

Les minéralisations épithermales à Au–Cu–Zn–Sb du district de Baia Mare (Nord Roumanie) : nouvelles données minéralogiques et microthermométriques

The Au–Cu–Zn–Sb epithermal mineralisations of the Baia Mare district (North Romania): new mineralogical and microthermometric results

Laurent Bailly^a, Jean-Pierre Milesi^a, Jacques Leroy^b, Eric Marcoux^a

^a BRGM, DR/MGG, BP 6009, 45060 Orléans cedex, France

^b Université Henri-Poincaré–Nancy 1, UMR G2R 7566, BP 239, 54506 Vandœuvre-lès-Nancy cedex, France

Abstract—The Au–Cu–Zn–Sb epithermal mineralisations of the Baia Mare district (north Romania) and their Mio-Pliocene calc-alkaline volcanic host rocks are linked to the presence, at depth, of the Baia Mare batholith, recognised by geophysical and field studies. The salinity and temperature evolution of fluid inclusions from Baia Sprie and Sasar deposits are interpreted as being linked to the thermal evolution of the underlying laccolith. The global evolution, however, shows many irregularities related to brittle tectonic activity and phreatomagmatism during mineral deposition. (© Académie des sciences / Elsevier, Paris.)

Romania / epithermal mineralisation / fluid inclusions

Résumé — Les minéralisations épithermales à Au–Cu–Zn–Sb du district de Baia Mare (Nord Roumanie) et les volcanites calco-alkalines mio-pliocènes encaissantes sont sous la dépendance d'un laccolite sous-jacent reconnu par géophysique, par sondages et par la présence de cornéennes. Une étude des inclusions fluides des gisements de Baia Sprie et Sasar montre une évolution de la salinité et des températures des fluides, interprétée comme liée à l'histoire thermique du laccolite sous-jacent. Cette évolution globale est cependant perturbée par une activité tectonique cassante, présente tout au long du dépôt des minéralisations et liée à des épisodes phreatomagmatiques. (© Académie des sciences / Elsevier, Paris.)

Roumanie / minéralisations épithermales / inclusions fluides

Abridged version

Geological setting

The Baia Mare district, in the Eastern Carpathians of north Romania, is characterised by numerous Au–Cu–Zn–Sb epithermal deposits of the low-sulfidation (adularia-sericite) type hosted by Mio-Pliocene calc-alkaline volcanic rocks (*figure 1*). These rocks form part of a Neogene volcanic belt (11.5 to 7.9

My, K/Ar ages) which extends for more than 350 km from the Ukraine (Berogovo district) to Romania. The magmatic and hydrothermal activity was related to the westward subduction of the Eurasian plate beneath the Pannonian block (Radulescu et al., 1973; Royden et al., 1983; Salters et al., 1988; Tari et al., 1992).

Note présentée par Zdenek Johan.

Note remise le 16 juin 1998, acceptée après révision le 7 septembre 1998.

E-mail : l.bailly@brgm.fr

Mineralisation

Study of the ores from mines in the Baia Mare district has made it possible to divide the generalised paragenetic sequence into five stages (*figure 2*): hematite–magnetite–±wolframite–±scheelite (stage 1), chalcopyrite–bismuth sulfides and sulfosalts (stage 2), sphalerite–galena–chalcopyrite–tetrahedrite–tennantite–Au in quartz–rhodonite–calcite–kutnahorite and rhodochrosite gangue minerals (stage 3), stibnite (stage 4), and electrum–proustite/pyrargyrite–pearceite/polybasite–native arsenic (stage 5) (Lang, 1979; Marias, 1994; Cook, 1997).

Mineralisation control

Most of the volcanic rocks and mineralised bodies in the Baia Mare district are linked to the Baia Mare laccolith, which is recognised from geophysical surveys, drilling and the presence of thick (>50 m) hornfels at a relatively shallow level in the mines (e.g. Cavnic, Baia Sprie, etc.) (*figure 1*). 3D modelling shows this east–west laccolith to be more than 65 km long, 16 km wide and up to 3.5 km thick (Crahmaliuc, unpublished report). Its top lies between 800 and 1 800 m below the topographic surface and its emplacement at depth is controlled by the Carlibaba–Carei shear fault, which bounds the Baia Mare district to the south over a strike length of more than 240 km. The mineralised systems are also controlled by this shear fault; some of the mines (Baia Sprie, Suior) are centred on the main fault, and others are tangential to it, linked to complex collapse zones (Sasar, Dealul Crucii) or to NW–SE and/or NE–SW satellite structures (Ilba, Nistru, Cavnic, Herja) (*figure 1*).

