

13. В. В. Батчер. *J. Nucl. Energy*, 3 (1957).
14. А. Н. Холден. Физическое металловедение урана. М., Металлургиздат, 1962, стр. 137.
15. М. Дженсон и др. См. [2], стр. 96.
16. М. Englander. *Metallurgia ital.*, 52, 11 (1959).
17. С. С. Штейнберг. Металловедение. М., Металлургиздат, 1961, стр. 479.
18. С. Ф. Ковтун, В. С. Коган. «Физика металлов и металловедение», 13, 316 (1962).
19. И. И. Новиков, М. В. Захаров. Термическая обработка металлов и сплавов. М., Металлургиздат, 1962, стр. 136.
20. И. В. Батенин, Б. В. Шаров. «Атомная энергия», 16, 372 (1964).

УДК 551.25:553.495

## О метаморфизме урановых месторождений и отдельных урановых минералов

А. И. Тугаринов, Е. В. Бибикова, С. И. Зыков

Рассматриваются случаи гидротермального метаморфизма урановых месторождений на примере Витватерсранда, района оз. Атабаска и отдельных минералов пегматитов на примере Карелии.

Одним из ярких индикаторов позднего метаморфизма урановых залежей является миграция радиогенного свинца урановых руд и переотложение самих урановых минералов.

Сопоставление вариаций значений абсолютного возраста уранинитов по  $Pb^{207}/U^{235}$  и  $Pb^{206}/U^{238}$  и изотопного состава аномального свинца галенитов, распространенных в тех же участках, позволяет решить задачу о времени и интенсивности метаморфизма.

Экспериментальное воспроизведение в лабораторных условиях явлений метаморфизма при высоких температурах и давлениях полностью подтвердило возможность селективного выноса радиогенного свинца из уранинита.

### Введение

В течение последнего времени исследователями показано, что при определении возраста уран-ториевых минералов по разным изотопным отношениям расхождения в полученных величинах, вероятнее всего, обусловлены потерей радиогенного свинца, а иногда и урана [1—9]. Обоснованием этому служили следующие соображения. В естественной геологической обстановке уран-ториевые минералы подвергаются воздействию поровых растворов, которые могут быть преимущественно хлоридными, карбонатными или сульфатными. В первом случае должны создаваться предпосылки в основном для выноса свинца, образующего легко растворимые хлоридные комплексные соединения, а в двух других — урана, поскольку карбонатные и сульфатные соединения урана достаточно легко растворимы [10]. Торий, по-видимому, может выноситься лишь с весьма перегретыми щелочными растворами, с которыми, в частности, связано появление ториевой минерализации в экзоконтактах щелочных интрузий.

Таким образом, условно рассматривая уран-ториевые минералы как частично открытые си-

стемы, содержащие уран, торий и образующийся при их радиоактивном распаде свинец, можно допустить четыре принципиально возможных случая изменения минералов: 1) вынос свинца (наиболее вероятный); 2) вынос урана (возможный); 3) вынос свинца и урана (маловероятный); 4) вынос одного из элементов или одновременный вынос свинца и урана, сопровождающийся, кроме того, выносом тория (случай очень маловероятный и возможный лишь в специфических условиях).

Следует отметить, что первый из четырех случаев мог быть обусловлен не только воздействием растворов на минерал, но и перемещением содержащих его толщ пород в глубинные зоны земной коры с температурами, достаточно высокими для выплавления из урановых минералов радиогенного свинца.

Почти все исследователи, за исключением Тилтона [7], связывают предполагаемые изменения уран-ториевых минералов с отдельными относительно кратковременными геологическими событиями — одной или несколькими эпохами метаморфизма.

На основании всех этих представлений можно заключить, что значения возраста, полученные по разным изотопным отношениям, должны образовать следующие ряды последовательности по отношению к  $A$  — истинному возрасту минерала и  $B$  — предполагаемому времени его изменения (возрасту метаморфизма).

Для первого случая

$$A \geq \frac{Pb^{207}}{Pb^{206}} > \frac{Pb^{207}}{U^{235}} \geq \frac{Pb^{206}}{U^{238}} > \frac{Pb^{208}}{Th^{232}} \geq B.$$

Для второго случая

$$\frac{Pb^{207}}{U^{235}} \geq \frac{Pb^{206}}{U^{238}} > \frac{Pb^{207}}{Pb^{206}} \geq A = \frac{Pb^{208}}{Th^{232}} > B.$$

Для третьего случая

$$A = \frac{Pb^{208}}{Th^{232}} > B.$$

Особенно отчетливо подобные расхождения должны были бы наблюдаться в древних радиоактивных минералах в областях интенсивного проявления гидротермального метаморфизма, связанного с повторными периодами магматической деятельности.

Рассмотрим некоторые примеры.

### Гидротермальный метаморфизм некоторых месторождений и минералов урана

**Витватерсранд.** Всемирно известные месторождения ураноносных конгломератов Южной Африки представлены несколькими продуктивными горизонтами, залегающими в основании четырех серий снизу вверх: Доминион, Витватерсранд, Вентерсдорп и Трансвааль (рис. 1). Минеральный состав конгломератов характеризуется наряду с кварцевой галькой присутствием уранинита, золота, органического вещества («углерода»), тухолита, сульфидов и в меньшей степени платины, осмистого иридия, хромита и т. д.

Рудничные геологи, работающие на месторождениях Витватерсранда, и другие исследователи считают урановую минерализацию сингенетичной либо близкой по времени образования с вмещающими породами [11, 12]. Активным сторонником россыпного происхождения месторождений является Рамдор [13], много лет изучавший их минералогию. Глава английской геологической службы Дэвидсон уже много лет отстаивает точку зрения о гидротермальном магматогенном происхождении руд Витватерсранда [14].

Преимущество, по-видимому, за первой гипотезой. Так, ее сторонниками отмечается явное обогащение ураном горизонта конгломератов, если он залегает с размывом на более древних ураноносных горизонтах. Установлено повышение концентрации урана в конгломератах на определенном расстоянии от береговой зоны. Более детальные исследования отдельных рудных залежей указывают на существование древних потоков, размывавших ураноносные конгломераты вскоре после их образования. В результате в бортах русел таких потоков при их вскрытии сохраняются совпадающие по мощности и характеру минерализации разрезы рудоносных пластов, а в донных отложениях русел урановая минерализация отмечается лишь при пересечении ими древнего рудоносного горизонта конгломератов и т. д. [12].

