

Cristallogénèse du gypse fibreux et évolution en monocristaux tabulaires (Ria de la Casamance, Sénégal)

Jean Jacques GUILLOU, Jean-Pierre DEBENAY, Jean PAGES et Geneviève VILLEMEN

Résumé — Les gypses tabulaires ou lenticulaires, apparus en juin 1986 sur le fond de la ria sursalée de la Casamance, proviennent de l'association ordonnée de fibres (diamètre de 1 à 2 μm), empilées parallèlement à p et g^1 . La forme externe de ces gypses, à faces bombées ou planes, est commandée par la disposition locale de la trame fibreuse, qui s'homogénéise partiellement en monocristal, en quelques semaines.

Crystallogenesis of fibrous gypsum and evolution to tabular monocrystals, (Casamance River, Senegal)

Abstract — In June 1976, tabular and lenticular gypsum crystals were collected from the supersaturated Casamance ria. They are composed of an ordered association of fibres (diameter from 1 to 2 μm), having the same crystalline orientation, stacked parallel to (001) and (010). The distribution of straight or curved faces is determined by the local disposition of the fibrous frame, which reorganized in a few weeks forming monocrystals.

Abridged English Version — ENVIRONMENT. — At present, the Casamance water course is filled by salty waters of marine origin to 250 km inland. 100 km upstream, a sill limits the upper course, where the waters are shallow and very confined ([1], [2]). Different factors, such as, 1° a very small valley basin of 3,700 km², 2° precipitation restricted to the period from June to October, with a rainfall of 1,000 mm, but an evaporation of 1,600 mm, and 3° the present arid stage in western Africa, combine to cause a cessation of river flow during the dry season [3]. Consequently, the confined waters of the upper stream evaporate and concentrate, giving rise to brines. This phenomenon attracts a continuous influx of sea water from the lower estuary. A salinity maximum of 176‰ measured 233 km upstream was reached in June 1986. This degree of salinity exceeds the gypsum supersaturation limit of about 150‰. In these conditions, gypsum was precipitated; however, during the following rain season it was redissolved.

FORMATION OF GYPSUM. — The bottom of the upstream part of the ria is filled with a black mud, which is composed of angular detritic micrometric quartz as well as some zircon and the clay minerals kaolinite, illite and smectite. The organic content is abundant and consists of ligneous fragments as well as numerous fine particles which produce the black colour in the sediment. Systematic measurements of dissolved organic matter gave 5-10 mg.l⁻¹ in open brines, and at least 20 mg.l⁻¹ in interstitial brines. Neoformed pyrite is common. In June 1986, the gypsum crystals which formed on this black sludge at the bottom of the ria, were sampled at two locations, 210 to 230 km inland [4]. In these places, brine temperatures were respectively 30.1 and 30.7°C; pH 7 and 6.69; salinities 136 and 172‰, water depth 1.8 and 1.5 m. The crystals are tabular to lenticular (Fig. 1), isolated or twinned, and rarely associated. On the outside they are whitish in colour, but yellow-green in the interior, which is rich in inclusions. The largest of crystals range up to 1.8 mm in size. The majority are in the 250-1,000 μm size range, with the smallest crystals ranging

Note présentée par Georges MILLOT.

0764-4450/91/03130399 \$ 2.00 © Académie des Sciences

O. R. S. T. O. M. Fonds Documentaire 23 OCT. 1991
N° : 34.837
Cpte : B M ex 1 P65

down to 50 μm in size. The (001) face shows the greatest development, giving the tabular morphology which is characteristic of gypsum crystals formed in organic matter rich environment [6], as in the case of Casamance. All the crystal faces are more or less slightly rounded, and they are connected by curved surfaces (*Figs. 1, 6*). Perfect lenticular crystals are rare and small.