Fluid inclusion results

A preliminary microthermometric study was carried out on stage 1 to 4 quartz and sphalerite samples from Baia Sprie and on stage 5 quartz crystals from Sasar. At 25 °C, all the fluid inclusions are two-phase (L+V) and no volatile compounds were detected with Raman spectroscopy. For a given inclusion stage, the volumetric ratio V/L can be either constant for all inclusions (homogeneous fluid during trapping) or highly variable (boiling fluid). It has been possible to classify the fluid

inclusions in chronological order regardless of their origin, i.e. primary during growth of the host mineral or secondary resulting from a fracturing–healing process, and thus reconstruct the evolution of the salinity and homogenisation temperatures (T_h) through time (*figure 3*).

The salinities in the quartz and sphalerite crystals are highly variable (between 6 and 21 wt. % NaCl equivalent) at the beginning of stage 1 and lower at the end of this stage (between 0 and 9 wt. % NaCl equivalent). At the same time, T_h in the quartz at the beginning of stage 1 range from 150 to 230 °C, are around 220–230 °C in the following sphalerite and between 180 and 240 °C in the quartz from the end of stage 1. The fluid salinity range for stage 2 is around 10 wt. % NaCl equivalent and T_h range from 260 to 300 °C. Stage 3 is characterised by a strong salinity decrease (between 3.4 and 7.4 wt. % NaCl equivalent) in both quartz and sphalerite. For stage 4, for which only one fluid inclusion can be studied in quartz, the salinity is low (0.2 wt. % NaCl equivalent) and the measured T_h is 277 °C. The different quartz generations from stage 5 indicate salinities ranging between 0 and 4.2 wt. % NaCl equiv. and T_h of 170–210 °C.

Interpretation

These microthermometric results are consistent with recognised epithermal deposit characteristics (Kamilli and Ohmoto, 1977; Hayba et al., 1985; Hedenquist et al., 1992; Hedenquist and Lowenstern, 1994). The originality of this work is that the fluid evolution is interpreted as resulting from the thermal history of the Baia Mare laccolith. Its emplacement at depth induced hydrothermal circulations which, at the beginning, were strongly dominated by magmatic fluids (high salinities, wolframite and scheelite precipitation). The decreasing fluid salinity and temperature observed after a thermal peak (fluid temperature around 300 °C) at the end of stage 2 reflects the cooling of the laccolith, accompanied by a decrease in the intensity of hydrothermal circulation.

This global evolution, however, shows many irregularities related to the emplacement of several breccia pipes and phreatomagmatic activity. Sharp changes in the fluid–pressure regime are clearly recorded by the alternating deposition of sphalerite related to monophasic fluids ($P_f = P_{rock}$) and of quartz associated with fracturing and fluid boiling ($P_f = P_w$).

1. Introduction

Le district de Baia Mare, dans le Nord-Ouest de la Roumanie, appartient aux Carpathes orientales, massif volcanique s'étendant de l'Ukraine à la Roumanie. Cette région minière, toujours active, est particulièrement célèbre pour ces minéralisations aurifères épithermales à adulaire–séricite, liées à l'activité volcanique néogène (Borcós et Lang, 1973 ; Borcós et al. 1974, 1975, 1976 ; Lang, 1979 ; Lang et al., 1992 ; Milési et al, 1994). Outre l'apport de données minéralogiques nouvelles, ce travail a

pour objectif de contraindre la mise en place de ces minéralisations par des études d'inclusions fluides contraintes par des données structurales, volcaniques et géophysiques.

