

ESSAI DE DÉTERMINATION DE L'ÂGE
ET DE LA VITESSE D'ALTÉRATION D'UN SOL FERRALLITIQUE
CAMEROUNAIS A L'AIDE DE LA MÉTHODE DU DÉSÉQUILIBRE
RADIOACTIF URANIUM-THORIUM

Adel Paul BOULAD*, Jean-Pierre MULLER** et Gérard BOCQUIER*

RÉSUMÉ. — Nous proposons une nouvelle méthode de calcul de la «vitesse d'altération» d'un sol, basée sur le déséquilibre radioactif uranium-thorium. L'application de cette méthode à un sol ferrallitique du Cameroun nous permet d'estimer la vitesse de progression de son front d'altération à 7.10^{-3} cm/an.

I — INTRODUCTION : LA DATATION DES ALTÉRATIONS

A — LES PRÉCÉDENTES MÉTHODES DE CALCUL DES VITESSES D'ALTÉRATION

Trois grands groupes de méthodes de calcul ont permis jusqu'à présent l'estimation des vitesses d'altération : la détermination des pertes de matière à l'échelle d'un profil, permettant ainsi d'estimer la vitesse de l'érosion chimique, c'est-à-dire de l'enfoncement du front d'altération de la roche ; la réalisation de bilans à l'échelle régionale qui peuvent permettre de distinguer la vitesse de l'érosion chimique profonde de celle de l'érosion mécanique superficielle ; la méthode basée sur la simulation des réactions de l'altération. Pour ces trois approches, voici les principaux résultats obtenus.

1. Etude des pertes de matière à l'échelle d'un profil

Par la mesure des «teneurs en éléments minéraux dans les eaux fluviales», CORBEL montre en 1951 qu'une érosion chimique en région tropicale peut détruire un granite à la vitesse de 5.10^{-3} cm/an.

Quelques années plus tard, LENEUF (1959) affine cette méthode de calcul et étudie une altération ferrallitique, en considérant : la composition chimique de la roche non altérée, la perte en éléments nécessaire à une ferrallitisation complète, et la teneur en éléments solubles (Mg, Ca, Na, Si) dans les eaux de drainage. Son calcul pour un granite calco-alcalin de Côte-d'Ivoire fixe une vitesse de ferrallitisation complète à 5.10^{-3} cm/an.

JOHNSON *et al.* (1968) proposent une équation simple :

$$W = D_i / (C_i - S_i)$$

dans laquelle W est la vitesse de «dissolution» (kg/ha/an), D_i la quantité dissoute par unité de temps, C_i la concentration initiale de la roche, S_i la concentration actuelle de la roche.

SIEFFERMANN (1969) utilise une équation plus complexe pour estimer, au Cameroun, la hauteur de roche

* Laboratoire de Pédologie, Département des Sciences de la Terre, Université de Paris VII, 2 place Jussieu, 75221 Paris Cedex 05.

** Pédologue ORSTOM, Laboratoire de Pédologie, I.R.A.F., B.P. 2067, Yaoundé (Cameroun).

F - AOÛT 1985

O. R. S. I. O. M. Fonds Documentaire

N° : 18014

Cote : B

77

B 18014

JH

altérée par an (H) :

$$H = V \cdot C / S \cdot 10 \cdot d \alpha$$

dans laquelle V est le volume total annuel d'eau écoulée dans le bassin (m^3), C la concentration moyenne de l'eau en substances minérales solubles (ppm), S la superficie du bassin (m^2), d la densité de la roche, α le pourcentage de matière minérale exportée dans l'altération isovolume de la roche. Les résultats obtenus sont de l'ordre de 10^{-3} cm/an.

TARDY (1969) détermine les vitesses relatives de départ des éléments, par l'étude du rapport : poids d'un élément dans un volume de roche altérée / densité. Cette méthode permet aussi de décrire le comportement de la vitesse au cours de l'altération.

2. Les bilans à l'échelle régionale

GARRELS et MACKENZIE (1971) distinguent dans leurs calculs : érosion mécanique et érosion chimique, et évaluent ces érosions à l'échelle continentale, sans donner explicitement un mode de calcul.

GAC et PINTA (1973) étudient, en bordure du bassin tchadien, la transformation d'un granite en kaolinite. Ils évaluent la vitesse de cette altération ferrallitique par la mesure des quantités de silice évacuée; et par le calcul de celles qui sont nécessaires à la formation de la kaolinite, les auteurs estiment que l'ablation mécanique superficielle a provoqué la perte de 75 % de la kaolinite formée par l'érosion chimique, en profondeur, du granite initial. Ainsi la vitesse d'ablation est de $2,5 \cdot 10^{-4}$ cm/an, alors que la vitesse d'altération du granite est de 10^{-3} cm/an.

NORDEMANN (1977) applique l'équation de JOHNSON *et al.* (1968) à deux bassins versants brésiliens, en utilisant les rapports $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$.

3. Méthode des simulations

Les vitesses d'altération sont alors évaluées grâce à l'écriture des réactions de dissolution et de précipitation des minéraux primaires et secondaires (FRITZ et TARDY, 1973 ; BOURRIÉ, 1977). Cette méthode distingue ainsi, pour la simulation de l'altération ferrallitique d'un granite : la vitesse de dissolution de tout le quartz, $5 \cdot 10^{-4}$ cm/an ; la vitesse de descente de la limite entre un horizon kaolinitique et un horizon gibbsitique, $\sim 5 \cdot 10^{-5}$ cm/an ; la vitesse de destruction par le haut de l'horizon gibbsitique, $\sim 5 \cdot 10^{-5}$ cm/an.

On constate ainsi que ces différentes approches ont conduit à des estimations qui, pour les altérations tropicales, présentent le même ordre de grandeur : 10^{-3} cm/an. On constate également que ces trois méthodes ne s'intéressent pas directement aux profils d'altération, mais plutôt à la « phase migratrice » actuelle, c'est-à-dire aux solutions d'altération ou à leurs équilibres avec les minéraux.

La méthode proposée concernera les profils eux-mêmes, c'est-à-dire la « phase résiduelle » de l'altération, et les données utilisées seront des mesures du déséquilibre radioactif au long du profil.

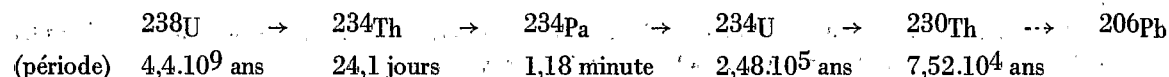
B – LA MÉTHODE DU DÉSÉQUILIBRE RADIOACTIF

1. Principe de la méthode

Les chaînes radioactives naturelles, par la désintégration en cascade de leurs éléments, sont constituées d'une succession d'isotopes radioactifs (à période de vie variable), qui se termine par un isotope stable ($^{238}\text{U} \rightarrow ^{206}\text{Pb}$).

