

# GEOCHIMIE ISOTOPIQUE DU STRONTIUM DES BARITES, ANHYDRITES, CALCITES ET FLUORITES DE BELGIQUE<sup>1</sup>

par

Daniel DEMAIFFE<sup>2</sup> & Léon DEJONGHE<sup>2-3</sup>

(3 figures et 1 tableau)

**RESUME.**- Le présent travail est axé sur la géochimie isotopique du Sr des minéraux accompagnateurs de gisements Pb-Zn belges. Des barites et des calcites ont été principalement analysées ainsi que quelques fluorites. Quelques échantillons d'anhydrites sédimentaires et de calcaires ont aussi été pris en considération.

Les compositions isotopiques du Sr de toutes les barites analysées, qu'elles soient sédimentaires ou filoniennes, sont nettement plus radiogéniques ( $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr} > 0,710$ ) que celles de l'eau de mer pendant les périodes de dépôt des roches encaissantes correspondantes, ce qui suggère une origine crustale (continentale) pour le Sr et le Ba. Par contre, les fluorites, les anhydrites massives et les barito-célestines présentent des rapports  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  assez voisins de ceux de l'eau de mer aux périodes de dépôt des roches encaissantes correspondantes.

Diverses hypothèses concernant la source du Ba sont envisagées.

**ABSTRACT.**- This work is focused on the Sr isotope geochemistry of Belgian Pb-Zn ore deposits. Barites and calcites have been analyzed as well as some fluorites. Some samples of limestones and sedimentary anhydrites have also been investigated.

The Sr isotopic composition of all barites (either from sedimentary or from vein-type deposits) are higher ( $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr} > 0.710$ ) than sea-water values at the deposition time of the corresponding host-rocks. This fact suggests a crustal (continental) origin for both Sr and Ba. On the contrary, fluorites, massive anhydrites and barito-celestites present  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  ratios similar to those of sea-water at the deposition time of the surrounding rocks.

Various hypotheses concerning the source of Ba are discussed.

## I.- INTRODUCTION

La géochimie isotopique est devenue un outil important en métallogénie :

- les isotopes stables (H, C, O, S, ...) permettent de tracer l'origine du (ou des) fluide(s) minéralisateur(s) et, dans certaines conditions favorables, de déterminer la température de cristallisation du dépôt;

- les isotopes radiogéniques (Sr, Nd, Pb) constituent des traceurs naturels permettant d'identifier les régions-sources des éléments (métaux en particulier), à savoir origine crustale ou mantellique, origine marine ou continentale. Parfois, l'âge de la minéralisation peut aussi être déterminé.

Depuis les premiers travaux de Hedge (1974), peu d'articles ont été consacrés à l'application de la géochimie isotopique du strontium aux gisements. Les principaux travaux (Kesler & Jones, 1981; de Brodtkorb *et al.*, 1982; Michard *et al.*, 1983; Hofmann & Baumann, 1984; Baumann & Hofmann, 1988; Kesler *et al.*, 1988) ont traité à l'étude de minéraux tels que calcite, fluorite, célestine, anhydrite et barite provenant de gîtes filoniens ou sédimentaires.

<sup>1</sup> Manuscrit reçu en juillet 1990.

<sup>2</sup> Laboratoires associés de Géologie-Pétrologie-Géochronologie (CP 160), Université libre de Bruxelles, 50, av. Roosevelt, 1050 Bruxelles, Belgique.

<sup>3</sup> Service géologique de Belgique, 13 rue Jenner, 1040 Bruxelles, Belgique.



Fig. 1.- Localisation des occurrences minérales étudiées.

Le présent travail est axé sur la géochimie isotopique du strontium des minéraux accompagnateurs des gisements plombo-zincifères belges : la barite et la calcite ont été principalement analysées, ainsi que quelques fluorites. Par ailleurs, un gisement actuellement exploité, exclusivement pour la barite, a aussi été étudié ainsi que quelques échantillons d'anhydrite sédimentaire.

Le but ultime de cette étude est de vérifier dans quelle mesure la composition isotopique du Sr des minéralisations peut servir de traceur et dès lors permettre d'affiner les interprétations métallogéniques.

## II.- CONTEXTE GEOLOGIQUE ET DESCRIPTION SOMMAIRE DES ECHANTILLONS ANALYSES

Les gisements plombo-zincifères de Belgique se répartissent au sein de deux grands districts (fig. 1):

- les synclinoria de Namur et de Verviers au Nord;
- le synclinorium de Dinant au Sud.

La partie centrale du district sud est caractérisée par l'abondance de gisements et d'indices de fluorite.

Deux types de gisements ont été envisagés :

- Les gisements concordants d'origine précocée : ce sont les gisements sédimentaires sensu lato, syn- ou/et diagénétiques;

- les gisements sécants, de type filonien : ils forment des veines minéralisées remplissant des zones de fracture d'âges tardi-varisques ou post-varisques recoupant les roches sédimentaires plissées dévono-carbonifères mais pas celles des séries tabulaires crétacées ou plus récentes. de Magnée (1967) a suggéré que la mise en place principale des filons Pb-Zn belges avait eu lieu au Trias sans exclure cependant qu'elle ait pu commencer au Permien et qu'elle se soit poursuivie pendant le Jurassique. En Allemagne de l'Ouest, Lippolt (1984) a montré la difficulté de

dater les minéralisations filoniennes post-varisques par les méthodes géochronologiques classiques.

Il faut souligner que de nombreux gisements ont une histoire géologique complexe. Par exemple, certains gisements sédimentaires sont caractérisés par des phases de piégeage des métaux durant la sédimentation ou la diagenèse précoce et sont affectés par des phases de mobilisation et de reconcentration durant la diagenèse tardive ou l'épigenèse. De même, certains gisements filoniens correspondent à diverses phases de remplissage échelonnées dans le temps.

Tous les échantillons étudiés ont été prélevés soit sur le terrain, soit en sondage.

## II.1.- LES GISEMENTS ET INDICES DE BARITE ET/OU FLUORITE A AFFINITES SEDIMENTAIRES, SYN- OU/ET DIAGENETIQUES

L'âge de la plupart des gisements étudiés dans cette catégorie s'échelonne de l'Eifélien au Frasnien supérieur. Le gisement de Fleurus est toutefois beaucoup plus jeune (Aptien-Albien). En outre, les corps minéralisés se présentent de façon très variable.

**Polleur** (Eifélien). La barite apparaît en petits cristaux millimétriques isolés dans un grès argileux rouge qui a été recoupé par sondage à une profondeur de 7 mètres.

