

Nouvelles données sur la genèse et l'organisation des argiles des sols Relations avec les propriétés

Michel Robert

*Correspondant de l'Académie d'agriculture de France,
directeur de recherches Inra (Versailles)*

Daniel Tessier

Directeur de recherches Inra (Versailles)

Entre les années 1947 et 1970, les chercheurs français ont été très actifs dans le domaine des argiles. Les œuvres de S. Hénin et S. Caillère ainsi que de G. Millot et J. Mering (1946) font référence. S. Hénin et ses collaborateurs ont plus particulièrement innové par la réalisation de synthèses et d'altérations expérimentales. Dans ce même ouvrage, G. Pédro rappelle l'importance des travaux relatifs à la néogenèse des argiles à partir de solutions diluées ou lors de l'altération des roches, et à la transformation de phyllosilicates (vermiculitisation, chloritisation...).

Il est intéressant de noter que les autres champs d'activité de S. Hénin, en particulier dans le domaine des propriétés physiques des sols, étaient souvent dissociés de ceux concernant la genèse des argiles.

Nous allons présenter quelques aspects des recherches poursuivies dans le domaine des argiles entre les années 1970 et 1990 et montrer comment des concepts relatifs à l'organisation des argiles ou des polymères ont permis d'établir un lien entre la minéralogie des argiles au sens large et leurs propriétés ; ce que n'avait pas pu faire à l'époque S. Hénin. Il a fallu, en effet, utiliser de nouveaux apports méthodologiques (microscopie électronique...) pour pouvoir réaliser ce passage entre la genèse des argiles, leur organisation à différentes échelles et des propriétés chimiques, physiques et mécaniques.

Nouveaux apports sur la genèse des argiles

Evolution des concepts et des méthodologies

Depuis MAUGUIN (1928) et PAULING (1930), l'étude des phyllosilicates argileux est basée sur l'utilisation de la diffraction des rayons X, qui donne accès directement à l'unité cristalline (plus la couche interfoliaire).

La microscopie électronique à transmission a été utilisée dès les années 40 pour étudier la structure des virus, mais son application aux argiles a été limitée durant plusieurs dizaines d'années par des problèmes de préparation d'échantillon.

Ainsi, un simple dépôt sur grille ne fournit que des informations sur les contours des particules, par exemple la forme hexagonale des cristallites de kaolinite. Une coupe perpendiculaire au plan des feuillets est nécessaire pour étudier plus complètement la forme. Cela a été rendu possible pour les macrophyllites par amincissement ionique, pour les microphyllites par la réalisation de coupes ultramincées. Ce n'est que tout récemment (TESSIER, 1984) que l'organisation correspondant à un état d'hydratation donné des argiles a pu être préservée. Ceci rend possible la distinction des feuillets à 10 et à 14 Å, même dans les conditions de vide du microscope électronique. Sur des coupes réalisées perpendiculairement au plan des feuillets, on peut obtenir non seulement des informations sur la structure (nature des feuillets, ordre...), mais également sur la texture, c'est-à-dire le nombre de feuillets dans la particule, l'extension latérale des feuillets, le mode d'arrangement des particules (domaines, macroagrégats...). On peut donc étudier les entités élémentaires existant au sein des différentes fractions granulométriques des sols et leur organisation au niveau microstructural dans un échantillon non perturbé.

Réactions de transformation des phyllosilicates

Il est classique de distinguer deux origines différentes pour les argiles des sols, mettant en jeu des processus de formation différents : la transformation en phase solide, qui affecte des minéraux possédant déjà la structure phylliteuse ; la néoformation, où les phyllosilicates argileux se forment à partir de solutions ou de gels (PÉDRO, 1993)*. Dans les sols des régions tempérées, la première origine est prépondérante et les micas ou illites représentent la source principale des argiles. Toutes les études réalisées jusqu'à maintenant, concernant en particulier l'ouverture des micas et la formation de vermiculite ou de smectite, ont été réalisées principalement sur la base de la diffraction X, qui permet de suivre l'évolution de l'espace interfoliaire (qui passe de 10 Å à 14 Å). La caractérisation cristallographique globale permet de suivre l'évolution du contenu en potassium ou en cations hydratés et le niveau d'oxydation du fer (ROBERT, 1971). Les études réalisées récemment en microscopie électronique à transmission permettent de mettre en évidence le fait que l'expansion interfoliaire s'accompagne d'une microdivision des particules s'effectuant à la fois dans le plan des feuillets et dans le plan ab (planche 1 a, b, c). Des unités structurales simples, typiques de micas (10 à 20 feuillets), sont d'abord libérées et la microdivision peut aller jusqu'à la formation de doublets ou de monofeuillets. De même, les particules voient leur extension latérale décroître à des valeurs très inférieures à 2 µm.

