Pédologie/Pedology

و المسلمة الما

## Importance de la texture des kaolinites dans la caractérisation des couvertures ferrallitiques. Conséquences sur l'organisation et la stabilité physique des sols

Henri ROBAIN, Daniel TESSIER, Michel GRIMALDI et Françoise ELSASS

 $R\acute{sum\acute{e}}$  – Dans les sols ferrallitiques de Guyane Française, la taille et la forme des cristaux de kaolinite sont des indicateurs de la pédogenèse. Ces paramètres stériques permettent de donner une signification plus complète aux résultats de l'analyse granulométrique. Ils conduisent aussi à montrer la contribution de l'assemblage des cristallites et de la tension superficielle à l'interface eau/argile, vis-à-vis de la stabilité structurale de ces sols.

# On the importance of kaolinite texture in ferrallitic soils. Consequences for physical stability and soil organization

Abstract – In ferrallitic soils from French Guyana, size and shape of kaolinite crystallites are pedogenetic features. Those steric parameters allow a better comprehension of particle size analysis. They also show the contribution of both crystallite fabric and water surface tension to structural stability of those soils.

Abridged English Version – 1. INTRODUCTION. – The purpose of this paper is to show the variability of kaolinite size and shape in ferrallitic soils. Those steric parameters are related to the cohesion of clay fabrics and particularly of microaggregates bigger than  $2 \mu m$ resistant to dispersive treatments ("pseudo-sands") ([1] to [4]).

2. MATERIAL AND METHODS. - A saprolite and an oxic horizon from French Guyana ([6], [8]) (Table I) have been characterized in the laboratory for particle-size distribution, X-ray diffraction, thermo-ponderal analysis, water retention curves, mercury porometry studies and with microscopic observations of clay organization (TEM).

3. RESULTS AND INTERPRETATIONS. – The mineralogical constitution of the two horizons is the same (kaolinite and iron hydroxides). It is shown that in the saprolite, after a dispersive treatment, one third of the clay minerals is contained in particles bigger than  $2 \mu m$ . After the same treatment, all the clay minerals of the oxic horizon are found in a granulometric class smaller than  $2 \mu m$  (Table II). Thus, microscopic observations and physical tests were undertaken to specify this phenomenon.

There are polycrystalline microaggregates in both horizons (*Photos* A2 and B2), but steric characteristics of kaolinite crystallites, their organisation and their association with iron hydroxides are different. In the saprolite two types of large kaolinite crystallites (100 to 300 nm), segregated from iron hydroxides, can be observed: plane crystallites closely gathered face to face (*Photo* C2) and flexuous crystallites loosely gathered by tangential connections (*Photo* C1). The first type is largely dominant and can be much bigger than 2  $\mu$ m (*Photo* A1). In the oxic horizon there are only small plane crystallites (100 to 100 nm) closely gathered face to face to face and intimately associated with iron hydroxides (*Photo* D).

Thus it appears that steric parameters of crystallites lead to three types of microscopic organization, two for the saprolite: "plane macrocrystalline" and "flexuous macrocrystalline", one for the oxic horizon "plane microcrystalline aggregated with iron hydroxides" (Table III).

14 MAI 1991

0764-4450/90/03110239 \$ 2.00 © Académie des Sciences

ORSTOM Fonds Documentaire N° : 31.905 ex 1

Cote

Â

Note présentée par Georges Pédro.

- Iron hydroxides cannot play a significant role in the cohesion of the first two types of organization. Both surface tension between water and clay and surface reactivity of clay ensure the cohesion of polycrystalline fabrics ([9], [10], [11]). Those factors linked to the soil moisture and to steric parameters of kaolinite [9] have to be taken into account to explain the microstructural stability of the ferrallitic soils. The dominant organization of the saprolite is totaly dispersable, but in this horizon, weakly transformed by pedogenesis, monocrystals themselves can reach the silt size.

- For the third organization, the combination of kaolinite and iron hydroxides ensures the stability of very small microaggregates (smaller than 1  $\mu$ m) ([1] to [4]). Thus it appears that in ferrallitic soils even smaller than 2  $\mu$ m particles can be stable polycrystalline fabrics. The study of the total <2  $\mu$ m fraction is not accurate enough to show evidence of such microstructures. Only TEM microscopic observations can be made to reveal them.