FIBROUS STRUCTURE GYPSUM. — Depending on the orientation of the faces, crystal surfaces are striated parallel to the largest dimension of the (001) face, or the crystals may show regularly organized, pointed terminations, or alignments of holes with the same regular organization (*Figs. 1, 2, 3, 6*). Dissolution forms, which are associated with polycyclic growth, were not observed: the crystals studied formed at the end of the dry season and were dissolved with the first influx of fresh water at the beginning of the rainy season. Thus, they exist only for some weeks to a few months, and their surface features show only growth patterns.

S.E.M. observations demonstrate that the striated surfaces result from the association of fibres aligned parallel to (001). Their diameter is about 1 μm . On the faces which intersect (001), the organized terminations and holes reflect either the primitive pointed terminations of these fibres, or a more evolved growth stage, where the existence of the initial, fibrous structure is detected only by the aligned holes, which represent the original gaps between the fibres. A further study of the internal organization by T.E.M. (*Figs. 4, 5*) confirms the existence of separate fibres in the outer parts of the crystal, which more or less coalesce or even disappear, in the inner core. We conclude, from these observations, that the tabular gypsum crystals result from a peculiar five-stage growth microstructure, starting with the ordered coalescence of primitive parallel fibres and giving way to monocrystals.

1. In the first stage, the fibres appear in the organic matter-rich medium, when the salinity of the brines overlaps the gypsum supersaturation limit. They grow perpendicularly to (*c*) axis [6].
2. The fibres associate, ordering parallel to (001). This association develops by the growth of the initial fibres and by the coalescence of new ones. The oldest fibres are the longest and situated in a central position, which gives an oval shaped growth pattern (*Fig. 7*). All these fibres show the same crystallographic orientation, having the same growth constraint.
3. In the third dimension, the same constraint favours the (001) against the (010) plane, leading to the formation of lenticular fibrous structures.
4. Early reorganization proceeds to the interior of the association, giving way to a monocrystalline arrangement in the core (*Figs. 4, 5*).
5. On its surface, the fibrous frame may also reorganize in two ways: (*a*) growth slows down and the irregular surface becomes smoother (*Fig. 6*); (*b*) the density of this vacuolar surface increases, allowing the development of crystalline faces, where their surface overlaps with that of the primitive lens (*Fig. 7*). Although restricted at first, these crystalline faces appear and develop at the expense of the curved primitive forms. These latter persist in the area between the crystal faces. Thus, the two types of organization, fibrous and monocrystalline, follow one another and compete at the level of the surface structure. More generally, the fibrous organization of gypsum is reminiscent, in a simpler and much less stable way, of other fibrous/crystalline structures such as lutecite or other fibrous quartz species ([7] to [9]). The fact that the gypsum organization is easier to study may provide a useful reference for the growth patterns of the other fibrous structures. It is useful to note, moreover, that a number of siliceous fibrous structures form in calcium sulphate-rich media. However, this may only be a coincidence.

I. INTRODUCTION. — La ria de la Casamance est actuellement envahie par des eaux d'origine marine sur 250 km. A une centaine de kilomètres de l'embouchure, un seuil de quelques décimètres de profondeur délimite le cours amont, aux eaux fortement confinées, où la profondeur ne dépasse que rarement 2 m ([1], [2]). Différents facteurs, dont, 1° un bassin-versant très réduit, de l'ordre de 3 700 km², 2° l'importance de l'évaporation vis-à-vis des précipitations saisonnières (1 600 mm contre 1 000 mm.an⁻¹) [3], et 3° l'aridification qui affecte l'Afrique intertropicale depuis 1968, font que les écoulements continentaux tarissent rapidement à la fin de l'hivernage. Dans la partie amont de la ria, l'évaporation concentre les eaux et provoque un flux d'origine marine, qui, à son tour, se concentre au long de son trajet [3]. Le maximum de salinité a été atteint en juin 1986, avec 176‰ à 233 km de l'embouchure. Cette salinité se situe au-dessus du seuil de saturation en gypse, aux alentours de 150‰. Ce dernier précipite alors. Il se dissout ensuite au cours de la dessalure de la saison des pluies.