Au-delà de quelques périodes de l'isotope de plus longue durée, les activités (désintégration par minute) de tous les isotopes deviennent égales. Les éléments de la chaîne sont alors en équilibre.

Ainsi, dans la chaîne de l'uranium 238,



si nous supposons que ^{234}U et ^{238}U ont un même comportement isotopique, leurs activités seraient égales, et la chaîne serait en équilibre au bout d'un million d'années. Il en est de même pour ^{234}U et son fils le ^{230}Th ou Io , pour lesquels — en l'absence de fractionnement — l'équilibre serait atteint au bout de 300 000 ans. Or l'uranium, l'ionium et le protoactinium ont des comportements isotopiques bien distincts : ils réagissent différemment aux sollicitations géochimiques des processus d'altération ou de sédimentation, et c'est cette irrégularité dans le mécanisme de la chaîne qui déclenche le déséquilibre radioactif, par exemple entre l'ionium et l'uranium.

On peut alors considérer les deux cas généraux suivants.

— *Un cas d'équilibre* : $(\text{Io}) = (\text{U})$ qui signifiera, pour un milieu fermé, que l'âge du système est supérieur ou égal à 300 000 ans, et pour un milieu ouvert, que le bilan d'Io est égal à celui d'U, compte tenu de la décroissance radioactive.

— *Un cas de déséquilibre* pour lequel, en milieu fermé, l'âge du système est alors inférieur à 300 000 ans, et il est obtenu dans l'équation suivante :

$$(\text{Io}) = (\text{U}) (1 - e^{-\lambda t}) + (\text{Io})_0 e^{-\lambda t}$$

En milieu ouvert, ce déséquilibre sera causé par la différence des bilans entre Io et U et le rapport peut avoir n'importe quelle valeur.

Cette méthode du déséquilibre radioactif a été principalement utilisée pour la détermination de vitesses de sédimentation (PICCIOTTO, 1954 ; ROSHOLT *et al.*, 1961 ; KU, 1966 ; SACKETT, 1966 ; GOLDBERG, 1968 ; BERNAT, 1969 ; BOULAD *et al.*, 1975) et pour la datation de roches volcaniques récentes (CERRAI *et al.*, 1965 ; CONDOMINES, 1974). Les systèmes étudiés sont alors supposés fermés. C'est ROSHOLT (ROSHOLT *et al.*, 1961, 1966 ; ROSHOLT, 1967) qui proposa le premier d'appliquer cette méthode du déséquilibre radioactif aux systèmes ouverts et aux milieux d'altération.

2. Application aux altérations et aux sols

ANDREYEV (ANDREYEV *et al.*, 1969) avait néanmoins assimilé un profil pédologique à un système fermé à toute migration et à tout apport. Il avait ainsi présenté la datation d'un sol hydromorphe par l'étude du rapport ionium/uranium. Mais, en considérant que les altérations et les sols sont des systèmes ouverts, on peut leur appliquer une démarche analogue à celle qui est utilisée pour la datation de fossiles, eux-mêmes assimilés à des systèmes ouverts (ROSHOLT, 1967). L'estimation de l'âge d'un sol apparaît alors possible à partir de l'écriture des bilans pour l'ionium et l'uranium, en fonction de leurs comportements géochimiques et des conditions de fonctionnement du système d'altération.

a) Les conditions d'altération

Lors de l'altération, les éléments chimiques constituant les minéraux primaires ou les produits secondaires sont sollicités par les conditions physico-chimiques ambiantes, par l'activité biologique et la matière organique, par l'érosion mécanique... Pour un minéral ou pour un niveau du profil, le bilan actuel est : fonction perte + fonction fixation. La discussion qui suivra (III, B) sur l'expression de ces fonctions et de leurs points initiaux est à la base de ce travail.

b) Les comportements géochimiques du thorium, du protoactinium et de l'uranium

Le thorium est considéré comme inerte, sa solubilité dans les eaux de surface (10^{-6} ppm) et dans l'eau de mer (10^{-6} ppb) étant très faible (MOORE, 1967 ; KAUFMAN, 1969). Cet élément sera donc lié à la phase résiduelle ainsi qu'à la phase détritique.

Le protoactinium aurait un comportement sensiblement analogue (ROSHOLT *et al.*, 1961 ; SAKANOUÉ *et al.*, 1967). Cependant, d'autres auteurs (KU, 1966 ; SACKETT, 1966 ; TUREKIAN et CHAN, 1971) signalent des comportements géochimiques distincts pour Io et Pa dans les milieux de sédimentation : enrichissement préférentiel en Io par rapport à Pa dans les sédiments des grands fonds ; incorporation favorable à Pa par rapport à Io dans les nodules de manganèse.

Quant à l'uranium, sa sensibilité aux conditions physico-chimiques lui confère une grande mobilité (BERTINE

et al., 1970). Il peut être également complexé par les phosphates, la matière organique, les carbonates (D'ALLAGIO, 1971). L'uranium peut donc être évacué au début de l'altération et il figurera dans la « phase migratrice » avec les autres cations solubles.

C'est cette différence de comportement qui est à l'origine du déséquilibre des bilans I₀ et U en milieu ouvert.

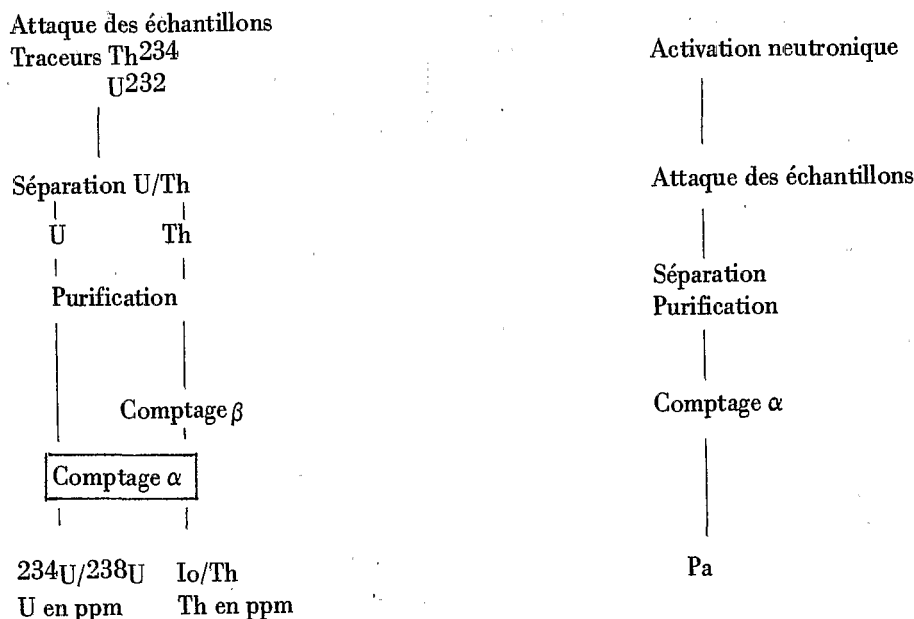
De nombreux profils d'uranium ont déjà été mesurés dans les altérations et les sols (PLILER et ADAMS, 1962). Il semble bien que la perte d'uranium se déclenche au niveau du front d'altération (ROSHOLT *et al.*, 1966 ; HANSEN et STOUT, 1968). Mais ces auteurs sont en désaccord avec PLILER et ADAMS (1962) sur l'ordre relatif du processus de départ et d'enrichissement dans les profils. ROSHOLT souligne le rôle des variations des conditions oxydo-réductrices pour la mobilisation de l'uranium à la base des profils, et il fait plutôt appel à l'ascension capillaire pour rendre compte des accumulations superficielles d'uranium. HANSEN distingue des rétentions préférentielles de thorium ou d'uranium en fonction du type de sol. Mais tous les auteurs incitent à poursuivre l'étude du déséquilibre radioactif dans les chaînes d'uranium pour déterminer des vitesses d'altération.

