)方解石碳酸岩脉型中的晶质铀矿的  $\text{Ce}_2\text{O}_3$  含量相对较高, 除个别点外, 含量普遍高于  $1\%$ , 可能与晶质铀矿所处碳酸岩体系富 Ce 有关(图 7b)。就 CaO 而言, 花岗片麻岩中, 晚期热液脉型矿石的 CaO 含量变化范围稍大, 在检出限到  $1.5\%$  之间, 其他矿石类

表3 晶质铀矿 U、Pb、Th 含量及化学年龄

Table 3 The contents of U, Pb, Th and their chemical age of uraninite grains by EMPA

样品号	点号	含量(%)			$t$ (Ma)	样品号	点号	含量(%)			$t$ (Ma)
		UO <sub>2</sub>	PbO	ThO <sub>2</sub>	实际			UO <sub>2</sub>	PbO	ThO <sub>2</sub>	实际
17HD-13-2	D1	80.21	2.13	bdl	196	17H-07-26	1L1	87.22	1.57	1.67	133
	D4	81.90	2.13	bdl	192		1L2	88.50	1.62	0.48	136
	D14	81.77	2.22	0.09	200		1L3	89.41	1.57	0.58	130
	D15	81.53	2.22	0.06	201		14L1	85.72	1.49	0.56	129
	D16	83.47	2.35	0.03	207		14L2	89.76	1.69	1.50	139
	D17	80.72	2.25	0.05	205		14L4	87.11	1.20	1.62	102
	D18	80.88	2.11	bdl	192	14L5	87.18	1.49	1.58	126	
	D19	80.06	2.21	bdl	203	14L6	89.49	1.55	0.61	128	
	D20	81.56	2.12	bdl	192	17H-07-28	1L3	86.75	1.52	2.21	129
	D21	81.68	2.27	0.01	205		3L1	87.42	1.53	3.15	128
	D24	81.66	2.33	0.12	210		3L2	92.18	1.48	0.60	119
	D25	81.64	2.20	0.08	198		3L3	87.35	1.63	2.67	137
	D26	81.81	2.09	0.06	188		3L4	86.47	1.56	3.22	132
	D27	81.60	2.08	0.02	188		3L5	87.54	1.53	3.12	128
Ur1 均值(14)		81.46	2.19	0.04	198		3L6	87.87	1.61	2.19	135
17H-07-3	L2	83.44	2.19	2.84	192		4L1	92.36	1.67	0.55	134
17H-07-26	14L3	82.25	2.26	3.16	200	4L2	91.57	1.56	0.81	126	
18CPG-5	D1	90.21	2.57	1.87	208	4L3	88.42	1.54	1.41	129	
	D2	90.47	2.53	1.95	205	4L4	88.68	1.50	0.64	125	
	D3	90.07	2.67	1.80	217	4L5	88.87	1.19	1.32	99	
Ur1 均值(3)		90.25	2.59	1.87	210	4L6	92.49	1.55	0.37	124	
17H20-4	1D6	86.32	2.31	2.56	195	4L7	89.17	1.58	1.38	131	
17HD-13-2	L0	88.48	1.66	0.11	139	17H-07-221	1L1	90.07	1.63	1.15	134
	L2	88.45	1.53	0.05	128		1L2	91.89	1.72	1.84	138
	L3	89.25	1.53	0.22	127		1L3	87.36	1.53	3.11	129
	L5	91.59	1.59	0.20	129		1L4	89.11	1.69	3.33	139
	L6	91.11	1.55	0.16	126	17H-07-3	L1	90.23	1.48	2.79	121
	L7	92.20	1.61	0.12	130		L3	93.22	1.71	3.20	135
	L8	90.02	1.56	0.17	129		L4	92.73	1.74	2.03	138
	L9	88.45	1.57	0.20	132	17H20-4	1L5	83.85	1.41	2.30	124
	L10	89.17	1.54	0.31	128	17H56-02	D1	94.52	1.61	0.04	126
	L11	89.20	1.58	0.30	131		L2	92.78	1.61	0.57	129
	L12	89.75	1.64	0.22	135		L3	93.85	1.59	0.52	126
	L13	87.57	1.45	0.24	123		D1	96.99	1.69	bdl	129
	L22	87.39	1.57	0.15	133		D2	96.27	1.70	0.21	131
	L23	89.73	1.68	0.23	139		3	96.99	1.49	0.10	114
L28	89.65	1.60	0.23	132	4		96.85	1.66	0.01	127	
L29	88.94	1.54	0.24	128	5		95.33	1.63	0.61	127	
L30	89.97	1.59	0.21	131	1		94.68	1.69	bdl	132	
L31	88.39	1.56	0.28	131	2		93.98	1.70	0.21	134	
L32	90.43	1.57	0.22	129	3	94.67	1.49	0.10	117		
L33	90.77	1.40	0.25	115	4	94.54	1.66	0.01	130		
L34	87.28	1.61	0.27	137	5	93.05	1.63	0.61	130		
Ur2 均值(21)		89.42	1.57	0.21	130	4(1)	93.92	1.63	0.14	129	
17HD-13-3(1)	L2	92.79	1.58	0.36	126	5(1)	96.52	1.71	0.14	131	
	L3	90.90	1.63	0.29	133	6	96.63	1.60	bdl	123	
	L4	93.18	1.60	0.30	127	L9	94.76	1.67	0.36	131	
	D5	89.41	1.53	0.32	127	L11	97.48	1.68	bdl	128	
	D6	89.84	1.49	0.21	123	L12	95.97	1.66	bdl	128	
	D7	89.75	1.55	0.25	128	D13	90.20	1.61	0.48	132	
	D8	89.71	1.54	0.30	127	L14	95.00	1.73	0.02	135	
	L9	91.91	1.44	0.45	116	L15	93.53	1.69	bdl	134	
	L10	90.55	1.60	0.26	131	L16	97.13	1.71	0.09	131	

续表 3

样品号	点号	含量(%)			$t(\text{Ma})$	样品号	点号	含量(%)			$t(\text{Ma})$
		UO <sub>2</sub>	PbO	ThO <sub>2</sub>	实际			UO <sub>2</sub>	PbO	ThO <sub>2</sub>	实际
17HD-13-3(2)	L1	94.25	1.59	0.30	125	17H56-02	D17	94.13	1.61	0.26	127
	L2	93.05	1.63	0.28	130		D18	97.06	1.69	bdl	129
	D3	89.22	1.51	0.64	125		L1	94.81	1.60	0.06	125
	D4	88.94	1.51	0.36	126		L2	94.15	1.74	bdl	137
	D5	88.77	1.46	0.36	122		L3	96.59	1.65	0.31	127
Ur <sub>2</sub> 均值(35)		90.00	1.56	0.26	128		L4	95.30	1.69	0.21	131
18HH-17	L1	83.14	1.43	2.98	126		L5	96.62	1.66	0.13	127
	L2	83.58	1.49	4.88	130		L6	95.08	1.64	0.11	128
	L3	91.47	1.59	0.69	129		L7	95.07	1.64	0.44	128
	L4	90.52	1.50	2.81	122	L8	93.63	1.71	1.15	135	
Ur <sub>2</sub> 均值(4)		87.18	1.50	2.84	126	Ur <sub>2</sub> 均值(33)		95.09	1.65	0.21	129

