



Некоторые закономерности формирования эпигенетических урановых руд в песчаниках по экспериментальным и радиохимическим данным

Л. С. Евсеева, К. Е. Иванов, В. И. Кочетков

В статье изложены результаты опытов по моделированию процесса осаждения урана из водных растворов в пласте песчаника, обогащенного свежесоздаваемыми сульфидами железа. В модели пласта получены зона окисления и зона цементации, обогащенная ураном, осадившимся из водных растворов. В зоне цементации отмечаются новообразования сульфидов железа в виде роллов, аналогичных природным рудным залежам. Показано, что образование рудных концентраций урана происходит в процессе непрерывного продвижения зоны окисления в направлении движения растворов и перераспределения урана вблизи границы окисленных и неизмененных пород. Результаты экспериментов подтверждаются данными изучения радиоактивного равновесия между ионием и ураном в природных условиях.

Введение

В связи с повышением значения эпигенетических осадочных месторождений в общем балансе запасов урана изучение процессов образования этих месторождений в последние годы привлекает внимание многих исследователей.

Особенный интерес представляют месторождения в проницаемых песчано-глинистых породах с рудными телами овальной и серпообразной форм получившими название роллов. Подобные рудные тела подробно описаны Д. Шоу [1], который указывает, что изучение и объяснение их строения может помочь выяснению генезиса месторождения.

А. И. Германов [2] высказал предположение, что залежи типа роллов имеют инфильтрационное происхождение и образуются в условиях нисходящего напорного движения подземных вод при относительной однородности состава и равномерной проницаемости пород.

Скорость движения воды в равномерном проницаемом пласте, ограниченном сверху и снизу водоупорами убывает от центральной части пласта к периферии. Вследствие этого окисленные зоны, формирующиеся в песчаных пластах, имеют вид языков, вытянутых в направлении движения вод, а рудные залежи, локализуясь вблизи контакта окисленных и неизмененных пород и повторяя контур этого контакта, имеют

серпообразную или роллообразную форму. Осаждение урана из вод происходит при смене окислительных условий восстановительными, в которых миграционная способность урана резко снижается. Очевидно, чем больше веществ в восстановленном состоянии содержится в породах и чем равномернее скорость их окисления, тем контрастнее граница смены условий и тем благоприятнее должна быть обстановка для концентрации урана вблизи этой границы. К веществам, интенсивно окисляющимся под влиянием кислорода вод в песчаных породах, относятся сульфиды, растительные углефицированные остатки, битумные вещества, соединения двухвалентного железа и др.

Изложенные представления об условиях образования рудных залежей типа роллов легли в основу экспериментов, выполненных Л. С. Евсеевой и В. И. Кочетковым по моделированию процесса осаждения урана из водных растворов в песчаном пласте, обогащенном сульфидами железа. Радиохимические исследования, проведенные К. Е. Ивановым на природном рудопроявлении, подтвердили инфильтрационный генезис залежей этого типа и позволили установить время их образования.

Методика экспериментов

Модель пласта (рис. 1) представляла собой ящик из прозрачного органического стекла

размером $2,0 \times 0,15 \times 0,20$ м, заполненный мелкозернистым однородным кварцевым железненным песком. В подошве и кровле пласта была проложена глина. Для изоляции от кислорода воздуха сверху пласт плотно закрывался крышкой с резиновой прокладкой. Модель была установлена с небольшим уклоном при котором скорость прохождения растворов через пласт составляла 5 л/сутки, что соответствует линейной скорости фильтрации $12,5$ м/сутки. Для превращения окисного железа, содержавшегося в песке, в сульфиды в начале опыта через песок

один раз в сутки. Анализы производились люминесцентным методом.

Содержание Fe_2O_3 в исходном песке в первом опыте составляло $0,5$ во втором $1,3\%$. Объем пропущенного урансодержащего раствора равнялся соответственно 75 и 245 л. Продолжительность первого опыта 20 суток, второго — около двух месяцев. Следует отметить, что при подаче раствора гидростатический напор в пласте несколько изменялся по мере падения уровня воды в бутылки, из которой подавался раствор (см. рис. 4).