3. Les méthodes analytiques utilisées

Dans les altérations et les sols, nous nous intéresserons au déséquilibre radioactif de deux couples « père-fils » correspondant aux deux chaînes suivantes : $^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{U} \rightarrow ^{230}\text{Th}$ et $^{235}\text{U} \rightarrow ^{231}\text{Pa}$. Il convient donc de mesurer les teneurs de ces cinq éléments pour obtenir les rapports : $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$, $I_0/^{234}\text{U}$ et $^{231}\text{Pa}/^{235}\text{U}$.

GOLDBERG et KOIDE (1962) ont mis au point un traitement de séparation et de purification de l'uranium et du thorium. C'est cette méthode, modifiée par BERNAT (1972), que nous avons utilisée. Comme l'indique le schéma du tableau I, cette méthode comporte successivement : la séparation chimique de l'uranium et du thorium, en utilisant la méthode de la dilution isotopique (adjonction de deux traceurs dont l'activité spécifique est connue), et le comptage des espèces séparées, en spectrométrie α pour l'uranium et β pour le thorium.

Tableau I
Méthodes d'analyse de U, Th, Pa



Pour la mesure du protoactinium, la méthode suivie est celle de ROSHOLT et SZABO (1969) : l'irradiation du ^{231}Pa permet d'obtenir ^{232}U , dont l'activité est directement mesurable sur une chaîne de spectrométrie α .

II – CARACTÉRISATION DU PROFIL D'ALTÉRATION ANALYSÉ

Le profil étudié est une altération ferrallitique, d'une quinzaine de mètres d'épaisseur, d'un granito-gneiss précambrien du Centre-Cameroun.

A – LOCALISATION ET CONDITIONS GÉNÉRALES

Cette altération a été étudiée et prélevée sur une coupe du tracé du chemin de fer transcamerounais, au pk 700, à 5° 40' Nord et 13° 20' Est, à 5 km au Sud de Mbitom (BOCQUIER et MULLER, 1973).

Ce site correspond à un climat tropical humide à saisons déjà contrastées, à la limite forêt-savane et à une zone de raccordement entre deux surfaces qui pourraient dater respectivement de l'Eocène et de la fin du Tertiaire (SEGALEN, 1967). Le profil est donc situé dans une zone intermédiaire de rajeunissement (MARTIN, 1970), et dans la partie haute bien drainée d'une colline.

B – LE PROFIL ÉTUDIÉ

1. La différenciation du profil

- De 1870 à 1270 cm : gneiss non altéré, diaclasé, à abondants filons de quartz. Transition sur 20 à 30 cm par des écailles altérées avec :
- De 1270 à 600 cm : arène homogène, à structure conservée de la roche. Cette altérite épaisse, poreuse et friable présente une transition diffuse avec :
- De 600 à 240 cm : arène hétérogène, associée puis progressivement dominée par une argile rouge. Les volumes résiduels d'altérite ont une structure conservée, et les filons de quartz ne sont pas déformés. Transition diffuse avec :
- De 240 à 50 cm : horizon argileux rouge avec quelques nodules ferrugineux millimétriques. Structure polyédrique développée et faible imprégnation humifère. Filons de quartz non déformés.
- De 50 à 0 cm : horizon humifère remanié à nodules ferrugineux et blocs de cuirasse dans une argile rouge, en mélange avec des graviers et cailloux anguleux de quartz.

Mis à part l'horizon superficiel remanié, ce profil se caractérise donc par une différenciation verticale sur place, comme en témoignent le maintien des structures lithologiques et la progressivité des transformations de l'arène en argile rouge. Néanmoins, le front d'altération est bien marqué, puisque le passage du gneiss à l'arène s'effectue rapidement sur une trentaine de centimètres. De plus, cette profonde altération ne présente pas de signe d'hydromorphie, ni de trace d'illuviation argileuse.

2. Les transformations minéralogiques

La roche initiale est un gneiss porphyroïde hétérogène (migmatitique) affecté de nombreuses diaclases (LASSERRE, 1961). De structure grenue, il est très quartzeux et contient d'abondants porphyroblastes de microcline légèrement perthitique. Les plagioclases sont peu calciques et séricitisés. Les micas sont presque exclusivement représentés par de la biotite souvent chloritisée. On note la présence de sphène et d'apatite. Dans ce gneiss apparemment non altéré, on décele par diffractométrie la présence de traces de kaolinite.

Dès le front d'altération, les transformations minéralogiques sont importantes et intenses. Elles aboutissent à la formation de kaolinite. Chlorite et illite sont héritées, alors que subsiste une fraction micacée importante, associée au quartz et au microcline. Vers le haut de l'altérite, des biotites demeurent, tandis que disparaissent la chlorite et l'illite (tableau II). Le complexe d'altération devient essentiellement constitué de kaolinite associée avec des hydrates ferriques et de rares hydroxydes d'aluminium. Cette altération est de type ferrallitique.

Dans les horizons argileux rouges, kaolinite et hydrates ferriques sont étroitement associés (pédoplasation). La gibbsite est rare. Des micas, et même quelques feldspaths subsistent jusqu'à l'horizon supérieur remanié.

Tableau II
Echantillonnage et minéralogie de la fraction fine

HORIZONS	ECHANTILLONNAGE		MINÉRALOGIE DE LA FRACTION < 2 μ					
	prof. en cm de l'échant.	distance à la roche mère de l'échant.	n° éch.	kaolinite	illite altérée	chlorite altérée	goethite	gibbsite
argile	80 - 90	1485	1	10			tr.	tr.
rouge	180 - 190	1385	2	10			tr.	tr.
	280 - 290	1285	3	10			tr.	tr.
hétérogène	420 - 430	1145	4	10	tr.	tr.		
arène	550 - 560	1015	5	8	1	1	tr.	
homogène	780 - 790	785	6	8	2	2		
	1080 - 1090	485	7	8	2	tr.		
gneiss non altéré	1570	0	8	tr.				