It also appears that in each of those organization types, water retention properties and intercrystallites packing voids are different [12] (*Figs.* A, B). Particularly for low potentials (<-1 MPa), in the case of plane crystal fabrics the water content is indicative of the clay mean size: when water content is high, clay size is small and vice versa.

4. CONCLUSION. - Finally, by taking steric parameters into account in the mineralogical characterization of oxisols, it allows a better understanding of granulometric results and a more comprehensive analysis of the structural stability factors.

2. MATÉRIAUX ET MÉTHODES. – L'étude a porté sur les horizons B (respectivement notés H1 et H2) de deux sols ferrallitiques de Guyane française qui dérivent tous deux de l'altération d'une même roche (gneisso-migmatite). H1 présente encore de nombreux traits hérités de la roche. Ce n'est donc pas un horizon pédologique, mais une allotérite faiblement transformée [7]. En revanche, dans H2 ces traits sont totalement effacés par la pédogenèse ferrallitique, il s'agit alors d'un horizon oxique [6]. Les caractéristiques macroscopiques de terrain sont indiquées dans le tableau I [8].

Ces deux matériaux ont aussi été étudiés en laboratoire de manière approfondie :

- La granulométrie a été établie après destruction de la matière organique à l'eau oxygénée et en utilisant le pyrophosphate de sodium comme dispersant.

- La caractérisation minéralogique repose sur la diffraction des rayons X pour la fraction  $<2 \mu m$  et l'analyse thermogravimétrique pour la terre fine (<2 mm).

L'étude de l'organisation microscopique a porté sur des agrégats à structure conservée, mis en équilibre avec un potentiel de l'eau de -3 kPa (pF 1,5). L'eau a été remplacée successivement par du méthanol, de l'oxyde de propylène et une résine Epoxy (SPURR). Des sections ultra-minces, de 50 nm d'épaisseur, ont alors été observées par microscopie électronique à transmission (MET).

<sup>1.</sup> INTRODUCTION. – On admet généralement que la composition de la phase argileuse des sols ferrallitiques est simple. Elle se définit par la présence quasi exclusive de kaolinite et d'oxy-hydroxydes de fer (hématite et goethite) et parfois de gibbsite. La kaolinite et les oxy-hydroxydes de fer s'associent fréquemment pour former des microagrégats cohérents : les « pseudo-sables » ([1] à [4]). Le propos de cette Note est de montrer la variabilité des caractéristiques stériques des cristallites de kaolinite (taille et forme), puis de discuter du rôle de ces paramètres quant à la cohésion des « pseudo-sables », en particulier vis-à-vis d'un traitement dispersif.

#### C. R. Acad. Sci. Paris, t. 311, Série II, p. 239-246, 1990

TABLEAU I

Caractéristiques macroscopiques de terrain. Field macroscopic characteristics.

•	HI	H2	,
Texture	Argilo-sableux Massif	Sablo-Argileux Polyédrique	
Macroporosité	Faible	sub-anguleux Importante	

#### TABLEAU II

Caractéristiques minéralogiques et granulométriques (% de la terre fine). Mineralogical and particle size characteristics (% of particles smaller than 2 mm).

	HI	H2
	(%)	(%)
<2 µm	28	22
Quartz	62	78
Kaolinite (K)	36	20
Gibbsite	0	Traces
Illite	Traces	0
Goethite (Go)	2	2
Hématite	Traces	Traces
(K)+(Go)	38	22

#### TABLEAU III

Les trois types d'organisations observées. The three observed types of organization.

	HI		H2	
	01	O2	O3	
Kaolinite :				
Forme	Plan.	Flex.	Plan.	
Taille (μm)	10-0,1	0,3-0,1	0,1-0,01	
Organisation	F/F	Т	F/F	
Association K-Go	Faible	nulle	forte	

Légende : Plan. : planaire, Flex. : flexueux ; F/F : face/face, T : raccordement tangentiel.