При пересечении кварцевыми и карбонатными прожилками, обычно лишенными рудной

минерализации, продуктивных горизонтов конгломератов в этих прожилках появляются сульфиды (галенит) и золото. Концентрация этих компонентов в самих конгломератах вблизи

Метаморфическая серия	Схема колонки	Комплексы изверженных пород, рудная минерализация	Абсолютный возраст, млн лет
Серия Карру		Основные эффузивы	150
Серия Трансвааль		Сyenиты-аналогии Бушвельдакого комплекса	1950
Серия Вентерсдорп		Основные эффузивы Вентерсдорпа Пегматиты	2160
Серия Витватерсранд		Регенерированная урановая минерализация конгломератов	2000
Серия Доминион		Урановая минерализация из конгломератов	3100
Кристаллическое основание		Интрузии гранитного состава, пегматиты	3200

Рис. 1. Схема возрастных соотношений пород и руд Витватерсранда.

таких прожилков заметно падает. Эти наблюдения, а также урановая природа свинца галенитов (по данным изотопного состава) указывают на заимствование рудного вещества конгломератов и его переотложение при образова-

нии прожилков спустя длительное время после образования конгломератов и накопления в них радиогенного свинца.

Большое место в дискуссии о генезисе месторождений Витватерсранда уделено проблеме их возраста, поскольку первые определения возраста урановых руд, полученные Лоу в 1954 г. [15], не только противоречили ранее существовавшим представлениям о верхнепротерозойском возрасте всей толщи, но и отличались исключительно широкими колебаниями значений, полученных по разным изотопным отношениям.

Нами в 1956 г. [16] и независимо от нас Везериллом [4] по данным Лоу [15] и на основании минералогических наблюдений Либенберга [17], отметившего преимущественную ассоциацию галенита с ранними выделениями уранинита овальной формы, был сделан вывод о гидротермальном метаморфизме руд Витватерсранда. Опубликованные в последние годы обширные новые данные определения абсолютного возраста минералов и измерения изотопного состава свинца галенитов этого региона позволяют гораздо увереннее вернуться к этой идее и уточнить ранее полученные даты.

Николайсен, Бургер и Либенберг [18] обратили внимание на методическую неточность

Лоу, отбиравшего для анализа неизменные зерна уранинита, по существу относящиеся к поздним генерациям. Галенитовые прожилки, содержащие значительную часть удаленного из уранинитов радиогенного свинца, были при этом исключены из анализа. Эти исследователи измерили возраст валовых проб конгломерата из наиболее древней серии Доминион. При этом они исходили из предположения, что такая проба, несмотря на частичную миграцию свинца из отдельных зерен уранинита, может рассматриваться как относительно закрытая система.

Судя по результатам измерения (см. табл. 1, образцы 1—3), этот эксперимент оказался весьма эффективным, так как для образца В-153 по всем изотопным отношениям, а для выветренных образцов КСГ-1 и КСГ-2 по  $Pb^{207}/Pb^{206}$  были получены великоленно совпадающие значения возраста около 3100 млн. лет — возраст первичной урановой минерализации Витватерсранда. Близкие к этому значения возраста монацита из детрита свиты Доминион (3160 млн. лет) (см. табл. 1, последний образец) и гранитоидов (3200 млн. лет) кристаллического фундамента, измеренные рубидий-стронциевым методом Олсоном [19], свидетельствуют о том, что осадконакопление началось

Таблица 1

Возраст урановых руд Витватерсранда

Образец	Место отбора образца и его характеристика	Значения возраста, млн. лет				Литература
		$Pb^{207}/Pb^{206}$	$Pb^{206}/U^{238}$	$Pb^{207}/U^{235}$	$Pb^{208}/Th^{232}$	
В-153	Верхний риф, Бремли б. Доминион.	3100	3100	3100	3200	[18]
	Валовая проба конгломерата . . .	3130	2690	2200	1980	[18]
КСГ-1	То же. Материал пробы выветрен	3100	2900	2670	3100	[18]
КСГ-2	То же . . . . .	2460	2044	2254	—	[15]
С-1	Блэк-Риф. Концентрат . . . . .	2180	1390	1727	1732	[15]
У-1	Западный риф. Уранинит . . . . .	2375	1670	1997	1635	[15]
С-2	То же. Концентрат . . . . .	2035	1304	1595	6212	[15]
У-2	Мэриуэйл. Уранинит . . . . .	2030	1458	1698	—	[15]
У-2а	То же с примесями . . . . .	2050	2200	2120	—	[15]
С-3	То же. Концентрат . . . . .	2000	1128	1456	1372	[15]
У-3	Фреддис. Уранинит . . . . .	1900	1182	1443	1543	[15]
У-4	Уит-Нигел. Уранинит . . . . .	2215	1612	1875	2766	[15]
У-5	Суб-Нигел. Уранинит . . . . .	2200	1602	1860	2490	[15]
У-5а	То же с примесями . . . . .	2230	1586	1864	1727	[15]
У-5б	То же. Концентрат . . . . .	2020	1826	1913	2868	[15]
У-6	Блайвуруйтсхт. Уранинит . . . . .	2060	2100	2072	2923	[15]
С-4	То же . . . . .	2195	1782	1973	1284	[15]
С-5	Бабраско. Уранинит . . . . .	2730	1678	2200	3672	[15]
У-7	Доминион-Риф. Уранинит . . . . .	3160	3350	3670	2570	[18]
	Клерксдорп. Доминион. Монацит из детрита . . . . .					

Примечание. Концентратом автор измерения называет рудный материал, обогащенный уранинитом. Пробы готовились в лабораторных условиях.

вскоре за формированием гранитоидов и пегматитовых полей, ответственных, по-видимому, за поступление рудного вещества в осадки Витватерсранда при денудации фундамента.

Ранее проведенные возрастные определения [15] особенно уранинитов (а не концентратов) по  $Pb^{207}/Pb^{206}$  весьма отчетливо характеризуют время метаморфизма урановых руд (табл. 1). Это геологическое событие совпадает по времени с интрузивным воздействием на тол-

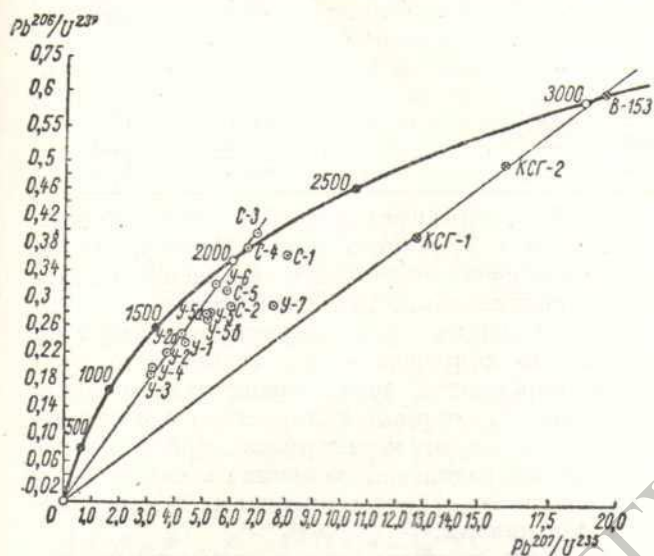


Рис. 2. Значения возрастов урановой минерализации Витватерсранда:

● — значения возраста на кривой сходящихся величин, млн. лет; ○ — время образования и этапов излучения урановых минералов; ⊙ — отдельные образцы (см. табл. 1).

