

DECOUVERTE DE MINERAUX URANIFERES DANS LE SIEGENIEN DU SYNCLINAL DE NEUFCHATEAU; CONSEQUENCES SUR LA SIGNIFICATION DES ANOMALIES RADIOMETRIQUES DU DEVONIEN INFERIEUR DE LA HAUTE ARDENNE ¹

par

Jean-Marie CHARLET ², Luc DORCHIES ³ & Yves QUINIF ²

(1 figure, 3 tableaux et 4 planches)

RESUME.- Une zone radioactive constituée de plusieurs niveaux stratiformes ou lenticulaires s'étend sur plus de trois kilomètres dans le Siegénien inférieur du Synclinal de Neufchâteau. Une recherche systématique par autoradiographie a permis d'identifier un niveau particulièrement riche en radioéléments. La localisation des traces alpha indique plusieurs habitus mais l'association à des oxydes et hydroxydes de fer en bordure de grains de pyrite est fréquente. Une étude à la microsonde électronique a permis d'identifier plusieurs minéraux radioactifs dont des phosphoarséniates d'uranium et de cuivre.

L'uranium des indices de Chiny - La Vierre apparaît lié aux strates. Une préconcentration syngénétique dans des niveaux de schistes noirs ou bleu foncé a été suivie d'une phase de remobilisation et de précipitation suivant des fronts d'oxydo-réduction. La présence de niveaux pyriteux dans la série schisto-gréseuse du Siegénien inférieur a joué un rôle important dans les processus de reconcentration.

ABSTRACT.- A radioactive zone with several stratiform or lenticular beds extends over a distance more than three km in the lower Siegenian of the Neufchâteau Syncline (Belgium). A systematic investigation by autoradiography has permitted locating a bed with a particular abundance of radioelements. The localization of alpha tracks indicates several types of assemblages but there is a frequent association with ferrous oxydes or hydroxydes around pyrite grains. Microprobe analysis has allowed the recognition of several radioactive minerals such as uranium and copper phosphoarseniates. The uranium of the Chiny - La Vierre occurrence appears linked to the enclosing strata. A syngenetic pre-concentration in black shales has been followed by a mobilisation phase and the subsequent deposition of uranium along oxydo-reduction fronts. Pyritous beds in the silt-shale formations of the lower Siegenian have played an important role in the reconcentration process.

1.- INTRODUCTION

La prospection radiométrique autoportée réalisée dans le cadre d'une exploration générale des potentialités en uranium de l'Ardenne belge (1) a permis de découvrir dans le Dévonien inférieur une série d'anomalies essentiellement différentes des anomalies connues dans les faciès "schistes noirs" du Paléozoïque (Viséen supérieur - Namurien ou Revinien supérieur). Elles sont en effet localisées dans des faciès détritiques à composante gréseuse importante. Le contrôle tectonique apparaît dans certains cas évident (Dejonghe, L., Charlet, J.M. & Dupuis, Ch., 1982). De plus, certaines anomalies, localement très fortes conduisent à l'individualisation de minéraux radioactifs dans des indices à paragenèses très variées (Dejonghe, L., Charlet, J.M. & Dupuis, Ch., 1982 ; Dejonghe, L. & Jedwab, 1983 ; Jedwab, 1983). Pour toutes ces raisons, l'étude des anomalies radioactives du Dévonien inférieur de la Haute Ardenne constitue un pôle d'intérêt certain sur

lequel nous portons notre attention depuis la fin de notre levé radiométrique autoporté.

2.- LE CONTEXTE GEOLOGIQUE

Le levé radiométrique ainsi d'ailleurs que la prospection en "Stream Sediments" montre que le Bassin de Neufchâteau constitue une région où la densité des

1 *Communication présentée et manuscrit déposé le 24 janvier 1984.*

2 *Faculté Polytechnique de Mons, 9, rue de Houdain, 7000 Mons (Belgique).*

3 *U.E.R. des Sciences de la Terre, Université des Sciences et Techniques de Lille.*

(1) *Contrat financé par la Commission des Communautés Européennes et le Service Géologique de Belgique - Ministère des Affaires Economiques, coordinateur L. Dejonghe.*

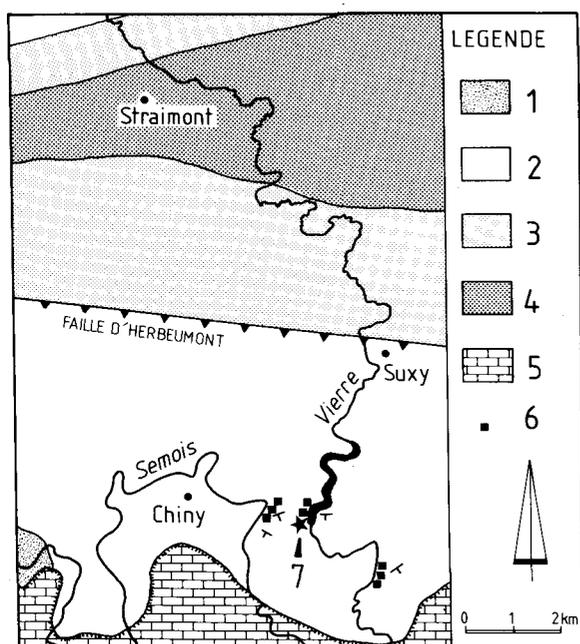


Figure 1.- Situation des zones anormales.