2. Contexte géologique régional

La région de Baia Mare, en bordure de la marge orientale du bassin sédimentaire de la plaine pannonique, est le siège au Néogène de manifestations volcaniques et hydro-

thermales, conséquences de la subduction, toujours active, vers le sud et l'ouest, de la plaque eurasiatique sous le bloc pannonique (Radulescu et Sandulescu ; 1973 ; Royden et al., 1983 ; Salters et al., 1988 ; Tari et al., 1992) (figure 1). L'arc volcanique néogène (âges K/Ar compris entre 11.5 et 7.9 Ma) ainsi créé est orienté NW-SE et s'étend depuis l'Ukraine (district de Beregovo) jusqu'en Roumanie septentrionale, sur environ 350 km (Borcos et Lang, 1973 ; Borcos et al., 1974, 1975, 1976 ; Lang et al., 1992 ; Vityk et al., 1994). Un laccolite, responsable de plusieurs anomalies magnétiques bien contrastées, et reconnu par sondages, géophysiques et en mines, par de puissantes cornéennes (Botezatu et al., 1970), jalonne sur plus de 150 km la faille majeure de Calibaba-Carei, d'orientation est-ouest, en bordure septentrionale du district.

3. Les minéralisations

Dans le district de Baia Mare, plus de dix gisements polymétalliques et/ou aurifères de type épithermal à adulaire-séricite sont disposés le long de l'accident Calibaba-Carei, avec, parmi les plus importants, de l'ouest vers l'est : Ilba, Nistru, Sasar, Herja, Baia Sprie, Suior et Cavnic (figure 1) (Borcos et al., 1974a, b ; Lang, 1979 ; Cook, 1997). Quelques porphyres pauvres en Cu et Mo ont également été décelés par sondages profonds. Les minéralisations épithermales économiques sont des brèches hydrothermales, des filons rubanés ou des filons bréchiques. Une succession paragéométrique en cinq stades (figure 2), valable à l'échelle régionale, a été reconstituée. Le stade 1, essentiellement ferrifère, est à hématite-ma-

gnétite. Le stade 2 est caractérisé par de la chalcopyrite abondante et des minéraux de bismuth sporadiques. Le stade 3, plus polymétallique, est à sphalérite-galène-chalcopyrite-tétraédrite-tennatite \pm Au dans une gangue à quartz, rhodonite ($MnSiO_3$), calcite, kutnahorite ($CaMn(CO_3)_2$) et rhodochrosite. La stibine est le minéral dominant du stade 4, tandis que la minéralisation auro-argentifère apparaît au stade 5.

4. Les contrôles magmatiques et structuraux des minéralisations de Baia Mare

À l'échelle régionale, tous les gisements importants du district sont localisés à l'aplomb d'un corps magmatique reconnu en profondeur par géophysique (Crahmaliuc et Crahmaliuc, 1997), recoupé par des sondages, et dont la présence peut être déduite de la présence en mine de puissantes séries de cornéennes. Il s'agit d'un laccolite en forme d'arche de 65 km de longueur selon une direction est-ouest, de 16 km de largeur et d'une épaisseur moyenne de 3,5 km, dont la mise en place serait guidée par l'accident décrochant de Calibaba-Carei. Son toit est situé, selon les localités, entre 800 et 1 800 m de profondeur. Dans le détail, ce corps magmatique est vraisemblablement constitué de plusieurs entités (sills ?) superposées. À l'échelle locale, les systèmes minéralisés du district de Baia Mare sont centrés sur ce décrochement majeur (grabens et pipes bréchiques de Baia Sprie, Suior), tangents (dépression de Sasar-Dealul Crucii), ou liés à des structures satellites NW-SE ou NE-SW (Ilba, Nistru, Cavnic,