щу Витватерсранда Бушвельдского магматического комплекса, возраст которого определен Николайсеном, де Виллье, Бургером и Стреловым в 1950 млн. лет [20], либо с эффузивными излияниями в Вентерсдорфское время. Характерно, что в самой толще были обнаружены пегматитовые тела с монацитом, возраст которого по измерениям Мендельсона [21] оказался равным 2160 млн. лет.

Для установления предполагаемого возраста метаморфизма руд мы применили графический метод Аренса — Везерилла [3, 5], основанный на сопоставлении полученных величин изотопных отношений  $Pb^{207}/U^{235}$  и  $Pb^{206}/U^{238}$  исследованных урановых минералов с величинами согласующихся значений возраста на графике в системе координат  $Pb^{206}/U^{238}$  и  $Pb^{207}/U^{235}$  (рис. 2). Согласно этому методу согласующиеся значения возраста, полученные по разным изотопным отношениям, ложатся на одну кривую,

носящую название конкордия. В том случае, если группа измеренных образцов заведомо одного и того же возраста покажет существенно различные значения возраста по  $Pb^{206}/U^{238}$  и  $Pb^{207}/U^{235}$ , они все лягут на одну прямую, которая пересечет конкордию в двух точках, соответствующих их возрасту и времени изменения. При этом образцы, характеризующиеся потерей радиогенного свинца, окажутся на прямой ниже точки верхнего пересечения конкордии, а образцы, утратившие часть урана, — выше ее.

На графике рис. 2 отчетливо видны две группы точек. Одни из них, характеризующие пробы конгломератов Доминион-Риф, легли на правую изохрону, показывая, что первичный возраст уранинитов серии Доминион действительно равен ~3100 млн. лет, а для выветренных разностей тех же конгломератов характерен вынос небольшой доли радиогенного свинца.

Вторая группа точек характеризует ураниниты и «концентраты» из горизонтов верхней толщи Витватерсранда. Значения возраста уранинитов достаточно строго укладываются на изохрону, показывающую на время образования их 2000—2100 млн. лет назад и потерю радиогенного свинца, обусловленную современными процессами. Характерно, что точки измерения возраста концентратов заметно смещены вправо и вверх и приближаются к изохроне уранинитов серии Доминион либо располагаются непосредственно на конкордии. Это свидетельствует о том, что концентраты, приготовленные Лоу, по соотношению радиогенного свинца и урана были ближе к валовым пробам конгломератов, чем мономинеральные фракции уранинита.

В целом полученная картина убедительно доказывает существование двух генераций урановых минералов возрастом 3100 и 2100 млн. лет. При этом поздняя генерация, вероятно, возникла за счет ранней. Урановым минералам обеих генераций, кроме того, свойствен современный гипергенный вынос свинца.

В 1962 г. Бургером, Николайсеном и де Виллье [22] был дополнительно исследован изотопный состав свинца 41 образца галенита из кварцевых и карбонатных прожилков, секущих продуктивные горизонты Витватерсранда. В большей части галенитов изотопный состав свинца оказался явно аномальным (табл. 2).

Свинцы галенитов могут быть разделены на две группы, характеризующие, с одной стороны, свиту Доминион, а с другой — Витватерсранд и Вентерсдорп. В обоих случаях

Таблица 2

Изотопный состав свинца некоторых галенитов Витватерсранда

Место отбора и характеристика образца	Pb <sup>206</sup> /Pb <sup>204</sup>	Pb <sup>207</sup> /Pb <sup>204</sup>	Pb <sup>208</sup> /Pb <sup>204</sup>	Литература
Свита Витватерсранд				
Ист-Чемп. Галенит из кварцевого прожилка вблизи сброса Витпуртжи	14,35	14,70	32,18	[22]
Месторождение Святой Елены. Галенит из кварцево-сульфидной жилы в кварцитах	36,9	22,95	35,24	[22]
То же. Галенит из кварцевого прожилка	43,3	26,0	36,7	[22]
Свита Доминион				
Бремли 6. Галенит из кварцево-карбонатного прожилка	15,53	15,56	34,4	[22]
То же.	25,95	19,63	38,02	[22]
Там же. Галенит из кварцево-карбонатного прожилка вблизи крупного сброса	22,21	18,17	37,77	[22]

их можно рассматривать как изотопные смеси, характеризующиеся присутствием исходного первичного обыкновенного свинца, свойственного данной толще, и примесью радиогенного свинца с соотношением в нем Pb<sup>207</sup>/Pb<sup>206</sup> от 0,39 до 0,37 и Pb<sup>208</sup>/Pb<sup>206</sup> от 0,1 до 0,6.

Используя формулы, приведенные в работах [22, 23, 24]

$$\frac{Pb^{207}}{Pb^{206}} = \frac{1}{138} \cdot \frac{e^{\lambda_{U^{235}} t_1} - e^{\lambda_{U^{235}} t_2}}{e^{\lambda_{U^{238}} t_1} - e^{\lambda_{U^{238}} t_2}}; \quad (1)$$

$$\frac{Pb^{208}}{Pb^{206}} = \frac{Th}{U} \cdot \frac{e^{\lambda_{Th^{232}} t_1} - e^{\lambda_{Th^{232}} t_2}}{e^{\lambda_{U^{238}} t_1} - e^{\lambda_{U^{238}} t_2}}; \quad (2)$$

где Pb<sup>207</sup>/Pb<sup>206</sup> и Pb<sup>208</sup>/Pb<sup>206</sup> — соотношение изотопов в добавке радиогенного свинца; t<sub>1</sub> — возраст первичной урановой минерализации толщи Витватерсранда; t<sub>2</sub> — время метаморфизма руд; λ<sub>U<sup>238</sup></sub>, λ<sub>U<sup>235</sup></sub>, λ<sub>Th<sup>232</sup></sub> — константы распада U<sup>238</sup>, U<sup>235</sup>, Th<sup>232</sup>; Th/U — отношение тория к урану в толще Витватерсранда, можно вычислить, что радиогенный свинец с указанной характеристикой в том случае, если он произошел из урановых руд с возрастом 3100 млн. лет, должен был выделиться из них под влиянием метаморфических процессов около 2000 млн. лет назад.

Соотношение Th/U в исходных рудах не должно превышать 1/10. Таким образом, время метаморфизма руд, полученное как прямыми измерениями возраста различных генераций урановых руд, так и по изотопному составу радиогенного свинца, обособлявшегося при этом в виде самостоятельных минералов, достаточно точно совпало.