**Resteigne** (Givetien supérieur). Au lieu-dit Notre Dame d'Ochamp, existe une petite minéralisation barytique, apparaissant stratiforme à l'échelle de l'affleurement; les anciens travaux de recherches minières sont alignés parallèlement à la direction des couches du calcaire de la Formation de Fromelennes. La barite blanche à rosée se présente en lamelles de 1 à 2 cm de long et en agrégats de cristaux disposés en éventail, associés à la fluorite, dans un niveau silicifié brunâtre (Lannoy, 1979).

**Foishes et Matagne-la-Grande** (Givetien supérieur). Foishes (France) constitue le plus important gisement de fluorite de cette région. La minéralisation existe sous plusieurs aspects :

- en cristaux isolés (plusieurs centimètres) ou en agrégats massifs dans un niveau de calcaire silicifié de la Formation de Fromelennes (minéralisation syn/diagénétique précoce);

- en cristaux de même habitus, associés ou non à de la calcite, remplissant des fractures ramifiées (minéralisation épigénétique consanguine de type stockwerk);

A Matagne-la-Grande, les sulfures de Pb, Zn et Fe sont localement plus abondants (Calembert & Van Leckwijk, 1942).

**Chaufontaine** (Frasnien supérieur). Le gisement est situé au sommet du deuxième biostrome à *Phillipsaera* de la Formation d'Aisemont. C'est le seul gisement sédimentaire repéré dans le Synclinorium de Verviers; la minéralisation est essentiellement barytique avec quelques sulfures (sphalérite, galène, chalcopryrite, bravoïte). De la calcite en pseudomorphose de gypse ou d'anhydrite a également été identifiée. Le gisement a fait l'objet d'études détaillées (Dejonghe, 1979, 1985), y compris sur le plan isotopique (Dejonghe *et al.*, 1989).

**Fleurus** (Aptien-Albien). Ce gisement, le seul actuellement (1990) exploité en Belgique, a pu être daté de l'Aptien-Albien par palynologie (Dejonghe *et al.*, 1987). Il se présente sous la forme d'une grosse lentille barytique, piégée dans un paléokarst affectant les calcaires du Viséen supérieur.

La lentille repose sur des roches noires hétérogènes, de nature siliciclastique et de faciès wealdien. Il s'agit d'un dépôt d'origine fluvio-lacustre (de Magnée & Doyen, 1982; Dejonghe, 1989). En 1990, ce gisement avait produit au total environ 1300000t de barite concentrée. Des échantillons ont été prélevés sur toute l'épaisseur stratigraphique du remplissage du paléokarst, à des niveaux interstratifiés dans les roches noires de base ainsi qu'au milieu et au sommet de la lentille barytique.

## II.2.- LES GISEMENTS FILONIENS A BARITE-CALCITE-FLUORITE

Les gisements sélectionnés dans cette catégorie sont regroupés en fonction de l'âge décroissant des roches encaissantes. Certains filons sont d'extension limitée et ne recoupent qu'une seule formation géologique. Ils sont décrits ci-dessous en premier lieu.

**Emsien moyen.** De nombreux petits filons barytiques présentant parfois une structure bréchique sont situés dans la Formation des grès de Vireux à Vireux-Molhain (France).

**Givetien Supérieur.** De nombreux filons interceptent les roches carbonatées de la Formation de Fromelennes.

Dans le bois du Roptai, à Ave et Auffe et Lavaux-Ste-Anne, un essaim de filons (une bonne dizaine) répartis selon deux systèmes de fractures conjuguées, affecte un anticlinal en forme de

voûte surbaissée. Le minerai est essentiellement constitué d'agrégats massifs de barite lamellaire blanche, millimétrique à centimétrique. La fluorite est accessoire et surtout localisée vers les épontes et dans les calcaires encaissants. Ces épontes sont d'ailleurs légèrement silicifiées. Des mouchetures de galène dans la barite apparaissent aux extrémités E et W du gisement (Lannoy, 1979).

A Han-sur-Lesse (Les Grignaux), une galerie de recherche creusée dans les calcschistes de la base de la Formation de Fromelennes, a suivi un petit filon de barite blanche en agrégats lamellaires (en éventail ou hémisphérique) avec fluorite accessoire.

**Frasnien.** Quatre filons ou faisceaux de filons retenus pour cette étude recoupent des Formations frasniennes.

A Villers-en-Fagnes (La Grosse Haie), un faisceau de filons discontinus (au moins 5 importants) recoupe les calcaires et les dolomies frasniennes. Certains présentent localement des renflements de 3 à 5 m d'épaisseur. Le gisement a principalement été exploité pour la galène et la pyrite. La gangue est constituée de barite blanche tantôt colloforme, tantôt bien cristallisée, en grands cristaux tabulaires crêtés. Dans les dolomies, on observe des gerbes de barite blanche et des cristaux automorphes de fluorite transparente (Dewez, 1947).

A Roly (Bois Cumont), on trouve de la barite blanche lamellaire en agrégats massifs en remplissage d'un lacinis de veinules. Elle renferme parfois des cubes centimétriques de galène.

A Doische (Trou du diable), le filon est constitué de beaux cristaux (cm à dm), transparents à translucides, de barite tabulaire crétée.

A Heure, un filon-faille transversal, exploité à petite échelle pour la marcasite et la galène, présente une gangue de calcite (Dejonghe & de Walque, 1981).

**Viséen.** A Rabotrath (Walhorn), la minéralisation principale est localisée au flanc N d'un synclinal, le long du contact entre les calcaires viséens et les shales et grès namuriens, dans la zone de passage d'une faille transversale aux plissements. Le minerai consiste en sulfures de Pb, Zn et Fe sous forme de rognons et de dépôts concrétionnés rythmiques cimentés par une gangue de calcite (Dejonghe & Jans, 1983). Les échantillons étudiés ont été prélevés dans un petit filon satellite transversal recoupant les calcaires viséens.

Deux autres filons présentent une extension beaucoup plus grande. Ils recoupent des formations variées pouvant appartenir à plusieurs étages.

Le filon de Vierves-sur-Viroin est un filon-faille transversal qui recoupe les formations carbonatées et schisteuses de l'Eifélien, du Givetien et du Frasnien. La minéralisation est connue sur plus de deux kilomètres de longueur. Dans les 460 premiers mètres de la partie méridionale, la caisse filonienne est remplie de barite et de calcite avec sulfures disséminés. La prolongation septentrionale est plus riche en marcasite, sphalérite et galène. L'épaisseur du filon est variable, atteignant localement 14 mètres (Evrard, 1943; de Magnée, 1947).