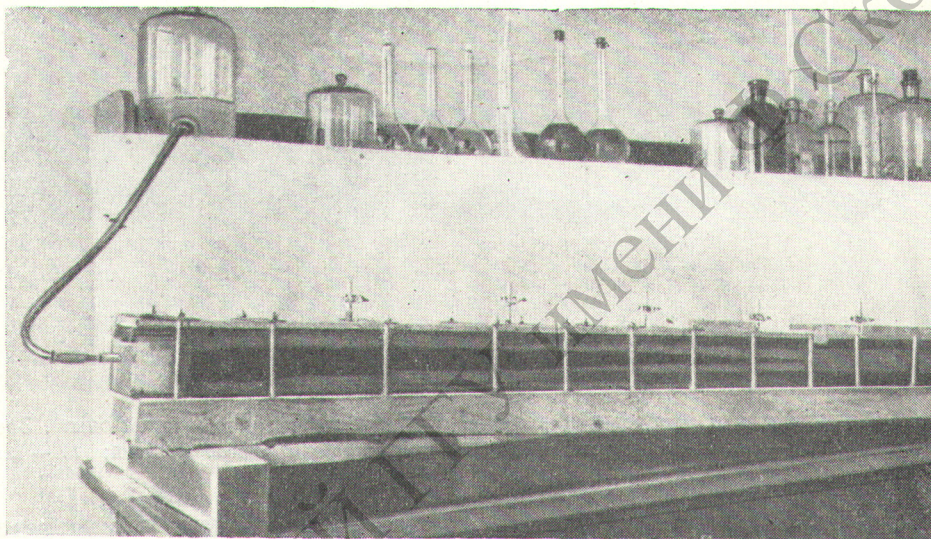


Рис. 4. Модель пласта песчаников.

пропускалась дистиллированная вода, насыщенная сероводородом. После того как весь песок приобретал черную окраску, пласт промывался дистиллированной водой до полного удаления на выходе запаха сероводорода. Затем через пласт в течение длительного времени пропускалась вода, содержащая уран. В первом опыте уран в растворы добавлялся в виде уранилтрикарбоната натрия, во втором — азотнокислого уранила. Через пласт пропускались растворы с концентрациями урана $n \cdot 10^{-6}$ — $n \cdot 10^{-5}$ г/л и $n \cdot 10^{-3}$ — $n \cdot 10^{-2}$ г/л. На выходе из пласта содержание урана в растворах составляло в первом случае $(1 - 4) \cdot 10^{-7}$ г/л, а во втором $(1 - 4) \cdot 10^{-6}$ г/л.

В качестве рабочих в опытах применялись растворы с концентрацией урана $2 \cdot 10^{-3}$ г/л. Значение pH этих растворов находилось в пределах шести-семи. Содержание урана в растворах на выходе из пласта контролировалось

После окончания опытов исследовалось распределение урана в пласте. Для этой цели пробы песка отбирались трубкой из нержавеющей стали по поперечным сечениям пласта через 20 см. Из каждого сечения отбирались девять проб. До $0,003\%$ содержание урана определялось химическим методом, а при более низких содержаниях — люминесцентным методом.

Результаты экспериментов

Первый опыт. По мере фильтрации растворов, содержащих уран и атмосферный кислород, в пласте в результате окисления сульфидов железа образовалась четко очерченная зона окисления, вытянутая в виде языка в направлении движения воды и непрерывно продвигавшаяся по пласту со скоростью $1 - 2$ см/сутки. Такое быстрое продвижение зоны окисления объясняется тем, что свежееобразованные суль-

фиды железа окисляются очень легко. В процессе продвижения зоны окисления в кровле и подошве пласта оставались неокисленные участки в виде разобщенных линз, захватывающих прослой глины. Содержание урана в этих линзах составляло 0,009%. Концентрации урана 0,008% наблюдались в неокисленном песке вблизи контакта с окисленной частью пласта. По удалении от контакта как окисленный, так и неокисленный песок содержал 0,002—0,003% урана.