注: bdl 表示元素含量低于检出限, 计算化学年龄时, 可忽略。

型中的晶质铀矿的 CaO 含量整体较低( $<1\%$ ) (图 7c)。Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 含量在 0.89%~5.66% 之间, 平均含量为 2.59%, 灰黑色区域与灰白色区域中的 Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 含量明显存在差异。灰黑色区域(DGZ)的 Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 含量在 4.96%~5.33% 之间, 平均值甚至高达 5.33% 左右, 而灰白色区域(WGZ)的 Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 含量在 3% 左右。Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>+Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 含量在 1.12%~6.32% 之间平均值为 3.57%, 尤以霓辉石石英方解石碳酸岩脉型铀矿中晶质铀矿的 Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>+Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 含量最高, 在 2.64%~6.32% 之间, 平均值为 4.45%; 花岗片麻岩中热液脉型晶质铀矿的 Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>+Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 含量最低, 含量仅在 1.12%~3.63% 之间, 平均含量为 2.21% (图 7d)。UO<sub>2</sub>-(Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>+Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) 图解中 UO<sub>2</sub> 与 (Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>+Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) 之间具有较好的相关性(图 7e), 指示 Y、Ce 可能进入晶质铀矿晶格中取代了 U 所在的位置。研究表明, 较高的  $\Sigma\text{REY}$  值( $>1\%$ ; Mercadier et al., 2011) 的晶质铀矿通常认为是高温( $>350^\circ\text{C}$ ) 环境下的产物。本次研究显示,  $\Sigma\text{REY}$  值(本文仅以 Ce+Y 值代表)为 1.62%~4.64% (表 2), 均高于 1%, 表明所有矿石样品均形成于高温( $>350^\circ\text{C}$ ) 环境下。黑云母(霓辉石)方解石碳酸岩型矿石中, 晶质铀矿显示出较高的  $\Sigma\text{REY}$  值与较低的 Th 含量, 可能是由于该体系稀土含量较高, Th 含量较低或形成了其他含 Th 矿物的缘故。值得注意的是, 无论 ThO<sub>2</sub> 含量, Th/U 比值还是  $\Sigma\text{REY}$  值, 均表明花岗片麻岩中的晚期热液铀矿脉中的晶质铀矿的形成温度较其他类型的温度偏低。因此, 华阳川铀钍矿床中的晶质铀矿整体可能形成于岩浆-高温热液环境, 这也间接反映, 除花岗片麻岩型的热液铀矿脉形成于高温的热液体系外, 其他类型的矿石可能均形成于岩浆-高温热液环境。UO<sub>2</sub>-PbO 图解显示, PbO 含量明显可分为两个区间, 第一个区间内

PbO 含量在 1.19%~1.74% 之间, 第二个区间内 PbO 含量在 2.08%~2.67% 之间(图 7f)。一般认为晶质铀矿中的 Pb 主要来源于铀和钍元素的放射性衰变, PbO 的含量在一定程度上与成矿年龄有关(Xu Guoqing et al., 1982), 因此, PbO 含量的显著差异指示矿床中至少存在两期晶质铀矿, 这在表 3 及图 6 中已有体现。

#### 4.2 晶质铀矿年龄与矿床的形成时代

黑云母(霓辉石)方解石碳酸岩型矿石中(图 4c, 图 6a), 两组测点年龄分别为 188 Ma~210 Ma 与 99 Ma~139 Ma。14 个灰黑色区域(DGZ)晶质铀矿(Ur1)的测点年龄在 188~210 Ma 之间, 平均值为 198 Ma, 21 个灰白色区域(WGZ)晶质铀矿(Ur2)的测点年龄在 115~139 Ma 之间, 平均值为 130 Ma。蚀变铀钍矿边缘与长白矿共生的第二类晶质铀矿(图 4b)也显示出燕山期年龄。黑云斜长片麻岩内的脉型矿石(图 6b)中, 可供分析的晶质铀矿极少。与方解石共生产出的第二类晶质铀矿获得 121~138 Ma 等 6 个测点年龄, 平均值为 132 Ma, 而与铀钍矿共生的第一类晶质铀矿(晶型较好)仅获得了 192 Ma 的测点年龄。花岗片麻岩型热液铀矿脉(图 6c)中, 与细条状或粒状铀钍矿共生的晶质铀矿(图 6e)年龄显示为 114~137 Ma, 33 个测点加权平均年龄为 129 Ma, 暗示该类型矿石形成于燕山期。草坪沟矿点, 与铀钍矿共生的晶质铀矿(未蚀变部分)获得了 205 Ma, 208 Ma, 217 Ma 等 3 个测点年龄(图 6d)。上述年代学结果表明, 华阳川铀钍矿床中存在两期晶质铀矿年龄。对 188~217 Ma, 99~139 Ma 两组年龄分别进行高斯拟合, 获得的两个最佳拟合年龄分别为  $200.6 \pm 3.3$  Ma (晚三叠世末期)与  $128.6 \pm 0.2$  Ma (早白垩世中期)(图 8), 表明华阳川铀钍矿床存在晚三叠世末期

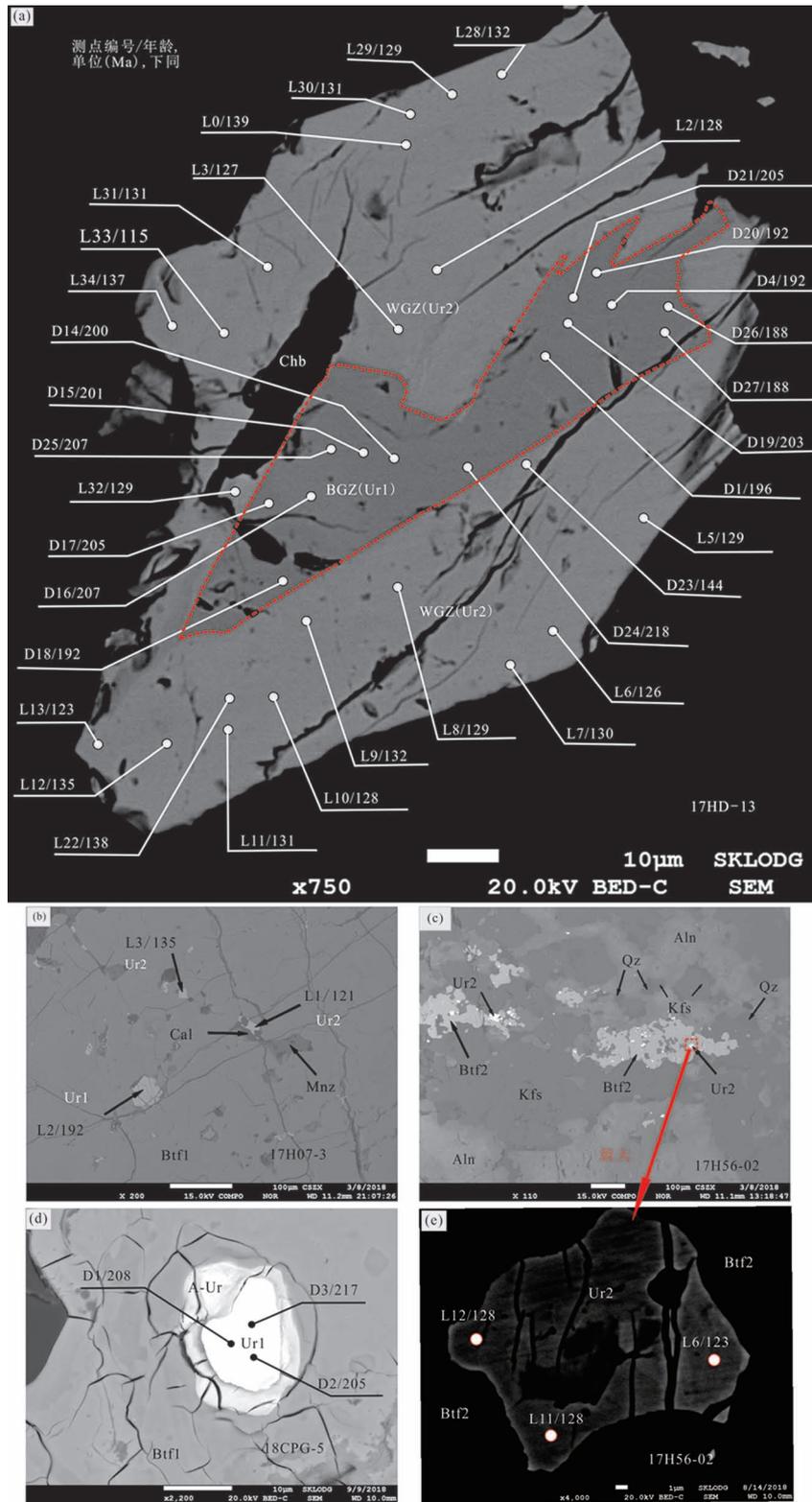


图 6 华阳川铀矿样品中晶质铀矿的分析点位置

Fig 6 Location of the analytical points of the uraninite grains in U-rich samples from the Huayangchuan

(a) — 黑云母(霓辉)方解石碳酸岩中的晶质铀矿测点位置及年龄; (b) — 黑云斜长片麻岩型矿石中两类晶质铀矿测点位置及年龄; (c, e) — 花岗片麻岩型矿石中晶质铀矿产出特征及 (e) 测点位置与年龄; (d) — 草坪沟矿点中晶质铀矿及测点位置与年龄