1. Gédinnien ; 2. Siegénien inférieur ; 3. Siegénien moyen ;
4. Siegénien supérieur ; 5. Jurassique ; 6. Zones anormales ;
7. Première découverte de minéraux uranifères.
Tracé des contours géologiques d'après Asselberghs (1946).

zones anormales est particulièrement grande (Charlet, J.M. *et al.*, 1982). En outre, une étude géologique de ces zones et un levé scintillométrique pédestre complémentaire nous ont montré que les anomalies adoptent une disposition stratiforme inconnue à l'heure actuelle dans des zones plus septentrionales où les indices sont nettement liés à la fracturation.

Les anomalies radioactives les plus fortes du Bassin de Neufchâteau ont été rencontrées dans le Siegénien inférieur au sud de la faille d'Herbeumont (fig. 1). Une première zone anormale avait été découverte par la prospection autoportée le long du lac de Vierre. Un levé scintillométrique pédestre réalisé en 1982-83 nous a permis de suivre cette zone sur plus de 3 kilomètres depuis la région de Chiny à l'ouest (direction E-W) jusque celle du Château Croisette à l'est (direction N 60-70°). Elle disparaît ensuite sous le recouvrement Jurassique de la bordure méridionale du massif ardennais. L'établissement de colonnes lithostratigraphiques et de plans compteurs sur les différents affleurements de cette série plissée et faillée montre que les anomalies sont nombreuses (parfois plus d'une dizaine de niveaux radioactifs épais de quelques décimètres à un mètre répartis sur une même coupe verticale). Elles sont concordantes avec la stratification, d'extension latérale plus ou moins grande (parfois suivies sur 100 à 200 mètres) ou d'allure lenticulaire. Elles apparaissent dans des schistes noirs et des schistes gréseux bleu foncé, plus rarement dans des grès clairs à stratifications entrecroisées et laminations schisteuses. Les anomalies sont principalement urani-

fères avec des concentrations qui peuvent atteindre 250 ppm (2), l'équilibre radioactif dans la famille de l'uranium étant généralement atteint. Le contexte géologique et géochimique est en cours d'étude. Cette note a principalement pour but de présenter les premières associations de minéraux uranifères que nous avons découverts à l'occasion de ce travail et de discuter des modèles génétiques que l'on pourrait élaborer à propos de leur apparition dans le Dévonien inférieur de la Haute Ardenne;

3.- ETUDES MICROSCOPIQUES ET AUTORADIOGRAPHIQUES

L'étude en lames minces et surfaces polies et la recherche systématique des concentrations radioactives par utilisation de films sensibles aux particules alphas (3) ont permis de localiser une série de halos ou de taches très nettes dans un schiste noir à laminations gréseuses, fortement radioactif (150 ppm en eU). Ce niveau affleure face au barrage de la Vierre ; il est surmonté d'une série gréseuse où plusieurs bancs radioactifs correspondent au passage entre des faciès oxydés rougeâtres et des faciès particulièrement riches en pyrite. Les autoradiographies réalisées sur lames minces non couvertes et surfaces polies dans le schiste noir anormalique montrent des halos très nets assez systématiquement associés à des oxydes et hydroxydes de fer. L'hématite et la goethite apparaissent soit en bordure zonée autour des grains de pyrite (Pl. I : 1-2), soit en petites plages isolées dans des laminations gréseuses au sein de la roche (Pl. I : 7-8).

4.- ETUDES A LA MICROSONDE

Les observations et mesures ont été réalisées au Centre d'Analyse par Microsonde de l'Université de Louvain-la-Neuve (Prof. Laduron, analyste : J. Wautier).

Les plages radioactives préalablement repérées par autoradiographie (Pl. I : 2-6-8) ont fait l'objet d'une étude comprenant :

- la recherche systématique des éléments présents dans les zones radioactives ;
- le balayage sur les principales raies d'éléments sélectionnés par la première phase d'investigation (U, P, As, S, Cu, Fe, Ti) ;
- l'analyse quantitative sur les plages qui sont apparues comme étant les plus homogènes.

Un premier exemple concerne des minéraux radioactifs associés à une auréole hématifère bordant un cristal de pyrite (photo 1, pl. 2). Ils se présentent en cris-

(2) Détermination effectuée en spectrométrie gamma.

(3) films kodak LR 115 et CN 85.

taux lamellaires (photo 2, Pl. 2) de quelques dizaines de microns noyés dans l'hématite (photos 2 et 7, Pl. 2). Les images de l'uranium, du phosphore, de l'arsenic et du cuivre qui se correspondent parfaitement montrent que le minéral lamellaire est un phosphoarséniate d'uranium et de cuivre.

L'image du titane montre par contre que l'uranium ne peut être considéré comme associé à des minéraux titanifères, association qui ne pourrait, à priori, être exclue et qui a précédemment été mise en évidence à Daverdisse (Dejonghe, L., Charlet, J.M. & Dupuis, Ch., 1982).