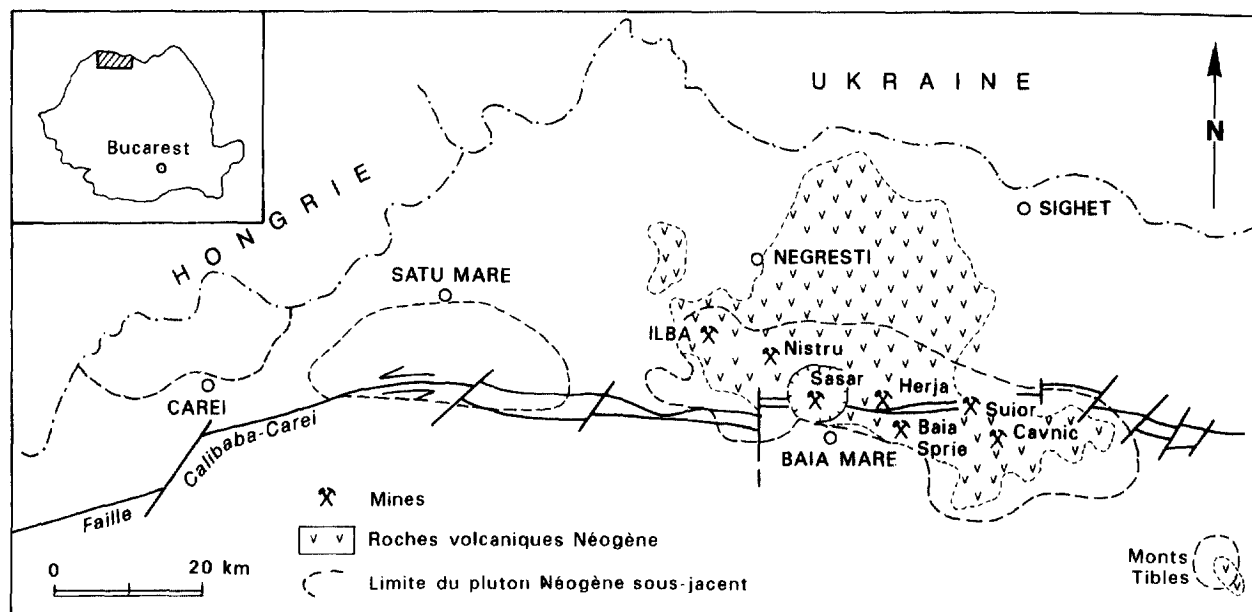


Figure 1. Carte géologique simplifiée du district de Baia Mare, montrant la localisation des mines étudiées et les limites, projetées en surface, du batholite néogène sous-jacent.

Simplified geological map of the Baia Mare district, showing the location of the studied mines and the boundary, after projection, of the underlying Neogene batholith.