A Sautour, le gisement est composé de 2 filons d'orientation approximative N-NW, se rejoignant vers le N et recoupant, sur 3km environ, les formations carbonatées et schisteuses du Givetien, du Frasnien et du Famennien du Massif de Philippeville. La caisse filonienne est remplie de galène, sphalérite, marcasite et calcite (la barite est absente). La calcite se présente notamment en cristaux colonnaires translucides de plusieurs centimètres de long (échantillons prélevés sur les haldes de la mine Vincart) (Dewez, 1947).

### II.3.- LES EVAPORITES DEVONO-CARBONIFERES

De puissants horizons évaporitiques ont été recoupés par plusieurs grands sondages dans les séquences dévono-carbonifères du domaine varisque franco-belge. Il s'agit essentiellement d'anhydrite provenant de la transformation diagenétique de gypse. A l'affleurement, au niveau de l'équivalent stratigraphique de ces formations, on trouve de nombreuses pseudomorphoses de gypse et d'anhydrite par de la calcite ainsi que d'importants niveaux bréchiques témoignant de la grande extension de ces dépôts évaporitiques (Rouchy *et al.*, 1987).

Il nous a semblé intéressant de comparer la composition isotopique du Sr de ces horizons d'anhydrite avec celle des barites et des calcites des gisements sédimentaires et filoniens. Trois niveaux d'anhydrite ont été étudiés.

Dans le sondage de Tournai (142E455), plusieurs niveaux centimétriques d'anhydrite grise, litée ou massive ont été recoupés à plus de 1000m de profondeur dans les formations carbonatées d'Alvaux et de Mazy d'âge givetien (Legrand, 1981; Coen-Aubert *et al.*, 1981).

Dans les sondages de Soumagne (135W349), l'anhydrite apparaît dans le premier biostrome à *Phillipsastraea* de la Formation d'Aisemont (Frasnien supérieur). Elle est, par contre peu abondante dans les deuxième et troisième biostromes mais elle envahit de nouveau le sommet de la Formation de Matagne (Frasnien supérieur) et la base du Famennien. Il s'agit d'une anhydrite nodulaire ou pommelée, dépourvue de structure litée et

comprise principalement dans des horizons dolomitiques alternant avec des niveaux schisteux (Graulich, 1977). Elle remplace parfois la calcite de certains fossiles (crinoïdes, coraux) et du ciment (Cnudde *et al.*, 1986).

Dans le sondage de Saint-Ghislain (150E387b), la série anhydritique d'âge viséen a été recoupée à partir de 1905 m de profondeur. Elle est exceptionnellement épaisse (765 m), les bancs évaporitiques présentant un caractère massif. Les déformations post-sédimentaires sont très importantes oblitérant parfois complètement les structures originelles. Des cristaux millimétriques lamellaires de barite, célestine et barito-célestine ont également été identifiés: ils sont soit isolés dans un calcaire noir, soit concentrés dans des agrégats lenticulaires de quelques centimètres d'épaisseur. Une description du sondage et des diverses interprétations sédimentologiques peut être trouvée dans Dejonghe *et al.* (1976) et Rouchy *et al.* (1987).

### III.- METHODES ANALYTIQUES

La barite, la fluorite et la calcite ont été séparées manuellement à partir des échantillons prélevés sur le terrain. Dans la mesure du possible, des monocristaux ont été sélectionnés. Un lavage des échantillons dans HCl 2,5 N à chaud s'est parfois révélé nécessaire pour enlever des enduits brunâtres d'oxydes et d'hydroxydes de fer.

Pour la barito-célestine du sondage de Saint-Ghislain que l'on trouve en tablettes millimétriques dans du calcaire noir, l'échantillon a été broyé et la fraction granulométrique 60-150  $\mu\text{m}$  a été séparée aux liqueurs denses (bromofome puis iodure de méthylène) sous centrifugation. La barito-célestine, concentrée dans la fraction lourde, a été lavée à HCl 6M tiède pendant 2 heures afin d'éliminer les fragments de calcaire qui adhéraient aux tablettes.

La taille des cristaux dans les anhydrites massives est largement inférieure au millimètre (surtout dans les échantillons tectonisés du sondage de Saint-Ghislain). Des petits fragments de roches ont été prélevés en-dehors des zones à liserés argileux.

Tous les échantillons sélectionnés ont été broyés dans l'agate.

Les calcites et les calcaires ont fait l'objet d'une simple attaque HCl 2,5 N à chaud dans une capsule en platine.

Pour les barites, anhydrites et fluorites, le Sr a été partiellement extrait par une attaque HF + HClO<sub>4</sub>. La reproductibilité de la méthode a été testée en répétant la procédure deux fois pour

Tableau 1.- Composition isotopiques du Sr des barites, anhydrites, calcites et fluorites de Belgique.