De telles évolutions (planche 1 d) sont particulièrement développées sur roches sédimentaires en milieu acide (ROBERT *et al.*, 1991 a) ou sur granites en conditions d'hydrolyse relativement intense (zones subtropicales) (ROMERO *et al.*, 1991 a), et la formation de monofeuillets (planche 1 e) représente la limite entre les phénomènes de transformation et de néogenèse ; le stade suivant observé est l'état de gel. Dans certains cas, la microdivision et la formation d'unités structurales stables de 2 feuillets à 10 Å pourrait être en relation avec le polytype (2M) du mica. Un

* Cet ouvrage.

gonflement interparticulaire et non pas interfoliaire peut se produire, et on a donc un interstratifié IS proche de la rectorite. De la même manière, un faciès assez courant de la vermiculite hydroxyalumineuse formée dans les sols bruns acides est représenté par des unités individualisées à 2 feuillets insérant une couche alumineuse (ROBERT *et al.*, 1990) (planche 1 f).

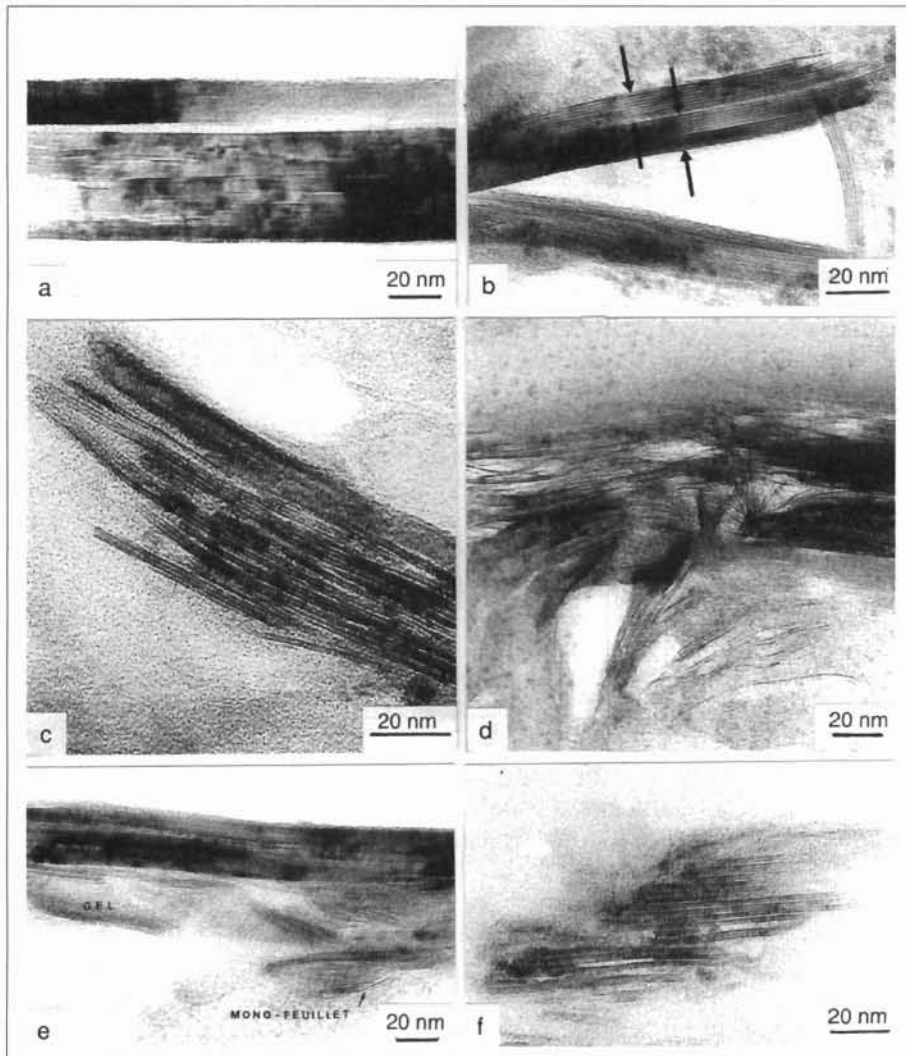


Planche 1. Formation et évolution des argiles dans les sols (microscopie électronique à transmission).