Un deuxième exemple concerne des minéraux radioactifs associés à des bandes à hématite-quartz. Ceux-ci apparaissent sous un habitus quelque peu différent du cas présenté ci-dessus. La structure lamellaire des minéraux uranifères est moins nette (Pl. 3 : 2-3) ; par contre, l'uranium semble plus volontiers constituer des franges de quelques microns ou dizaine de microns localisées en bordure de certains grains de quartz (Pl. 3 : 3). Ces différentes images montrent que l'uranium s'y présente sous forme d'un phosphoarséniate d'uranium et accessoirement de fer qui passe localement à un phosphoarséniate de fer faiblement ou non uranifère (photos 3-4-5-6, Pl. 3). Le cuivre n'a pas été identifié dans cette zone.

Un troisième exemple (Pl. 4) concerne les plages radioactives non lamellaires d'une dizaine de microns localisées dans des laminations quartzeuses. Les différentes images réalisées par balayage montrent que ces plages contiennent U-P-As-Fe-Ti. L'uranium y apparaît préférentiellement concentré en bordure et associé à l'arsenic et au fer sous forme d'un arséniophosphate d'uranium et de fer. Le titane est par contre préférentiellement distribué au coeur des plages. L'analyse spectrale a permis en outre d'identifier la présence d'un nombre plus important d'éléments (Ca-P-Cl-Zr-Si) suggérant la présence de minéraux accessoires (apatite, zircon) en inclusions dans les plages examinées.

Une analyse quantitative a d'abord été effectuée sur des phases lamellaires appartenant à l'habitus décrit planche 2. Afin de prendre en compte les hétérogénéités locales, les analyses ont été répétées sur une dizaine de pointés. Les résultats au tableau 1 montrent que l'on a bien un arséniophosphate d'uranium et de cuivre à 60 % environ d' UO_3 et dont l'analyse se rapproche de la composition théorique (tabl. 2) de la série torbernite-zeunérite (Heinrich, E. Wm., 1958).

La comparaison des formules théoriques de la série torbernite-zeunérite avec les analyses effectuées (tabl. 2) fait apparaître un excès en uranium par rapport à la somme $P_2O_5 + As_2O_5$. Il indique éventuellement la présence d'une phase à l'état réduit correspondant à des oxydes d'uranium tétravalent. Le déficit en cuivre par rapport à la somme $P_2O_5 + As_2O_5$ traduirait une déficience de ce métal dans le milieu, le phosphore en excès s'exprimant sous forme d'hydrogène-autunite.

Tableau 1.- Analyses à la microsonde.

	Cu O	As ₂ O ₅	P ₂ O ₅	UO ₃	Total
1	4,06	6,60	4,87	57,38	72,91
2	1,45	7,92	5,04	65,67	80,09
3	3,26	7,29	4,57	57,71	72,83
4	3,48	6,36	5,09	60,12	75,05
5	3,85	6,72	4,57	55,50	70,64
6	3,31	6,49	4,65	52,07	66,53
7	3,43	8,11	4,93	60,18	76,65
8	2,27	7,43	4,60	64,98	79,29
9	2,93	7,51	4,74	57,76	72,94
\bar{x}	3,11	7,16	4,78	59,04	74,1
σ	0,8	0,64	0,20	4,31	4,24

Tableau 2.- Comparaison avec les compositions théoriques de la série torbernite - zeunérite.

1 : minéral étudié - 2 : torbernite - 3 : zeunérite - 4 : terme de la série torbernite - zeunérite dont le rapport As_2O_5/P_2O_5 est le même que celui du minéral étudié.

	CuO	As ₂ O ₅	P ₂ O ₅	UO ₃	Total	UO ₃ P ₂ O ₅ + As ₂ O ₅	Cu O P ₂ O ₅ + As ₂ O ₅
1	3,11	7,16	4,78	59,04	74,1	4,94	0,26
2	8,48	-	15,14	61,01	84,63	4,03	0,56
3	7,76	22,41	-	55,78	85,95	2,49	0,34
4	8	11,30	7,5	57,91	85,43	3,04	0,43

Remarque : Les calculs ont été effectués en adoptant les compositions chimiques théoriques suivantes : torbernite - $Cu(UO_2)_2(PO_4)_2 \cdot 8 H_2O$. zeunérite - $Cu(UO_2)_2(AsO_4)_2 \cdot 8 H_2O$.

Différentes analyses (tabl. 3) ont également été effectuées sur d'autres plages appartenant aux habitus décrits planches 3 et 4, certaines plages (11 et 12) étant trop hétérogènes pour que l'on puisse utiliser les résultats à des fins de diagnose. Par contre, l'analyse 10 correspond à un phosphoarséniate d'uranium (accessoirement de cuivre) mais qui une fois encore fait apparaître un excès en uranium par rapport aux formules théoriques (plus de 70 % en UO_3 pour un minéral secondaire classique est anormal, Heinrich E. W.m., 1958).