Localisation	$(^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})_{\text{mes}} \pm 2\sigma$
<b>BARITES</b>	
Ave et Auffe	0,71174 $\pm$ 0,00002
Chaufontaine 1	0,71170 $\pm$ 0,00018
Chaufontaine 2	0,71123 $\pm$ 0,00024
Chaufontaine 3	0,71098 $\pm$ 0,00016
Chaufontaine 4	0,71130 $\pm$ 0,00014
Chaufontaine 5	0,71092 $\pm$ 0,00020
Chaufontaine 6	0,71133 $\pm$ 0,00006
Chaufontaine 6bis	0,71128 $\pm$ 0,00026
Chaufontaine 7	0,71144 $\pm$ 0,00030
Chaufontaine 8	0,71111 $\pm$ 0,00006
Chaufontaine 9	0,71123 $\pm$ 0,00030
Chaufontaine 10	0,71105 $\pm$ 0,00025
Chaufontaine 11	0,71118 $\pm$ 0,00013
Chaufontaine 11bis	0,71119 $\pm$ 0,00011
Doische	0,71162 $\pm$ 0,00004
Fleurus 1	0,71095 $\pm$ 0,00004
Fleurus 2	0,71061 $\pm$ 0,00004
Fleurus 3	0,71090 $\pm$ 0,00003
Fleurus 4	0,71066 $\pm$ 0,00032
Fleurus 5	0,71098 $\pm$ 0,00006
Han-sur-Lesse	0,71078 $\pm$ 0,00002
La Rochette	0,71623 $\pm$ 0,00009
Laveux-Ste-Anne	0,71206 $\pm$ 0,00003
Polleur	0,71608 $\pm$ 0,00007
Resteigne 1	0,71195 $\pm$ 0,00005
Resteigne 2	0,71193 $\pm$ 0,00002
Roly 1	0,71391 $\pm$ 0,00002
Roly 2	0,71479 $\pm$ 0,00002
Vierves-sur-Viroin 1	0,71153 $\pm$ 0,00002
Vierves-sur-Viroin 2	0,71115 $\pm$ 0,00005
Vierves-sur-Viroin 3	0,71081 $\pm$ 0,00003
Villers-en-Fagne 1	0,71121 $\pm$ 0,00005
Villers-en-Fagne 2	0,71098 $\pm$ 0,00003
Villers-en-Fagne 3	0,71560 $\pm$ 0,00006
Vireux-Molhain 1	0,71116 $\pm$ 0,00004
Vireux-Molhain 2	0,71596 $\pm$ 0,00003
<b>BARITO-CELESTINES</b>	
Saint-Ghislain 1	0,70785 $\pm$ 0,00006
Saint-Ghislain 2	0,70783 $\pm$ 0,00005
<b>CALCITES</b>	
Heure	0,71081 $\pm$ 0,00005
Sautour	0,71096 $\pm$ 0,00015
Vierves-sur-Viroin 1	0,71312 $\pm$ 0,00008
Vierves-sur-Viroin 2	0,71392 $\pm$ 0,00002
Vierves-sur-Viroin 3	0,71202 $\pm$ 0,00002
Walhorn	0,71160 $\pm$ 0,00070
<b>FLUORITES</b>	
Foisches	0,70847 $\pm$ 0,00011
Matagne-La-Grande 1	0,70859 $\pm$ 0,00008
Matagne-La-Grande 2	0,70847 $\pm$ 0,00002
Villers-en-Fagne	0,71648 $\pm$ 0,00007
<b>CALCAIRES</b>	
Heure	0,70812 $\pm$ 0,00016
Saint-Ghislain	0,70821 $\pm$ 0,00005
Tournai	0,70814 $\pm$ 0,00004
<b>ANHYDRITES</b>	
Saint-Ghislain 1	0,70759 $\pm$ 0,00002
Saint-Ghislain 2	0,70763 $\pm$ 0,00002
Saint-Ghislain 3	0,70765 $\pm$ 0,00002
Soumagne	0,71261 $\pm$ 0,00002
Tournai 1	0,70793 $\pm$ 0,00006
Tournai 2	0,70804 $\pm$ 0,00003

deux échantillons de Chaudfontaine (les résultats sont discutés dans Dejonghe *et al.*, 1989). Hofmann & Baumann (1984) ont montré que la composition isotopique du Sr de la solution de lessivage partiel de la barite par HCl 6N à chaud était identique à celle du Sr extrait lors d'une dissolution totale de la barite. Par ailleurs, les compositions isotopiques du Sr (cf. tableau 1) mesurées sur les anhydrites de St-Ghislain sont en très bon accord avec les données publiées par Kramm & Bless (1987) pour le même sondage.

Toutes les mesures isotopiques du Sr ont été effectuées sur un spectromètre de masse Finnigan Mat 260; les rapports  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  ont été normalisés à  $^{88}\text{Sr}/^{86}\text{Sr} = 8,3752$ . Le standard NBS 987 mesuré pendant la même période a donné un rapport  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  de  $0,71022 \pm 0,00002$  ( $2\sigma$ ).

#### IV.- COMPOSITION ISOTOPIQUE DU SR DONNEES ET INTERPRETATION

Dans cette étude, seules les compositions isotopiques du strontium ( $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ) ont été mesurées; les concentrations en Sr et Rb n'ont pas été déterminées. Nous pouvons néanmoins utiliser les données de la littérature. Baumann & Hofmann (1988) ont montré que les teneurs en Sr des barites des filons hydrothermaux de l'Allemagne de l'Ouest varient de 5000 à plus de 30000 ppm Sr; les fluorites et les calcites ont des teneurs plus faibles, de l'ordre de la centaine de ppm. Pour tous ces minéraux, la teneur en Rb est inférieure à 0, 2 ppm. Les anhydrites de Saint-Ghislain ont aussi des teneurs élevées en Sr: 1200 à 9500 ppm (Vandelannoote *et al.*, 1986). Le Rb n'a pas pu être détecté, ni en activation neutronique instrumentale, ni en fluorescence X à dispersion d'énergie: ses teneurs doivent donc être très faibles, probablement inférieures à quelques ppm.

En conséquence, pour tous les échantillons analysés, la désintégration radioactive in situ du  $^{87}\text{Rb}$  apparaît totalement négligeable et les rapports  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  mesurés peuvent être assimilés aux rapports initiaux, permettant ainsi de caractériser le milieu de dépôt.

Les données analytiques sont reproduites dans le tableau 1.

Les rapports isotopiques mesurés doivent être comparés à des valeurs de référence. Dans l'environnement sédimentaire, c'est l'eau de mer qui constitue la meilleure référence. L'évolution de sa composition isotopique en Sr est bien connue pour le Phanérozoïque (Burke *et al.*, 1982).

Nous aurions pu nous contenter de comparer nos mesures à la courbe d'évolution proposée par ces auteurs. Il nous a paru intéressant, néanmoins, de contrôler la composition de quelques calcaires du bassin dévono-carbonifère de Belgique. Les calcaires givetien, frasnien et viséen qui ont été analysés ont des compositions isotopiques très voisines (0,70812-0,70821), en parfait accord avec la courbe de Burke *et al.* (fig. 2). Deux autres calcaires frasniens de la région de Trooz, analysés précédemment (Dejonghe *et al.*, 1989) sont légèrement supérieurs (0,70863-0,70887) mais se situent toujours dans la gamme des valeurs mesurées pour l'eau de mer à l'époque frasnienne.