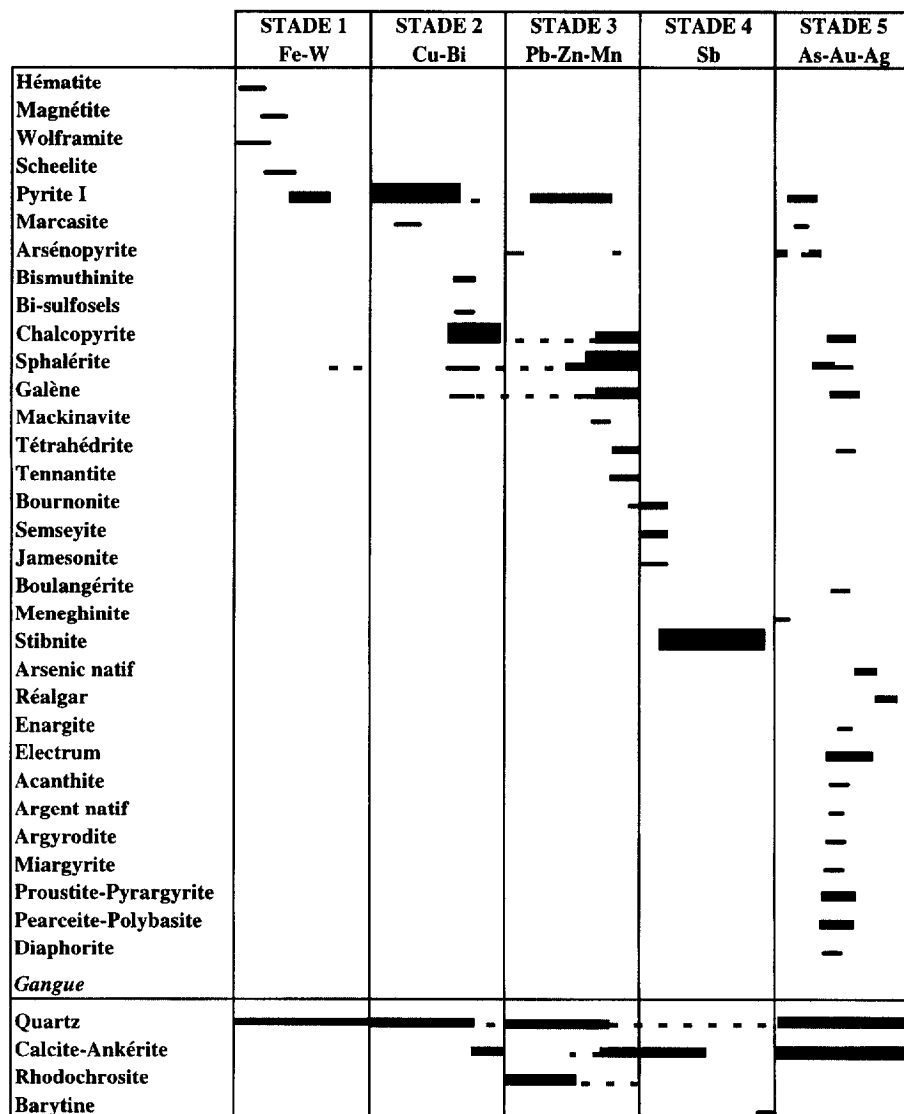


Figure 2. Succession paragenétique reconstituée des minéralisations du district de Baia Mare.

Reconstituted paragenetic sequence of mineralisation in the Baia Mare district.

Herja). Des pipes bréchiques se sont mis en place durant les stades 1 à 4 de minéralisation, avec, semble-t-il, un maximum durant le stade 3. Ils suggèrent une activité magmatique active tout au long du dépôt de la minéralisation.

5. Les inclusions fluides

Les données microthermométriques acquises sur les inclusions fluides piégées dans les cristaux de quartz et de sphalérite des stades 1 à 4 du dépôt de Baia Sprie et de quartz du stade 5 de Sasar sont présentées ici. Elles ont été obtenues sur des échantillons indépendants et représentatifs de chacun des stades minéralisés décrits. Les relations chronologiques entre les différentes familles d'inclusions ont été établies après étude minéralogique et texturale fine du remplissage des veinules. Qu'elles soient primaires ou secondaires, il a été possible de replacer toutes ces inclusions les unes par rapport aux autres et ainsi de retracer l'évolution temporelle de la salinité et des températures

d'homogénéisation (T_h) (figure 3). À température ambiante, toutes les inclusions fluides étudiées sont aqueuses, biphasées (L+V), et seul H₂O a été détecté en spectrométrie Raman. Pour une génération d'inclusions fluides donnée, les rapports volumiques V/L peuvent être identiques pour toutes les inclusions (fluide monophasé au moment du piégeage) ou très variables (fluide en ébullition). Compte tenu de la faible profondeur de mise en place du laccolite (entre 800 et 1 800 m de profondeur), les corrections de pression à apporter aux T_h pour déterminer la température de piégeage des fluides sont faibles (5 à 10 °C maximum) et seront ici négligées. Au stade 1, les salinités sont très fluctuantes, mais globalement élevées (6 à 21 poids % équivalent NaCl ; Potter et al., 1978) dans les quartz et sphalérite du début du stade et plus faibles dans les quartz terminaux (0 à 9 pds % équiv. NaCl). Pour la sphalérite, les variations de salinité se superposent aux variations de couleur du minéral. Parallèlement, les T_h oscillent entre 150 et 230 °C au début du dépôt, se stabilisent autour de 220–230 °C, puis oscillent entre 180 et