зона представляет собой зону цементации, обогащенную переотложенными сульфидами железа. Содержание железа в роллах в пересчете на Fe_2O_3 составляет по данным анализов 1,80—1,85%, в то время как в зоне окисления не превышает 0,44%, а в неизмененном песке 1,20%.

Зоны окисления и осветления четко обрисовались вскоре после начала опыта, третья же зона сформировалась только к концу опыта. При этом все три зоны являются подвижными:

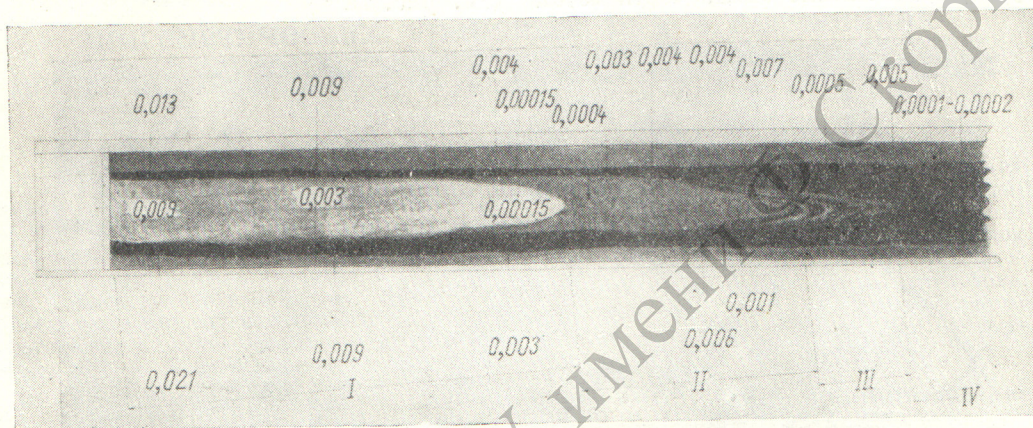


Рис. 2. Зональность и распределение урана в пласте песчаников (второй опыт). Зоны: I — окисления; II — осветления (переходная); III — роллоподобных новообразований; IV — неизмененных пород.

Второй опыт. В результате фильтрации урансодержащих растворов в песчаном пласте сформировались четыре четкие зоны: I — окисления, II — осветления (переходная), III — роллоподобных новообразований и IV — неизмененных (неокисленных) пород (рис. 2). Образование более сложной, чем в первом опыте, зональности в данном случае можно объяснить большим содержанием сульфидов в песке и большей продолжительностью опыта. Переходная осветленная зона сформировалась, по-видимому, в результате неодинаковой скорости окисления сульфидов железа, обусловленной частичной их кристаллизацией в виде минералов, окисляющихся медленнее, чем аморфный сульфид. В природных условиях этой зоне, по-видимому, может соответствовать зона пятнистых руд (неполного окисления), формирующаяся вследствие различной скорости окисления отдельных сульфидов и неравномерной проницаемости пород.

Третья зона представлена роллообразными скоплениями песка черного цвета, чередующимися с прослоями светло-серого песка. Эта

медленно перемещаются в направлении движения воды, а количество роллов в третьей зоне с течением времени увеличивается.

Образование серии роллов предположительно можно объяснить неравномерным напором при подаче в пласт растворов во время опыта. Однако для природных условий подобная неравномерность является обычной. Питание водоносных горизонтов усиливается в периоды выпадения атмосферных осадков и убывает в засушливое время года.

После окончания опыта в пласте наблюдалось следующее распределение урана (см. рис. 2): в неокисленном песке по контакту с глиной в начале пласта содержание урана составляло 0,009—0,021%, в роллах 0,007%, в зоне окисления, в начальной части пласта, где уран сорбировался лимонитом, 0,009%. В неизмененном песке, вдали от роллов, а также во фронтальной части зоны окисления урана было 0,0001—0,0002%.