#### IV.1.- LES ANHYDRITES MASSIVES

Les rapports isotopiques des anhydrites massives des sondages de Tournai (Givetien) et de Saint-Ghislain (Viséen) sont respectivement de 0,70793-0,70804 et 0,70759-0,70765. Ces valeurs sont tout à fait comparables à celles de l'eau de mer de l'époque (fig. 2). De même, la barito-célestine de Saint-Ghislain (Viséen) se situe dans la même gamme, avec un rapport de 0,7078. Il apparaît dès lors que ces minéraux résultent soit d'une précipitation directe à partir de l'eau de mer, soit de la transformation diagénétique de minéraux d'origine marine sans modification isotopique du Sr. Ces données sont corroborées par les mesures de compositions isotopiques du soufre (Pierre, 1986; Pierre & Rouchy, 1986): les anhydrites laminées et massives de Tournai montrent des valeurs de  $\delta^{34}\text{S}$  très homogènes (20,0-20,8‰) et les anhydrites de Saint-Ghislain ne présentent qu'une très légère dispersion ( $14,0 < \delta^{34}\text{S} < 17,5$ ‰). Toutes ces valeurs se placent exactement sur la courbe de variation de la composition isotopique du soufre des sulfates marins évaporitiques pour l'époque dévono-carbonifère (Claypool *et al.*, 1980).

L'anhydrite du sondage de Soumagne, par contre, présente un rapport isotopique (0,71261) très nettement supérieur à celui de l'eau de mer au Frasnien ( $\approx 0,7078$ ). On peut donc supposer que sa genèse diffère de celle des anhydrites du Givetien et du Viséen. Ce point de vue a déjà été exprimé par Rouchy *et al.* (1986). Les évaporites du Givetien et du Viséen auraient une origine syngénétique (cristallisation sous-aquatique en milieu marin restreint) ou diagénétique précoce alors que celles du Frasnien et du Famennien résulteraient de processus diagénétiques plus tardifs, voire épigénétiques, avec une influence continentale plus marquée. L'environnement de dépôt à Soumagne est sans conteste plus détritique, comme en témoigne l'alternance de nombreux niveaux schisteux et carbonatés rencontrés dans le sondage.

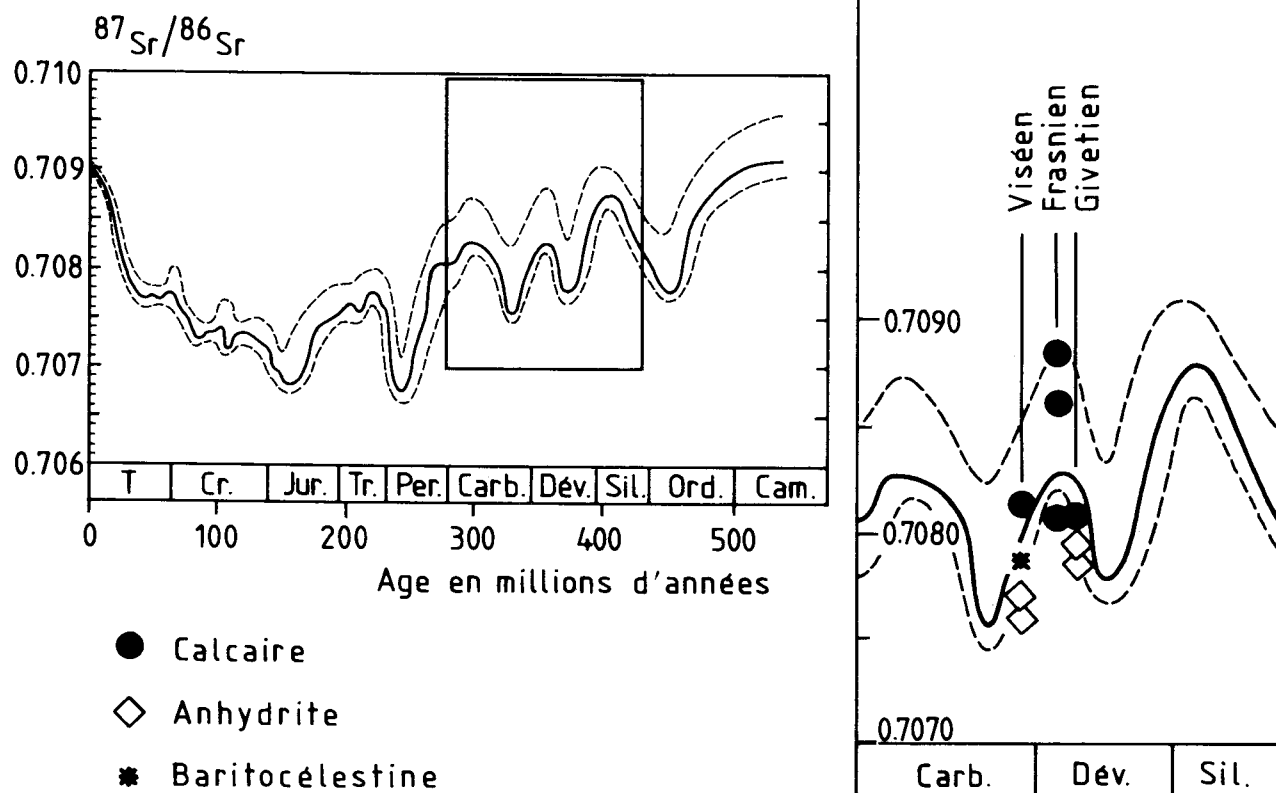


Fig. 2.- Composition isotopique du Sr des calcaires, anhydrites et barito-célestines.  
La courbe de variation de composition isotopique de l'eau de mer est reprise de Burke *et al.* (1982).

Par ailleurs, il est intéressant d'observer que Soumagne est localisé dans le synclinorium de Verviers, à 8 km à l'Est de Chaudfontaine, où une minéralisation Ba (Zn, Pb) d'origine sédimentaire a été mise en évidence. Les barites de Chaudfontaine ainsi que deux calcites provenant de la pseudomorphose de gypse sélénitique ont également des compositions isotopiques élevées ( $0,7112 \pm 0,0002$  pour 9 barites et  $0,7114 \pm 0,0002$  pour 2 calcites) (Dejonghe *et al.*, 1989), proches de celles de l'anhydrite de Soumagne. Ces valeurs élevées témoigneraient d'une origine continentale pour le Sr et aussi probablement pour le Ba.

#### IV.2.- LES GISEMENTS ET INDICES DE BARITE-FLUORITE-CALCITE

##### IV.2.a.- Les gisements sédimentaires dévono-carbonifères

Les barites de Polleur (Eifélien) et de Resteigne (Givetien) ainsi que les échantillons de Chaudfontaine (Frasnien) ont des compositions isotopiques en Sr (respectivement de 0,7161, 0,7119 et

0,7114) largement supérieures aux valeurs de l'eau de mer pour toutes les périodes correspondant à celles des roches encaissantes de ces gisements. Ceci signifie que, même si un piège sédimentaire a fonctionné en milieu marin, le Sr (et probablement le Ba) n'était pas d'origine marine. Cela n'exclut toutefois pas le fait que l'eau de mer ait pu constituer un vecteur transitoire de transport de ces éléments sous quelque forme que ce soit (dissoute, adsorbée ou particulaire).