- La caractérisation physique comprend : la détermination des courbes de rétention d'eau, pour des potentiels de l'eau inférieurs à -1MPa (pF 4), sur des mottes de quelques centimètres cubes non séchées au préalable et la détermination des courbes d'intrusion de mercure, pour des pressions comprises entre 1 et 19 MPa, sur des agrégats d'environ 0,5 cm<sup>3</sup>, séchés progressivement à l'air puis à l'étuve (105°C). Les résultats de ces caractérisations physiques sont exprimés en indice d'eau ou de vide (water ou void ratio).

3. RÉSULTATS ET DISCUSSIONS. – Les deux horizons sont très argileux et l'analyse granulométrique montre que la fraction  $<2 \,\mu m$  est plus élevée dans H1 que dans H2 (tableau II). La caractérisation minéralogique confirme la similitude des constituants majeurs (quartz, kaolinite et goethite), généralement admise pour les sols ferrallitiques. Toutefois, H1 présente des traces de minéraux argileux hérités (illites) alors que H2 ne contient que des minéraux de néoformation (kaolinite et traces de gibbsite). De plus, en comparant les résultats de l'analyse quantitative avec ceux de la granulométrie, on note que la somme kaolinite-goethite est supérieure de 10 points au poids d'argile pour H1 et équivalente pour H2. Il apparaît donc qu'après le traitement dispersif, dans le cas de H1 un tiers de la kaolinite est contenu dans des particules de la taille des limons, alors que pour H2 toute la kaolinite se retrouve dans la classe des argiles granulométriques. Le problème est maintenant de savoir si cette différence correspond à l'existence de pseudo-sables dans H1 (et non dans H2).

L'observation en MET de la forme et de l'organisation des cristallites de kaolinite révèle des différences importantes entre les deux matériaux :

(a) H1 comporte deux types de cristallites de grande taille (100 à 300 nm).

- Le type dominant est planaire, sa taille atteint parfois quelques microns (pl. A1). Ces cristallites s'assemblent de façon compacte, face contre face, définissant ainsi des microagrégats polycristallins de 4 à 5 µm de diamètre (pl. A2). Ces édifices contiennent aussi des nanoagrégats d'hydroxydes de fer, d'environ 50 nm de diamètre, juxtaposés aux kaolinites planaires (pl. C2).

- L'autre type, moins fréquent, présente des formes flexueuses (*pl.* C1). Ces cristallites s'assemblent de façon lâche par raccordement tangentiel face contre face. A l'inverse des précédents, ces édifices ne contiennent pas d'hydroxydes de fer.

(b) H2 contient exclusivement des cristallites planaires de petite taille (10 à 100 nm) qui s'empilent de façon compacte, face contre face (pl. D). Cet assemblage définit des microagrégats de taille comprise entre 1 et 2  $\mu$ m (pl. B2) où les hydroxydes de fer sont intimement associés à la kaolinite. Ils se présentent sous forme de nanoagrégats, de 5 à 10 nm de diamètre, répartis de façon homogène dans tout l'édifice.

Nous pouvons donc distinguer trois types d'organisations qui correspondent à trois espèces de kaolinite : deux pour H1, macrocristallin planaire (O1) et macrocristallin flexueux (O2) et un pour H2, microcristallin planaire associé aux hydroxydes de fer (O3) (tableau III).

L'observation de l'organisation des cristallites est complétée par des mesures physiques. Les courbes de rétention d'eau indiquent qu'à -1 MPa (pF4) les volumes d'eau retenus par les deux matériaux sont peu différents (*fig.* A). En revanche, à -10 MPa (pF5), H2 contient encore 75% du volume d'eau retenu à -1 MPa, alors que H1 n'en possède plus que 41%. Enfin, à -100 MPa, H2 contient encore deux fois plus d'eau que H1. Pour les potentiels inférieurs à -1 MPa, le volume d'eau retenu par H2 est donc toujours plus important que celui retenu par H1. On peut en déduire que la taille moyenne des vides qui retiennent l'eau à ces potentiels est plus petite pour H2 que pour H1. La détermination, par porosimétrie au mercure, du spectre poral des agrégats confirme effectivement que le mode du rayon équivalent des vides est de 70 nm pour H1 et de 28 nm pour H2 (*fig.* B).