Бургер, Николайсен, де Виллье и Либенберг [18, 22] обращают внимание на важную деталь

процесса метаморфизма руд. По их наблюдениям зерна уранинита поздней генерации не изменяют своих очертаний по сравнению с древними уранинитами. Это указывает на то, что удаление свинца при перекристаллизации всей толщи не сопровождалось видимым изменением морфологии зерен уранинита, и лишь действие гидротермальных растворов в заключительную стадию метаморфизма привело к перемещению радиогенного свинца и накоплению его в виде сульфидов в кварцевых и карбонатных прожилках.

Нетрудно показать, что в этом случае распределение всего радиогенного свинца конгломерата между уранинитом, подвергшимся метаморфизму, и метаморфогенным галенитом той же толщи будет приблизительно равным (табл. 3).

Таблица 3

Количественные соотношения свинцов различного происхождения в рудах Витватерсранда

Тип свинца	Общее содержание радиогенного свинца, %	Pb <sup>207</sup> /Pb <sup>206</sup> в радиогенном свинце	Содержание по отношению ко всему свинцу конгломерата, %
Свинец валовой пробы конгломерата (образец В-153 табл. 1)	1,6	0,24	100
Свинец уранинита из того же конгломерата	—	0,12	44
Свинец галенита из кварцевых и карбонатных прожилков	—	0,39	56

Многочисленные минераграфические наблюдения Либенберга показывают, что соотноше-

ния в рудах уранинита и галенита изменяются в пределах 1/10—1/20. При учете того, что галениты содержат 20—40% радиогенного свинца, эти соотношения полностью подтверждают произведенный расчет.

Следовательно, в месторождениях Витватерсранда наблюдается строгая количественная корреляция между выносом радиогенного свинца из ранних генераций уранинита и поступлением его в самостоятельные метаморфогенные минералы свинца (галениты) поздних прожилков. Таким образом, оба процесса обусловлены единым гидротермальным метаморфизмом руд.

**Район оз. Атабаска.** В районе северо-западного побережья оз. Атабаска распространены жильные месторождения урановой смолки, сопровождаемой сульфидами, арсенидами и селенидами меди, свинца, кобальта, никеля.

Район сложен архейскими толщами кварцитов, доломитов и основных эффузивов серии Тезин, прорванных гранитами и перекрываемых

слабо метаморфизованными конгломератами и аркозами серии Атабаска [20].

Месторождения представляют собой жильные тела в гранитоидах и на контакте амфиболитов с гранитами, субпараллельные системы жил и линз в породах серии Тезин (Игл, Эйс), минерализованные системы трещин в песчаниках серии Атабаска (Мартин-Лейк). Несколько особое положение занимают месторождения так называемой группы Эйс-Майн—Биверлодж, приуроченные к зоне разлома Сан-Луи (рис. 3). Урановая минерализация этого участка представлена кальцит-настурановыми линзами в альбитизированных породах. Первичные рудные минералы сопровождаются поздними переотложенными смолками, галенитом и клаусталитом.

Определения абсолютного возраста, выполненные несколькими лабораториями США и Канады, показали большие колебания значений—от 1850 до 260 млн. лет. Характерно появление сходящихся значений возраста по всем изотоп-

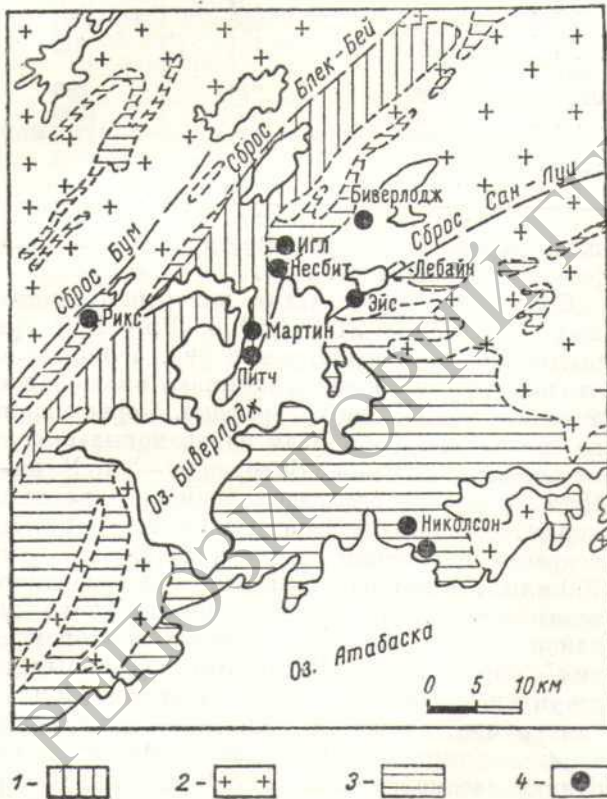


Рис. 3. Геологическая схема района оз. Биверлодж (по Мак-Дональду):

1 — базальты, конгломераты, аркозы (серия Атабаска); 2 — интрузии гранитоидов; 3 — осадочные и вулканические гранитизированные породы (серия Тезин); 4 — месторождения урана.

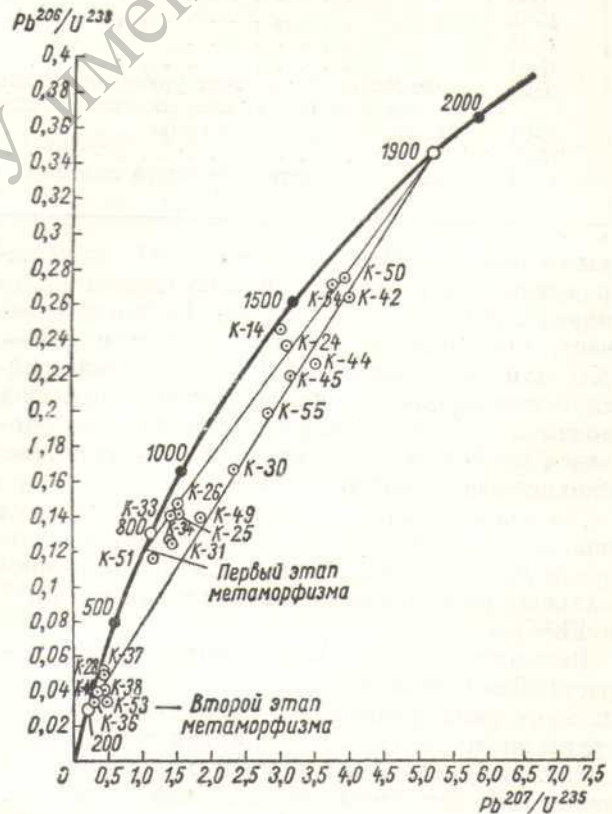


Рис. 4. Значения возраста урановой минерализации района оз. Атабаска:

● и ○ — то же, что и на рис. 2; ⊙ — отдельные образцы (см. табл. 4).