Les fluorites de Foisches et de Matagne-la-Grande ont des rapports  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  significativement plus bas ( $\approx 0,7085$ ), assez voisins de l'eau de mer au Givetien. Dès lors, rien ne s'oppose à ce que, dans ce cas, le Sr et le F proviennent du milieu marin.

##### II.2.b.- Les gisements filoniens

Dix-huit échantillons de différents filons ont été analysés: 14 barites, 3 calcites et 1 fluorite. La gamme des rapports isotopiques mesurés s'étend de 0,7108 à 0,7165. Elle est comparable à celle des gisements sédimentaires. Ces valeurs élevées excluent une origine marine pour le Sr.

Plusieurs points méritent d'être soulignés :

- il ne semble pas y avoir de relation entre la composition isotopique du Sr des barites filoniennes et l'âge de l'encaissant immédiat des filons;

- les rapports  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  des barites prélevées dans différents filons situés dans les roches encaissantes de même âge sont variables. Par exemple, pour les filons recoupant les calcaires frasniens, le rapport isotopique des barites varie de 0,7109 (Villers-en-Fagnes) à 0,7148 (Roly). La calcite du filon de Heure possède un rapport de 0,7108.

- à l'intérieur d'un filon, la barite n'est pas isotopiquement homogène : dans le filon échantillonné à Vireux-Molhain, les 2 barites ont des rapports isotopiques distincts (0,7111 et 0,7159). De plus, fluorite et barite d'un même filon sont également distinctes : 0,7165 et 0,7109-0,7156 respectivement pour le filon de Villers-en-Fagnes.

On peut donc en conclure :

- soit que le fluide minéralisateur n'était pas isotopiquement homogène;

- soit que les sources d'alimentation étaient différentes;

- soit encore qu'il y a eu plusieurs générations de fluides dont la composition isotopique en Sr a pu évoluer au cours du temps par interaction avec du Sr radiogénique (par exemple, celui de la pile sédimentaire schisteuse, Kesler *et al.*, 1988).

Le Sr de ces filons ne provient donc probablement pas essentiellement du lessivage de leur encaissant calcaire immédiat (sécrétion latérale sensu stricto) sauf si cet encaissant est constitué d'un calcaire argileux qui contiendrait, dès lors, du Sr plus radiogénique que celui d'un calcaire marin pur. Une origine par lessivage de formations de même âge mais de natures différentes et plus éloignées (sécrétion latérale sensu lato) est tout à fait possible de même qu'une origine totalement étrangère par rapport aux formations encaissantes.

#### IV.2.c.- Le gisement de Fleurus

Les cinq barites analysées possèdent des compositions isotopiques en Sr relativement proches s'étalant de 0,71061 à 0,71098. Ces valeurs sont nettement supérieures à celles de l'eau de mer (0,7072-0,7075 pour l'Aptien-Albien), ce qui est en accord avec l'origine lacustre ou fluvio-lacustre proposée pour le gisement. La source du Sr et du Ba est donc à rechercher dans l'environnement paléogéographique immédiat de Fleurus au Crétacé inférieur. de Magnée & Doyen (1982) et Dejonghe (1989) ont d'ailleurs proposé

que le baryum provienne de l'érosion des roches siliciclastiques silésiennes qui recouvraient le Massif du Brabant à cette époque et dont les produits de démantèlement ont comblé les chenaux des vastes deltas wealdiens. Par ailleurs, les valeurs élevées du rapport  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  des barites de Fleurus permettent de rejeter l'hypothèse d'une origine du baryum au niveau des évaporites viséennes. Par contre, ces dernières ont été retenues comme source possible du soufre qui aurait été véhiculé sur le site de dépôt du gisement par une nappe artésienne d'eau chaude (*ibid.*).

### V.- CONCLUSIONS ET IMPLICATIONS METALLOGENIQUES

Les compositions isotopiques du strontium ( $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ) et du soufre ( $\delta^{34}\text{S}$ ) indiquent que les anhydrites massives givetiennes et viséennes et la barite-célestine viséenne résultent soit d'une précipitation syngénétique à partir de l'eau de mer soit d'une précipitation diagénétique précoce dans le sédiment fraîchement déposé. La présence de microcristaux de sylvite en inclusion (donc protégés) dans la matrice de l'anhydrite de Saint-Ghislain (Vandelannoote *et al.*, 1986) confirme le caractère évaporitique de cette séquence.

Les compositions isotopiques du Sr de toutes les barites analysées, qu'elles soient sédimentaires ou filoniennes, sont nettement plus radiogéniques ( $>0,710$ ) que l'eau de mer pendant le Dévonien et le Carbonifère. Ces données sont comparables à celles de Baumann & Hofmann (1988) sur les barites d'Allemagne de l'Ouest (Harz, Forêt Noire, Hessen) et à celles de Michard *et al.* (1983) pour les barites des Vosges et du Massif Central. Ces données excluent une composante mantellique et une composante eau de mer importante pour Sr. En conséquence, l'origine crustale (continentale) du Sr et du Ba ne fait aucun doute. Ces éléments ont pu être véhiculés selon divers mécanismes tels que :

- érosion et altération météorique des roches affleurantes et incorporation dans les sédiments des bassins littoraux. Les études de lithogéochimie des séries carbonatées montrent, en effet, que des corrélations positives existent entre beaucoup de métaux (dont le baryum) et la fraction argileuse des carbonates. En outre, dans les séries argileuses, les fonds géochimiques en métaux sont nettement plus élevés que dans les séries calcaires (pour le Dévonien belge, voir Dejonghe, 1987).;

- mobilisation par les eaux connées expulsées par compaction et remontant vers les points hauts;



- lixiviation des massifs enfouis par les eaux météoriques infiltrées en profondeur et soumises par exemple à un effet thermo-gravitationnel;

- lixiviation des roches encaissantes par sécrétion latérale sensu lato.

Les variations de composition isotopique observées pour des minéraux prélevés dans des filons de même âge d'une part et pour différents minéraux (ou différentes générations d'un même minéral) d'un même filon d'autre part impliquent une hétérogénéité des sources pour le Sr et pourraient suggérer l'existence de différentes périodes de dépôt échelonnées dans le temps.

