

APPROCHE CRISTALLOCHIMIQUE DE L'HISTOIRE D'UNE COUVERTURE D'ALTERATION LATÉRIQUE (GOYOUM, EST-CAMEROUN)

J-P. MULLER ⁽¹⁾⁽²⁾, G. LAUQUET ⁽²⁾, N. MALENGREAU ⁽²⁾, J-J. BRAUN ⁽³⁾

(1) UR12, Département TOA, ORSTOM

(2) Laboratoire de Minéralogie-Cristallographie, UA CNRS 09, IPGP, Universités Paris 6 et 7,
Tour 16-26, 2ème étage, 4 Place Jussieu, 75252 Paris Cedex 05

Tél : (1) 44 27 52 27 - Fax : (1) 44 27 37 85 - e-mail: muller@lmcp.jussieu. fr.

(3) UR12, Département TOA, ORSTOM, BP 1857, Yaoundé, Cameroun

Décrypter l'histoire des vieilles couvertures d'altération latéritiques des régions tropicales consiste à tenter d'établir des relations génétiques et chronologiques entre les divers matériaux et "compartiments" qui les constituent. Jusqu'à présent, cette analyse a surtout consisté à établir, essentiellement avec les outils de la pétrologie, des séquences d'évolution de matériaux d'altération à partir d'une analyse de leurs distributions spatiales. Grâce aux outils de la cristallographie (spectroscopies du solide), il est maintenant possible d'affiner cette analyse en caractérisant les défauts et impuretés contenues au sein des minéraux d'altération et les modes intimes d'assemblages de ces minéraux. Notre objectif est de démontrer que cette approche cristallographique: (1) permet de mettre en évidence des générations successives de phases minérales jusqu'alors indifférenciées et de discuter les conditions de leur formation et de leur évolution; (2) apporte de nouvelles contraintes à la modélisation de l'histoire des couvertures d'altération latéritiques.

Le modèle analysé est une couverture d'altération différenciée à partir d'un gneiss (Goyoum, Est-Cameroun), dont la structure est représentative des couvertures d'altération latéritique des régions tropicales humides et forestières d'Afrique Centrale: un domaine amont formé de trois ensembles superposés, une saprolite basale meuble, un ensemble intermédiaire contenant des nodules ferrugineux hématitiques, un ensemble argileux meuble supérieur; un domaine aval essentiellement constitué d'une carapace ferrugineuse goethitique; un bas-fond inondé, empli de matériaux sablo-argileux indifférenciés. Un niveau à quartz grossiers, continu, localisé à la base des profils du bas-fond, recoupe la carapace goethitique et s'estompe en amont à la partie supérieure de l'ensemble nodulaire hématitique. Nous avons comparé les caractéristiques cristallographiques des kaolinites et des oxyhydroxydes de fer des matériaux ordonnés le long de plusieurs profils verticaux échelonnés de l'amont vers l'aval de cette "toposéquence". Outre la diffraction des rayons X (DRX), trois spectroscopies ont été mises en oeuvre pour cette analyse: la résonance paramagnétique électronique (RPE), la spectrométrie optique en réflectance diffuse (DRS) dans la région UV-visible-proche IR, et la spectrométrie Mössbauer. Nous illustrerons notre démarche en abordant deux problèmes: la différenciation des profils du domaine amont; l'origine des matériaux du domaine aval et du bas-fond.

- La différenciation des profils du domaine amont:

Trois "sondes" situées au sein des particules de kaolinite ont été analysées par RPE: le fer trivalent substitué à l'aluminium du réseau de la kaolinite, en deux sites distincts [1] (fer "interne", majoritaire [2], situé au sein des domaines cohérents [3]; fer "externe", localisé en bordure des domaines cohérents ou des particules); le manganèse divalent parfois piégé au sein des particules de kaolinite (complexe de sphère externe) [4]; les dégâts d'irradiation [5][6][7]. Ces centres paramagnétiques permettent de différencier les kaolinites des différents matériaux et ensembles. Un fait remarquable est que les kaolinites des nodules hématitiques de l'ensemble intermédiaire, qui ne se différencient pas des kaolinites de la saprolite sous-jacente par leur arrangement, leur taille et leur cristallinité, (i) sont (avec les kaolinites de la partie supérieure des profils) les plus pauvres en fer substitué, (ii) sont les seules à piéger du manganèse divalent et (iii) sont marquées par d'abondants dégâts d'irradiation. Cela signifie que les kaolinites des nodules ont conservé la mémoire d'un environnement physico-chimique plus réducteur, moins sursaturé en fer et plus riche en radionucléides que ceux qui ont prévalu lors de la formation des kaolinites des niveaux sus et sous-jacents.