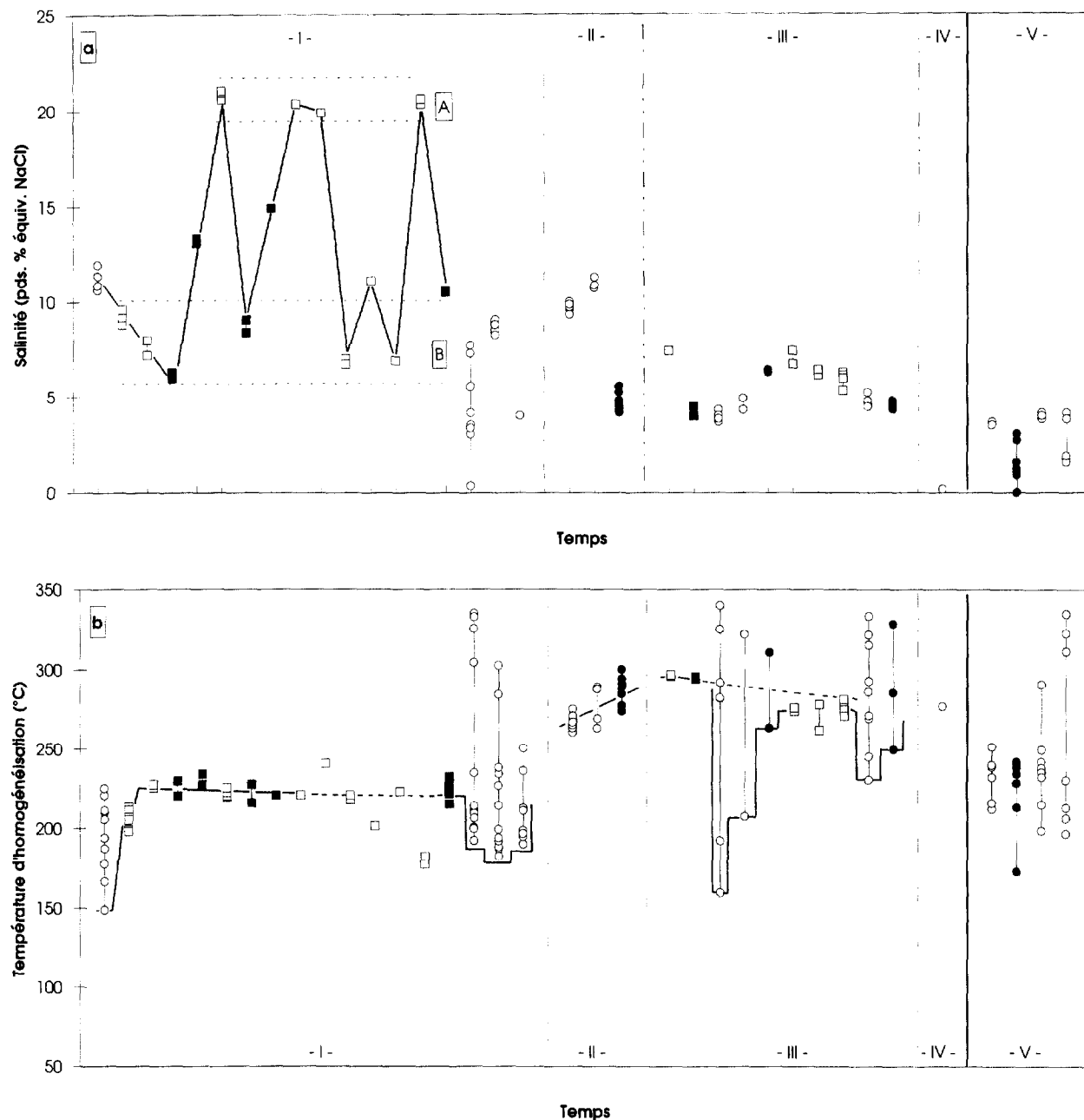


Figure 3. Évolution de la salinité (a) et de la température d'homogénéisation des fluides (b) en fonction du temps. Les inclusions fluides disposées le long d'une même verticale sont contemporaines, qu'elles soient piégées dans le quartz (cercle) ou dans la sphalérite (carré), qu'elles soient primaires (symbole blanc) ou secondaires (symbole noir).

1998

Salinity and fluid-homogenisation temperatures evolution with time. All the inclusions arranged along a given vertical line are contemporaneous, in quartz crystals (circle) or in sphalerite (square), of primary (open symbol) or secondary (black symbol) origin.