Les compositions isotopiques du soufre des barites de Belgique n'ont été mesurées que pour les échantillons de Chaudfontaine (Frasnien). Les valeurs de  $\delta^{34}\text{S}$  obtenues sont en faveur d'une origine marine des sulfates (Dejonghe *et al.*, 1982). La géochimie isotopique du soufre des galènes, sphalérites et marcasites de 12 gîtes belges, tant sédimentaires que filoniens, montre

que le soufre de ces sulfures peut globalement dériver de la réduction des sulfates marins dévono-carbonifères (Cauet *et al.*, 1987).

De même, Michard *et al.* (1983) ont montré que la composition isotopique du soufre des barites filoniennes du Massif Central est voisine de celle des sulfates marins contemporains.

Ces éléments permettent de conclure que la précipitation des barites résulte dans beaucoup de cas du mélange de deux solutions, l'une véhiculant le  $\text{SO}_4^{2-}$  d'origine marine et l'autre transportant le  $\text{Sr}^{2+}$  et le  $\text{Ba}^{2+}$  d'origine continentale. Un tel mécanisme a déjà été invoqué par de Magnée & Doyen (1982) pour le gisement de Fleurus et par Dejonghe (1985) pour le gisement de Chaudfontaine. Toutefois, on sait que si les métaux se présentent sous forme de complexes organo-métalliques, ils peuvent être transportés en présence de soufre dans la même solution. Cette question a été largement documentée par Routhier (1980, ch. 15).

Bref, cette étude des isotopes du strontium permet de conclure que la source du baryum de la plupart des gisements belges correspond à un des cas schématisés à la figure 3.

## BIBLIOGRAPHIE

- BAUMANN, A. & HOFMANN, R., 1988. Strontium isotope systematics of hydrothermal vein minerals in deposits of West Germany. *Geol. Rundsch.*, 77/3: 747-762.
- BURKE, W.H., DENISON, R.E., HETHERINGTON, E.A., KOEPNICK, R.B., NELSON, H.F., & OTTO, J.B., 1982. Variation of seawater  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  throughout Phanerozoic time. *Geology*, 10: 516-519.
- CALEMBERT, L. & VAN LECKWIJCK, 1942. Les gisements de fluorine belges et français, du bord méridional du synclinorium de Dinant. *Ann. Soc. géol. Belg.*, 2: 64-75.
- CAUET, S., DEJONGHE, L. & LETOLLE, R., 1987. Géochimie isotopique du soufre des gîtes plombo-zincifères belges. *Ann. Soc. géol. Belg.*, 109: 539-546.
- CLAYPOOL, G.E., HOLSER, W.T., KAPLAN, I.R., SAKAI, H. & ZAK, I., 1980. The age curves of sulfur and oxygen isotopes in marine sulfates and their mutual interpretation. *Chem. geol.*, 28: 199-260.
- CNUUDE, C., DEJONGHE, L. & MAMET, B., 1986. Paléogéographie des formations givetiennes et frasnien du synclinorium de Verviers. *Serv. géol. Belg., Prof. Paper.* 225, 45 p.
- COEN-AUBERT, M., GROESSENS, E. & LEGRAND, R., 1981. Les formations paléozoïques des sondages de Tournai et de Leuze. *Bull. Soc. belge Géol.*, 89: 241-275.
- de BRODTKORB, M.K., RAMOS, V., BARBIER, M. & AMETRANO, S., 1982. The evaporitic celestite-barite deposits of Neuquen, Argentine. *Mineral. Deposita*, 17: 423-436.
- DEJONGHE, L., 1979. Discovery of a Sedimentary Ba (Fe, Zn, Pb) Ore Body of Frasnian age at Chaudfontaine, Province of Liège, Belgium. *Mineral. Deposita*, 14: 15-20.
- DEJONGHE, L., 1985. Contribution à l'étude métallogénique du synclinorium de Verviers (Belgique). *Thèse Doct. Etat, Mém. Sc. Terre Univ. Curie, Paris*, 85-23, 389 p.
- DEJONGHE, L., 1987. Lithogéochimie des sédiments de plate-forme déposés au sud du massif du Brabant (Belgique) pendant le Mésodévonien et le Frasnien. *Mém. expl. Cartes géol. min. Belg.*, 23: 147 p.
- DEJONGHE, L., 1989. Le gisement de Fleurus (Belgique): une concentration de barytine sédimentaire en milieu lacustre piégée dans un paléokarst envahi par des sédiments wealdiens. *Chron. rech. min.*, 494: 25-42.

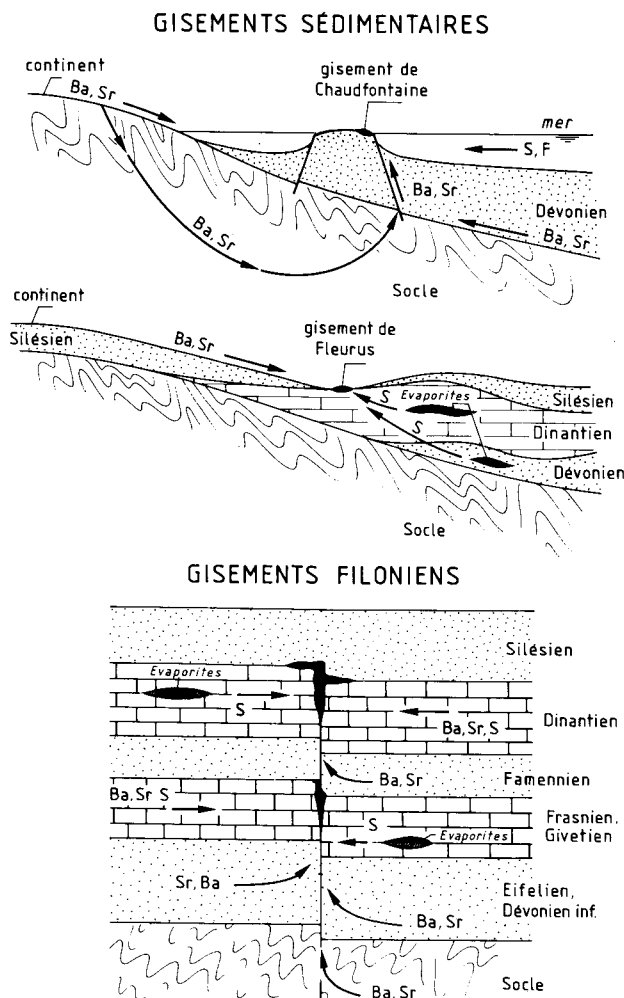


Fig. 3.- Représentation schématique des sources possibles de Ba, Sr et S des gisements sédimentaires et filoniens belges.