II. CARACTÉRISTIQUES DE LA SÉDIMENTATION. — Dans la vase noire de la haute ria, le matériel détritique terrigène est essentiellement formé de quartz anguleux très fins de l'ordre du micromètre, et de zircon. En diffractographie X, le quartz est accompagné de kaolinite, d'illite ou de smectites. La matière organique, très abondante, est représentée par des débris ligneux et par des particules plus fines, qui colorent le sédiment en noir. Des mesures systématiques de la matière organique dissoute donnent des teneurs de 5-10 mg.l⁻¹ dans les eaux libres et d'au moins 20 mg.l⁻¹ en eaux interstitielles. La pyrite néoformée est fréquente.

III. SITUATION ET MORPHOLOGIE DU GYPSE SOUS-AQUATIQUE. — En juin 1986, de nombreux cristaux millimétriques de gypse néoformé furent découverts et récoltés pour étude à 233 km de la mer ouverte, à la surface fluide de la vase (« crème de vase ») prélevée à 1,5 m de profondeur au milieu du fleuve [4]. La température de l'eau en surface était de 30,7°C; son pH de 6,59; sa salinité de 172‰. A 20 km plus en aval, de plus petits individus se rencontraient dans les mêmes conditions, sur des fonds de 1,8 m. La température de l'eau était là de 30,1°C; son pH de 7; la salinité de 136‰. En septembre, les milieux étaient dessalés (5‰) et le gypse en voie de dissolution rapide n'était plus décelable qu'en diffractométrie X.

Ce gypse forme des cristaux tabulaires, isolés ou maclés, ou encore groupés en agrégats polycristallins. Leur couleur est blanchâtre à éclat résineux, mais jaune verdâtre dans leur partie centrale, en raison d'inclusions. La plus grande dimension des cristaux de gypse, selon la face p (001), atteint 1,8 mm. Elle décroît régulièrement jusqu'à quelques 250 μm, puis tombe à la dimension de la maille du tamis (50 μm). Le rapport longueur/largeur, toujours sur p , est de l'ordre de 1,5 à 1,9 pour 25 cristaux. L'épaisseur, qui correspond aux faces g^1 (010) et m (110), est moindre, avec un rapport largeur/épaisseur de l'ordre de 1,5. Toutes ces faces sont souvent légèrement bombées. Elle se raccordent par des surfaces courbes (fig. 1, 6). Les cristaux franchement lenticulaires sont rares et petits.

Selon l'orientation, la surface des cristaux est, soit cannelée parallèlement à la plus grande dimension de p , soit hérissée de pointes ou semée régulièrement de pores selon les autres faces (fig. 1, 2, 3, 6). Les formes de dissolution [5] liées à une croissance polyphasée manquent : les cristaux apparaissent à la fin de la saison sèche, puis se dissolvent très rapidement aux premières arrivées d'eau douce. Ils ne durent donc que quelques semaines ou mois.

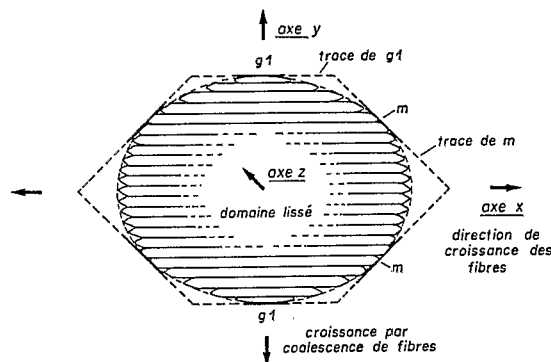


Fig. 7. — Organisation des fibres élémentaires dans le plan p (001). Sur cette coupe, les faces cristallines m et g^1 , favorisées par une croissance lente, se développent là où elles tangent la section ovale de la lentille primitive et de croissance rapide.