(a) — Location of the analytical points of the uraninite grains in biotite (aegirine-augite) calcite carbonatite-type ore; (b) — in biotite plagioclase gneiss type ore; (c, e) — in granitic gneiss type ore from the Huayangchuan deposit; (d) — biotite plagioclase gneiss type ore from the Caopinggou ore occurrence

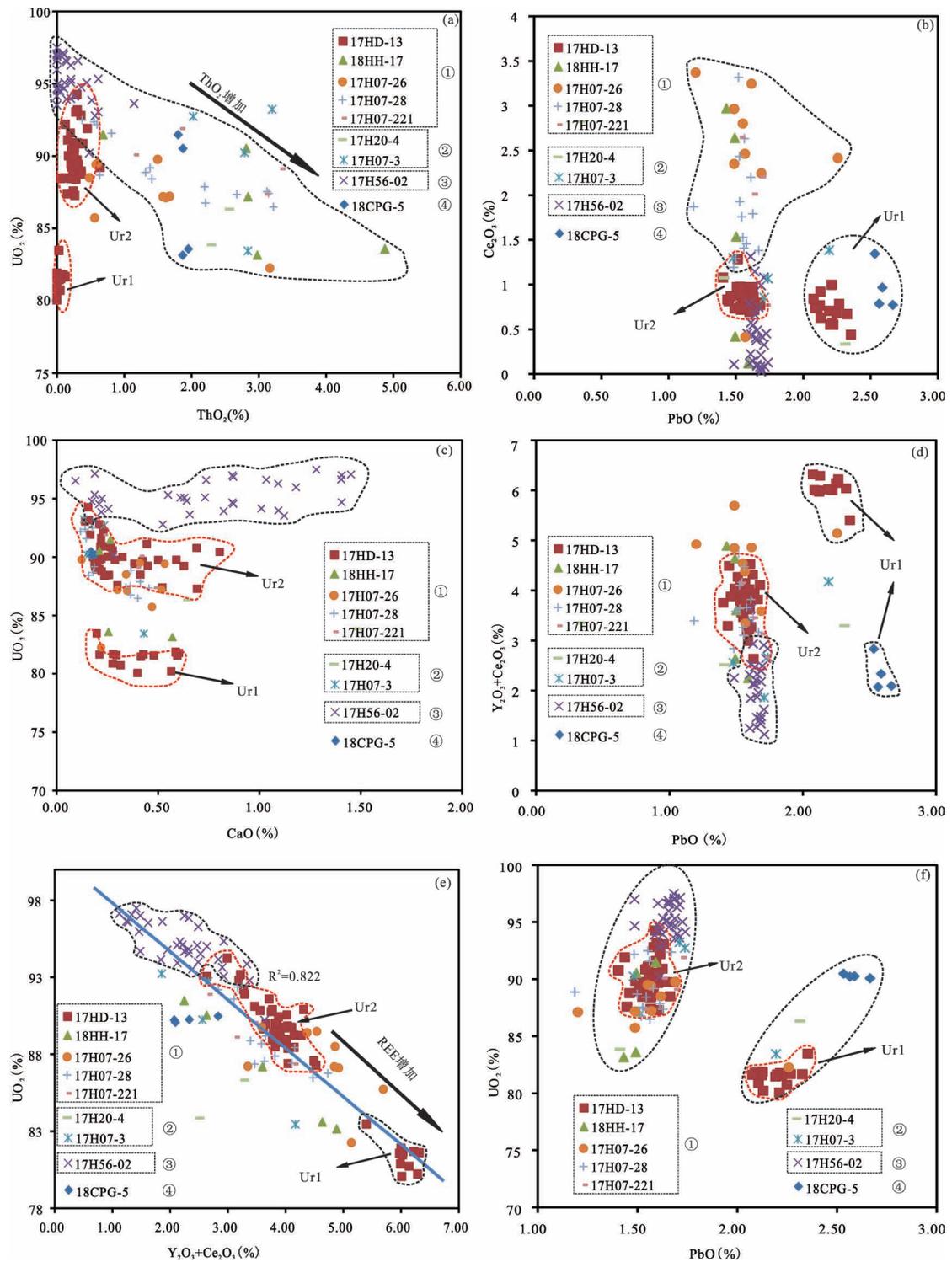


图 7 华阳川不同类型矿石样品中晶质铀矿的元素特征

Fig 7 Elemental characteristics of uraninite grains in different U-rich samples from the Huayang-chuan deposit (a)—U-Th; (b)—Pb-Ce; (c)—U-Ca; (d)—Pb-(Y+Ce); (e)—U-(Y+Ce); (f)—Pb-U 图解。华阳川矿床: ①(伟晶状)碳酸岩脉型矿石, ②黑云斜长片麻岩热液脉型, ③花岗片麻岩型矿石; ④外围草坪沟矿点黑云斜长片麻岩型矿石 (a)—U vs Th; (b)—Pb vs Ce; (c)—U vs Ca; (d)—Pb vs (Y+Ce); (e)—U vs (Y+Ce); (f)—Pb vs U. Uranium mineralization in ① (pegmatitic) carbonatite veins, and in ② biotite plagioclase gneiss associated with hydrothermal uranium veins and in ③ granite gneiss associated with hydrothermal uranium veins from Huayangchuan. ④ Uranium mineralization samples associated with biotite plagioclase gneiss were taken from the Caopinggou ore occurrence adjacent to the Huayangchaun deposit.

与早白垩世两期铀矿物年龄。结合铀矿物的共生关系表明,矿床中的铀钽铀矿也应存在~201 Ma与~129 Ma两期。

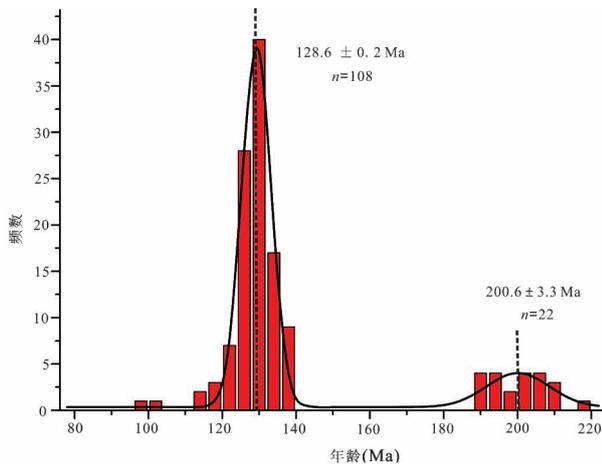


图8 华阳川矿区晶质铀矿化学年龄分布直方图

Fig 8 Histogram of the chemical ages for uraninite grains from the Huayangchuan deposit

近年来,华阳川所在的小秦岭地区报道了不少与金、钼矿(Wang Xiuzhang et al., 1992; Huang Dianhao et al., 1994, 2009; Ren Fugen et al., 1996; Stein et al., 1997; Li Houmin et al., 2007; Li Nuo et al., 2008; Mao et al., 2008, 2011)有关的印支期成矿作用(Lu Xinxiang et al., 2006, 2008; Chen Yanjing et al., 2010),也报道了大量与燕山期有关的金、钼成矿作用(Li Yongfeng et al., 2005; Mao Jingwen et al., 2005; Li Houmin et al., 2007; Mao et al., 2008, 2011)。年代学研究表明,华阳川铀钽矿床周边广泛分布 237~204 Ma 的印支期岩浆活动(Qiu Jiexiang, 1993; Li Chunlin et al., 2012; Ding et al., 2011; Qi Qiuju et al., 2012; Wang Yanfen et al., 2012; Cao Jing et al., 2015),并发育碱性岩-碳酸岩的碱性岩浆活动(Yu Xuehui, 1992a, 1992b; Qiu Jiexiang, 1993; Li Chunlin et al., 2012)及老牛山复式岩体中的印支期高钾钙碱性花岗岩(Qi Qiuju et al., 2012),还存在着以华山岩体(152~130 Ma)为代表的燕山期岩浆活动(Shang Ruijun et al., 1988; Huang Dianhao et al., 1995; Zhu Laiming et al., 2008; Guo Bo et al., 2009; Mao et al., 2010; Wang Xiaoxia et al., 2011; Qi Qiuju et al., 2012)。Xu Cheng et al. (2009)对华阳川邻区黄龙铺的碳酸岩开展研究后认为,该碳酸岩是三叠纪勉略洋向北俯冲至秦岭-华北联合古陆之下,变质脱水熔融形成岩浆弧后,弧后扩张带的残余榴辉岩低程度部分熔