Возраст урановых руд района оз. Атабаска [26]

Образец	Место отбора образца и его характеристика	Значения возраста, млн. лет		
		$Pb^{207}/Pb^{206}$	$Pb^{206}/U^{238}$	$Pb^{207}/U^{235}$
K-14	Игл. Урановая смолка . . . . .	1530	1420	1450
K-24	То же со следами галенита . . . . .	1610	1375	1480
K-26	Игл. Урановая смолка с галенитом и сульфидами . . . . .	1220	860	970
K-25	Николсон. Концентрат . . . . .	1140	895	975
K-28	Биверлодж. Урановая смолка с клаусталитом . . . . .	750	325	390
K-30	Питч. Урановая смолка с клаусталитом . . . . .	1650	1005	1255
K-31	Мартин. Концентрат смолки с клаусталитом и другими минералами . . . . .	1365	765	935
K-33	Мартин. Концентрат . . . . .	1140	852	935
K-34	Рикс-Эйдит. Концентрат . . . . .	1300	778	920
K-36	Несбит-Лебайн. Концентрат . . . . .	820	220	285
K-37	То же . . . . .	615	325	365
K-38	То же. Урановая смолка . . . . .	1100	264	375
K-42	Эйс-Майн. Концентрат урановой смолки с клаусталитом и галенитом . . . . .	1840	1515	1675
K-44	То же . . . . .	1800	1315	1550
K-45	» » . . . . .	1780	1282	1490
K-48	» » . . . . .	820	254	320
K-49	» » . . . . .	1600	850	1095
K-51	» » . . . . .	1065	714	815
K-53	Эйс-Майн. Концентрат урановой смолки с пиритом, гематитом, клаусталитом и галенитом . . . . .	1585	220	395
K-54	То же. Образец выветрен . . . . .	1795	1550	1630
K-55	То же . . . . .	1760	1172	1400
K-50	Майн. Концентрат урановой смолки с гематитом . . . . .	1780	1570	1665

ным отношениям (около 900 млн. лет) для месторождений Джил и Мартин, залегающих среди пород серии Атабаска [25, 26]. Робинсон отмечает, что урановые смолки возрастом 230—350 млн. лет являются продуктом палеозойской регенерации древних урановых руд. Они локально распространены в определенном районе (Эйс-Майн) и отличаются от остальных смолк массивной текстурой.

Доказательством регенерации древних руд района Атабаски является также присутствие среди них галенита и клаусталита с явно аномальным изотопным составом свинца (по  $Pb^{206}$  и  $Pb^{207}$ ).

Рассмотрение результатов определений возраста более 30 образцов урановых минералов из этого района позволяет выделить несколько групп значений (табл. 4). Первая группа указывает на древнейший возраст месторождений района оз. Атабаска по  $Pb^{207}/Pb^{206}$ , равный 1850 млн. лет (образец K-42), и значительно более молодой возраст метаморфизма по  $Pb^{206}/U^{238}$  и  $Pb^{207}/U^{235}$ , достигающий 200 млн. лет. Вторая группа дает сходящиеся значения возраста по разным изотопным отно-

шениям, изменяющиеся в пределах 1000 млн. лет (от 1800 до 800 млн. лет).

Совпадение результатов измерений изотопных отношений  $Pb^{206}/U^{238}$  и  $Pb^{207}/U^{235}$  урановых смолк на диаграмме рис. 4 показало, что обе группы образцов занимают вполне определенное положение на графике. Первая группа, полностью состоящая из урановых смолк месторождений района Биверлодж—Эйс-Майн—Питч, располагается вдоль наиболее длинной хорды, указывающей на 1900 млн. лет как на возраст первичной минерализации и на 200 млн. лет как на время наиболее вероятного метаморфизма. Некоторые образцы того же района и ряда других урановых месторождений (Мартин, Игл, Николсон), связанных со структурами более низкого порядка, чем первая группа, занимают положение на графике вдоль короткой хорды, указывающей на более ранний метаморфизм около 800 млн. лет назад. Характерно отсутствие точек на диаграмме между 200 и 800 млн. лет. Это, вероятно, связано с тем, что структуры удаленных от основной зоны участков (Игл, Николсон) в позднейшее время не приоткрывались и не подвергались

Таблица 5

## Изотопный состав свинца галенитов и клаусталитов оз. Атабаска

Образец	Место отбора образца и его характеристика	Изотопный состав свинца			Характеристика радиогенной добавки		Литература
		Pb <sup>206</sup> /Pb <sup>204</sup>	Pb <sup>207</sup> /Pb <sup>204</sup>	Pb <sup>208</sup> /Pb <sup>204</sup>	Pb <sup>207</sup> /Pb <sup>206</sup>	Pb <sup>208</sup> /Pb <sup>206</sup>	
P-3	Эйс-Крик. Жила с урановой смолкой . . . . .	43,5	18,71	35,72	0,124	0,045	[7]
P-100	Несбит-Лейк. Пегматит . .	15,44	15,44	35,70	—	—	[8]
P-214	Бокс-Майн. Кварц-золотосносная жила с урановой смолкой . . . . .	21,88	15,74	35,40	0,086	0,134	[7]
P-313	Леонард-Эдит. Породы, вмещающие ураносносную жилу . . . . .	58,1	21,90	37,72	0,156	0,076	[8]
P-457	Эйс-Майн. Клаусталит с колломорфной урановой смолкой . . . . .	39,32	19,04	37,05	0,158	0,106	[8]
P-457	То же . . . . .	39,80	18,93	36,55	0,153	0,080	[26]
P-530	Питч. Жила с урановой смолкой, клаусталит . .	20,6	16,2	38,5	0,177	0,66	[8]
P-530	То же . . . . .	19,74	15,81	37,55	0,133	0,6	[26]
P-642	Биверлодж. Клаусталит из ураносносной жилы . .	26,55	17,26	36,48	0,152	0,147	[26]
P-643	Рено, группа 6. Концентрат клаусталита . . . .	29,0	17,56	36,34	0,170	0,145	[26]
P-653	Эйс-Майн. Нерadioактивная жила . . . . .	14,4	15,1	34,4	—	—	[26]

юному гидротермальному метаморфизму (см. рис. 3).

Обращает на себя внимание то, что подавляющая часть галенитов и клаусталитов, содержащих радиогенный свинец, обнаружена именно в районе Эйс-Майн, для которого характерен наиболее юный гидротермальный метаморфизм и где, следовательно, можно было действительно ожидать максимальное обособление радиогенного свинца из древних уранинитов в самостоятельную минеральную фазу (табл. 5 [21]). Основываясь на изотопном анализе свинца образца P-653, как наиболее характерном обыкновенном свинце для данного района, можно вычислить изотопный состав радиогенной добавки в аномальных свинцах и затем определить время метаморфизма и соотношение урана и тория в исходных минералах, как это уже было сделано для Витватерсранда. Результаты показывают, что время метаморфизма изменяется от 200 до 1000 млн. лет, совпадая с данными табл. 4, а соотношение урана и тория в первичных рудах колеблется от 10 до 100. Поскольку руды района Атабаска содержат практически исчезающе малые количества тория, эти соотношения скорее указывают на захват метаморфическими растворами незначительной доли свинца вмещающих пород, метаморфизованных одновременно с рудами.