Fig. 7. — Organization of elementary fibres in the (001) plane. In this section, the later, more slowly growing, crystal faces (110) ($1\bar{1}0$) and (010) develop where they overlap the initial oval lens (rapid growth). Axe=axis; trace de m =outline of (110) ($1\bar{1}0$); trace de g^1 =outline of (010); domaine lissé=reorganized area; direction de croissance des fibres=fiber growth direction; croissance par coalescence de fibres=growth by fibre coalescence.

Les macles par accollement et pénétration-entrecroisement sont fréquentes. Ces groupes passent aux agrégats, qui se présentent en bâtonnets (jusqu'à $4,4 \times 1,2$ mm), ou en associations plus compactes, de type « rose des sables » (diamètre atteignant 4 mm).

IV. MICROSTRUCTURE. — La morphologie des surfaces cristallines a été étudiée, 1° au microscope photonique par réflexion, sur section polie, après inclusion à la température du laboratoire dans une résine, puis polissage au diamant (fig. 2), 2° au microscope électronique à balayage (M.E.B.) (fig. 1, 3, 6), 3° au microscope électronique à transmission (M.E.T.) (fig. 4, 5). Ces examens montrent l'existence de faisceaux de fibres, dont le diamètre va de 1 à 2 μm , et qui se terminent en pointes plus ou moins aiguës (fig. 3). Ces fibres s'associent, en s'alignant selon des plans parallèles à p (fig. 7) et à g^1 , ce qui détermine une structure tri-dimensionnelle régulière, ordonnée. Le tout est illustré par la disposition des terminaisons (fig. 3) et, sur les surfaces plus évoluées, par celle des vides résiduels situés entre les fibres (fig. 6).

L'étude au microscope électronique à transmission (M.E.T.) montre que les fibres restent encore bien individualisées dans la partie externe des cristaux (fig. 4). En allant vers le centre, la structure fibreuse commence à se lisser (fig. 5), puis n'est plus décelable que par l'existence de liserés plus sombres, régulièrement disposés, qui soulignent les marges des fibres originelles. En d'autres termes, le matériel fibreuse initial est devenu monocristallin.

V. MÉCANISME DE FORMATION DU GYPSE TABULAIRE A MICROSTRUCTURE FIBREUSE. — On sait que les cristaux de gypse formés en solution sursaturée purement sulfatée se développent selon l'axe (c) . Dans les milieux riches en matière organique, la croissance des faces parallèles à cet axe est inhibée [6] et les formes tabulaires et lenticulaires apparaissent. Effectivement, les gypses tabulaires et lenticulaires de la Casamance se sont développés à partir d'eaux libres riches en matière organique dissoute (5 à $10 \text{ mg} \cdot \text{l}^{-1}$).

On peut donc reconstituer une évolution progressive entre la microstructure fibreuse et les monocristaux de gypse tabulaire en cinq étapes.

1. Des fibres de gypse apparaissent, lorsque la salinité des eaux dépasse le seuil de sursaturation. Elles croissent perpendiculairement à l'axe (c), dans ce milieu particulièrement riche en matière organique.

2. Ces fibres s'associent en fonction de la même contrainte, selon les plans p et g^1 . L'édifice s'accroît longitudinalement par croissance cristalline et latéralement par accollement de nouvelles fibres. A égale vitesse de croissance, les fibres médianes, les plus anciennes, sont les plus longues. Il s'en suit que les faces perpendiculaires à l'axe des fibres seront bombées et en coupe dessineront des courbes (*fig. 7*).

3. A ce stade, la contrainte de développement favorise encore p au détriment de g^1 , ce qui donne dans l'espace des volumes lenticulaires.

4. L'orientation identique des fibres coalescentes facilite le lissage centrifuge de la structure fibreuse. Il progresse rapidement dans la partie centrale de l'édifice, où les deux types d'organisation, fibreuse et monocristalline, se succèdent en quelques semaines (*fig. 5*).