融或交代而成。Wang Linjun et al. (2012)基于华阳川与黄龙铺大石沟碳酸岩的 Pb 同位素研究认为,该区碳酸岩形成于晚三叠世秦岭造山带碰撞作用结束后的伸展拉张背景。而矿床附近以华山岩体为代表的燕山期花岗岩体被认为是侏罗纪-白垩纪之交的挤压向伸展背景转换下的加厚地壳部分熔融导致岩浆上升侵位而成碰撞改造型花岗岩体(Guo Bo et al., 2009)。可见印支期和燕山期岩浆活动是小秦岭地区重要的成岩、成矿时期。由于技术手段的限制,此前并未有直接针对矿床形成的年代学研究,少数研究工作主要集中于华阳川碳酸岩形成年龄的讨论,且存在着较大争议(Qiu Jiexiang, 1993; He Sheng et al., 2016)。如 Qiu Jiexiang et al. (1993)对华阳川的碳酸岩开展 K-Ar 法定年研究,获得了 204~205 Ma 的年龄,而利用金云母 K-Ar 年龄获得 181 Ma 的热事件年龄; He Sheng et al. (2016)对华阳川碳酸岩中的黑云母开展<sup>40</sup>Ar-<sup>39</sup>Ar 定年,获得了等时线年龄为 133.01±0.74 Ma,角闪石硫化物伟晶岩中获得的黑云母 Ar-Ar 等时线年龄为 91.49±1.97 Ma,故认为铀钽铀矿的形成应晚于 93.72±2.38 Ma。而与华阳川碳酸岩所处同一碱性岩带上的黄龙铺、黄水庵碳酸岩的年代学研究显示,黄龙铺碳酸岩型钼铅矿床中的辉钼矿 Re-Os 年龄为 221 Ma (Huang Dianhao et al. 1994),铅钽铀铁矿的 U-Th-Pb 同位素年龄为 206 Ma (Huang Dianhao et al. 1984),黄水庵碳酸岩脉中的辉钼矿 Re-Os 年龄为 209.5 Ma (Huang Dianhao et al., 2009)。结合野外地质特征,该碳酸岩带可能形成于晚三叠世末期。本次研究获得~201 Ma 的晶质铀矿的年龄与主要赋矿碳酸岩脉 K-Ar 年龄及邻区黄龙铺碳酸岩脉中含铀矿物的同位素年龄相近,暗示矿床中的主要铀矿物的形成可能与晚三叠世末期的火成碳酸岩脉具有密切的成因联系。

国外的研究实例表明,碱性岩-碳酸岩中易富集高含量的 Th、U 元素,且主要以烧绿石(铀钽铀矿为烧绿石亚族矿物)、磷灰石等副矿物的形式存在(Kogarko, 2014),在格陵兰 Qaqarssuk 碳酸岩杂岩体中也产生大量烧绿石族矿物(Kundsen, 1989),这证实碱性-碳酸岩浆可以为大量铀钽铀矿的形成提供了物质来源。矿石的产出状态、铀钽铀矿与晶质铀矿的矿物学、矿物化学及年代学特征也表明,华阳川铀钽矿床的形成可能主要与晚三叠世末期的火成碳酸岩脉密切相关,结合矿床中早期铀钽铀矿的蚀变特征及其与晚期晶质铀矿的空间关系(图 4b,

图5c)以及晚期晶质铀矿与长白矿[矿物式: $PbNb_2O_6$ ]共生表明(图4b),晚期少量的晶质铀矿与铌钽铀矿可能是区内以华山岩体为代表的岩浆活动产生的热液,蚀变了早期的铌钽铀矿后,少量铀被淋滤带出再次沉淀的结果。

综上,小秦岭地区不仅存在印支期重要的金、钼等成矿作用,还可能存在晚三叠世末期以火成碳酸岩脉型为代表的铀成矿作用,因此,该区碱性岩-碳酸岩带上的铀成矿作用应予以重视。

#### 4.3 成矿机理

基于上述研究成果,认为华阳川铀矿床形成的机理可能是:晚三叠世伸展背景下形成碱性-碳酸岩浆,沿深大断裂侵入到太华群片麻岩片麻理中,结晶分异晚期形成的碱性岩-碳酸岩脉富集大量U、Th等放射性元素,形成大量以碳酸岩脉型铌钽铀矿(含少量晶质铀矿)为主的铀钽多金属矿床。在早白垩世(~129 Ma)期间,华阳川所在地区的构造背景发生了由挤压向伸展的转变,加厚地壳部分熔融导致岩浆上升侵位,产生了强烈的岩浆活动。由于铌钽铀矿自身的蜕晶化作用,加之受毗邻的以华山岩体等为代表的强烈岩浆热事件影响,使得早期已形成的铌钽铀矿发生不同程度的热液蚀变,部分铀被高温的热液流体浸取带出,在附近的裂隙等有利区域再次沉淀形成少量晶质铀矿与铌钽铀矿,但并不排除燕山期岩浆热液活动为之提供了部分铀源的可能。

## 5 结论

(1)华阳川铀钽矿床中晶质铀矿与铌钽铀矿具有紧密空间关系,铀主要以铌钽铀矿形式产出,晶质铀矿为次要的铀矿物,矿物学特征表明矿床中存在两期铌钽铀矿与两期晶质铀矿。

(2)晶质铀矿矿物化学特征表明矿床形成于岩浆或岩浆-高温热液环境(温度 $>350^{\circ}\text{C}$ )。年代学特征表明,早期晶质铀矿形成于晚三叠世末期(~201 Ma);晚期晶质铀矿形成于早白垩世中期(~129 Ma)。

(3)华阳川铀钽矿床可能主要与印支-燕山期之交的碱性-碳酸岩岩浆作用有关。矿床形成后受到了燕山期强烈的岩浆热事件的改造,导致早期已形成的铌钽铀矿发生了热液蚀变,部分铀被热液流体浸取带出,再次在有利部位沉淀形成了晚期极少量的晶质铀矿与铌钽铀矿矿化,但并不排除燕山期岩浆热液活动为之提供了部分铀源的可能。

致谢:本次研究中,野外工作得到中陕核工业集团二二四大队有限公司康清清项目副总经理、李鹏工程师以及华阳川项目组的大力支持;电子探针分析工作得到了中国冶金地质总局山东局分析测试中心林培军工程师的帮助;匿名评审专家和编辑老师对本文提出了很好的修改意见和建议,在此一并感谢。

## References

- Alexandre P, Kyser T K. 2005. Effects of cationic substitutions and alteration in uraninite, and implications for the dating of uranium deposits. *Canadian Mineralogist*, 43(3): 1005~1017.
- Alexandre P, Kyser K, Layton-Matthews D, Joy B, Uvarova Y. 2015. Chemical compositions of natural uraninite. *Canadian Mineralogist*, 53(4): 595~622.
- Bowles J F W. 1990. Age dating of individual grains of uraninite in rocks from electron microprobe analyses. *Chemical Geology*, 83(1): 47~53.
- Bowles J F W. 2015. Age dating from electron microprobe analyses of U, Th, and Pb: geological advantages and analytical difficulties. *Microscopy and Microanalysis*, 21(5): 1114~1122.
- Cai Yuqi, Zhang Jingdai, Li Ziyang, Guo Qingyin, Song Jiye, Fan Honghai, Liu Wusheng, Qi Fucheng, Zhang Minglin. 2015. Outline of uranium resources characteristics and metallogenetic regularity in China. *Acta Geologica Sinica-English Edition*, 89(3): 918~937.
- Cao Jing, Ye Huishou, Li Zhengyuan, Zhang Xingkang, Wang Peng, He Wen. 2015. Geochronology, geochemistry and petrogenesis of the Mogou alkalic pluton in the East Qinling orogenic belt. *Acta Petrologica et Mineralogica*, 34(5): 665~684(in Chinese with English abstract).
- Chen Yanjing. 2010. Indosinian tectonic setting, magmatism and metallogenesis in Qinling Orogen, central China. *Geology of China*, 37(4): 854~865(in Chinese with English abstract).
- Detachment No. 8, Comprehensive Geological Brigade of Tong-hua Region and the Laboratory of Petrology and Mineralogy and Jilin Institute of Geological Science. 1978. Changbaitie ( $PbNb_2O_6$ ), a new mineral of lead and niobium from Eastern Kirin, China. *Acta Geologica Sinica*, 52(1): 53~62(in Chinese with English abstract).
- Ding L X, Ma C Q, Li J W, Robinson P T, Deng X D, Zhang C X, Wang C. 2011. Timing and genesis of the adakitic and shoshonitic intrusions in the Laoniushan complex, southern margin of the North China Craton: Implications for post-collisional magmatism associated with the Qinling Orogen. *Lithos*, 126: 212~232.
- Dong Y P, Zhang G W, Neubauer F, Liu X M, Genser J, Hauzenberger C. 2011. Tectonic evolution of the Qinling orogen, China: Review and synthesis. *Journal of Asian Earth Sciences*, 41: 213~237.
- Dong Y P, Santosh M. 2016. Tectonic architecture and multiple orogeny of the Qinling Orogenic Belt, Central China. *Gondwana Research*, 29: 1~40.
- Gao Cheng, Kang Qingqing, Zhang Xiongmao, Chen Ximin, Hu Jinping. 2015. Uranium occurrences and carbonatite petrology in Huayangchuan. *Geology of Shannxi*, 33(2): 10~13(in Chinese with English abstract).
- Gao Cheng, Kang Qingqing, Jiang Hongjun, Zheng Hui, Li Peng, Zhang Xiongmao, Li Lei, Dong Qiangqiang, Ye Xingchao, Hu Xiaojia. 2017. A unique uranium polymetallic deposit discovered in the Qinling orogenic belt: The Huayangchuan super-large U-Nb-Pb-REE deposit associated with pegmatites and carbonatites. *Geochimica*, 46(5): 446~455(in Chinese with English abstract).