Карелия. Для сравнения с описанными месторождениями нами приводятся данные исследований возраста акцессорных уранинитов и изотопного состава свинца галенитов из пегматитов Карелии. Несмотря на слабо проявленный эффект метаморфизма урановых минералов в пегматитах они были одними из первых, где обнаружено это явление.

В работах [8, 28, 29] на примере нескольких пегматитов было показано, что расхождением в значениях возраста уранинитов (с истинным возрастом 1900 млн. лет) соответствует появление в тех же пегматитах галенитов с аномальным изотопным составом свинца. Вычислено, что время метаморфизма этих пегматитов равно 500—700 млн. лет (табл. 6, 7).

Такой же результат дает и график рис. 5. Правда, он показывает, на сколь малых нюансах величин изотопных соотношений основывается указанный вывод. Через имеющиеся точки на диаграмме можно было бы провести изохрону и к началу координат. Таким образом, причину наблюдающихся расхождений в значениях возраста уранинитов можно свести к современному выносу свинца, и лишь появление галенитов с радиогенным свинцом, характеризующимся заметно более высоким соотношением Pb<sup>207</sup>/Pb<sup>206</sup>, чем в свинце уранинитов, указывает на вероятность более древнего метамор-



Таблица 6  
Возраст акцессорных уранинитов пегматитов Карелии

Номер образца	Значения возраста, млн. лет			Литература
	Pb <sup>207</sup> /Pb <sup>206</sup>	Pb <sup>206</sup> /U <sup>238</sup>	Pb <sup>207</sup> /U <sup>235</sup>	
1	1850	1760	1800	[28]
2	1820	1680	1740	[9]
3	1850	1550	1680	[28]
4	1800	1420	1550	[22]
5	1800	1630	1710	[22]
6	1800	1050	1300	[9]
7	1880	1660	1760	[9]
8	1870	1760	1800	[9]
9	1820	1920	1860	[28]

Таблица 7  
Изотопный состав свинца галенитов Карелии

Номер образца	Изотопный состав свинца				Характеристика радиогенной добавки *	
	Pb <sup>204</sup>	Pb <sup>206</sup>	Pb <sup>207</sup>	Pb <sup>208</sup>	Pb <sup>207</sup> /Pb <sup>206</sup>	Pb <sup>208</sup> /Pb <sup>206</sup>
1	1,00	14,76	14,96	35,20	—	—
2	1,00	14,67	14,85	35,17	—	—
3	1,00	20,40	15,77	39,45	0,153	0,75
4	1,00	20,38	15,68	38,70	0,137	0,60
5	0,02	100,00	13,57	1,87	0,133	0,01
6	1,00	22,15	16,35	39,03	0,194	0,50
7	1,00	18,02	15,42	37,91	0,156	0,81

\* Состав обыкновенного свинца принят средним между образцами 1 и 2.

физма. Геологически это предположение подтверждается магматическими проявлениями района Кольского п-ва, возраст которых свидетельствует о существовании раннепалеозойского метаморфизма в пределах Балтийского щита.

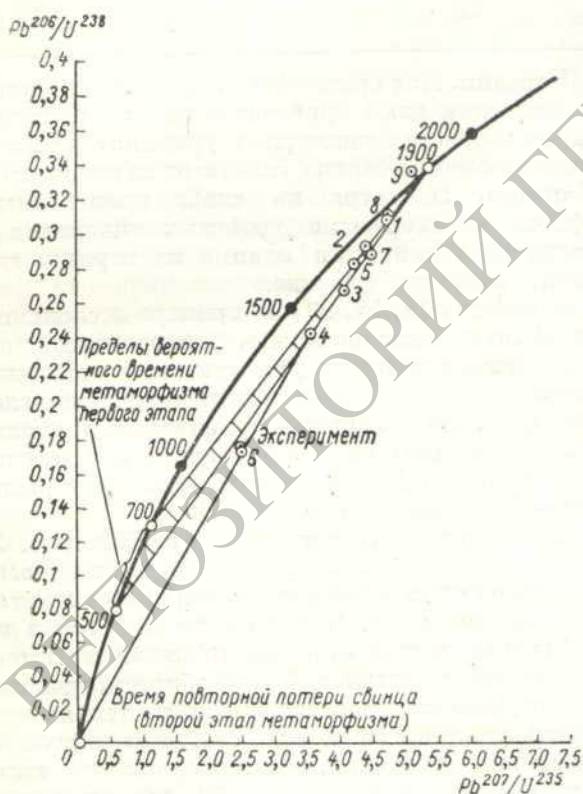


Рис. 5. Значения возраста акцессорных уранинитов пегматитов Карелии:

● и ○ — то же, что и на рис. 2; ⊙ — отдельные образцы (см. табл. 6).

Характерно, что отношение урана к торию в минерале-источнике, вычисленное по Pb<sup>208</sup>/Pb<sup>206</sup> в добавке радиогенного свинца, колеблется от 8 до 13. Это указывает наряду с данными анализа образца 5 (см. табл. 7) на преимущественный вынос радиогенного свинца из урановых, а не из ториевых минералов.

Таким образом, даже для отдельных акцессорных минералов оба отмеченные в разное время и разными исследователями геохимические эффекты — потеря свинца урановыми минералами и накопление его в свинцовых минералах — указывают на одновременность этих явлений и их общую причину.

#### Экспериментальное воспроизведение гидротермального метаморфизма уранинита

Рассмотренные три случая метаморфизма как будто бы не оставляют сомнений в том, что главным геохимическим следствием подобных процессов является вынос радиогенного свинца. Однако возникает вопрос, каким мог быть механизм удаления свинца из урановых минералов.

Предварительные исследования показали возможность селективного извлечения радиогенного свинца из урановых минералов без нарушения их кристаллической решетки [31, 32]. Однако применявшиеся реактивы (KJ, J<sub>2</sub>, AgNO<sub>3</sub>) исключали воссоздание природных условий подобного процесса. В связи с этим нами были проведены моделирующие эксперименты по гидротермальному изменению уранинита при высоких давлениях и температурах в присутствии перегретых растворов.

Опыты осуществлялись в экзоклаве системы Ф. В. Сыромятникова при температуре 600° С и давлении 1000 атм. Продолжительность опытов составляла 6 ч. Навеску исследуемого минерала в 200 мг в виде кристаллического образ-

ца, шлифованного с двух сторон, помещали в рабочую камеру в серебряном тигельке. В качестве рабочего раствора использовали 10%-ный раствор  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  и  $\text{NaCl}$ . До и после опыта проводилось рентгеноструктурное исследование твердых фаз, измерялось содержание в них урана и свинца и изотопный состав последнего. Пришлифованные грани образцов изучались под микроскопом.