C - CONCLUSIONS

Le profil choisi se caractérise donc par :

- une altération ferrallitique d'épaisseur importante (15 m) ;
- une filiation, continue depuis la roche mère et progressive depuis l'arène, des transformations minéralogiques ;
- l'absence d'horizons d'accumulation ou d'hydromorphie ;
- une roche mère d'âge très ancien (Précambrien), alors que le site géomorphologique de ce profil correspond à un rajeunissement par troncature, responsable de cette nouvelle altération estimée post-pliocène.

III - RÉSULTATS DES MESURES ET MODELES DE PROFILS D'ALTÉRATION

A - LES RÉSULTATS DES MESURES

Dans chacun des huit échantillons, les mesures radio-chimiques ont concerné trois éléments : uranium, thorium et protoactinium, et elles ont été effectuées sur deux phases : le «sol total» (dénommé «sol»), représentant un système horizon, et des biotites isolées (dénommées «mica»), correspondant à un sous-système minéral primaire. Le tableau III indique les résultats concernant les teneurs et les rapports isotopiques.

1. Les teneurs et leurs distributions

Deux catégories d'éléments peuvent être distinguées.

- Des éléments inertes, comme le thorium. Les variations de ses teneurs dans un sol ne peuvent être dues qu'à une perte en masse. Un autre élément généralement considéré comme inerte est l'aluminium. Nous avons tracé la fonction :

$$\text{Al}_2\text{O}_3 = f(\text{Th}) \text{ (fig. 1)}$$

Tableau III

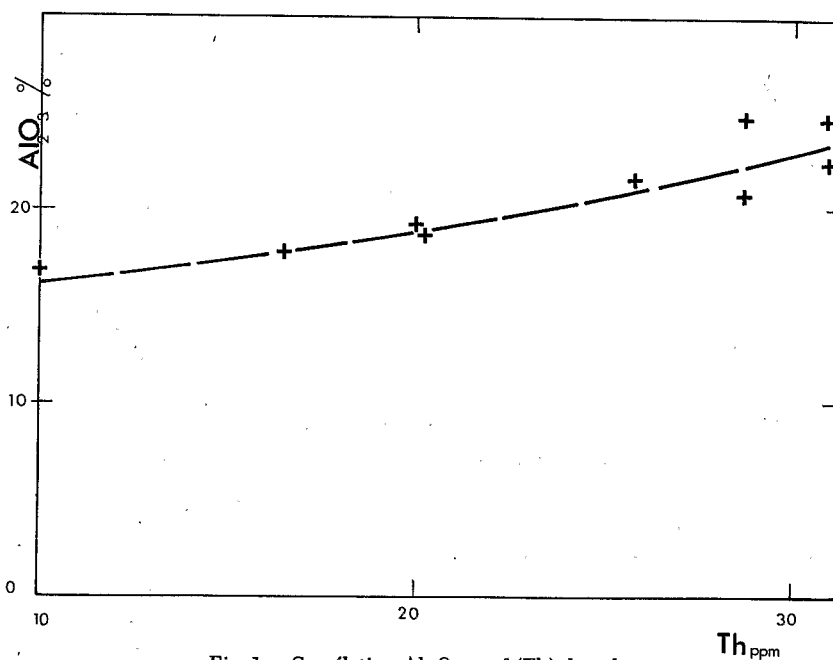
Teneurs et rapports isotopiques dans le profil étudié : dans le «sol normal» et dans le mica (italiques)

Prof. (cm)	(²³⁴ U/ ²³⁸ U)	(Io/Th)	Th ppm	U ppm	(U) ppm	[Th/U]	(Io/U)	(Pa/U)
± 3	± 3 %	± 3 %	± 5 %	± 4 %				± 3 %
85	0,98	0,87	31	8,92	2,9	3,46	1	0,52
185	0,99	0,94	28,7	10,77	3,77	2,66	0,84	0,87
	<i>1,24</i>	<i>1,05</i>	<i>9,9</i>	<i>4,22</i>	<i>5,41</i>	<i>2,4</i>	<i>0,81</i>	
285	0,97	0,83	20	6,22	3,13	3,2	0,89	2,89
	<i>0,95</i>	<i>0,79</i>	<i>21,9</i>	<i>8,85</i>	<i>5,10</i>	<i>2,5</i>	<i>0,66</i>	
425	0,97	0,62	28,7	6,38	2,23	4,4	0,93	3,11
	<i>0,90</i>	<i>1,03</i>	<i>14,4</i>	<i>6,64</i>	<i>5,82</i>	<i>2,2</i>	<i>0,72</i>	
555	0,95	0,81	20,1	6,94	3,46	2,9	0,78	1,86
	<i>1,03</i>	<i>1,05</i>	<i>12,4</i>	<i>5,32</i>	<i>5,45</i>	<i>2,3</i>	<i>0,81</i>	
785	0,94	0,42	16,5	4,32	2,62	3,82	1,46	1,17
	<i>1,08</i>	<i>0,54</i>	<i>16</i>	<i>7,09</i>	<i>5,4</i>	<i>2,3</i>	<i>0,4</i>	
1085	1,05	0,84	25,8	6,02	2,34	4,2	1,13	1,25
	<i>0,98</i>	<i>1,21</i>	<i>31</i>	<i>11,8</i>	<i>4,83</i>	<i>2,6</i>	<i>1,06</i>	
1570		1,79	10	5,39	5,39	1,8	1	0,98
	<i>1,06</i>	<i>1,82</i>	<i>12,7</i>	<i>3,74</i>	<i>3,74</i>	<i>3,4</i>	<i>2,05</i>	

⟨U⟩ teneur en uranium normée au thorium du niveau 1570

[] rapport de concentrations

() activité en désintégration par minute par gramme

ppm partie par million ou 10⁻⁶ g/gFig. 1 - Corrélation Al₂O₃ = f(Th) du sol

Une très bonne corrélation existe entre ces deux éléments, qui sont très peu concernés par la dissolution et la migration dans le profil.

— Des éléments mobiles comme l'uranium, dont nous pouvons étudier la distribution dans le profil, en normant ses teneurs à celles du thorium. Dans le cas de l'altération d'une roche mère homogène, nous savons que toute variation de teneur du thorium dans le profil d'altération indique une variation de masse. En normant l'uranium par rapport au thorium du niveau « roche mère », nous évitons ainsi de considérer dans nos modèles théoriques toute perte par érosion mécanique. Or notre étude porte sur une roche mère hétérogène; la correction faite sur l'uranium serait donc insuffisante. Cependant, la quantité importante prélevée, l'homogénéisation et l'échantillonnage pour chaque niveau peuvent compenser cette hétérogénéité.