В процессе опытов было установлено, что граница окисленных и неокисленных пород имеет простую овальную форму только при

условии однородной проницаемости пласта. Если же на пути продвижения зоны окисления поместить линзу глинистой породы, фронтальная часть границы зоны окисления приобретает форму двух языков, продвигающихся в обход линзы, как это показано на рис. 3. В глине из-за слабой проницаемости окисление протекает медленнее, чем в песке, в результате чего образуется «обратный» ролл, обращенный выпуклой стороной навстречу движению воды. Очевидно, при пестром чередовании в породах участков

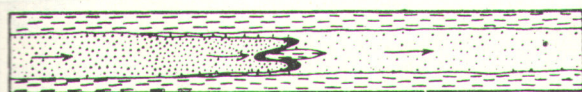


Рис. 3. Схема образования «обратных» роллов: 1 — глина; 2 — песок неизмененный; 3 — зона окисления; 4 — рудный ролл; стрелкой указано направление движения воды.

с различной водопроницаемостью может образоваться серия роллов различной ориентировки и прихотливых очертаний, подобных рассматриваемым в работе [3].

По опубликованным данным [4], на Плато Колорадо наблюдается зависимость размещения урановых месторождений от фильтрационной способности* пород. Наиболее часто эти месторождения встречаются в породах, обладающих неоднородной фильтрационной способностью: в песчаниках формации Моррисон, конгломератах Шайнарампи и песчаниках Чинл. Можно предположить, что эта закономерность объясняется неравномерной скоростью окисления пород вследствие их неоднородной проницаемости, что и создает условия для образования многочисленных рудных роллов, как это было показано выше.

С целью выяснения геохимической сущности процесса восстановления и концентрации урана сульфидными железами авторами была изучена зависимость величины окислительно-восстановительного потенциала (Eh) от pH среды при окислении пирита. Пирит, отобранный из осадочных пород и измельченный до крупности 100—200 меш, помещался в дистиллированную воду (2 г на 100 мл H_2O), где подвергался в течение десяти суток окислению под действием кислорода воздуха. Полученные таким образом растворы имеют $pH=3,0 \div 4,1$ $Eh=+450 \div$

$\div +550$ мв, содержат двух- и трехвалентное железо (свыше 10 мг/л Fe^{2+}), SO_4 (до 120 мг/л) и, очевидно, ионы серы в более низких валентностях, химическое определение которых не проводилось. Для получения зависимости Eh от pH раствор титровался без доступа кислорода (в токе CO_2) раствором соды (0,5—2%) в стеклянном стакане с резиновой пробкой,

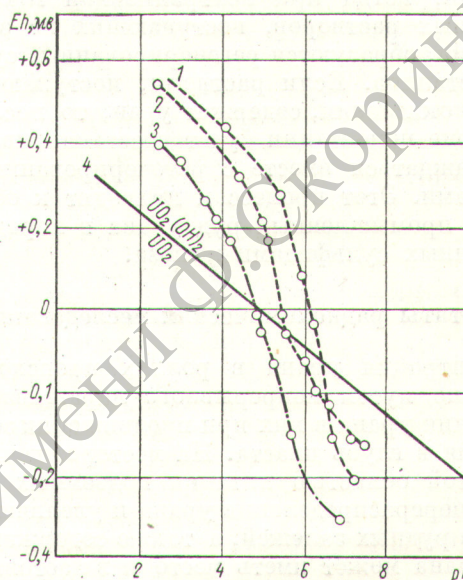


Рис. 4. Зависимость окислительно-восстановительного потенциала (Eh) от pH в растворах, полученных при окислении сульфидов:

1, 2 — пирит 3 — пирит с примесью халькопирита; 4 — граница полей устойчивости UO_2 и $UO_2(OH)_2$.