Tableau 3.- Analyse à la microsonde

	CuO	As ₂ O ₅	P ₂ O ₅	UO ₃	Total
10	1,44	3,06	12,07	70,74	87,31
11	1,21	8,53	2,09	67,98	69,81
12	0,04	3,12	9,86	37,59	45,62

5.- INTERPRETATION

La continuité de certains niveaux de schistes noirs ou bleus foncés radioactifs concordant avec la stratification suggère l'existence d'un dépôt synsédimentaire d'uranium dans le Siegénien inférieur du Synclinal de Neufchâteau. L'étude du contexte paléogéographique, sédimentologique et géochimique de cette préconcentration d'uranium ne constituait pas l'objet de cette note. La présence d'uranium minéralogiquement exprimé sous forme d'espèces nouvelles pour le Paléozoïque de l'Ardenne nous a en effet conduit à nous pencher en priorité sur les mécanismes de reconcentration de l'uranium dans les bancs schistogréseux ou gréseux de la série radioactive. Les niveaux pyriteux ont joué un rôle certain dans la fixation d'uranium mobilisé. Outre la présence de pyrite automorphe, l'arsenic constitue le témoin d'un environnement chalcophile favorable à la précipitation d'uranium. Nous proposons pour expliquer cette reconcentration d'uranium les étapes suivantes :

- mobilisation de l'uranium sous forme d'un complexe U^{6+} à partir d'horizons porteurs. Ceux-ci forment un ensemble de bancs radioactifs reconnus d'est en ouest sur plus de 3 kilomètres.
- fixation de l'uranium sur le milieu réducteur que constituent les grains de pyrite. L'uranium y a probablement précipité sous forme de composés à U^{4+} dont les seuls témoins sont constitués par un excès stoechiométrique dans les phases minérales examinées.
- déplacement du front d'oxydo-réduction qui transforme les pyrite en hématite puis en goethite et les oxydes d'uranium en arséniophosphates secondaires.

La nature des phases fixant l'uranium est susceptible d'affecter ce schéma de remobilisation. La planche 3

montre une reconcentration d'uranium en bordure d'un grain de quartz, tandis que la planche 4 illustre un cas plus complexe qui peut être interprété à la lumière des études effectuées sur les gisements de type roll (Adams, S.S. *et al.*, 1974; Reynolds *et al.*, 1978) et sur les mécanismes de remobilisation dans les conglomérats aurifères et uranifères du Protérozoïque inférieur (Clemmey, H., 1981). Les mécanismes d'altération et de sulfuration des phases ferrotitanifères détritiques ont été décrits par ces différents auteurs. La sulfuration secondaire entraîne une destruction des phases Fe-Ti (principalement la série titanomagnétique) qui passe à un assemblage pyrite + anastase, l'oxyde de titane se fixant sur le squelette du minéral préexistant. Cela expliquerait le mode d'habitus de l'uranium qui a été observé à la planche 4 et qui résulte dans notre schéma de l'enchaînement des phases suivantes : assemblage de minéraux lourds détritiques (Fe-Ti, apatite, zircon . . .) - sulfuration ($FeS_2 + TiO_2$) - précipitation d'uranium sous forme d' UO_2 sur FeS_2 - oxydation secondaire entraînant le développement de phosphates et d'arséniophosphates sur un nucleus encore enrichi en titane.

6.- CONCLUSIONS

Les anomalies de la région de Chiny-la-Vierre apparaissent liées à une préconcentration synsédimentaire de l'uranium suivie d'une remobilisation dans des zones schistogréseuses ou gréseuses plus perméables et d'une précipitation suivant de multiples fronts d'oxydo-réduction. La présence d'un environnement chalcophile a joué un rôle important dans les processus de reconcentration.

Ce modèle est à rapprocher de celui décrit par J.C. Samama (1982) à propos du gisement de Cerilly-Bourbon l'Archambault en bordure nord du Massif Central. La reconcentration de l'uranium dans le Siegénien inférieur du Bassin de Neufchâteau serait contemporaine d'une phase continentale post-hercynienne qu'il est difficile de préciser. On peut toutefois faire remarquer que l'uranium y est en équilibre radioactif avec ses descendants.

A l'échelle du Dévonien inférieur de la Haute Ardenne, d'autres anomalies radiométriques ont été découvertes par la prospection réalisée dans le cadre du contrat CCE-Service Géologique. L'indice de Daverdisse a fait l'objet de plusieurs études minéralogiques (Dejonghe, L., Charlet, J.M. & Dupuis, Ch., 1982 ; Dejonghe, L. & Jedwab, J., 1983 ; Jedwab, J., 1983). De nombreux minéraux uranifères primaires et secondaires ont été décrits et les séléniures y sont en outre fréquents : on sait que le sélénium accompagne classiquement l'uranium dans les roll-fronts (Harshman, E.N., 1974).

Les concentrations parfois localement très fortes d'uranium dans le Dévonien inférieur de la Haute Ardenne ne devraient-elles pas s'interpréter suivant un

modèle général de fronts d'oxydo-réduction dans un domaine paléogéographique où le "climat" géochimique a été favorable à une préconcentration d'uranium. Les milieux ayant favorisés la précipitation d'uranium mobilisé peuvent évidemment être variés : filons ou filonnets de sulfures, pyrite diagénétique, débris organiques et végétaux flottés . . . On retrouverait ainsi un modèle bien connu dans la classification des gisements d'uranium (Dahlkamp, F.J., 1980) et qui est à l'origine de la mise en place de nombreux gisements dans des formations sédimentaires détritiques.