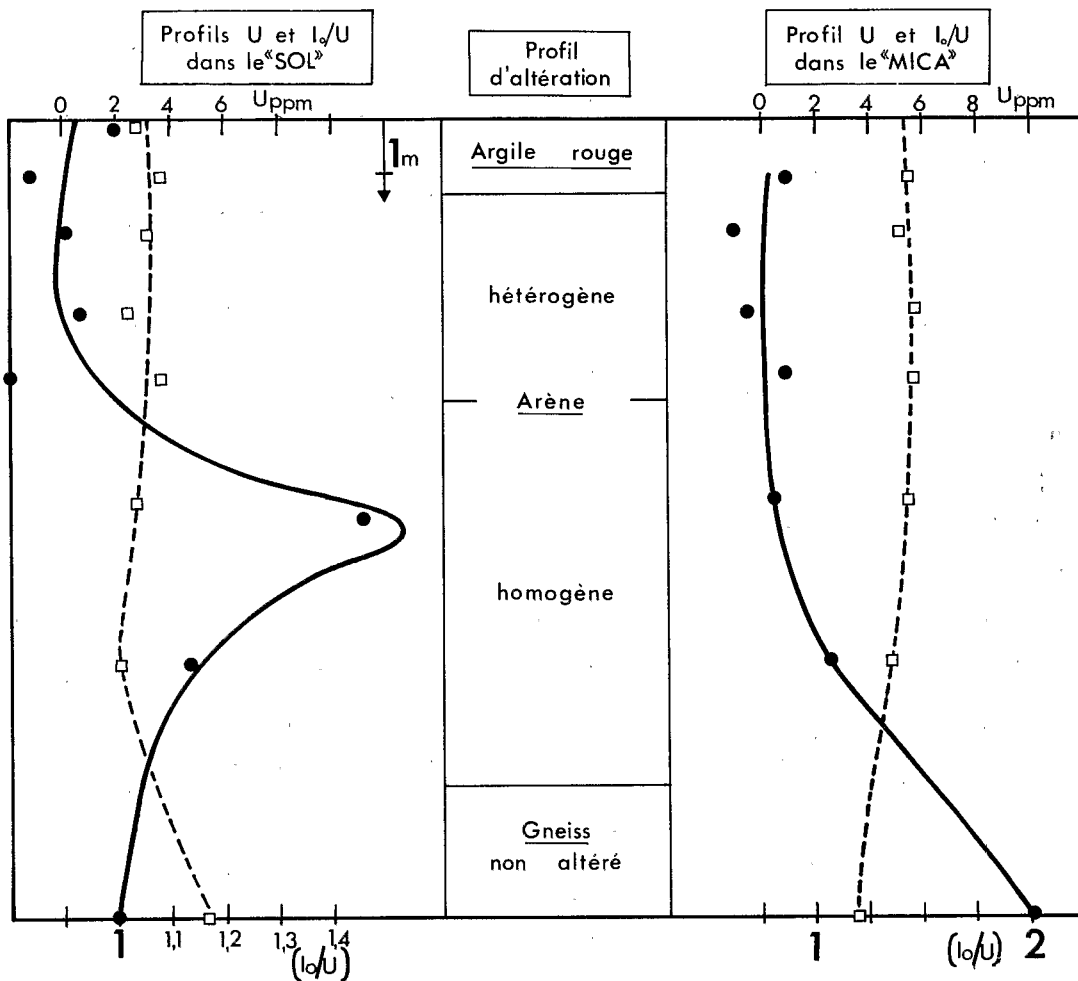


Fig. 2 — Distribution dans le profil de l'uranium et de l'ionium

La figure 2 montre les fonctions $U_{\text{corrigé}} = f(z)$ pour le sol et pour le mica. Le profil U sol indique d'abord une perte importante au niveau du front d'altération, puis un lent enrichissement vers la surface. Celui du mica indique uniquement un lent enrichissement. Le niveau « roche mère » à 1570 cm de profondeur serait un niveau où le mica aurait perdu une grande partie de son uranium. L'enrichissement semble y avoir débuté. Pour le sol total, ce même niveau ne fait que commencer à perdre son uranium. Ce décalage par rapport au « sol total » serait dû à une sensibilité plus grande du mica à l'altération supergène, ou bien à une altération hypogène préalable.

2. Les rapports isotopiques

L'étude des rapports $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ montre une accumulation prévisible d' ^{234}U près de la surface (ROSHOLT *et al.*, 1966). D'autre part, les fractionnements entre ^{234}U et ^{238}U sont négligeables : l'absence de matière organique en est peut-être la raison.

Le rapport (Io/U) mica du «niveau roche mère» est supérieur à 1. Ceci indique — comme la distribution des teneurs en U — que l'altération a déjà affecté le mica à ce niveau. Ce déséquilibre (Io/U) est également en accord avec l'observation microscopique qui nous montre l'altération des biotites, et l'analyse minéralogique qui a mis en évidence des traces de kaolinite. Ensuite, la fixation d'U et la décroissance radioactive contribuent à la stabilisation de (Io/U) mica = f(z) en allant vers la surface (fig. 2).

La fonction (Io/U) sol = f(z) est d'abord croissante depuis le gneiss jusque vers le milieu de l'arène, puis décroissante jusqu'à une stabilisation près de la surface (fig. 2).

Le comportement identique de Io et de Pa laisserait prévoir une similitude des fonctions Io/U et Pa/U : ceci est vrai jusqu'au niveau 6, c'est-à-dire jusqu'au sommet de l'arène homogène. En effet, les pics de déséquilibre des deux rapports sont alors parallèles. Cependant, vers la surface, un excès de Pa se situe au sommet de l'arène hétérogène et indique alors une zone d'accumulation. Certains auteurs (cf. I B 2) ont déjà montré que l'ionium et le protoactinium réagissaient différemment aux conditions de sédimentation marine. Ces premiers résultats montrent qu'il pourrait en être de même au cours de l'altération continentale.

B — LA RECHERCHE DE MODELES DE PROFILS D'ALTÉRATION

Nous supposons tout d'abord que l'apport d'ionium, d'uranium et de thorium par les eaux est négligeable. Nous nous basons d'une part sur l'immobilité du thorium et de l'ionium, et d'autre part sur la mobilité de l'uranium par perte et fixation.

Nous définirons ensuite le *front d'altération par le premier niveau de déséquilibre radioactif*. En effet, ce qui est à peine décelable au microscope apparaît nettement pour Io/U et correspondrait au signal du début de l'altération. La valeur recherchée est la *vitesse globale de progression de ce front d'altération dans la roche*. Ce front est supposé peu éloigné de la limite roche mère / arène. Nous y plaçons l'origine du paramètre z.