Les deux méthodes employées convergent vers les mêmes conclusions. Il apparaît donc clairement que les organisations microscopiques qui caractérisent chacun des deux matériaux ménagent des espaces poraux différents.

4. INTERPRÉTATIONS. – Elles peuvent être essentiellement réalisées en se référant aux observations en MET et aux courbes de rétention d'eau :

Ainsi pour H1, les oxy-hydroxydes de fer sont *dissociés* de la kaolinite. Les particules kaolinitiques limoneuses ne sont donc pas des pseudo-sables, dont la cohésion s'explique-rait par les associations argiles-hydroxydes de fer ([1], [4]). D'autres facteurs doivent être

242

Henri Robain





A. Par les courbes de rétention d'eau. B. Par porométrie au mercure. Microvoid characterization. A. With water retention curves. B. With mercury porometry

C. R., 1990, 2e Semestre (T. 311)

#### PLANCHE II/PLATE II

### ORGANISATION MICROSCOPIQUE

A l'échelle de l'agrégat

ALLOTERITE: H1

A1 Assemblage "compact"

HORIZON OXIQUE: H2



l.

B1 Assemblage "poreux"





B2 Petits assemblages polycristallins

A l'échelle du micro-agrégat





C1 Assemblage T & B/F de grandes kaolinites sans oxydes de fer



A2 Grands assemblages

polycristallins

C2 Assemblage F/F de grandes kaolinites oxydes de fer ségrégés



D Assemblage F/F
de petites kaolinites
associées aux oxydes de fer

#### C. R. Acad. Sci. Paris, t. 311, Série II, p. 239-246, 1990

,ħ.1

envisagés pour expliquer l'existence de ce type de particule :

- En ce qui concerne les kaolinites planaires, l'organisation des cristallites est proche de celle mise en évidence pour les illites ([8], [9]). Ce sont donc essentiellement les forces de tension superficielle de faible énergie, au niveau des interfaces eau/argile, qui assurent la cohésion des édifices polycristallins. Chaque cristallite est cependant une entité morphologique séparée au cours de la dispersion. Toutefois, dans cet horizon peu transformé par la pédogenèse, les cristallites de kaolinite eux-mêmes peuvent atteindre la taille des limons granulométriques.

- Dans le cas des kaolinites flexueuses, l'organisation évoque celle des smectites. Au vu de leur forme, on peut supposer que ces kaolinites correspondent au premier stade d'une paragenèse à halloysite. Ces prémices de transformation minéralogique induisent une organisation très différente de la précédente : le caractère flexueux tend à engendrer de grandes surfaces de contact entre les cristallites et donc un grand nombre de forces d'interaction à courte distance. en conséquence, la cohésion de cet édifice doit être importante.

En revanche H2 est constitué de cristaux de kaolinite de très petite taille, *associés* aux hydroxydes de fer. Leur organisation en « micro-pseudo particules » n'est pas détruite par le traitement dispersif. Ainsi, même si toute la kaolinite est contenue dans la fraction argileuse, cela ne signifie pas nécessairement que les cristallites de kaolinite soient isolés : ils peuvent parfaitement s'agréger en pseudo particules de très petite taille.

Ces différences de texture des argiles sont confirmées grâce à l'analyse des courbes de rétention d'eau. En effet, il a été montré que seuls les vides résultant de l'arrangement des cristallites d'argile peuvent retenir l'eau aux potentiels inférieurs à -1 MPa [12]. Dans le cas d'un assemblage face/face de cristallites rigides, les courbes de rétention d'eau indiquent que le volume de vide intercristallites est d'autant plus important que la taille des cristallites est petite; de même les courbes d'injection de mercure font apparaître que le rayon de constriction de ces vides est d'autant plus petit que la taille des cristallites est petite [9]. Il en résulte qu'ici les différences de comportement physique peuvent s'interpréter en terme de différence de la taille modale des cristallites de kaolinite planaires : celle-ci est environ dix fois plus grande pour H1 que pour H2, complétant ainsi, mais de façon quantitative, les observations en MET.

