

Approche des paramètres physico-chimiques d'une altération hydrothermale fossile (NOPAL I, Chihuahua, Mexique)

**Philippe Ildefonse (1) (2), Pierre Agrinier (3),
Jean-Pierre Muller (2) (4) et Joël Quedec (4)**

L'étude pétrologique fine des matériaux d'altération supergène et/ou hydrothermale permet de définir des distributions ordonnées dans le temps et dans l'espace des paragenèses minérales secondaires. La comparaison des résultats obtenus sur des matériaux naturels avec des résultats expérimentaux ou avec des données théoriques thermodynamiques est utilisée pour approcher les paramètres physico-chimiques des fluides ayant contrôlé ces altérations. Néanmoins, dans de nombreux cas, ces estimations sont peu précises. Ceci est d'autant plus vrai lorsque les minéraux secondaires d'altération sont ubiquistes, comme par exemple la kaolinite, c'est-à-dire qu'ils peuvent cristalliser dans des conditions de température très variable depuis 25 °C jusqu'à 300 °C. Un traçage plus précis des conditions physico-chimiques de l'altération est maintenant rendu possible par l'analyse de certains paramètres cristallochimiques et des compositions isotopiques de ces minéraux argileux d'altération.

Une telle approche a été conduite pour l'étude d'un système d'altération hydrothermale ayant affecté des tuffs volcaniques éocènes de la Sierra Peña Blanca (Chihuahua, Mexico), et qui sont hôtes de minéralisation en uranium. Dans le gisement de Nopal I, la minéralisation en uranium est strictement localisée dans une structure de type "cheminée bréchiq" (100 m de haut et 20 x 40 m de large) dans les tuffs ignimbritiques de la formation

(1) UFR des sciences physiques de la terre, université Paris VII.

(2) Laboratoire de minéralogie-cristallographie, UA CNRS 09, universités Paris VI et VII, 4, place Jussieu, 75252 PARIS Cedex 05.

(3) Laboratoire de géochimie des isotopes stables, université Paris VII.

(4) ORSTOM, département TOA, UR1G.

Nopal (44 MA). Il s'agit d'un cas typique où les conditions physico-chimiques contrôlant les processus d'altération et l'accumulation associée de l'uranium ne peuvent pas être appréhendées par les moyens traditionnels tels que la recherche d'inclusions fluides ou une simple analyse des paragenèses minérales secondaires.

Deux types principaux d'altération ont été définies en fonction de leur localisation et de leur minéralogie (1), (2) :

- une kaolinisation et une silicification du membre supérieur de la formation Nopal (tuffs rhyolitiques soudés) : la kaolinite est la plus abondante dans la cheminée bréchique où elle a cristallisé dans des fissures millimétriques et également en pseudomorphose des feldspaths. Dans cette cheminée bréchique, l'uranium se rencontre soit sous forme de noyaux relictuels d'une minéralisation primaire réduite à uraninite-pyrite contemporaine de la kaolinisation, soit sous forme de silicates d'uranyles qui recouvrent la kaolinite, témoins d'une remobilisation de l'uranium en condition oxydante. Dans les fissures, de l'opale peut recouvrir toutes les phases précédentes et représente le terme ultime des remobilisations de silice.
- une smectitisation (montmorillonite Cheto) en masse du membre inférieur de la formation Nopal (tuff faiblement soudé). Elle affecte la méso-stase vitreuse tandis que les feldspaths sont peu altérés. Cette smectitisation est également visible mais de manière très discrète dans les tuffs rhyolitiques. En dehors de la cheminée bréchique, les plaquettes de kaolinite sont recouvertes de films de smectite dans les pseudomorphoses de feldspath.

Ces minéraux secondaires d'altération traduisent d'importants transferts chimiques, spécialement d'uranium et de silice. La mobilisation de l'uranium est restreinte à la cheminée bréchique où les phénomènes de silicification sont intenses. La fracturation et la géochimie des fluides sont les paramètres majeurs qui contrôlent la migration de l'uranium (3), (i) le potentiel redox parce que l'uranium est mobilisé dans les environnements oxydants, (ii) l'activité en silice élevée des fluides d'altération, du fait de la kaolinisation, responsable de l'immobilisation de l'uranium sous forme de silicates d'uranyle dans la rhyolite silicifiée, (iii) la fracturation des tuffs rhyolitiques qui contrôle les circulations de fluides et est induite par les événements tectoniques locaux. Les minéraux secondaires, minéraux argileux et silicates d'uranyle, cristallisent dans les fissures qui *in fine* sont comblées.

Ces données pétrologiques ont été complétées par des analyses cristallo-chimiques des kaolinites et des analyses isotopiques (oxygène et hydrogène) des principaux minéraux secondaires (kaolinite, smectite et opale) afin de rechercher des traceurs capables de nous renseigner sur la composition des fluides, leur origine et leur température.