La recherche de modèles de profils d'altération se base sur les profils d'uranium mesurés, et consiste à accorder aux deux fonctions : perte en uranium et fixation de l'uranium dans le profil, des valeurs et des ordres différents. Ces modèles doivent aussi satisfaire les profils (Io/U) = f(z). Deux modèles ont été successivement testés.

1. Premier modèle

On considère que la *fonction perte* est très prononcée au niveau du front d'altération, et qu'elle peut être exprimée par :

$$U_{\text{perte}} = U_0 e^{-k_1 t}$$

Cette fonction diminue avec le temps, laissant alors la place à la fonction fixation. Cette proposition est en accord avec le modèle qualitatif de ROSHOLT *et al.* (1966). On constate ensuite que la phase de fixation est légèrement croissante en remontant vers la surface. Nous exprimons donc la fonction de fixation par :

$$U_{\text{fixation}} = U_0 (e^{k_2 t} - 1)$$

expression uniquement valable au début de la fixation. Le bilan global de ce premier modèle s'écrit alors :

$$(1) \quad U = U_0 (e^{-k_1 t} + e^{k_2 t} - 1)$$

à $t=0$ et $U = U_0$.

Pour l'ionium et le protoactinium, leurs bilans s'écrivent à partir de :

$$(2) \quad dX / dt = \lambda_y YU - \lambda_x X$$

pour $X = I_o$, $y = 234$; pour $X = Pa$, $y = 235$

$\lambda_y YU$ correspond à la production par désintégration du père U , $\lambda_x X$ à la perte par désintégration naturelle.

En supposant, dans une première approximation, que I_o et Pa sont inertes, nous ne leur affectons pas de termes de mouvement par érosion mécanique et l'intégration de (2) par rapport aux temps donne :

$$(3) \quad (X) = U \left[\frac{\lambda}{\lambda - k_1} (e^{-k_1 t} - e^{-\lambda t}) + \frac{\lambda}{\lambda + k_2} (e^{k_2 t} - e^{-\lambda t}) + 2 e^{-\lambda t} - 1 \right]$$

pour $X = I_o$, $\lambda = \lambda_{I_o} = \ln 2 / T_{I_o}$ avec $T_{I_o} = 75\,200$ ans ; pour $X = Pa$, $\lambda = \lambda_{Pa} = \ln 2 / T_{Pa}$ avec $T_{Pa} = 34\,300$ ans
(X) activité de $X = \lambda_x X$; $(X_0) = (U_0)$ équilibre initial

Un programme de calcul permet de rechercher les coïncidences entre les expressions analytiques de U , I_o/U , Pa/U (sol et mica) avec les données expérimentales. Il s'agit du programme GAUSHASS réalisé par PROVOST.

Il apparaît qu'un échantillonnage plus complet au niveau du front d'altération définirait mieux la courbe de perte qu'un échantillonnage régulier dans le profil.

Pour une coïncidence « modèle - données » correcte, nous calculons les paramètres k_1 et k_2 . On détermine alors la vitesse de progression du front d'altération avec $V = Z/t$, Z étant la distance roche mère \rightarrow horizon :

$$V = 10^{-3} \text{ cm/an}$$

Mais cette « coïncidence » « modèle - données » est moyenne. Elle ne respecte pas suffisamment la phase de fixation vers le haut du profil (fig. 3).

D'autre part, l'accumulation observée pour le protoactinium au sommet de l'arène hétérogène interdit l'écriture du bilan global le concernant. Ce modèle ne vérifie les données que pour la phase de perte. Les résultats convergent avec ceux d' I_o/U . Pour plus de rigueur, l'équation (2) pour Pa s'écrit :

$$(4) \quad d^{231}Pa / dt = \lambda_{235U}^{235U} - \lambda_{Pa}^{231Pa} + K_f Pa - K_m Pa$$

où K_f = facteur de fixation, K_m = facteur de perte.

Ce modèle a donc été une première étape pour l'estimation d'une vitesse. Il est principalement critiquable pour la modélisation de la fonction fixation (croissance infinie de l'uranium avec z , présence du terme U_0).

2. Deuxième modèle

Nous modifions uniquement la fonction fixation, sans changer l'ordre des processus :

$$(5) \quad \begin{aligned} \text{fonction perte : } & U = U_0 e^{-K_1 Z/V} \\ \text{fonction fixation : } & U = U_s (1 - e^{-K_2 (Z - Z_F)/V}) \text{ pour } Z > Z_F \end{aligned}$$

Z = distance front d'altération \rightarrow horizon ; Z_F = niveau de début d'adsorption de l'uranium ; U_s = concentration limite d'uranium adsorbé

Contrairement au modèle précédent, la fixation ne commence qu'après le début de l'altération. Et cette fonction croît jusqu'à la valeur U_s qui dépend des conditions du sol. Nous trouvons ainsi avec $K_1/V = 1,7 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ et $K_2/V = 1,9 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$:

$$Z_F = 500 \text{ cm}$$

La coïncidence « modèle - données » est alors bonne (fig. 3). Nous injectons K_1/V , K_2/V et Z_F dans l'expression (6) de I_o/U :