5. CONCLUSION. – Cette étude montre que dans les sols ferrallitiques, les cristallites de kaolinite sont susceptibles de présenter des tailles et des habitus variables. En particulier, il apparaît ici que ces derniers peuvent atteindre la taille des limons ou avoir des formes flexueuses qui se rapprochent de celles des halloysites. Mais ces variantes ne se distinguent pas clairement avec les analyses usuelles (granulométrie, DRX et ATP), des observations directes en microscopie électronique sont nécessaires pour les déceler convenablement.

Ces observations donnent aussi des renseignements sur la nature et l'organisation de la fraction inférieure à 2  $\mu$ m. Il apparaît notamment que même des particules <2  $\mu$ m peuvent être des entités polycristallines cimentées par les hydroxydes de fer.

Par ailleurs, d'un point de vue pédogénétique, on remarque que les macrocristallites planaires de l'allotérite sont totalement dispersables dans l'eau. La structure continue de cet horizon révèle ainsi une faible stabilité. Il s'agit là d'un comportement normal dans la mesure où la cohésion est assurée par la tension superficielle à l'interface eau/argile ou par les liaisons électrostatiques à courte distance, qui dans le cas de la kaolinite sont de faible énergie. Il est ainsi confirmé que les grandes kaolinites planaires, qui sont caractéristiques d'une faible évolution pédogénétique, conduisent nécessairement à des structures continues et physiquement peu stables.

A l'inverse, la grande stabilité des organisations microscopiques de l'horizon oxique, assurée par les liaisons kaolinite-hydroxydes de fer, se traduit par une macrostructure fortement poreuse. La petite taille des cristallites de kaolinite et une répartition homogène des hydroxydes de fer est donc ici l'apanage d'une évolution pédologique très élaborée allant de pair avec une grande stabilité des assemblages.

En définitive, les résultats obtenus font bien apparaître l'importance de la prise en compte des paramètres stériques dans la caractérisation minéralogique des sols ferrallitiques. Ceux-ci permettent ainsi de mieux comprendre l'origine de la cohésion des structures microagrégées et par voie de conséquence de bien caractériser le comportement physique de ces matériaux pédologiques.

Note remise le 30 avril 1990, acceptée le 18 mai 1990.

#### Références bibliographiques

[1] A. CHAUVEL et G. PÉDRO, C. R. Acad. Sci. Paris, 264, série D, 1967, p. 2089-2092.

[2] A. EL SWAIFY et W. W. EMERSON, Soil Sci. Soc. Am. Proc., 39, 1975, p. 1056-1063.

[3] A. CHAUVEL, G. PÉDRO et D. TESSIER, Sci. du sol, 2, 1976, p. 101-113.

[4] P. CAMBIER et R. PROST, Agronomie, 1, (9), 1981, p. 713-722.

[5] C.P.C.S., Classification des sols, 1967, E.N.S.A. éd., France, 87 p.

[6] U.S.D.A., Agriculture Handbook, 436, 1975, U.S.D.A.-S.C.S. éd., U.S.A., 754 p.

[7] Y. CHATELIN, Init. Doc. Techn., 24, 1974, ORSTOM éd., Paris, 144 p.

[8] H. ROBAIN, Thèse, Univ. Paris-VI, 1989, 189 p.

[9] D. TESSIER, Thèse, Univ. Paris-VII, 1984, 361 p.

[10] M. AMOURIC et A. BARONNET, Phys. Chem. Min., 9, 1983, p. 146-159.

[11] H. BEN RHAIEM, C. H. PONS et D. TESSIER, Proc. of the Int. Clay Conf., Denver 1984, 1987, The Clay Soc. éd., U.S.A., p. 292-297.

[12] A. BRUAND et D. TESSIER, Micromorphologie des sols/Soil micromorphology, A.F.E.S. éd., France, p. 31-35.

H. R. : ORSTOM, 70-74, route d'Aulnay, 93140 Bondy;

D. T. et F. E. : C.N.R.A., route de Saint-Cyr, 78000 Versailles ; M. G. : ORSTOM, B.P. n° 165, 97323 Cayenne Cedex.