- Geisler T, Seydoux-Guillaume A M, Poeml P, Golla-Schindler U, Berndt J, Wirth R, Pollok K, Janssen A, Putnis A. 2005. Experimental hydrothermal alteration of crystalline and radiation-damaged pyrochlore. *Journal of Nuclear Materials*, 344:17~23.
- Gilligan R, Nikoloski A N. 2017. The process chemistry and mineralogy of brannerite leaching. *Journal of the Southern African Institute of Mining and Metallurgy*, 117:765~770.
- Guo Bo, Zhu Laimin, Li Ben, Gong Hujun, Wang Jianqi. 2009. Zircon U-Pb age and Hf isotope composition of the Huashan and Heyu granite plutons at the southern margin of North China Craton: Implications for geodynamic settings. *Acta Petrologica Sinica*, 25(2):265~281(in Chinese with English abstract).
- Guo Wei, Zhou Dingwu, Ren Junfeng, Zhou Xiaohu, Sang Haiqing. 2008. Characteristics of the Huayangchuan Ductile shear zones in the Xiao Qinling Mountains, Shaanxi, China, and its regional tectonic significance. *Geological Bulletin of China*, 27(6):823~828 (in Chinese with English abstract).
- Hazen R M, Ewing R C, Sverjensky D A. 2009. Evolution of uranium and thorium minerals. *American Mineralogist*, 94:1293~1311.
- He Sheng, Li Ziyang, Hui Xiaochao, Guo Jian. 2016. <sup>40</sup>Ar/<sup>39</sup>Ar geochronology of biotite in Huayangchuan uranium-polymetallic deposit in Shanxi Province and its geological significance. *Uranium Geology*, 32(3):159~164 (in Chinese with English abstract).
- Huang Dianhao, Wang Yichang, Nie Fengjun, Jiang Xiujie. 1984. Isotopic composition of sulfur, carbon and oxygen and source of the Huanglongpu carbonatite vein-type of molybdenum (lead) deposits. *Acta Geologica Sinica*, 3:252~264(in Chinese with English abstract).
- Huang Dianhao, Wu Chengyu, Du Andao, He Hongliao. 1994. Re-Os Isotope ages of molybdenum deposits in East Qinling and their significance. *Mineral Deposits*, 13(3):221~230.
- Huang Dianhao, Hou Zengqian, Yang Zhiming, Li Zhenqing, Xu Daoxue. 2009. Geological and geochemical characteristics, metallogenetic mechanism and tectonic setting of carbonatite vein-type Mo(Pb) deposits in the East Qinling molybdenum ore belt. *Acta Geologica Sinica*, 83(12):1968~1984 (in Chinese with English abstract).
- Hui Xiaochao. 2014. Study on mineralization and geochemistry of the Huayangchuan uranium polymetallic deposit, Shaanxi Province. Beijing: Beijing Research Institute of Uranium Geology (in Chinese with English abstract).
- Hui Xiaochao, Li Ziyang, Feng Zhangsheng, Cheng Dejin. 2014. Research on the occurrence state of U in the Huayangchuan U-Polymetallic deposit, Shanxi Province. *Acta Mineralogica Sinica*, 34(4):573~580(in Chinese with English abstract).
- Hui Xiaochao, He Sheng. 2016. Mineralization characteristic of carbonatite veins in Huayangchuan U-polymetal deposit, Shanxi Province. *Uranium Geology*, 32(2):93~98 (in Chinese with English abstract).
- Hui Xiaochao, Cai Yuqi, He Sheng, Feng Zhangsheng. 2017. Petrologic and geochemical characteristics of carbonatites in Huayangchuan U-Nb-Pb deposit, Shaanxi Province. *Geoscience*, 31(2):246~257(in Chinese with English abstract).
- IAEA. 2015. Energy, electricity and nuclear power estimates for the period up to 2050, RDS-1 2015 edition, IAEA, Vienna.
- Kang Qingqing, Jiang Hongjun, Li Peng, Li Lei, Zhang Xiongmao, Dong Qiangqiang, Ye Xingchao, Gao Cheng, Zhang Tao, Xue Congcong. 2018. Ore mineralogical characteristics of the Huayangchuan U-Nb-Pb deposit. *Journal of East China University of Technology(Natural Science)*, 41(2):111~123(in Chinese with English abstract).
- Kempe U. 2003. Precise electron microprobe age determination in altered uraninite; consequences on the intrusion age and the metallogenetic significance of the Kirchberg granite (Erzgebirge, Germany). *Contributions to Mineralogy and Petrology*, 145:107~118.
- Keppler H, Wyllie P J. 1990. Role of fluids in transport and fractionation of uranium and thorium in magmatic processes. *Nature(Review Article)*, 348:531~533.
- Kogarko L N. 2014. Conditions of accumulation of radioactive metals in the process of differentiation of ultrabasic alkaline-carbonatite rock associations. *Geology of Ore Deposits* 56:230~238.
- Kundsen C. 1989. Pyrochlore group minerals from the Qaqarssuk carbonatite complex. Lanthanides, Tantalum and Niobium 7:10.
- Li Chunlin, Yu Xinqi, Liu Junlai, Wang Beiying, Chen Shuaiqi, Dai Yanpei. 2012. Geochronology of the Indosinian Dongjiekou pyroxene syenite from Xiaoqingling area and its tectonic implications. *Journal of Jilin University (Earth Science Edition)*, 42(6):1806~1816 (in Chinese with English abstract).
- Li Houmin, Ye Huishou, Mao Jinwen, Wang Denghong, Chen Yuchuan, Qu Wenjun, Du Andao. 2007. Re-Os dating of molybdenites from Au(-Mo) deposits in Xiaoqingling gold ore district and its geological significance. *Mineral Deposits*, 26(4):417~424(in Chinese with English abstract).
- Li Nuo, Chen Yanjing, Zhang Hui, Zhao Taiping, Deng Xiaohua, Wang Yun, Ni Zhiyong. 2007. Molybdenum deposits in East Qinling. *Earth Science Frontiers*, 14(5):186~198 (in Chinese with English abstract).
- Li Nuo, Sun Yali, Li Jing, Xue Liangwei, Li Wenbo. 2008. Molybdenite Re-Os isotope age of the Dahu Au-Mo deposit, Xiaoqingling and the Indosinian mineralization. *Acta Petrologica Sinica*, 24(4):810~816(in Chinese with English abstract).
- Li Yongfeng, Mao Jingwen, Hu Huabin, Guo Baojian, Bai Fengjun. 2005. Geology, distribution, types and tectonic settings of Mesozoic molybdenum deposits in East Qinling area. *Mineral Deposits*, 24(3):292~304(in Chinese with English abstract).
- Liu Xingzhong, Zhou Weixun. 1990. Uranium provinces in China and their distribution patterns. *Uranium Geology*, 6(6):326~337. (in Chinese with English abstract).
- Liu Yingjun, Cao Liming, Li Zhaolin, Wang Henian, Chu Tongqing, Zhang Jingrong. 1984. *Geochemistry of elements*. Beijing: Science Press, 217~223, 229~232(in Chinese).
- Lu Xinxiang. 2006. Indosinian ore-forming process in Qinling area and its significance. *Mineral Deposits*, 25(S1):179~180.
- Lu Xinxiang, Li Mingli, Wang Wei, Yu Zaiping, Shi Yongzhi. 2008. Indosinian movement and metallogenesis in Qinling orogenic belt. *Mineral Deposits*, 27(6):762~773 (in Chinese with English abstract).
- Lumpkin G R, Ewing R C. 1996. Geochemical alteration of pyrochlore group minerals: Betafite subgroup. *American Mineralogist*, 81:1237~1248.
- Macmillan E, Cook N J, Ehrig K, Ciobanu C L, Pring A. 2016. Uraninite from the Olympic Dam IOCG-U-Ag deposit: Linking textural and compositional variation to temporal evolution. *American Mineralogist*, 101:1295~1320.
- Mao Jingwen, Xie Guiqing, Zhang Zuoheng, Li Xiaofeng, Wang Yitian, Zhang Changqing, Li Yongfeng. 2005. Mesozoic large-scale metallogenetic pulses in North China and corresponding geodynamic settings. *Acta Petrologica Sinica*, 21(1):171~190 (in Chinese with English abstract).
- Mao J W, Xie G Q, Bierlein F, Qü W J, Du A D, Ye H S, Pirajno F, Li H M, Guo B J, Li Y F, Yang Z Q. 2008. Tectonic implications from Re-Os dating of Mesozoic molybdenum deposits in the East Qinling-Dabie orogenic belt. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 72:4607~4626.
- Mao J W, Xie G Q, Pirajno F, Ye H S, Wang Y B, Li Y F, Xiang J F, Zhao H J. 2010. Late Jurassic-Early Cretaceous granitoid magmatism in Eastern Qinling, central-eastern China: SHRIMP zircon U-Pb ages and tectonic implications. *Australian Journal of Earth Sciences*, 57:51~78.
- Mao J W, Pirajno F, Xiang J F, Gao J J, Ye H S, Li Y F, Guo B J. 2011. Mesozoic molybdenum deposits in the east Qinling-Dabie orogenic belt: Characteristics and tectonic settings. *Ore Geology*