BIBLIOGRAPHIE

- ADAMS, S.S., CURTIS, H.S. & HAFEN, P.L., 1974. Alteration of detrital magnetite-illmenite in continental sandstones of the Morrison formation, New Mexico. Formation of Uranium ore deposits. I.A.E.A., Vienna : 219-253.
- ASSELBERGHS, E., 1946. L'Eodévonien de l'Ardenne et des régions voisines. Mém. Inst. Géol. Univers. Louvain, XIV, 598 p.
- CLEMMY, H., 1981. Some aspects of the genesis of heavy mineral assemblages in Lower Proterozoic uranium-gold conglomerates. Mineralogical Magazine, 44 : 339-408.
- CHARLET, J.M., DEJONGHE, L., DE WITTE, S.M., DRUMMEL, B., HENRY, J., HERBOSCH, A., LEFIN, J.P. & MARTIN, H., 1983. Reconnaissance Survey for Uranium in the Belgian Paleozoic. Profess. Paper, 1983/1, n° 196, 188 p.
- DAHLKAMP, F.J., 1980. Typology and geographic/geotectonic distribution of uranium deposits. Revue de l'Institut français du pétrole, 35 (3) : 499-536.
- DEJONGHE, L., CHARLET, J.M. & DUPUIS, Ch., 1982. L'anomalie radioactive de Daverdisse et les minéraux uranifères associés. Ann. Soc. géol. Belg., 105 : 177-193.
- HARSTMAN, E.N., 1974. Distribution of elements in some roll-type uranium deposits. Formation of Uranium Ore Deposits. I.A.E.A., Vienna : 169-183.
- HEINRICH, E.-Wm., 1958. Mineralogy and geology of radioactive raw materials. Ed. McGraw Hill Book Company, Inc., 674 p.
- JEDWAB, J. & DEJONGHE, L., 1982. Contribution à l'étude minéralogique de l'indice radioactif de Daverdisse. Bull. Soc. belg. géol., 91 (4) : 217-233.
- JEDWAB, J., 1983. Les minéraux de métaux précieux de Daverdisse. A paraître (communication présentée le 08.11.83 à la séance spécialisée organisée par l'UMIBEL).
- REYNOLDS, R.L. & GODHABER, M.B., 1978. Origin of the South Texas roll-type Uranium deposit : (1) alteration of Iron and Titanium Oxide minerals. Econ. Geol. 173 : 1677-1689.
- SAMAMA, J.C., 1982. La pyritisation des fronts d'oxydo-réduction des gîtes d'uranium : signification géochimique et caractérisation texturale. Mineralium deposita, 17 (2) : 295-306.