В качестве материалов для исследования были выбраны уранинит возрастом 1900 млн. лет

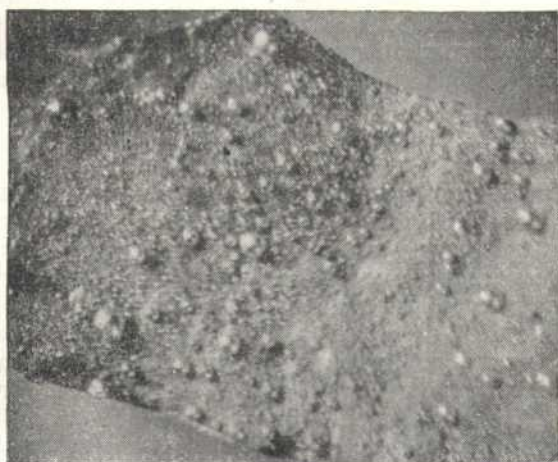


Рис. 6. Выделение свинца (шарики) на поверхности уранинита ( $\times 12$ ).

из пегматитов Карелии и урановая смолка того же возраста. Предварительное микроскопическое исследование показало идеальную однородность и высокую отражательную способность уранинита (рис. 6) и частичное изменение смолки, свидетельствующее о том, что около 10—15% образца окислилось. После опыта на поверхности обоих изучавшихся образцов отмечались округлые выделения самородного свинца. В шлифах уранинита после эксперимента обнаружены точечные выделения самородного свинца. Впервые подобное явление в аналогичных условиях наблюдалось И. П. Ивановым, при консультации которого был поставлен и данный эксперимент.

Определение урана и свинца в растворе после опыта показало отсутствие обоих компонентов в опыте с уранинитом и незначительное содержание урана в растворе в эксперименте с урановой смолкой. Все остальные результаты измерений приведены в табл. 8 и 9.

После эксперимента образцы уранинита помимо выделений самородного свинца содержали

Таблица 8

Содержание свинца и урана в исследованных образцах

Образец	Содержание свинца, вес. %		Содержание урана, вес. %			
			по данным радиохимических определений		по данным химических определений	
	до эксперимента	после эксперимента	до эксперимента	после эксперимента	до эксперимента	после эксперимента
Уранинит	17,2	10,6	61,0	62,0	57,1	60,5
Урановая смолка	12,4	7,2	47,1	31,5	46,8	37,8

Таблица 9

Изотопный состав свинца исследованных образцов

Образец	Размер ячейки, А	Изотопный состав свинца, %					$\text{Pb}^{207}/\text{Pb}^{206}$
		$\text{Pb}^{204}$	$\text{Pb}^{206}$	$\text{Pb}^{207}$	$\text{Pb}^{208}$		
Уранинит							
До опыта . .	5,48	0,03	88,4	9,96	1,61	0,113	
Свинец с поверхности образца после опыта	—	0,02	88,93	10,00	1,05	0,113	
Уранинит после опыта	5,44	0,02	88,99	9,96	1,03	0,112	
Урановая смолка							
До опыта . .	5,47	0,02	89,52	9,88	0,51	0,114	
Свинец с поверхности образца после опыта	—	0,02	89,54	9,93	0,51	0,119	
Смолка после опыта . . .	5,44	0,02	89,62	9,86	0,50	0,112	

в поверхностной корке значительное количество окисного железа, благодаря чему поверхность образца приобрела красноватый оттенок. Весьма возможно, что именно железо, заимствованное в данном случае из стенок экзоклава (роль которых в природных условиях могли играть вмещающие породы), явилось реагентом, способствовавшим восстановлению свинца до самородного состояния.

Результаты экспериментов показали, что урановые минералы не претерпели существенных изменений, за исключением небольшого сокра-

щения параметров решетки (до 5,44 Å вместо первоначального значения 5,48 Å), что еще раньше отмечал Берман [33], и незначительного растворения урана слабоокисленного образца смолки (см. табл. 8). Характерно, что независимо от этого оба образца, находясь в абсолютно идентичных условиях, потеряли по 40% радиогенного свинца. Изотопные соотношения в свинце во всех трех фазах (в урановом минерале до и после эксперимента и в выделившемся свинце) оказались идентичными в пределах экспериментальной ошибки (см. табл. 8).

Ограниченный вынос радиогенного свинца, подтвержденный повторными экспериментами, показал, что допускаемая возможность 100%-ного выноса радиогенного свинца из смолки весьма мало вероятна и что в случае наблюдаемых значительных расхождений возраста по разным изотопным отношениям целесообразнее допустить многократный вынос свинца, а не единичный геологический процесс. Это наблюдение лишней раз указывает на малую вероятность значительных отклонений величин возраста, полученных по  $Pb^{207}/Pb^{206}$ , от истинного значения, поскольку при максимальном удалении радиогенного свинца (40%) ошибка в определении возраста по указанному изотопному отношению не превышает 15%.

Весьма любопытно, что на диаграмме рис. 5 образец 6 по изотопным отношениям оказался абсолютно идентичным исследованному нами ураниниту после его обработки в экзеклаве. Это по-видимому, указывает на то, что приведенный образец был действительно «метаморфизован» в сравнительно недавнее время и что экспериментально установленный предел потери радиогенного свинца уранинитом в какой-то степени подтвержден и природными явлениями.

По представлениям Бермана [33] природный уранинит состоит из отдельных ячеек  $UO_2$  в аморфной массе  $UO_3$ . В соответствии с этим, после того как в результате радиоактивного распада урана радиогенный свинец накопится в уранините в определенном количестве, он выходит из кристаллической решетки и располагается в виде мономолекулярных слоев орторомбического  $PbO$  вдоль плоскостей кубических зерен уранинита. Это подтверждено результатами изучения дебаеграмм. При прокаливании упорядочивается распределение отдельных зерен  $UO_2$ , удаляется избыточный свинец и соответственно уменьшаются параметры решетки с 5,469 до 5,435 Å. Очевидно, как наши, так и ранее проведенные исследования свидетельствуют о том, что значительная часть радиогенного свинца уранинитов действительно спустя некоторое время после образования оказывается вне кристаллической решетки и может быть сравнительно легко удалена при термальном метаморфизме. То же самое косвенно подтверждается Николайсеном, Бургером и Стреловым [20], указывающими на относительно большую сохранность радиогенного свинца в более крупных зернах циркона одного и того же массива гранитов (Оттенсвилль), т. е. в материале с меньшей удельной поверхностью. Возраст циркона по  $Pb^{206}/U^{238}$  в зависимости от крупности его зерен из гранита Оттенсвилль, имеющего возраст 1200 млн. лет, изменяется следующим образом:

Диаметр зерен циркона, см	Возраст по $Pb^{206}/U^{238}$ , млн. лет
0,023—0,010	816
0,010—0,0066	689
0,0066	642