5. Les faces externes planes, cristallines, apparaissent. Elles sont séparées du cœur monocristallin de l'édifice par le domaine fibreux non lissé. On peut l'expliquer dans la mesure où, dans cet édifice, toutes les fibres élémentaires sont ordonnées et montrent la même orientation cristalline. Dans ces conditions, la trame formée par leurs terminaisons libres, va pouvoir se structurer en deux étapes : 1° le ralentissement de la croissance permet de passer d'une surface hérissée de pointes à une surface plus lisse (*fig. 2, 3, 6*), 2° grâce à cette augmentation de densité de la surface vacuolaire, le développement des faces cristallines devient alors possible, à partir des points où elles tangentent la lentille (*fig. 7*). Exigus à l'origine, ces secteurs plans apparaissent et s'étendent au dépens des surfaces courbes initiales, qui se maintiennent dans les domaines intermédiaires, de raccord. Ainsi, les deux types d'organisation, fibreuse et monocristalline, se concurrencent encore au niveau de l'enveloppe de la structure.

VI. CONCLUSIONS. — 1° Les gypses qui cristallisent sur le fond vaseux de la Casamance ont une morphologie tabulaire à lenticulaire, caractéristique des milieux riches en matière organique. Ces individus correspondent à des édifices fibreux, aux éléments parallèles, ordonnés selon p et g^1 , et possédant la même orientation cristalline. Ces édifices croissent par développement des fibres initiales et par accollement de nouveaux éléments, qui s'ordonnent préférentiellement selon p . Le tout conduit à une forme globale lenticulaire qui va évoluer de deux façons. D'abord, le centre des lentilles s'homogénéise en monocristal en quelques semaines. D'autre part, la croissance selon l'axe des fibres est freinée, ce qui permet le développement progressif des faces d'un monocristal de gypse et conduit à la morphologie tabulaire.

2° Ainsi, les organisations fibreuses et monocristallines se succèdent à la fois au cœur des lentilles fibreuses initiales par lissage, et à leur surface par le développement des faces cristallines.

3° Plus généralement, l'architecture de ces édifices gypseux rappelle, en plus simple et moins stable dans le temps, l'organisation de certaines structures siliceuses, elles-aussi formées de fibres élémentaires, et qui sont des habitus de quartz à faciès fibreux ([7] à [9]). On sait que plusieurs de ces fibres quartzieuses se forment préférentiellement dans les milieux sulfatés calciques, ce qui n'est peut-être pas une simple coïncidence.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] J.-L. SAOS, C. LE BOUTELLER et E. S. DIOP, *Rev. Hydrobiol. trop.*, 20, (3-4), 1987, p. 219-232.
 [2] J. PAGES, J.-P. DEBENAY et J.-Y. LE BRUSQ, *Rev. Hydrobiol. trop.*, 20, (3-4), 1987, p. 191-202.
 [3] J. PAGES et J.-P. DEBENAY, *Rev. Hydrobiol. trop.*, 20, (3-4), 1987, p. 203-218.
 [4] J.-P. DEBENAY, J. J. GUILLOU et J. PAGES, 12^e R.S.T., Lille, 1988, p. 42.
 [5] C. SABOURAUD, *Trav. Lab. Géol. E.N.S.*, Paris, 10, 1976, 119 p.
 [6] R. D. CODY, *J. Sedim. Petrol.*, 49, 3, 1979, p. 1015-1028.
 [7] P. MUNIER-CHALMAS, *C. R. Acad. Sci. Paris*, 110, 1890, p. 663-666.
 [8] F. ARBEY, *Bull. Centre Rech.*, Pau-S.N.P.A., 4, 1, 1980, p. 309-365.
 [9] M. ARNOLD et J. J. GUILLOU, *Bull. Min.*, 106, 1983, p. 417-442.