в которую были вмонтированы электроды и трубки для подачи и отвода CO_2 . Замеры pH и Eh производились потенциометром ЛП-5 до получения одинаковых значений при последних трех замерах. Полученные результаты изображены на рис. 4, на котором для сравнения показана также граница полей устойчивости UO_2 и $UO_2(OH)_2$ по расчетным данным работы [5]. Из графика можно видеть, что при низких значениях pH система обладает высоким окислительным потенциалом и является для урана окисляющей. При $pH=5,5-7$ среда становится для урана восстановительной. При $pH \approx 4,5$ во время опытов наблюдалось образование красно-бурого осадка гидроокиси трехвалентного железа. При $pH \approx 6$ осадок приобретал зеленую, а при дальнейшем повышении pH до 7,5 черную окраску. После фильтрования и высушивания осадка (при этом, несмотря на

* Фильтрационная способность — произведение проницаемости пород в единицах дарси на мощность [4].

ряд предосторожностей, все же происходило частичное окисление) в нем под бинокулярном обнаруживались окислы двух- и трехвалентного железа и тончайшие выделения черного цвета, по-видимому, сульфидов.

По нашему мнению, описанный опыт воспроизводит один из процессов вторичного обогащения зоны цементации сульфидных месторождений, когда при нейтрализации кислых сульфатных растворов, поступающих из зоны окисления, образуются регенерированные сульфиды металлов. Если растворы, поступающие из зоны окисления, содержат уран, то последний в зоне цементации будет восстанавливаться и осаждаться вместе с регенерированными сульфидами. Этот процесс и приводит к образованию промышленных руд урана в породах, обогащенных сульфидами железа.

Результаты радиохимических исследований

Концентрация урана в роллах происходит постепенно путем непрерывного наращивания содержания урана в них при продвижении зоны окисления в глубь пласта. На месторождениях с открытой областью питания подземных вод процесс перераспределения урана и увеличения размеров рудных залежей, а также содержания в них урана может иметь место и в настоящее время. Об этом свидетельствуют данные радиохимического изучения залежей в свите песчано-глинистых пород мелового и палеогенового возрастов.

Породы свиты слагают пологопадающее крыло антиклинали, в ядре которой обнажаются граниты и сланцы палеозоя (рис. 5). Массив палеозойских пород является областью питания подземных вод, заключенных в пластах песчаников. Песчаники на расстоянии до нескольких километров от выходов на поверхность и до 150—200 м на глубину интенсивно лимонитизированы. Урановые минералы, представленные в основном чернью, локализуются в неизменных серых разностях песчаников вдоль нижней границы зоны лимонитизации.

Как показали исследования, уран и продукты его распада в рудоносных горизонтах часто находятся в соотношениях, не соответствующих состоянию радиоактивного равновесия. Наиболее значительный сдвиг равновесия наблюдается, как правило, между ураном и ионием (Th^{230}). Протяженность зон, относительно обогащенных ураном или ионием, в отдельных случаях достигает нескольких сотен метров. Граница между зонами проходит вкост напра-

вления нисходящего движения пластовых вод и совпадает с границей зоны пластового окисления.

Нарушение радиоактивного равновесия в сторону недостатка иония отмечается в неокисленных рудах. При этом отношение иония к урану в пределах отдельной рудной залежи отличается большим постоянством и возрастает, приближаясь к равновесному значению, лишь на участках выклинивания залежи. В нижней части зоны лимонитизации радиоактивное равновесие

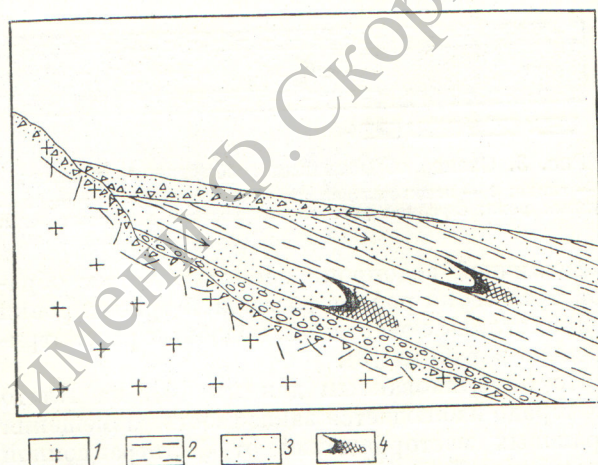


Рис. 5. Схема расположения рудных роллов в свите песчано-глинистых пород:
1 — кристаллические породы; 2 — глины; 3 — песчаники; 4 — рудные роллы.