Весьма важные соображения, высказанные в последнее время Тилтоном [7] о непрерывно идущем процессе диффузии радиогенного свинца из минерала, будто бы обуславливающим наблюдаемые расхождения в значениях возраста, по-видимому, имеют второстепенное значение по сравнению с представлениями о миграции свинца в кратковременные эпохи интенсивного метаморфизма. Это подтверждается совпадением во времени потерь свинца минералами и магматических событий в том же районе, достаточно частыми случаями нахождения древних минералов с хорошо сходящимися значениями возраста по разным изотопным отношениям. Однако в какой-то степени эффект Тилтона, по-видимому, может иметь место. Это явно сказывается, например, на существующей тенденции преиму-

Таблица 10

Изменение возраста минералов в результате проведенных экспериментов

Образец	Значения возраста, млн. лет		
	$Pb^{207}/Pb^{206}$	$Pb^{206}/U^{238}$	$Pb^{207}/U^{235}$
Уранинит			
До опыта . . .	1860	1760	1800
После опыта	1860	1080	1350
Урановая смолка			
До опыта . . .	1820	1720	1770
После опыта	1820	1180	1420

щественного выноса  $Pb^{207}$  по сравнению с  $Pb^{206}$  из уранинита, зафиксированного, хотя и не очень отчетливо, в нашем эксперименте (см. табл. 9). Действительно, если в структуре уранинита свинец занимает особое место, предопределяющее его сравнительно легкий вынос, то это означает, что свинец, возникший в раннюю стадию существования уранинита, будет легче растворяться и выноситься, чем свинец, возникший позднее. Отсюда следует, что соотношения  $Pb^{207}/Pb^{206}$  в свинце, вынесенном из уранинита, всегда будут несколько выше, чем в оставшемся. В настоящий момент этот эффект количественно учесть не удастся, по весьма вероятно, что именно с ним может быть связано кажущееся незначительное «удревнение» вынесенного радиогенного свинца по сравнению со свинцом, оставшимся в минерале.

### Выводы

Сопоставляя расхождения в значениях возраста урановых минералов, полученных по разным изотопным отношениям, с характером аномалий в изотопном составе свинца свинцовых минералов, можно установить, что в основе тех и других лежит один и тот же доминирующий процесс — вынос радиогенного свинца из урановых минералов и его обособление в виде самостоятельных свинцовых минералов — галенита или клаусталита. Это позволяет двумя независимыми путями решить задачу о возрасте первичной урановой минерализации и времени ее метаморфизма. Сам факт миграции радиогенного свинца из урановых минералов без их разрушения в условиях эндогенных процессов был подтвержден экспериментально при температурах и давлениях, соответствующих природным условиям метаморфизма.

По степени интенсивности выделяются три стадии метаморфизма урановых руд:

1. Ранняя стадия метаморфизма: обособление радиогенного свинца в виде свинцовых минералов в пределах рудных урановых тел.

2. Поздняя стадия метаморфизма: вынос радиогенного свинца за пределы рудных урановых залежей без нарушения структур урановых материалов.

3. Стадия регенерации: переотложение радиогенного свинца и урана первичных урановых руд в виде минералов поздних генераций.

В заключение авторы выражают признательность Е. С. Макарову за исполнение рентгеноструктурных определений.

Поступила в Редакцию 2/1 1963 г.

### ЛИТЕРАТУРА

1. А. П. Виноградов и др. «Геохимия», № 5, 383 (1960).
2. А. П. Виноградов и др. «Геохимия», № 7, 563 (1960).
3. L. Ahrens. *Geochim. et cosmochim. acta*, 8, 6 (1955).
4. G. Wetherill. *Trans. Amer. Geophys. Union*, 37, 226 (1956).
5. G. Wetherill. *Geochim. et cosmochim. acta*, 9, 360 (1956).
6. J. Kulp, W. Eckelman. *Amer. Mineralogist*, 42, 115 (1957).
7. T. Tilton. *J. Geophys. Res.*, 65, 421 (1960).
8. R. Farquhar, G. Cumming. *Trans. Amer. Geophys. Union*, 34, 220 (1954).
9. Г. В. Авдзейко. Труды Третьей сессии Комиссии по определению абсолютного возраста геологических формаций. М., Изд-во АН СССР, 1955, стр. 153.
10. Кац, Рабинович. Химия урана. М., Изд-во иностр. лит., 1957.
11. Nubuo Katayama. Report on the 21 Session I.G.C., 1960, p. 7.
12. T. Nel. Report on the 21 Session I.G.C., 1960, p. 15.
13. P. Ramdohr. *Abhandl. Berl. Akad. Wiss.*, H. 5 (1954).
14. G. Davidson. *Mining Mag.*, 102, No. 2—4 (1960).
15. J. Kow. *South Afric Min. and Engng J.*, 65, No. 322 (1954).
16. А. И. Тугаринов. Бюллетень Комиссии по определению абсолютного возраста геологических формаций. М., Изд-во АН СССР, 1956, стр. 82.
17. W. Liebenberg. *Trans. Geol. Soc. S. Afr.*, 58, 101 (1955).
18. L. Nicolaisen, A. Burger, W. Liebenberg. *Geochim. et cosmochim. acta*, 26, 15 (1962).
19. H. Aillsopp. *J. Geophys. Res.*, No. 9 (1961).
20. L. Nicolaisen, de Villiers J., A. Burger, F. Strelow. *Trans. Geol. Soc. S. Afr.*, 61, 137 (1958).
21. E. Mendelson et al. *Abstrs Ann. Congress Geol. Soc. S. Afr.*, 1958, p. 78.
22. A. Burger, L. Nicolaysen, de Villiers G. *Geochim. et cosmochim. acta*, 26, 25 (1962).
23. А. И. Тугаринов. Геология — о методах определения абсолютного возраста горных пород. М., Госгеолтехиздат, 1961.
24. R. Russell, R. Farquhar. *Lead Isotopes in Geology*. Canada, 1960.
25. S. Robinson. *Geol. Surv. of Canada Bull.*, No. 31 (1955).
26. W. Eckelman, J. Kulp. *Bull. Geol. Soc. America*, 67, 35 (1956).
27. C. Collins, R. Farquhar, R. Russell. *Bull. Geol. Soc. America*, 65, 1 (1954).
28. К. К. Жиров и др. «Геохимия», № 8, 657 (1957).
29. С. И. Зыков и др. Труды Четвертой сессии Комиссии по определению абсолютного возраста геологических формаций. М., Изд-во АН СССР, 1957, стр. 249.
30. В. В. Жиров, С. И. Зыков. Там же, стр. 258.
31. А. И. Тугаринов. В сб. «Вопросы геохимии и минералогии». М., Изд-во АН СССР, 1956, стр. 186.
32. А. И. Тугаринов и др. См. [29], стр. 204.
33. R. Bergman. *Amer. Mineralogist*, 42, 612 (1957).