- DEJONGHE, L., DELMER, A. & GROESSENS, E., 1976. Découverte d'anhydrite dans les formations anténamuriennes du sondage de Saint-Ghislain. *Bull. Acad. roy. Belg.*, 62: 80-83.
- DEJONGHE, L. & de WALQUE, L., 1981. Pétrologie et géochimie du filon sulfuré de Heure (Belgique), du chapeau de fer associé et de l'encaissant carbonaté. *Bull. Bur. Rech. Géol. Min., Orléans*, 11/3: 165-191.
- DEJONGHE, L., RYE, R.O. & CAUET, S., 1982. Sulfur Isotopes of Barite and Lead Isotopes of Galena from the Stratiform Deposit in Frasnian Carbonate and Shale Host-Rocks of Chaudfontaine (Province of Liège, Belgium). *Ann. Soc. géol. Belg.*, 105: 97-103.
- DEJONGHE, L. & JANS, D., 1983. Les gisements plombo-zincifères de l'Est de Belgique. *Chron. rech. min.*, 470: 3-24.
- DEJONGHE, L., FAIRON-DEMARET, M., GAUTHIER, B. & STREEL, M., 1987. Détermination par analyse palynologique de l'âge créacé inférieur de mise en place du gisement de barite de Fleurus (synclinalium de Namur, Belgique). *C.R. Acad. Sc. Paris*, 304/II-6: 227-232.
- DEJONGHE, L., BOULEGUE, J., DEMAÏFFE, D. & LETOLLE, R., 1989. Isotope geochemistry (S, C, O, Sr, Pb) of the Chaudfontaine mineralization (Belgium). *Mineral. Deposita*, 24: 132-140.
- de MAGNEE, I., 1947. Les gisements de barytine belge. In: Les minerais du sol belge. *Centenaire A.I.Lg. Congrès 1947, Sect. Géol.*, : 113-115.
- de MAGNEE, I., 1967. Contribution à l'étude génétique des gisements belges de plomb, zinc et barytine. *Econ. Geol. Monogr.*, 3: 255-266.
- de MAGNEE, I. & DOYEN, L., 1982. Le gisement de barytine de Fleurus. *Symp. gîtes filoniens Pb-Zn-F-Ba basse température*, Orléans, avril 1982, abstract.
- DEWEZ, L., 1947. Les gisements filoniens de plomb, zinc, cuivre, pyrites. In: Les minerais du sol belge. *Centenaire A.I.Lg. Congrès 1947, Sect. Géol.*, : 75-96.
- EVARD, P., 1943. Les relations entre sulfures de la mine de baryte de Vierves (vallée du Viroin, sud de la province de Namur). *Ann. Soc. géol. Belg.*, 66/6-7: 207-211.
- GRAULICH, J.M., 1977. Le sondage de Soumagne. *Serv. géol. Belg., Prof. Paper*, 139, 55 p.
- HEDGE, C.E., 1974. Strontium isotopes in Economic geology. *Econ. geol.*, 69: 823-825.
- HOFMANN, R., & BAUMANN, A., 1984. Preliminary report on the Sr isotopic composition of hydrothermal vein barites in the Federal Republic of Germany. *Mineral. Deposita*, 19: 166-169.
- KESLER, S. E. & JONES, L. M., 1981. Sulfur-and strontium-isotopic geochemistry of celestite, barite and gypsum from the Mesozoic basins of Northeastern Mexico. *Chem. Geol.*, 31: 211-224.
- KESLER, S.E., JONES, L.M. & RUIZ, J., 1988. Strontium isotopic geochemistry of Mississippi Valley-type deposits, East Tennessee: implications for age and source of mineralizing brines. *Geol. Soc. Amer. Bull.*, 100: 1300-1307.
- KRAMM, U. & BLESS, M.J.M., 1987. Sr isotopic analysis of anhydrites and pseudomorphs of calcite after anhydrite from Viséan rocks of Heugem (South Limburg, Netherlands) and St-Ghislain. *Ann. Soc. géol. Belg.*, 109: 603-607.
- LANNOY, J.P., 1979. Minéralisations à barytine, fluorine, galène dans les calcaires de la région de Han-sur-Lesse (province de Namur). *Trav. fin. étude non publ.*, Univ. Liège, 104 p.
- LEGRAND, R., 1981. les «logs» des sondages de Tournai et de Vieux-Leuze. *Serv. géol. Belg., Prof. Paper*, 180, 5 p.
- LIPPOLT, H.J., 1984. Experimentelle Datierungen von post-varistischen Mineralisationen, Möglichkeiten und Grenzen. Weinheim, Schr. GDMB, 41: 305-359.
- MICHARD, A., ARNOLD, M., GUILLOU, J.J. & SHEPPARD, S.M.F., 1983. Analyse  $\delta^{34}\text{S}$ ,  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  de sulfates et  $\delta^{18}\text{O}$  du quartz pseudomorphique de filons minéralisés à Ba-F. Col. ATP Géochimie/Métallogénie, Bonas, 272-277.
- PIERRE, C., 1981. Données de géochimie isotopique sur les anhydrites ( $^{18}\text{O}$ ,  $^{34}\text{S}$ ) et les carbonates ( $^{18}\text{O}$ ,  $^{13}\text{C}$ ) des évaporites givésiennes de la France et de la Belgique. *Bull. Soc. belge Géol.*, 95: 129-137.
- ROUCHY, J.M., LAUMONDAIS, A. & GROESSENS, E., 1987. The Lower Carboniferous (Viséan) evaporites in Northern France and Belgium: depositional, diagenetic and deformational guides to reconstruct a disrupted evaporitic basin. In: T.M. Peryt (Ed.): *Evaporite Basins, Lecture Notes in Earth Sciences*, Springer-Verlag, 13: 31-67.
- ROUTHIER, P., 1980. Où sont les métaux pour l'avenir? Les provinces métallogéniques. Essai de métallogénie globale. *Mém. Bur. Rech. Géol. Min., Orléans*, 105, 410 p.
- VANDELANNOOTE, R., VAN'T DACK, L. & GIJBELS, R., 1986. Trace element and micro-mineral composition of some anhydrite samples from Saint-Ghislain drillhole (Hainaut, Belgique). *Bull. Soc. belge Géol.*, 95: 101-109.