240 °C à la fin du stade 1. Au cours du stade 2, les fluides dans le quartz montrent une salinité de l'ordre de 10 % pds équiv. NaCl et des T_h variant, selon les générations, de 260 à 300 °C. Le stade 3 est caractérisé par une nette diminution de la salinité dans les quartz et les sphalérites (entre 3,7 et 7,4 pds % équiv. NaCl). Les T_h sont très oscillantes (160 à 340 °C). La seule inclusion fluide étudiée du stade 4 est très peu salée (0,2 % pds équiv. NaCl) et présente une T_h de 277 °C. À Sasar, les différentes

générations de quartz du stade 5 indiquent des salinités comprises entre 0 et 4,2 pds % équiv. NaCl et des T_h variant de 170 à 210 °C.

6. Interprétations et conclusion

Les résultats microthermométriques obtenus au cours de cette étude sont en accord avec les caractères généralement reconnus des dépôts épithermaux (Kamilli et Oh-

moto, 1977 ; Hayba et al., 1985 ; Hedenquist et al., 1992 ; Hedequist et Lowenstern, 1994). L'originalité de nos résultats réside dans la possibilité d'interpréter l'évolution des caractéristiques des fluides (salinités et températures d'homogénéisation), observée à Baia Sprie et à Sasar, stade par stade, en tenant compte de données minéralogiques, des observations de terrain et des études géophysiques et structurales. La mise en place en profondeur du laccolite et d'un volcanisme ponctuel (dômes-coulées, dykes, diatrèmes), en relation avec les minéralisations, amorce les circulations hydrothermales, d'abord marquées par une contribution magmatique substantielle (salinités élevées des fluides, dépôt de wolframite et de scheelite). L'évolution ultérieure, caractérisée par une diminution de la salinité et de la température des fluides, reflète l'évolution de la thermicité du batholite qui, après un maximum thermique au début du stade 3 (température des fluides autour de 300 °C), se refroidit progressivement,

ce qui limite l'intensité des circulations hydrothermales. Les nombreux *pipes* bréchiques et les évidences d'éruption phréatomagmatique observés sur le terrain ont vraisemblablement interféré avec un déroulement régulier de cette évolution et sont responsables de changements brutaux de l'état des fluides, soulignés par le dépôt alterné de la sphalérite et du quartz. La sphalérite correspond toujours à des fluides monophasés ($P_{\text{fluide}} = P_{\text{solide}}$), alors que le quartz marque les incréments successifs de la déformation cassante, avec ouverture des réseaux de fractures (chute de pression), ébullition des fluides (ébullition isoenthalpique avec chute de la température, Drummond, 1981) et piégeage de proportions variables de liquide et de vapeur dans les inclusions, d'où l'étalement des T_h dans les différentes générations de quartz. La validation de ce modèle à l'ensemble du district de Baia Mare est en cours, avec la réalisation de mesures sur les autres mines du district.