La nature et les concentrations relatives en oxyhydroxydes de fer des matériaux échelonnés le long des profils, ainsi que leur degré de substitution en Al ont été déterminés par DRX. Un fait marquant est la corrélation entre le degré de substitution en Al de la phase goethitique et le degré de substitution en fer "externe" (déterminé par RPE) de la kaolinite. Couplée à l'analyse DRX, la



Fonds Documentaire IRD
Cote : B * 37424 Ex :

spectrométrie Mössbauer à très basse température (1.5K) a permis de mettre en évidence, localement, deux générations successives de goethites, la moins substituée étant postérieure à une dissolution d'hématite [8]. La DRS s'est avérée une méthode particulièrement performante pour comparer, grâce à une analyse d'échantillons bruts et déferrifiés, la nature des oxyhydroxydes de fer formant des revêtements à ceux formant des inclusions au sein des particules de kaolinite [9]. Il sera particulièrement montré: que les matériaux analysés contiennent de l'hématite et plusieurs générations de goethites Al et que les goethites les plus alumineuses sont les plus résistantes à la déferrification [10]; que la nature et la concentration des phases ferrifères en inclusion est indépendante de la nature et de la concentration des oxyhydroxydes de fer en revêtement [11]: par exemple, les kaolinites des nodules ferrugineux hématitiques piègent de faibles quantités de goethite-Al alors que les kaolinites des matériaux meubles goethitiques piègent surtout des phases mal cristallisées (polymères, ferrihydrite) et localement de l'hématite. Calés sur des observations pétrographiques, les résultats obtenus permettent d'envisager qu'une génération d'hydroxydes de fer (goethite-Al et/ou gels ferriques) est syngénétique de la kaolinite; que l'hématite est formée postérieurement, après transfert de fer; qu'une génération ultime de goethite est issue de processus de dissolution-recristallisation *in situ* des oxyhydroxydes de fer.

Ces données semblent démontrer que la kaolinite, une fois formée (et tant qu'elle est protégée par les oxyhydroxydes de fer?) est relativement stable, et donc capable de "mémoriser" d'anciennes conditions d'altération. Par contre, plusieurs générations d'oxyhydroxydes de fer peuvent se succéder, *in situ* ou après transfert du fer [12]. En ce qui concerne la différenciation des profils du domaine amont, elles conduisent à penser que la zonation observée actuellement reflète essentiellement des changements successifs et passés des conditions d'altération et de cinétique de croissance des minéraux au cours de l'enfoncement du front d'altération aux dépens de la roche [13].

- L'origine des matériaux du domaine aval et du bas-fond.

Il s'est agit de déterminer l'origine des matériaux sus et sous-jacents au niveau à graviers de quartz. A un moment de l'histoire de la couverture d'altération, ces graviers ont été probablement plus proches de la surface topographique qu'ils ne le sont actuellement (cf. Bourles et al.). Trois profils d'aval, dont un recoupant la carapace et un situé dans le bas-fond, ont été sélectionnés pour une analyse par DRS des kaolinites d'échantillons déferrifiés localisées sous et au dessus du niveau à quartz. Les premières ne "piègent" que de la goethite ou des polymères ferriques. Les secondes "piègent" fréquemment de l'hématite et/ou son précurseur (ferrihydrite), qu'elles soient situées dans des matériaux meubles, au sein de la carapace ou dans les matériaux inondés du bas-fond; leur "signature" est voisine de celle des kaolinites de l'ensemble meuble supérieur des profils d'amont. Cela nous amène à penser que le niveau à quartz, formé lors d'un processus érosif (avec troncature des profils), a été recouvert par des matériaux allochtones provenant de l'amont du paysage. La carapace ferrugineuse, recoupant ces divers matériaux et géométriquement conforme à la nappe phréatique, se serait différencier postérieurement.