смещено в сторону избытка иония по отношению к урану. Падение концентрации урана при переходе от неокисленных руд к лимонитизированным песчаникам обычно происходит очень резко, тогда как содержание иония плавно убывает по восстанию пласта, а также от подошвы и кровли к центру окисленной части пласта. Вблизи зоны окисления концентрация иония в лимонитизированных песчаниках в пять—семь и более раз превышает концентрацию, соответствующую концентрации, равновесной с ураном. По мере удаления от этой границы по восстанию пласта отношение иония к урану в центральной части пласта песчаника постепенно приближается к равновесному значению. На границе окисленных и неизменных пород обычно выделяется полоса пород, характеризующихся пятнистой лимонитизацией, в пределах которой отношение иония к урану изменяется от значений, наблюдающихся в неокисленных рудах, до значений, превышающих 100%. Характер изменения отношения

иония к урану по центральной части пласта песчаников на одном из изученных участков показан на рис. 6*.

Подобное распределение иония и урана в рудонесных пластах объясняется различной подвижностью этих элементов в окислительных условиях. В то время как уран в процессе окисления рудной залежи выносился водами и перекристаллизовался в восстановительных условиях, ионий оставался в лимонитизированных песчаниках. Представления о слабой миграции

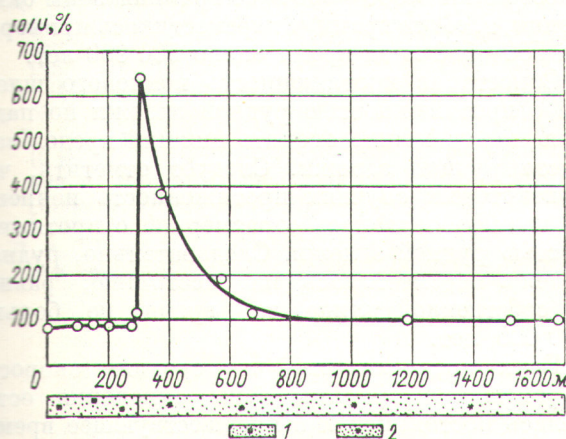


Рис. 6. Изменение отношения иония к урану (I_o/U) по падению пласта. Песчаники: — неизменные; 2 — окисленные.

иония в зоне окисления подтверждаются наблюдениями за изменением концентрации урана и иония в водах этой зоны (таблица). Воды имеют хлоридно-сульфатно-натриево-кальциевый состав и $pH=7,3-7,9$.

Из приведенных данных видно, что концентрация иония в водах на 1,5—2 порядка ниже концентрации, соответствующей состоянию равновесия с растворенным ураном. Способность лимонитизированных пород, в том числе и песчаников, удерживать ионий отмечается и другими исследователями [8, 9].

Высокое содержание иония в окисленных породах, достигающее до эквивалентного рудным концентрациям урана, указывает, что ранее руды располагались гораздо выше современного положения границы окисленных и неизмененных пород. По мере продвижения зоны окисления в глубь пластов рудные залежи разрушались, а уран, поступавший при этом в воды,