7. Références

- Borcos M. et Lang B. 1973, Le contrôle structural dans la métallogénèse néogène des Monts Gutii, *Revue roumaine de Géologie, Géophysique et Géographie, Série Géol.*, 17, 21–42
- Borcos M., Gheorghita I. et Lang B. 1974a. Neogene hydrothermal ore deposits in the volcanic Gutii mountains. Part. I. Ilba-Baita metallogenetic district, *Revue roumaine de Géologie, Géophysique et Géographie, Série Géol.*, 18, 19–37
- Borcos M., Gheorghita I. et Lang B. 1974b. Neogene hydrothermal ore deposits in the volcanic Gutii mountains. Part. II, Valea-Rosie district, *Revue roumaine de Géologie, Géophysique et Géographie, Série Géol.*, 18, 39–56
- Borcos M., Gheorghita I. et Lang B. 1975. Neogene hydrothermal ore deposits in the volcanic Gutii mountains. Part. IV, Baiut-Varactec-Botiza metallogenetic field, *Revue roumaine de Géologie, Géophysique et Géographie, Série Géol.*, 20, 2
- Borcos M., Lang B., Bostinescu S. et Gheorghita I. 1976, Neogene hydrothermal ore deposits in the volcanic Gutii mountains. Part. III, Dealul Crucci–Baiut district, *Revue roumaine de Géologie, Géophysique et Géographie, Série Géol.*, 19, 21–35
- Botezatu R., Andrei J., Calota C. et Visarion M. 1970. Studiul densitatii rocilor din zona eruptivului neogen de la Baia Mare (translated title: rock density studies in the upper Tertiary eruptive zone of Baia Mare), Romania, *Institutul de Geologie si Geofizica, Studii Tehnice si Economice, Seria D, Prospectiuni Geofizice*, 7, 59–70
- Cook N.J. 1997. Bismuth and bismuth–antimony sulphosalts from Neogene vein mineralisation, Baia Borsa area, Maramures, Romania, *Mineral. Mag.*, 61, 387–409
- Crahmaliuc R. et Crahmaliuc A. 1997. Geophysical modeling of the Neogene Guati Mountains pluton (Romania), soumis
- Drummond S.E.Jr. 1981. Boiling and mixing of hydrothermal fluids: chemical effects on mineral precipitation, *Thèse*, Pennsylvania State University, 380 p.
- Hayba D.O., Bethke P. M., Heald P., Foley N.K. 1985. Geologic, mineralogic and geochemical characteristics of volcanic-hosted epithermal precious-metal deposits, in : Berger B.R. et Bethke P. M. (éds), *Geology and Geochemistry of epithermal systems*, *Rev. Econ. Geol.*, 2, 129–168
- Hedenquist J.W., Reyes A.G., Simmons S.F. et Taguchi S. 1992. The thermal and geochemical structure of geothermal and epithermal systems: a framework for interpreting fluid inclusion data, *Eur. J. Mineral.*, 4, 989–1015
- Hedenquist J.W. et Lowenstern J.B. 1994. The role of magmas in the formation of hydrothermal ore deposits, *Nature*, 370, 519–527
- Kamillo R.J. et Ohmoto H. 1977. Paragenesis, zoning, fluid inclusion and isotopic studies of the Finlandia vein, Colqui district, central Peru, *Econ. Geol.*, 72, 950–982
- Lang B. 1979. The base metals gold hydrothermal ore deposits of Baia Mare, Romania, *Econ. Geol.*, 74, 1336–1351
- Lang B., Edelstein O., Steinitz G., Kowacs M. et Halga S., 1992, Timing the Neogene hydrothermal activity in the Oas-Gutai mountains northwestern Romania, *Pub. Geol. Survey of Israel*, 26, 31
- Marias Z.F. 1994. Alterari hidrotermale si mineralizatii în districtul metalogenetic Baia Mare, *Thèse*, 263 p.
- Milési J.-P., Borcos M., Genna A. et St-Edelstein O. 1994. Geodynamic controls of epithermal mineralisation in the Gutai Neogene volcanic region (Baia Mare, Romania), in : Borcos M. et Vlad S. (éds), *Plate tectonics and metallogeny in the east Carpathians and Apuseni mts*, Geological Institute of Romania
- Potter R.W.II, Clynne M.A. et Brown D.L. 1978. Freezing point depression of aqueous sodium chloride solutions, *Econ. Geol.*, 73, 284–285
- Radulescu D.P. et Sandulescu M. 1973. The plate-tectonics concept and the geological structure of the Carpathians, *Tectonophysics*, 16, 155–161
- Royden L., Horvath F. et Rumpel J. 1983. Evolution of the Pannonian Basin System. 1. Tectonics, *Tectonics*, 2,, 63–90
- Salters V.J.M., Hart S.R. et Panto G. 1988. Origin of the Late Cenozoic volcanic rocks of the Carpathians arc, Hungary, in : Royden L.H. et Horvath F. (éds), *The Pannonian basin. A study in basin evolution*, American Association of Petroleum Geologists Memoir 45, 17–25
- Tari G., Horvath F. et Rumpel J. 1992. Styles of extension in the Pannonian basin, *Tectonophysics*, 208, 203–219
- Vityk M.O., Krouse H.R. et Skakun L.Z. 1994. Fluid evolution and mineral formation in the Beregovo gold-base metal deposit, Transcarpathia, Ukraine, *Econ. Geol.*, 89, 547–565