J. J. G. : *Laboratoire de Biogéologie, E.R. Sciences du Littoral, Université de Nantes, 44072 Nantes Cedex;*

J.-P. D. : *Département de Géologie, Université d'Angers, 49045 Angers Cedex et Équipe recommandée M.E.N. Le Mans;*

J. P. : *Hydrobiologie-Océanographie tropicale, ORSTOM, 34032 Montpellier Cedex;*

G. V. : *Centre de Pédologie, 54500 Vandœuvre-les-Nancy Cedex.*

EXPLICATIONS DE LA PLANCHE

- Fig. 1. — Cristal tabulaire à lenticulaire, à face p (001) développée, à faces (110) ($1\bar{1}0$) piquetées, et (001) cannelée. M.E.B., Université du Maine.
 Fig. 1. — *Tabular to lenticular crystal, displaying a developed (001) face, and pitted (110) ($1\bar{1}0$) and striated (001) faces. S.E.M., Université du Maine.*
- Fig. 2. — Coupe de la surface d'un cristal de gypse (G) inclus dans une résine (R), montrant la terminaison plus ou moins aiguë des fibres élémentaires ($G \times 2\,700$). Microscope optique par réflexion, lumière naturelle.
 Fig. 2. — *Section of the surface of a gypsum crystal (G), embedded in resin (R), showing the more or less pointed terminations of the elementary fibres ($M \times 2,700$). Reflecting optical microscope, natural light.*
- Fig. 3. — Surface d'un cristal, montrant les terminaisons et l'organisation régulière des fibres selon deux plans. La perspective en enfilade rend cette organisation évidente dans le plan NW-SE. On la retrouve dans le plan SW-NE, malgré le développement irrégulier des terminaisons (cf. vue précédente). M.E.B., Service commun d'Analyse Nancy-Strasbourg-Besançon.
 Fig. 3. — *Crystal surface showing the terminations and regular organization of fibres in two orientations. The linear perspective clearly displays this organization in the NW-SE plane. It can still be seen in the SW-NE plane, despite the irregular development of the terminations (cf. preceding photograph). S.E.M., Service commun d'Analyse Nancy-Strasbourg-Besançon.*
- Fig. 4. — Coupe dans un cristal, montrant les fibres, localement séparées par des argiles détritiques (A). Préparation G. Villemin ($G \times 20\,000$). M.E.T., Service commun d'Analyse Nancy-Strasbourg-Besançon.
 Fig. 4. — *Section in a crystal showing the fibres, with local separation by detritic clays. Preparation G. Villemin ($M \times 20,000$). T.E.M., Service commun d'Analyse Nancy-Strasbourg-Besançon.*
- Fig. 5. — Coupe dans un cristal, montrant le passage de l'édifice fibreux au monocristal. Individualisées dans le secteur central, les fibres se lissent dans le secteur SE, où se suit une cicatrice plus claire qui englobe des argiles. Préparation G. Villemin ($G \times 15\,000$). M.E.T., Service commun d'Analyse Nancy-Strasbourg-Besançon.
 Fig. 5. — *Section in a crystal showing the transition from a fibrous structure to a monocrystal. The fibres are separated in the central area. They disappear in the SE area, where a pale scar line is outlined by clay minerals. Preparation G. Villemin ($M \times 15,000$). T.E.M., Service commun d'Analyse Nancy-Strasbourg-Besançon.*
- Fig. 6. — Vue d'un cristal selon m (110) ($1\bar{1}0$) et p (001). La surface de p est cannelée. Celle de m est plus lisse, mais elle garde la trace des vides séparant les fibres élémentaires. Ces vides se disposent régulièrement, en particulier selon le plan de symétrie du cristal. M.E.B., Service commun d'Analyse Nancy-Strasbourg-Besançon.
 Fig. 6. — *(110) ($1\bar{1}0$) and (001) crystal views. The (001) surface is striated. The (110) ($1\bar{1}0$) ones are smoother, but retain the traces of holes between the elementary fibres. These holes are regularly disposed, especially along the symmetry plane of the crystal. S.E.M., Service commun d'Analyse Nancy-Strasbourg-Besançon.*