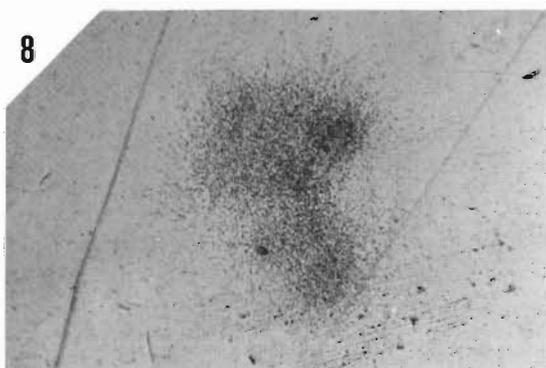
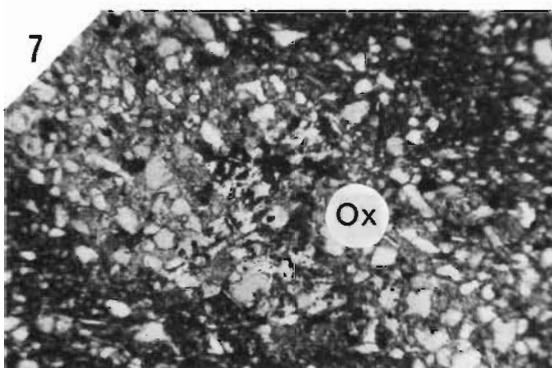
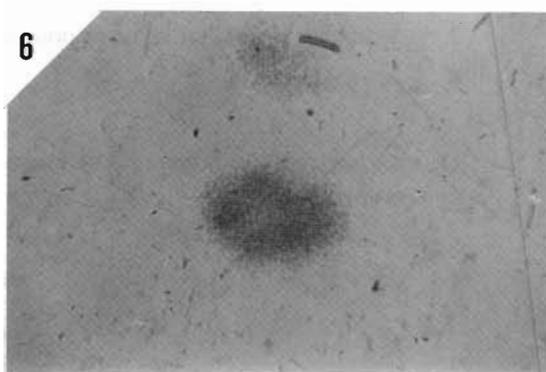
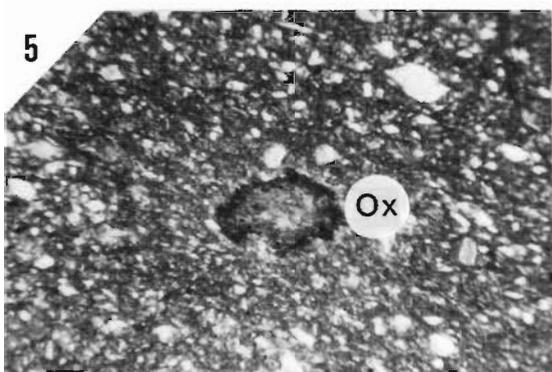
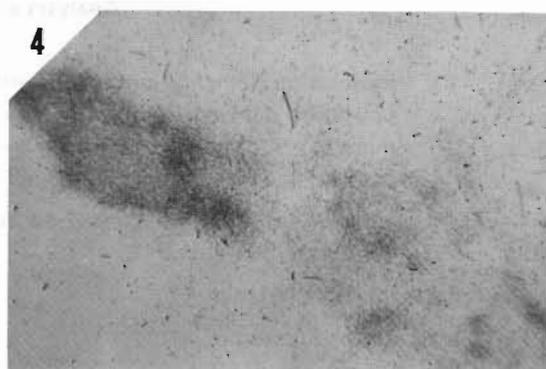
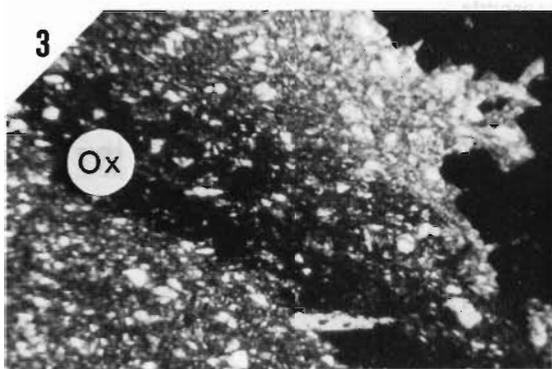
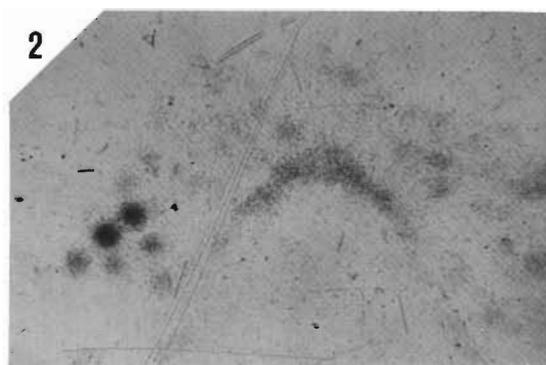
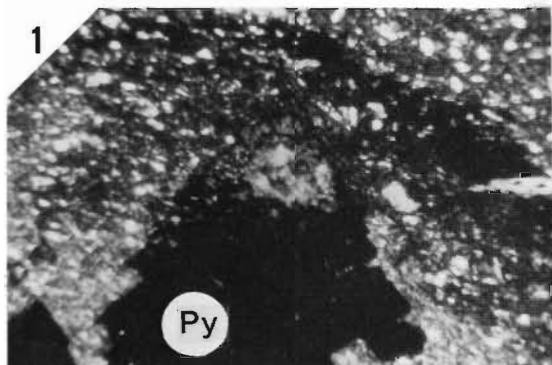
PLANCHE 1

Essais de localisation des phases radioactives :

étude par autoradiographie.

- 1, 3, 5, 7 : lames minces en microscopie optique.
- 2, 4, 6, 8 : localisation des phases radioactives par films sensibles au rayonnement alpha.
- 1, 2 : localisation des radioéléments aux pourtours des pyrites.
- 3, 4 : localisation des radioéléments dans des niveaux d'oxydes de fer plus ou moins en relation avec les pyrites.
- 5, 6 : localisation des radioéléments sur des oxydes de fer, isolés dans la roche.
- 7, 8 : localisation des radioéléments sur des oxydes de fer, contenus dans des lits gréseux de la taille du mm.

PLANCHE 1



0.5mm

PLANCHE 2

Analyses à la microsonde :

- 1 : localisation éléments lourds - éléments légers en électrons rétrodiffusés, sur les pourtours d'un cristal de pyrite (en gris foncé : pyrite - hématite, en gris clair : minéraux radioactifs). Photo à mettre en relation avec les photos 1 et 2 de la planche 1.
- 2 : localisation et agrandissement en électrons radiodiffusés des minéraux lamellaires d'uranium.
- 3 : image de l'uranium.
- 4 : image du phosphore.
- 5 : image de l'arsenic.
- 6 : image du cuivre.
- 7 : image du fer, qui est la même pour le soufre.
- 8 : image du titane.

Le trait horizontal représente 100 microns. Les photos 7 et 8 sont à la même échelle que les photos 3, 4, 5, 6.