- Reviews, 43: 264~293.
- McMaster S A, Ram R, Pownceby M I, Tardio J, Bhargava S. 2015. Characterisation and leaching studies on the uranium mineral betafite( $\text{Ca}, \text{U})_2(\text{Ti}, \text{Nb}, \text{Ta})_2\text{O}_7$ . *Minerals Engineering*, 81: 58~70.
- McMaster, S A, Ram R, Faris N, Pownceby M I, Tardio J, Bhargava S K. 2017. Uranium leaching from synthetic betafite:  $[(\text{Ca}, \text{U})_2(\text{Ti}, \text{Nb}, \text{Ta})_2\text{O}_7]$ . *International Journal of Mineral Processing*, 160: 58~67.
- Mercadier J, Cuney M, Lach P, Boiron M C, Bonhoure J, Richard A, Leisen M, Kister P. 2011. Origin of uranium deposits revealed by their rare earth element signature. *Terra Nova*, 23 (4): 264~269.
- Mercadier J, Annesley I R, McKechnie C. L, Bogdan T. S, Creighton S. 2013. Magmatic and Metamorphic Uraninite Mineralization in the Western Margin of the Trans-Hudson Orogen (Saskatchewan, Canada): A Uranium Source for Unconformity-Related Uranium Deposits? *Economic Geology*, 108(5): 1037~1065.
- NEA & IAEA. 2016. Uranium 2016: Resources, Production and Demand (Red Book). Paris, OECD Publishing, 202~212.
- Nettleton K C A, Nikoloski A N, Da Costa M. 2015. The leaching of uranium from betafite. *Hydrometallurgy*, 157: 270~279.
- Qi Qiuju, Wang Xiaoxia, Ke Changhui, Li Jinbao. 2012. Geochronology and origin of the Laoniushan complex in the southern margin of North China Block and their implications: New evidences from zircon dating, Hf isotopes and geochemistry. *Acta Petrologica Sinica*, 28 (1): 279~301 (in Chinese with English abstract).
- Qiu Jiaxiang, Zeng Guangce, Li Changnian. 1993. Alkaline igneous rocks in Qingling-Daba Mountains. Beijing: Geological Publishing House, 21~23, 136~137 (in Chinese).
- Ren Fugen, Li Weimin, Li Zenghui. 1996. The metallogenetic geological condition and general appraising model of gold deposits in Xionger shan-Xiao shan district. Beijing: Geological Publishing House, 80~90 (in Chinese).
- Shang Ruijun, Yan Zhen et al. 1988. Granites of Mt. Qinling & Dabashan. Wuhan: China University of Geosciences Press, (in Chinese).
- Stein H J, Markey R J, Morgan J W. 1997. Highly precise and accurate Re-Os ages for molybdenite from the East Qinling molybdenum belt, Shaanxi Province, China. *Economic Geology*, 92: 827~835.
- Tang Ao, Li Guanglai, Su Ye, Guo Guolin, Wei Xinglin, Liu Zhenyu, Chen Guangxu. 2017. EMPA chemical U-Th-Pb dating of uraninite in Ziyunshan granite, Centre Jiangxi Province. *Earth Science*, 42(3): 378~388 (in Chinese with English abstract).
- Wang Jiangbo, Li Weihong, Hui Zhengbu, Zhao Ruyi, Gong Qifu, Zhu Huanqiao. 2013. Geological characteristics of the Huayangchuan U-Nb-Pb deposit, Shaanxi Province. *Acta Mineral Sinica*, 33(S2): 248~249 (in Chinese).
- Wang Linjun, Xu Cheng, Wu Min, Song Wenlei. 2011. A study of fluid inclusion from Huayangchuan carbonatite. *Acta Mineralogica Sinica*, 31(3): 372~379 (in Chinese with English abstract).
- Wang Linjun, Xu Cheng, Wu Min, Song Wenlei, Tang Hongfeng. 2012. Sr-Nd-Pb isotope geochemistry of Lesser Qinling. *Acta Mineral Sinica*, 32 (3): 370~378 (in Chinese with English abstract).
- Wang Xiaoxia, Wang Tao, Qi Qiuju, Li Shan. 2011. Temporal-spatial variations, origin and their tectonic significance of the Late Mesozoic granites in the Qinling, Central China. *Acta Petrologica Sinica*, 27(6): 1573~1593 (in Chinese with English abstract).
- Wang Xiuzhang, Cheng Jingping, Bai Zhenghua, Liang Huaying, Zhang Baogui, Fan Wenling. 1992. Geochemistry of reforming-type gold deposits in China. Beijing: Science Press, 10~11, 33~34 (in Chinese).
- Wang Yanfen, Shao Yi, Jiang Shaoyong, Zhang Zunzhong, Hu Jian, Xiao E, Dai Baozhang, Li Haiyong. 2012. Petrogenesis of indosinian high Ba-Sr granites in Laoniushan batholith, Shaanxi Province and their tectonic implications. *Geological Journal of China Universities*, 18(1): 133~149 (in Chinese with English abstract).
- Wei Longming, Wang Li, Zhang Guanhuai, Zhu Wenfeng, Wang Xiaoxiao, Wang Denghong, Wang Ran. 2014. Study on the uraninite in Shirenzhang tungsten deposits, Guangdong Province. *Acta Geologica Sinica*, 88(4): 805~813 (in Chinese with English abstract).
- Wu Cuilian, Liu Zhichao, Ma Jia, Tang Baobing. 2015. Occurrence state of uranium in Huayangchuan polymetallic deposit. *Uranium Mining and Metallurgy*, 34 (1): 30~34 (in Chinese with English abstract).
- Xu Cheng, Song Wenlei, Qi Liang, Wang Linjun. 2009. Geochemical characteristics and tectonic setting of ore-bearing carbonatites in Huanglongpu Mo ore field. *Acta Petrologica Sinica*, 25(2): 422~430 (in Chinese with English abstract).
- Xu Guoqing, Wang Aizhen, Gu Qifang, Zhang Jingyi, Zhang Zhaoming, Huang Yuzhu. 1982. Some Mineralogical Characteristics of Uraninite and Pitchblende in China. *Acta Mineralogica Sinica*, 3: 193~200 (in Chinese with English abstract).
- Yu Xuehui. 1992a. Geological, petro-mineralogical characteristics and origin of the carbonatites from Huayangchuan, Shaanxi Province. *Earth Science—Journal of China University of Geosciences*, 17 (2): 151~158 (in Chinese with English abstract).
- Yu Xuehui. 1992b. The relation of alkaline rocks in the Qingling Daba Mountains region and the tectonic evolution of the orogen and their features. *Regional Geology of China*, 3: 233~240 (in Chinese with English abstract).
- Zhang Guowei, Zhang Zongqing, Dong Yunpeng. 1995. Nature of main tectono-lithostratigraphic units of the Qingling Orogen: implications for the tectonic evolution. *Acta Petrologica Sinica*, 11(2): 101~114 (in Chinese with English abstract).
- Zhang Guowei, Meng Qingren, Yu Zaiping, Sun Yong, Zhou Dingwu, Guo Anlin. 1996. The orogenic process of the Qinling orogen and its dynamics. *Science in China (Series D)*, 26(3): 193~200 (in Chinese).
- Zhang Guowei, Zhang Benren, Yuan Xuecheng, Xiao Qinghui et al. 2001. Qinling Belt and Continental Dynamics. Beijing: Science Press, 1~729 (in Chinese).
- Zhang Jindai, Li Ziyang, Cai Yuqi, Guo Qingyin, Li Youliang, Han Changqing. 2012. The main advance and achievements in the potential evaluation of uranium resource in China. *Uranium Geology*, 28(6): 321~326 (in Chinese with English abstract).
- Zhang Long, Chen Zhenyu, Tian Zejin, Huang Guolong. 2016. The application of electron microprobe dating method on uranium minerals in Changjiang granite, Northern Guangdong. *Rock and Mineral Analysis*, 35 (1): 98~107 (in Chinese with English abstract).
- Zhang Wenlan, Hua Renmin, Wang Rucheng, Li Huimin, Qu Wenjun, Ji Jianqing. 2009. New Dating of the Piaotang Granite and Related Tungsten Mineralization in Southern Jiangxi. *Acta Geologica Sinica*, 83 (5): 659~670 (in Chinese with English abstract).
- Zhao Huibo, Liu Yafei, Yang Shan, Ye Meifang, Wang Zhihai, Wang Bo, Chang Na. 2014. The application of electron microprobe dating method on a genetic type of uraninite. *Rock and Mineral Analysis*, 33(1): 102~109. (in Chinese with English abstract).
- Zhu Laimin, Zhang Guowei, Guo Bo, Li Ben. 2008. U-Pb (LA-ICP-MS) zircon dating for the large Jinduicheng porphyry Modeposit in the East Qinling, China, and its metallogenetic geodynamical setting. *Acta Geologica Sinica*, 82(2): 204~220 (in Chinese with English abstract).
- Zhu Pengfei, Cai Yuqi, Guo Qingyin, Liu Wusheng, Li Jianhong, Zhang Minglin, Qi Fucheng, Zhang Zilong, Jia Licheng, Xu Hao. 2018. Metallogenetic and geological characterization and