Соотношение между ураном и ионием в пластовых водах, связанных с песчаниками

Номер проб	Характеристика вмещающих пород	Глубина залегания, м	Содержание урана, г/л	I_o/U , %
1	Чередование лимонитизированного песчаника и глины . .	11,0	$3,25 \cdot 10^{-4}$	$<1,0$
2	То же	11,0	$7,5 \cdot 10^{-3}$	$<1,0$
3	Серый глинистый песчаник с окислами урана	17,5	$5,6 \cdot 10^{-3}$	6,5
4	Песчаник бурого цвета, сильно лимонитизированный . .	60,0	$1,1 \cdot 10^{-4}$	7,0
5	Песчаник буро-желтого цвета, слабо сцементированный с железисто-карбонатным цементом	60,0	$2,4 \cdot 10^{-4}$	7,5
6	Песчаник бурого цвета, сильно лимонитизированный . .	60,0	$1,4 \cdot 10^{-4}$	5,5
7	Контакт неизмененных (песчаник темно-серого цвета с окислами урана) и окисленных (песчаник бурого цвета, лимонитизированный) пород . .	60,0	$1,3 \cdot 10^{-4}$	5,5

перекристаллизовался на границе между окисленными и неокисленными породами. В результате рудные залежи с течением времени постепенно перемещались в направлении движения пластовых вод, оставляя за собой иониевый «шлейф». В ходе этого процесса концентрация урана в залежах, вероятно, нарастала за счет поступления новых порций урана из области питания пластовых вод и окисляющихся песчаников.

Таким образом, иониевый шлейф является естественным показателем пути перемещения рудных залежей. В том случае, если бы скорость перемещения границы зоны окисления была достаточно велика, очевидно, можно было бы проследить этот путь до выхода песчаников на поверхность. Практически же, как показано выше, иониевый шлейф наблюдается на ограниченном интервале окисленного пласта. Выше этого интервала в песчаниках отмечается равновесное соотношение урана и иония. Тем не менее и в этом случае удастся установить, что ориентировка иониевого шлейфа, а следовательно, и направление перемещения рудных залежей совпадают с направлением циркуляции пластовых вод.

* Определение соотношения между ионием и ураном производилось по методикам, описанным в работах [8, 9].

Для понимания условий формирования уранового оруденения в песчаниках большое значение имело выявление продолжительности рудообразовательного процесса (эквивалентной времени перемещения границы зоны окисления до современного уровня), а также возраста оруденения в современных залежах.

Если бы процесс переотложения урана прекратился, то через некоторое время в рудных залежах между ионием и ураном установилось бы радиоактивное равновесие. Исходя из периода полураспада иония (83 000 лет), этот интервал времени можно оценить примерно в 500 000 лет (шесть периодов полураспада). За такое время накапливается 98,5% от равновесного количества иония. Таким образом, отсутствие радиоактивного равновесия в залежах свидетельствует о том, что в последние 500 000 лет процесс переотложения урана продолжался. Резкий перепад содержания урана в пластовых водах на границе зоны окисления от $n \cdot 10^{-4}$ г/л в окислительных условиях до $1 \cdot 10^{-6}$ г/л на выклинивании рудных залежей в восстановительных [2] позволяет считать, что этот процесс продолжается и в настоящее время.

Более сложной задачей являлось установление времени начала формирования современных рудных залежей. Возможность использования для этой цели известных методов геохронологии в данном случае была исключена из-за тонкой дисперсности урановых минералов и их различного возраста. Поэтому мы попытались решить вопрос о нижнем пределе возраста залежей косвенным путем, определив среднюю скорость перемещения границы зоны пластового окисления. При определении этой скорости мы исходили из закономерностей изменения отношения иония к урану в рудоносных пластах, а также данных о поведении урана и иония в окислительных условиях.

Процесс окисления приводит к сравнительно быстрому разрушению урановых черней и выносу урана из зоны окисления. Содержание урана, остающегося в лимонитизированных породах, в дальнейшем меняется незначительно. Ионий после растворения урана сохраняется в лимонитизированных песчаниках, и убыль его в основном связана с естественным распадом, а не с выносом водами, как это уже показано выше. По истечении некоторого времени в результате распада ионий приходит в равновесие с остаточным ураном, содержащимся в лимонитизированных песчаниках. Интервал времени, необходимый для распада иония, также может быть определен в шесть периодов полураспада.