PLANCHE 2

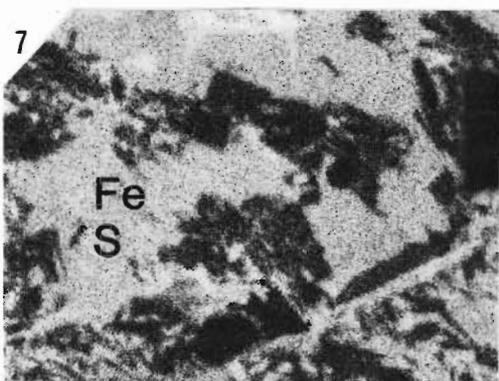
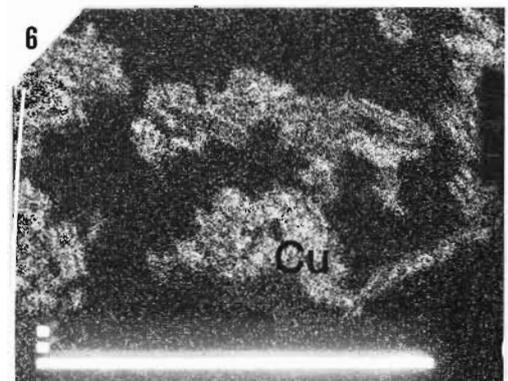
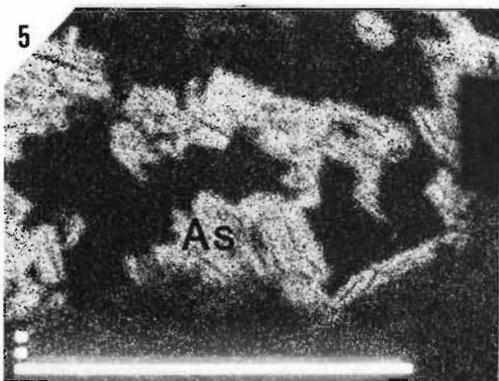
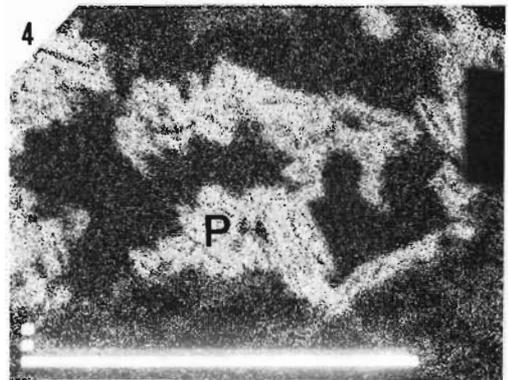
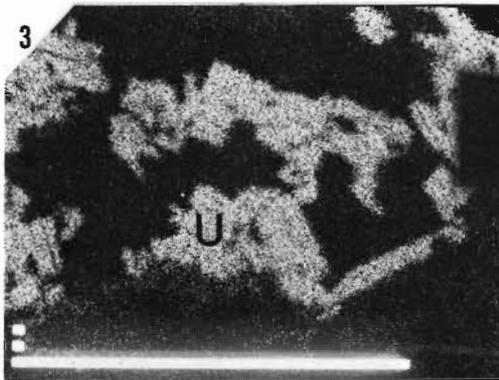
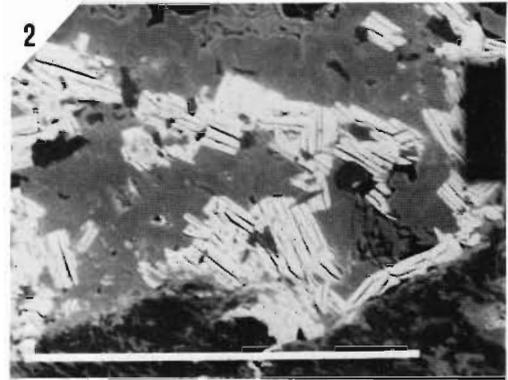
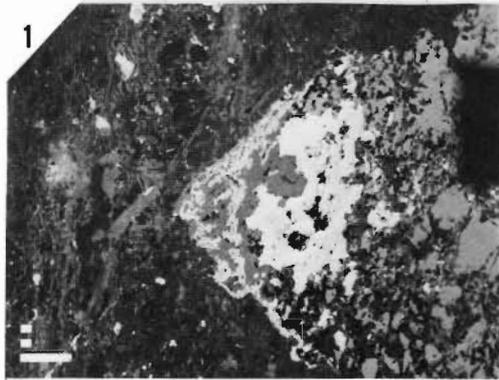


PLANCHE 3

Analyses à microsonde :

- 1 : localisation éléments lourds - éléments légers en électrons rétrodiffusés dans les niveaux d'oxydes de fer. Photo à mettre en relation avec les photos 3 et 4 de la planche 1.
- 2 : agrandissement en électrons rétrodiffusés d'une plage à minéraux d'uranium.
- 3 : image de l'uranium.
- 4 : image du phosphore.
- 5 : image de l'arsenic.
- 6 : image du fer.

Le trait horizontal représente 100 microns. La photo 6 est à la même échelle que les photos 3, 4 et 5.