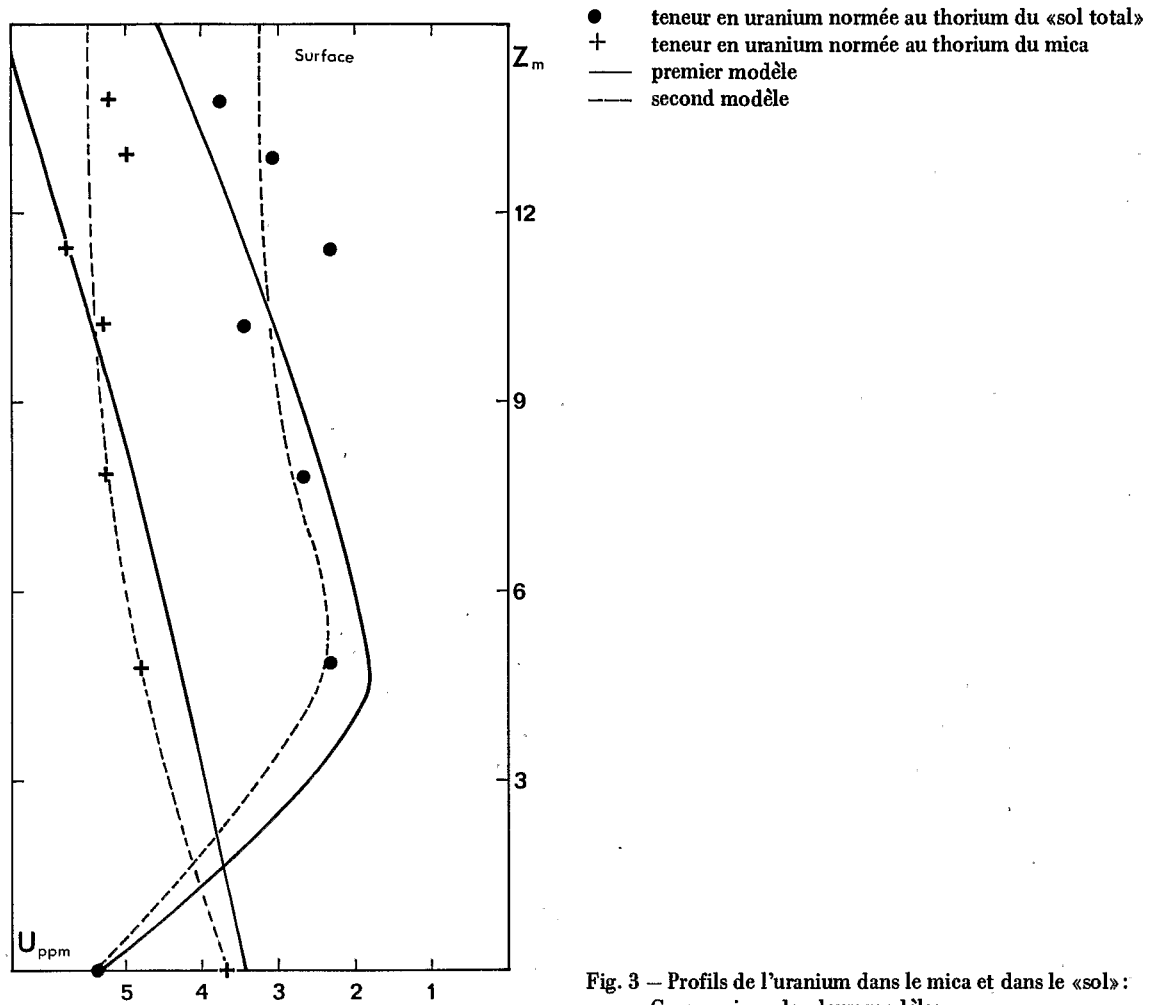


Fig. 3 – Profils de l'uranium dans le mica et dans le «sol»: Comparaison des deux modèles

$$(6) \quad (I_0/U) = \frac{\left(\frac{\lambda_{I_0}}{\lambda_{I_0} - K_1}\right) \left(e^{-\frac{K_1 Z}{V}} - e^{-\frac{\lambda_{I_0} Z}{V}}\right) + \frac{U_s}{U_0} \left(1 - e^{-\frac{\lambda_{I_0}(Z-ZF)}{V}}\right) - \frac{U_s \lambda_{I_0}}{U_0 (\lambda_{I_0} - K_2)} \left(e^{-\frac{K_2(Z-ZF)}{V}} - e^{-\frac{\lambda_{I_0}(Z-ZF)}{V}}\right) + e^{-\frac{\lambda_{I_0} Z}{V}}}{e^{-\frac{K_1 Z}{V}} + \frac{U_s}{U_0} \left(1 - e^{-\frac{K_2(Z-ZF)}{V}}\right)}$$

pour $Z \gg ZF$; (I_0/U) en activités

et cherchons la meilleure valeur de V pour que le profil I_0/U calculé soit le plus proche possible du profil mesuré. La vitesse de progression du front d'altération serait ainsi de :

$$V = 7.10^{-3} \text{ cm/an } \pm 10\%$$

Quelles que soient les perturbations dans la continuité des conditions d'altération, l'équation chronométrique (6) enregistre pour ce profil le temps écoulé depuis le déclenchement du déséquilibre. Le paramètre temps est une variable indépendante, et l'estimation relative des différents types d'érosion est ainsi évitée.

Dans l'équation (6), nous quantifions les mouvements éventuels de l'uranium. Nous remettons ainsi à l'heure notre chronomètre sans cesse perturbé par l'altération. Nous obtenons alors une vitesse globale de progression du front d'altération de la roche. Pour ce profil ferrallitique camerounais, et avec le second modèle considéré, le front d'altération aurait mis :

$$214\ 000 \text{ ans } (\pm 10 \%)$$

pour décrire le profil actuel.

CONCLUSION

Nous présentons une nouvelle méthode de détermination de la «vitesse d'altération», basée sur le déséquilibre radioactif uranium-thorium. Le premier essai d'application porte sur un sol ferrallitique du Cameroun. Pour cela, nous avons mesuré dans le profil d'altération les teneurs et les rapports isotopiques de l'uranium, du thorium et du protoactinium. Les distributions de ces éléments ont été ensuite représentées par des équations mathématiques simples. Ce travail nous a permis, pour une coïncidence «modèle - données», de calculer la vitesse de progression du front d'altération.

REMERCIEMENTS. — L'application de la méthode du déséquilibre radioactif à la datation des sols a été proposée par C.J. ALLEGRE. Les mesures ont été réalisées au Laboratoire associé au CNRS LA 196, qui a ainsi assuré la mise en route des travaux du Laboratoire de Pédologie. Ce travail a bénéficié par ailleurs de contributions de l'ORSTOM et du CNRS, sous forme d'allocations de recherche attribuées à A.P. BOULAD. Nous remercions également Melle Hélène PAQUET, du Centre de Géochimie de la Surface et de Sédimentologie de Strasbourg, pour les déterminations minéralogiques effectuées sur ces échantillons.

Manuscrit déposé le 5 octobre 1977

Summary

A new method for calculating the «weathering rate» of a soil is proposed which is based on the uranium-thorium radioactive disequilibrium. The application of this method to a ferrallitic soil from Cameroon permits the authors to value the progression rate of its weathering face as 7.10^{-3} cm/year.

Zusammenfassung

Wir schlagen eine neue Methode zur Berechnung der «Verwitterungsgeschwindigkeit» eines Bodens vor, die auf dem radioaktiven Uranium-Thorium Ungleichgewicht beruht. Die Anwendung dieser Methode auf einen ferrallitischen Boden aus Kamerun erlaubt es uns die Geschwindigkeit mit der seine Verwitterungsfront fortschreitet auf 7.10^{-3} cm/Jahr zu bestimmen.

BIBLIOGRAPHIE

- ANDREYEV A.G., KOMAROV V.S., LOPATKINA A.D. et SERGEYEV A.N. (1969) — Evaluation of the ages of uranium-bearing hydromorphic soils from the accumulation of thorium 230. *Geochem. Internat.*, 6, 3, p. 500.
- BERNAT M. (1969) — Utilisation des méthodes basées sur le déséquilibre radioactif dans la géologie du Quaternaire. *Cah. ORSTOM*, sér. Géol., 1, 2, p. 3 - 27.
- BERNAT M. (1972) — Chronométrie géologique à l'aide des isotopes à vie moyenne de l'uranium et du thorium. *Thèse Sci. Paris*, multigr., 200 p.