resource potential assessment of uranium resource in China. *Earth Science Frontiers*, 25(3): 148~158 (in Chinese with English abstract).

### 参 考 文 献

- 曹晶,叶会寿,李正远,张兴康,王鹏,贺文. 2015. 东秦岭磨磨碱性岩体年代学、地球化学及岩石成因. *岩石矿物学杂志*, 34(5): 665~684.
- 陈衍景. 2010. 秦岭印支期构造背景、岩浆活动及成矿作用. *中国地质*, 37(4): 854~865.
- 高成,康清清,张熊猫,陈希民,胡进平. 2015. 华阳川碳酸岩岩石特征及铀矿赋存状态. *陕西地质*, 33(2): 10~13.
- 高成,康清清,江宏君,郑惠,李鹏,张熊猫,李雷,董强强,叶兴超,胡小佳. 2017. 秦岭造山带发现新型铀多金属矿: 华阳川与伟晶岩脉和碳酸岩脉有关的超大型铀-钼-铅-稀土矿床. *地球化学*, 46(5): 446~455.
- 郭波,朱赖民,李森,弓虎军,王建其. 2009. 华北陆块南缘华山和合峪花岗岩岩体锆石 U-Pb 年龄、Hf 同位素组成与成岩动力学背景. *岩石学报*, 25(2): 265~281.
- 郭威,周鼎武,任军锋,周小虎,桑海清. 2008. 陕西小秦岭华阳川韧性剪切带的特征及其区域构造意义. *地质通报*, 27(6): 823~828.
- 何升,李子颖,惠小朝,郭建. 2016. 陕西华阳川铀多金属矿床黑云母<sup>40</sup>Ar/<sup>39</sup>Ar 年龄及其地质意义. *铀矿地质*, 32(3): 159~164.
- 黄典豪,王义昌,聂凤军,江秀杰. 1984. 黄龙铺碳酸岩脉型铀(钼)矿床的硫、碳、氧同位素组成及成矿物质来源. *地质学报*, 3: 252~264.
- 黄典豪,吴澄宇,杜安道,何红蓼. 1994. 东秦岭地区钼矿床的铀-钼同位素年龄及其意义. *矿床地质*, 13(3): 221~230.
- 黄典豪,侯增谦,杨志明,李振清,许道学. 2009. 东秦岭钼矿带内碳酸岩脉型铀(钼)矿床地质-地球化学特征、成矿机制及成矿构造背景. *地质学报*, 83(12): 1968~1984.
- 惠小朝. 2014. 陕西省华阳川铀多金属成矿作用地球化学研究. 导师: 李子颖. 核工业北京地质研究院, 博士学位论文.
- 惠小朝,李子颖,冯张生,程德进. 2014. 陕西华阳川铀多金属矿床铀赋存状态研究. *矿物学报*, 34(4): 573~580.
- 惠小朝,何升. 2016. 华阳川铀多金属矿床碳酸岩脉矿化特征. *铀矿地质*, 32(2): 93~98.
- 惠小朝,蔡煜琦,何升,冯张生. 2017. 陕西省华阳川铀钼铅矿床碳酸岩岩石学及地球化学特征. *现代地质*, 31(2): 246~257.
- 康清清,江宏君,李鹏,李雷,张熊猫,董强强,叶兴超,高成,张涛,薛聪聪. 2018. 陕西华阳川铀钼铅矿床矿石矿物学特征. *东华理工大学学报(自然科学版)*, 41(2): 111~123.
- 李春麟,余心超,刘俊来,王北颖,陈帅奇,代堰铭. 2012. 小秦岭东吉口印支期辉石正长岩年代学及其地质意义. *吉林大学学报(地球科学版)*, 42(6): 1806~1816.
- 李厚民,叶会寿,毛景文,王登红,陈毓川,屈文俊,杜安道. 2007. 小秦岭金(钼)矿床钼矿铀-钼-钨定年及其地质意义. *矿床地质*, 26(4): 417~424.
- 李诺,陈衍景,张辉,赵太平,邓小华,王运,倪智勇. 2007. 东秦岭斑岩钼矿带的地质特征和成矿构造背景. *地学前缘(中国地质大学(北京); 北京大学)*, 14(5): 186~198.
- 李诺,孙亚莉,李晶,薛良伟,李文博. 2008. 小秦岭大湖金钼矿床铀钼矿床同位素年龄及印支期成矿事件. *岩石学报*, 24(4): 810~816.
- 李永峰,毛景文,胡华斌,郭保健,白凤军. 2005. 东秦岭钼矿类型、特征、成矿时代及其地球动力学背景. *矿床地质*, 24(3): 292~304.
- 刘兴忠,周维勳. 1990. 中国铀矿省及其分布格局. *铀矿地质*, 6(6): 326~337.
- 刘英俊,曹励明,李兆麟,王鹤年,褚同庆,张景荣. 1984. 元素地球化学. 北京: 科学出版社, 217~223, 229~232.
- 卢欣祥. 2006. 秦岭印支期成矿作用及意义. *矿床地质*, 25(S1): 179~180.
- 卢欣祥,李明立,王卫,于在平,时永志. 2008. 秦岭造山带的印支运动及印支期成矿作用. *矿床地质*, 27(6): 762~773.
- 毛景文,谢桂青,张作衡,李晓峰,王义天,张长青,李永峰. 2005. 中国北方中生代大规模成矿作用的期次及其地球动力学背景. *岩石学报*, 21(1): 171~190.
- 齐秋菊,王晓霞,柯昌辉,李金宝. 2012. 华北地块南缘老牛山杂岩体时代、成因及地质意义——锆石年龄、Hf 同位素和地球化学新证据. *岩石学报*, 28(1): 279~301.
- 邱家骥,曾广策,李昌年. 1993. 秦巴碱性岩. 北京: 地质出版社, 21~23, 136~137.
- 任富根,李维民,李增慧. 1996. 熊耳山-崑山地区金矿成矿地质条件和找矿综合评价模型. 北京: 地质出版社, 80~90.
- 尚瑞钧,严阵等著. 1988. 秦巴花岗岩. 武汉: 中国地质大学出版社.
- 唐傲,李光来,苏晔,郭国林,韦星林,刘朕语,陈光旭. 2017. 赣中紫云山花岗岩晶质铀矿的电子探针 U-Th-Pb 化学定年. *地球科学*, 42(3): 378~388.
- 通化地区综合地质大队八分队,吉林省地质科学研究所矿室. 1978. 长白矿(PbNb<sub>2</sub>O<sub>6</sub>)——一种铌铅氧化物的新矿物. *地质学报*, 52(1): 53~62.
- 王林均,许成,吴敏,宋文磊. 2011. 华阳川碳酸岩流体包裹体研究. *矿物学报*, 31(3): 372~379.
- 王林均,许成,吴敏,宋文磊,唐红峰. 2012. 小秦岭碳酸岩的 Sr-Nd-Pb 同位素地球化学. *矿物学报*, 32(3): 370~378.
- 王江波,李卫红,惠争卜,赵如意,龚奇福,朱焕巧. 2013. 陕西华阳川铀钼矿床地质特征. *矿物学报*, 33(S2): 248~249.
- 王晓霞,王涛,齐秋菊,李舫. 2011. 秦岭晚中生代花岗岩时空分布、成因演变及构造意义. *岩石学报*, 27(6): 1573~1593.
- 王秀璋,程景平,白正华,梁华英,张宝贵,樊文苓. 1992. 中国改造型金矿床地球化学. 北京: 科学出版社, 10~11, 33~34.
- 王艳芬,邵毅,蒋少涌,张遵忠,胡建,肖娥,戴宝章,李海勇. 2012. 陕西老牛山印支期高 Ba-Sr 花岗岩成因及其构造指示意义. *高校地质学报*, 18(1): 133~149.
- 韦龙明,王莉,张广辉,朱文凤,王潇潇,王登红,王然. 2014. 广东石人峰钼矿床中的晶质铀矿研究. *地质学报*, 88(4): 805~813.
- 武翠莲,刘志超,马嘉,唐宝彬. 2015. 华阳川多金属矿床中铀的赋存状态研究. *铀矿冶*, 34(1): 30~34.
- 许成,宋文磊,漆亮,王林均. 2009. 黄龙铺钼矿田含矿碳酸岩地球化学特征及其形成构造背景. *岩石学报*, 25(2): 422~430.
- 徐国庆,王爱珍,顾绮芳,张静宜,张昭明,黄裕柱. 1982. 我国晶质铀矿和沥青铀矿的某些矿物学特征. *矿物学报*, 3: 193~200.
- 喻学惠. 1992a. 陕西华阳川碳酸岩地质学和岩石学特征及其成因初探. *地球科学——中国地质大学学报*, 17(2): 151~158.