Différentes kaolinites ont été reconnues en fonction de leur origine (fissures, pseudomorphoses de feldspath), leur localisation par rapport à la zone minéralisée (cœur, bordure de la cheminée ou bien encaissant stérile), la morphologie des particules, leur cristallinité et leur teneur en fer. Il est montré que les variations des teneurs en centres à défaut, mesurées en résonance paramagnétique électronique (RPE), sont uniquement corrélées à la localisation de ces kaolinites (4), (5). Les valeurs les plus élevées correspondent aux kaolinites situées dans la cheminée bréchique, c'est-à-dire dans les zones où les teneurs en uranium sont maximales. De plus, deux types de centres à défaut ont été reconnus en fonction de l'association ou non de kaolinites avec des silicates d'uranyle (1), (6). Celles qui sont associées à ces silicates d'uranyle présentent un deuxième type de centre à défaut dont la stabilité en température est plus faible. Il est alors possible de relier ces deux types de centres à défaut à deux irradiations successives subies par les kaolinites : une première lors de leur cristallisation par des solutions radioactives, une seconde plus récente par les minéraux d'uranium associés. Ces caractères cristallochimiques des kaolinites étudiées montrent donc que l'on peut mesurer indirectement la concentration des fluides d'altération en radionucléides (7), (8). Il existe à l'échelle du gisement un gradient de concentration en uranium des fluides d'altération et qui montre que l'uranium a principalement circulé dans la cheminée bréchique.

Les analyses de la composition isotopique en oxygène et hydrogène des minéraux d'altération montrent que les fluides mis en jeu ont une origine météorique. Les signatures isotopiques des kaolinites permettent de mettre en évidence une origine hydrothermale de basse température (entre 50 et 75 °C) et une homogénéité de leur composition isotopique quelles que soient leur origine ou leur localisation. Ceci implique un volume de fluides important imposant aux minéraux secondaires leur composition isotopique. Les teneurs en oxygène et hydrogène des smectites indiquent des températures de cristallisation plus basses de l'ordre de 25 à 50 °C, et celles des opales une température de l'ordre de 35 °C.

Ces données isotopiques mettent en évidence un gradient thermique dans le gisement en accord avec les successions minéralogiques déduites des observations pétrographiques.

En conclusion, des données pétrologiques couplées à des données cristallochimiques et géochimiques permettent de décrire de manière relativement satisfaisante l'histoire et les paramètres physico-chimiques de l'altération hydrothermale étudiée.

Le phénomène majeur d'altération est une kaolinisation qui s'est développée sous l'effet de fluides d'origine météorique de basse température (50-75 °C). Mais ce fluide contenait des proportions très différentes de radionucléides suivant sa localisation : très riche en radionucléides dans la

cheminée bréchique, il a irradié les kaolinites lors de leur cristallisation et est à l'origine de leur forte teneur en centres à défaut ; au contraire, plus on s'éloigne de la brèche et plus ce fluide était pauvre en radionucléides comme le montrent les faibles teneurs en centres à défaut des kaolinites. Postérieurement aux kaolinites et en périphérie de la zone minéralisée, ont cristallisé des smectites à plus basse température tandis que l'opale s'est déposée au sein de la zone minéralisée, dernier témoin de l'activité épithermale. Les remobilisations majeures de l'uranium se sont produites postérieurement à la kaolinisation et antérieurement au dépôt de l'opale.

Ce type de gisement hydrothermal de basse température représente un analogue naturel d'un site de stockage de déchets radioactifs de haute activité en milieu géologique profond. Nous avons pu présenter ces résultats (9) en vue de l'évaluation de la migration des radionucléides dans la géosphère.

RÉFÉRENCES

- (1) ILDEFONSE P., MULLER J.-P., CESBRON F. and SICHERE M.C., 1988 - Mineralogy of uranium concentrations and associated hydrothermal alteration minerals in ignimbritic tuffs, Sierra Peña Blanca, Chihuahua, Mexico. *GSA Abstracts with Programs, Denver*, 20, 7.
- (2) ILDEFONSE P., MULLER J.-P. and CALAS G., 1989 - Kaolinite and smectite as tracers of hydrothermal alteration stages in an uranium deposit, Sierra Peña Blanca, Mexico. *In Proceed. 9th Intern. Clay Conf. Abstracts, Strasbourg*, 182.
- (3) ILDEFONSE P., CESBRON F., MULLER J.-P. and CALAS G., 1989 - Study of alteration systems in the light of nuclear waste repository safety. 1 - Element remobilization in hydrothermally altered tuffs. *Terra Abstracts, EUG V Strasbourg*, 1, 111-112.
- (4) MULLER J.-P., ILDEFONSE P. and CALAS G., 1990 - Paramagnetic defect centers in hydrothermal kaolinite from an altered tuff, (Nopal uranium deposit, Chihuahua, Mexico). *Clays and Clay Minerals*, 38, 600-608.
- (5) MULLER J.-P., ILDEFONSE P. and CALAS G., 1989 - Study of alteration systems in the light of nuclear waste repository safety. 2 - Tracing radionuclides migrations by radiation-induced defects in clay minerals. *Terra Abstracts, EUG V Strasbourg*, 1, 112.
- (6) ILDEFONSE P., MULLER J.-P., CLOZEL B. et CALAS G., 1991 - Record of past contact between altered rocks and radioactive solutions through radiation-induced defects in kaolinite. *Materials Research Society Symposium Proceeding* (sous presse).
- (7) ILDEFONSE P., MULLER J.-P., CLOZEL B. and CALAS G., 1989 - A natural analogue of waste repository in tuff : Evaluation of radionuclide migration by secondary alteration minerals, radiation-induced defects and dose rate estimation. *GSA Abstracts with Programs, St Louis*, 21, 20.
- (8) ILDEFONSE P., MULLER J.-P., CLOZEL B. and CALAS G., 1990 - Study of two alteration systems as analogous of radionuclides release and migration. *Engineering Geology*, 29, 413-439.
- (9) MULLER J.-P., CLOZEL B., ILDEFONSE P. and CALAS G., 1991 - Radiation-induced defects in kaolinites : an indirect assessment of radionuclides migration in the geosphere. *Applied Geochemistry* (sous presse).