PLANCHE 3

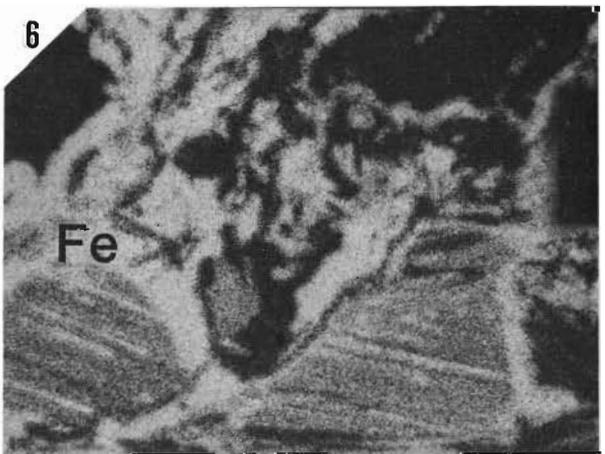
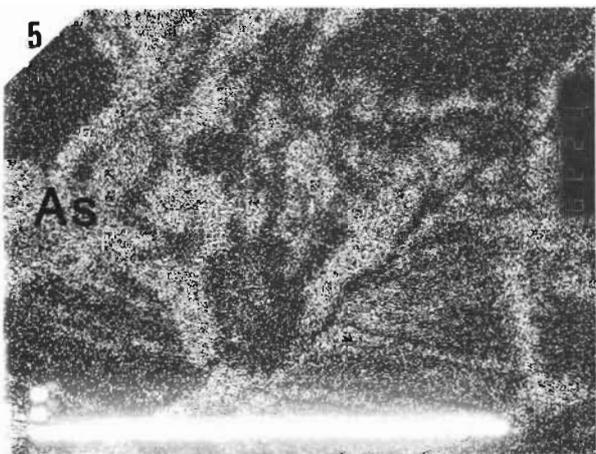
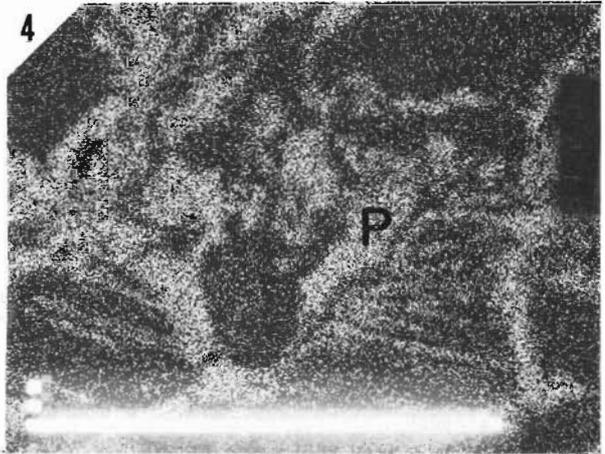
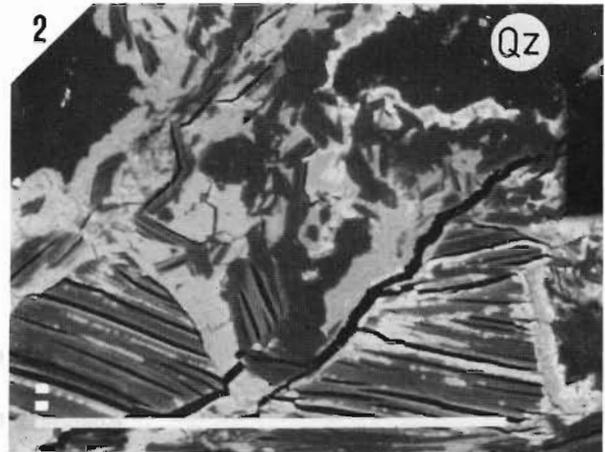
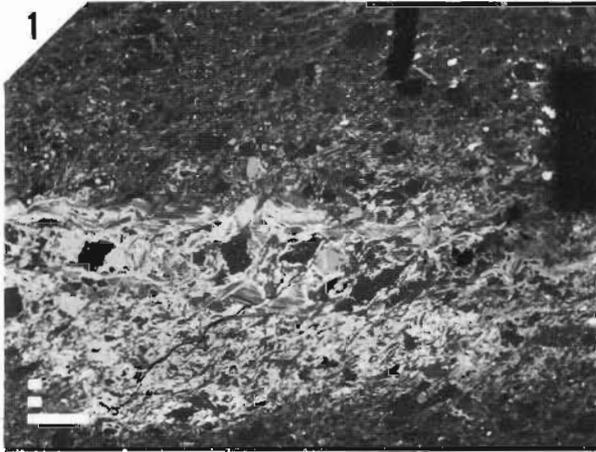


PLANCHE 4

Analyses à la microsonde :

- 1 : localisation éléments lourds - éléments légers en électrons rétrodiffusés dans les laminations millimétriques gréseuses (Oz : grains de quartz). Photo à mettre en relation avec les photos 7 et 8 de la planche 3.
- 2 : image de l'uranium.
- 3 : image du phosphore.
- 4 : image de l'arsenic.
- 5 : image du fer.
- 6 : image du titane.

Le trait horizontal représente 10 microns.

PLANCHE 4