- BERTINE K.K., CHAN L.H. et TUREKIAN K.K. (1970) — Uranium determinations in deep-sea sediments and natural waters, using fission tracks. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 34, p. 641 - 648.
- BOCQUIER G. et MULLER J.P. (1973) — Les coupes du chemin de fer transcamerounais de Belabo à Ngaoundéré. Reconnaissance pédologique. Rapport ORSTOM, Yaoundé, multigr., 29 p.
- BOULAD A., CONDOMINES M., BERNAT M., MICHARD G. et ALLEGRE C.J. (1975) — Vitesse d'accrétion des nodules de manganèse des fonds océaniques. *C.R. Acad. Sci. Paris*, 280, D, p. 2425 - 2428.
- BOURRIÉ G. (1977) — L'acquisition de la composition chimique des eaux et l'altération des granites des Vosges et de Margeride. Vème Réunion. ann. Sci. Terre, Rennes, p. 105.
- CERRAI E., DUGNANI R., LONATI GAZZARINI F. et TONGIORGI E. (1965) — Il metodo ioni-uranio per la determinazione dell'età dei minerali calcari recenti. *Rend. Soc. Min. Ital.*, p. 21 - 47.
- CONDOMINES M. (1974) — Etude géochronologique et géochimique du volcanisme récent du Costa Rica à l'aide du déséquilibre radioactif ^{230}Th - ^{238}U . Thèse 3ème cycle, Paris, 69 p.
- CORBEL J. (1951) — Erosion chimique des granites et silicates sous climats chauds. *Rev. Géogr. phys. Géol. dyn.*, 1, 2, p. 4 - 8.
- D'ALLAGIO M. (1971) — A study of the circulation of uranium in the supergene environment in the Italian Alpine Range. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 35, p. 47 - 59.
- FRITZ B. et TARDY Y. (1973) — Etude thermodynamique du système gibbsite-quartz-kaolinite-gaz carbonique. Application à la genèse des podzols et des bauxites. *Sci. Géol., Bull.*, 26, p. 339 - 367.
- GAC J.Y. et PINTA M. (1973) — Bilan de l'érosion et de l'altération en climat tropical humide. Estimation de la vitesse d'approfondissement des profils. Etude du bassin versant de l'Ouham (R.C.A.) *Cah. ORSTOM*, sér. Géol., V, 1, p. 83 - 96.
- GARRELS R.M. et MACKENZIE F.T. (1971) — Evolution of sedimentary rocks. Norton Cie, New York, 397 p.
- GOLDBERG E.D. (1968) — Ionium/thorium geochronologies. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 4, p. 17 - 21.
- GOLDBERG E.D. et KOIDE M. (1962) — Geochronology studies in deep-sea sediments by Io/Th method. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 26, p. 417 - 450.
- HANSEN R.O. et STOUT P.R. (1968) — Isotopic distributions of uranium and thorium in soils. *Soil Sci.*, 105, p. 44 - 56.
- JOHNSON N.M., LIKENS G.E., BORMANN F.F. et PIERCE R.S. (1968) — Rate of chemical weathering of silicate minerals in New Hampshire. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 32, p. 531 - 545.
- KAUFMAN A. (1969) — The Th^{232} concentration of surface ocean water. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 33, p. 717 - 724.
- KU T.L. (1966) — Uranium series disequilibrium in deep-sea sediments. Columbia University, Ph. D. Thesis.
- LASSERRE M. (1961) — Etude géologique de la partie orientale de l'Adamaoua (Cameroun central). *Bull. Dir. Mines Géol.*, République du Cameroun, 4, 130 p.
- LENEUF N. (1959) — L'altération des granites calco-alcalins et des granodiorites en Côte-d'Ivoire Forestière, et les sols qui en sont dérivés. Thèse Sci. Paris, 210 p.
- MARTIN D. (1970) — Quelques aspects des zones de passage entre surfaces d'aplanissement du Centre Cameroun. *Cah. ORSTOM*, sér. Pédol., VIII, 2, p. 219 - 241.
- MOORE W.S. (1967) — Amazon and Mississippi river concentrations of U, Th and Pa isotopes. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 2, p. 231 - 234.
- NORDEMAN L.M. (1977) — Etude des vitesses d'altération des roches au moyen de l'uranium utilisé comme traceur naturel. Application à deux bassins du Nord-Est brésilien. Thèse Sci. Paris (en préparation).
- PICCIOTTO E. (1954) — Les isotopes du thorium dans l'océan et les sédiments océaniques. Inst. Internat. Univers. Sci. Nucl., Bruxelles, Rapport annuel, p. 87 - 92.
- PLILER R. et ADAMS J.S. (1962) — The distribution of Th and U in a Pennsylvanian weathering profile. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 26, p. 1137 - 1146.
- ROSHOLT J.N., EMILIANI C., GEISS J., KOKZY F. et WANDERSKY P. (1961) — Absolute dating of deep-sea cores by the $^{231}\text{Pa}/^{230}\text{Th}$ method. *J. Geol.*, 69, p. 162 - 185.

- ROSHOLT J.N., DOE B.R. et TATSUMO M. (1966) – Evolution of the isotopic composition of U and Th in soil profiles. *Geol. Soc. Amer. Bull.*, 77, p. 987 - 1004.
- ROSHOLT J.N. (1967) – An open system model for uranium series dating of Pleistocene samples. *Internat. Atom. En. Agenc.*, Vienna, p. 293 - 299.
- ROSHOLT J.N. et SZABO B.J. (1969) – Determination of Pa by neutron activity of α spectrometry. *Internat. Atom. En. Agenc.*, Vienna, p. 368 - 375.
- SACKETT W.N. (1966) – Manganese nodules : $^{230}\text{Th}/^{231}\text{Pa}$ ratios. *Science*, 154, p. 646 - 647.
- SAKANOUE M., KONISHI K. et KOMURA K. (1967) – Stepwise determination of Th, Pa and U isotopes and their applications in geochronological studies. *Internat. Atom. En. Agenc.*, Vienna, p. 313 - 329.
- SEGALEN P. (1967) – Les sols et la géomorphologie du Cameroun. *Cah. ORSTOM*, sér. Pédol., V, 2, p. 137 - 187.
- SIEFFERMANN G. (1969) – Les sols de quelques régions volcaniques du Cameroun. Thèse Sci. Strasbourg et *Mém. ORSTOM*, 66, (1973), 183 p.
- TARDY Y. (1969) – Géochimie des altérations. Etude des arènes et des eaux de quelques massifs cristallins d'Europe et d'Afrique. *Mém. Serv. Carte géol. Als. Lorr.*, 31, 199 p.
- TUREKIAN K.K. et CHAN L.H. (1971) – Marine geochemistry of the U isotopes ^{230}Th and ^{231}Pa . *Geochemistry and Cosmochemistry*, Universities for laget 1971, Oslo, p. 311 - 320.