- 喻学惠. 1992b. 秦巴地区碱性岩与造山带构造演化关系及其特征. *中国区域地质*, 3: 233~240.
- 张国伟,张宗清,董云鹏. 1995. 秦岭造山带主要构造岩石地层单元的构造性质及其大地构造意义. *岩石学报*, 11(2): 101~114.
- 张国伟,孟庆任,于在平,孙勇,周鼎武,郭安林. 1996. 秦岭造山带的造山过程及其动力学特征. *中国科学(D辑: 地球科学)*, 26(3): 193~200.
- 张国伟,张本仁,袁学诚,肖庆辉等. 2001. 秦岭造山带与大陆动力学. 北京: 科学出版社, 1~729.
- 张金带,李子颖,蔡煜琦,郭庆银,李友良,韩长青. 2012. 全国铀矿资源潜力评价工作进展与主要成果. *铀矿地质*, 28(6): 321~326.
- 张龙,陈振宇,田泽瑾,黄国龙. 2016. 电子探针测年方法应用于粤北长江岩体的铀矿物年龄研究. *岩矿测试*, 35(1): 98~107.
- 张文兰,华仁民,王汝成,李惠民,屈文俊,李建清. 2009. 赣南漂塘钨矿花岗岩成岩年龄与成矿年龄的精确测定. *地质学报*, 83(5): 659~670.
- 赵慧博,刘亚非,阳珊,叶美芳,王志海,王博,常娜. 2014. 电子探针测年方法应用于晶质铀矿的成因类型探讨. *岩矿测试*, 33(1): 102~109.
- 朱赖民,张国伟,郭波,李森. 2008. 东秦岭金堆城大型斑岩钼矿床 LA-ICPMS 锆石 U-Pb 定年及成矿动力学背景. *地质学报*, 82(2): 204~220.
- 朱鹏飞,蔡煜琦,郭庆银,刘武生,李建红,张明林,漆富成,张宇龙,

贾立城,徐浩. 2018. 中国铀矿资源成矿地质特征与资源潜力分析. 地学前缘(中国地质大学(北京);北京大学), 25(3): 148

~158.

## Chronology and mineral chemistry of the uranium minerals in Huayangchuan uranium–niobium deposit, Shaanxi Province and its implications for uranium mineralization

GAO Longgang<sup>1,2)</sup>, CHEN Youwei<sup>\*1)</sup>, BI Xianwu<sup>1)</sup>, HU Ruizhong<sup>1)</sup>,  
GAO Cheng<sup>3)</sup>, DONG Shaohua<sup>1)</sup>, LUO Jincheng<sup>1)</sup>

1) *State Key Laboratory of Ore Deposit Geochemistry, Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences,*

*Guiyang, 550081; 2) University of Chinese Academy of Sciences, Beijing, 100049;*

3) *Geological Party No. 224 Sino Shaanxi Nuclear Industry Group, Xi'an, 710024*

*\* Corresponding author: chenyouwei@mail.gyig.ac.cn*

### Abstract

The Huayangchuan uranium–niobium polymetallic deposit which is located on the southern margin of the North China Craton, is a large carbonatite-related uranium deposit. Based on detailed field geological work, this paper focus on the petrography, mineral chemistry and chronology of the uranium minerals, using field emission scanning electron microscopy (FE-SEM) combined with energy Disperse spectrum (EDS) and electron microprobe analysis (EMPA). The results show that primary uranium mineral is betafite, followed by uraninite. Uraninite chemical U–Th–Pb geochronology and mineralogical evidences provide the timing constraints and insights into the formation of the Huayangchuan uranium–niobium deposit. Two types of mineralization are identified and documented here: magmatic uranites and betafites related to (aegirine–augite) biotite calcite carbonatitic and syenite pegmatitic veins, formed during the peak (~201 Ma) associated with a large number of altered betafites, and high-temperature vein-hosted uraninites and betafites related to granitic gneiss, formed during the peak (~129 Ma) with few unaltered betafite grains. Minerology and mineral chemistry study indicate that the uraninite and betafite formed at the late stage may precipitate from the Yanshanian magmatic hydrothermal fluid which leached the uranium element from the early betafites. It is demonstrated that the early uranium mineralization related to the (Aegirine–augite) biotite calcite carbonatitic veins, is the primary stage for the deposit, while the late uranium mineralization may be only the altered produced due to the Yanshanian magmatic activity. In summary, the Huayangchuan uranium–niobium deposit show the genetic relationship with the Indosinian–Yanshanian carbonatitic veins but superimposed by the Yanshanian magmatism activity.

**Key words:** uranium–niobium deposit; betafite; uraninite; mineral chemistry; chronology; Huayangchuan