Références: [1] Muller J.P., Calas G., 1993, Genetic significance of paramagnetic centers in kaolinites. In *Kaolin Genesis and Utilization*, H. H. Murray, W. M. Bundy and C. C. Harvey, eds. The Clay Minerals Society of America, Boulder, Colorado, 261-289. [2] Delineau T., Allard T., Muller J-P., Barres O., Yvon J., Cases J-M., 1994, FTIR vs. EPR studies of substituted Fe³⁺ in kaolinite. *Clays Clay Miner.* 42, 308-320. [3] Gaité J. M., Ermakoff P., Muller J-P., 1993, Characterization and origin of two Fe³⁺ EPR spectra in kaolinite. *Phys. Chem. Miner.*, 20, 242-247. [4] Muller J.P., Calas G., 1993, Mn²⁺-bearing kaolinites from lateritic weathering profiles: geochemical significance. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 57, 1029-1037. [5] Muller J.P., Ildefonse P., Clozel B., Calas G., 1992, Radiation-induced defects in kaolinites: an indirect assessment of radionuclides migration in the geosphere. *Appl. Geochem.*, Suppl. Issue N°1, 205-216. [6] Allard Th., Muller J-P., Dran J-C., Calas G., 1994, Radiation induced defects in natural kaolinites: alpha dosimetry using He⁺ ion beam implantation. *Phys. Chem. Miner.*, 21, 85-96. [7] Clozel B., Allard Th., Muller J-P., 1994, Nature and stability of radiation induced defects in natural kaolinites: new results and a reappraisal of published works. *Clays Clay Miner.*, 46 (sous presse). [8] Muller J-P., Coey J. M. D. Evidence for two successive generations of goethite in a tropical soil: implications for soil yellowing. *Clay Miner.* (accepté, avec revue). [9] Malengreau N., Muller J-P, G. Calas, 1994, Fe-speciation in kaolins: a diffuse reflectance study. *Clays Clay Miner.*, 42, 137-147. [10] Malengreau N., Bédidi A., Muller J-P., Herbillon A. Spectroscopic control of iron oxides dissolution process in lateritic soils. *Eur. J. Soil Sci.*(soumis). [11] Lauquet G., Traçage par réflectance diffuse des kaolinites d'une couverture d'altération latéritique (Goyoum, Cameroun), mémoire DEA de Géosciences de l'Environnement, Université de Paris 7. [12] Muller J-P., Coey J. M. D., Bakas T., Regnard J-R., Boudeulle M. Soft pebbly laterite differentiation: a model from the study of iron oxi-hydroxides in a weathering profile from Cameroon. *Soil Sci. Soc. Amer.J.* (soumis). [13] Muller J.P., Manceau A., Hazemann J. L., Allard T., Ildefonse P, Calas G., 1995, Crystal chemistry of clays and associated oxides: constraints for modelling element transfer at the Earth's surface. *Amer. J. Sci.* (accepté).

**PROGRAMME ENVIRONNEMENT GEOSPHERE INTERTROPICALE
PEGI**

- EROSION, ALTERATION, PEDOGENESE
- Traceurs Physiques, Chimiques et Biologiques

12 et 13 DECEMBRE 1994
à la Société Géologique de France
77, rue Claude Bernard
75005 PARIS

PROGRAMME :

- . Cosmonucléides et pédogenèse
- . Comportement des isotopes de Sr, U, Th
- . Datation des altérations
- . Cristallochimie de l'altération et de l'érosion
- . Biogéomarqueurs dans les eaux
- . Réactivité et porosité
- . Phytolithes

Organisateurs : Jacques Boulègue, Bruno Hamelin, Yves Lucas

Secrétariat
Renseignements
et Inscriptions

Dr Bernard HIERONYMUS - Mme Geneviève LETEMPLIER
Laboratoire de Géochimie - Casier Postal 124, UPMC
Tél. : 44 27 50 06 Fax : 44 27 51 41