Зная расстояние от участка, где процесс растворения урана продолжается в настоящее время (соответствует современному положению границы зоны окисления), до участка, где ионий пришел в равновесие с ураном, оставшимся в лимонитизированных песчаниках, легко определить среднюю скорость перемещения границы зоны окисления между этими участками.

Как видно из рис. 6, равновесное соотношение между ионием и ураном наблюдается на расстоянии $\sim 500-550$ м от границы зоны окисления, т. е. эта граница переместилась примерно на 500—550 м за время около 500 000 лет.

Сопоставив протяженность иониевого шлейфа с протяженностью рудной залежи по падению пород, можно оценить нижний предел возраста рудной залежи. Следует отметить, что в некоторых случаях протяженность иониевого шлейфа оказалась соразмерной с протяженностью рудной залежи. Следовательно, рудная залежь переместилась на расстояние, равное ее собственной длине, за время не больше 500 000 лет.

Если предположить, что средняя скорость перемещения границы зоны окисления оставалась постоянной и в предшествующее время, то можно приближенно оценить время перемещения ее от выходов пласта песчаников на поверхность, а тем самым и время начала процесса формирования рудных роллов.

Выводы

1. Рудные залежи типа роллов в песчаных породах образуются вследствие эпигенетической аккумуляции урана из подземных вод на границе зон, характеризующихся окислительными и восстановительными условиями.
2. При однородной проницаемости пород и равномерном распределении в них веществ, способных окисляться, зона окисления имеет вид языка, вытянутого в направлении движения вод. Рудные залежи, локализуясь вблизи границы зоны окисления, повторяют ее очертания, вследствие чего и приобретают серповидную или роллообразную форму.
3. Нарастание содержания урана в роллах до промышленного происходит в процессе непрерывного продвижения зоны окисления в направлении движения подземного потока и перераспределения урана на границе окисленных и неизмененных пород.
4. Восстановление и осаждение урана из вод сульфидными железами на границе зон, характе-

ризующихся окислительными и восстановительными условиями, происходит при осаждении регенерированных сульфидов в процессе вторичного обогащения зоны цементации.

5. Изучение закономерностей миграции урана и иония и смещения радиоактивного равновесия между этими элементами в рудоносных песчаниках позволяет выявить перемеще-

ние рудных залежей в процессе продвижения зоны окисления и определить его скорость. Установленный таким образом возраст изученных рудных залежей составляет менее 500 000 лет, а расстояние, на которое переместилась граница окисленных и неизмененных пород за этот же промежуток времени, — около 500 м.

Поступила в Редакцию 21/VI 1962 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. Д. Шоу. В кн.: «Материалы Международной конференции по мирному использованию атомной энергии (Женева, 1955)». Т. 6. М., Гостеолтехиздат, 1955, стр. 397.
2. А. И. Германов. «Изв. АН СССР. Сер. геол.», № 8, 75 (1960).
3. Д. Шоу, Н. Арчболд, Г. Симмонс. В кн.: «Труды Второй международной конференции по мирному использованию атомной энергии (Женева, 1958)». Избр. докл. иностранных ученых. Т. 8. М., Атомиздат, 1959, стр. 349.
4. Д. А. Д ж о б и н. В кн.: «Материалы Международной конференции по мирному использованию атом-
- ной энергии (Женева, 1955)». Т. 6. М., Гостеолтехиздат, 1955, стр. 376.
5. R. Garrels. Amer. Min., 40, No. 41, 42 (1955).
6. Л. А. Кузьмина. «Ж. анал. хим.», XIII, вып. 1, 100 (1958).
7. А. П. Бочарова, В. И. Малышев. В сб.: «Методы определения радиоактивных элементов в минеральном сырье». М., Гостеолтехиздат, 1961, стр. 76.
8. В. И. Малышев. «Сов. геология», № 7, стр. 138 (1958).
9. J. Rosholt. U. S. Geol. Surv. Bull., 1084-A (1959).