- a. Cristallite de micromica (< 2 μm).
- b. Microdivision (premier stade).
- c. Microdivision avec formation de doublets (20 \AA).
- d. Microdivision avec formation de monofeuillets.
- e. Limite des phénomènes de transformation et de néogenèse (monofeuillet \rightarrow gel).

On retrouve donc dans les sols des particules de petite taille analogues aux particules fondamentales définies par NADEAU (1985) pour les sédiments, et l'évolution des micas et illites au cours de l'altération apparaît autant structurale (variation de l'espace interfoliaire) que texturale (diminution de la taille des particules).

Des études expérimentales portant sur l'« agradation » des argiles, au sens de MILLOT (1963), montrent que dans les séries sédimentaires on observe une évolution inverse. Ainsi, partant de smectite saturée par le potassium, on peut par humectation-dessiccation obtenir à la fois une évolution structurale, c'est-à-dire le passage d'une structure turbostratique à une structure tridimensionnelle (GAULTIER et MAMY, 1979) et une évolution texturale qui se traduit par la formation de particules illitiques ou d'interstratifiés IS composés d'un plus grand nombre de feuillets (fermés) et possédant une plus grande extension latérale (ANDREOLI, 1988).

La liaison entre évolution cristallochimique et évolution structurale et texturale est particulièrement nette dans des études récentes portant sur des nontronites réduites et oxydées (STUCKI et TESSIER, 1991). Ainsi, la réduction du fer provoque le passage de petites particules de smectite (1 à 6 feuillets) ayant une structure turbostratique à des particules ayant de 20 à 40 feuillets, beaucoup plus ordonnées (planche 2 a, b).

On peut donc considérer que la transformation des argiles 2:1 dans les sols et leur agradation dans les sédiments constituent un cycle d'évolution des argiles. Ainsi, dans les sols, on constate une diminution du nombre de feuillets et de l'extension latérale des particules, ainsi qu'une augmentation du désordre et des aptitudes au gonflement interfoliaire, avec intervention des mécanismes d'échange d'ions, oxydation, microdivision...

Dans les sédiments, on a, au contraire, une augmentation du nombre de feuillets et de l'extension latérale des particules, s'accompagnant d'un accroissement de l'ordre de l'empilement et d'une diminution de l'aptitude au gonflement, ceci avec intervention de la fixation du K et éventuellement de phénomènes de réduction.

Les limites entre transformation et néogenèse peuvent être délimitées dans un cas par l'existence du monofeuillet, dans l'autre cas par le passage de petites particules d'illite 1 Md à des particules d'illite 2M, qui impliquerait des phénomènes de dissolution-reprécipitation (Oswald ripening).

Phénomènes de néogenèse

Epitaxie

Rôle des gels et des précurseurs

Les phénomènes d'héritage et de transformation à l'état solide semblaient jusqu'alors ne concerner que les phyllosilicates. En réalité, des études à l'échelle du nanomètre en microscopie électronique ont permis de montrer que diverses microstructures d'intercroissance existent telles que pyroxène -> amphibole -> pyroxène -> phyllosilicates (VEBLEN et BUSECK, 1980). Ainsi, au cours de l'altération, une continuité structurale est possible entre les minéraux primaires qui contiennent des octaèdres liés par les bords et des hydroxydes (gœthite) ou des phyllosilicates secondaires de type nontronite, par exemple (EGGLETON, 1986).

L'utilisation de l'amincissement ionique ou la réalisation de coupes minces dans les feldspaths ont pu montrer l'existence de diverses étapes pouvant conduire à

différents composés secondaires d'altération : formation de gel par simple exsolution des alcalins, formation d'allophanes ou de composés analogues à des imogolites (ROMERO *et al.*, 1992) (planche 2 c, d).

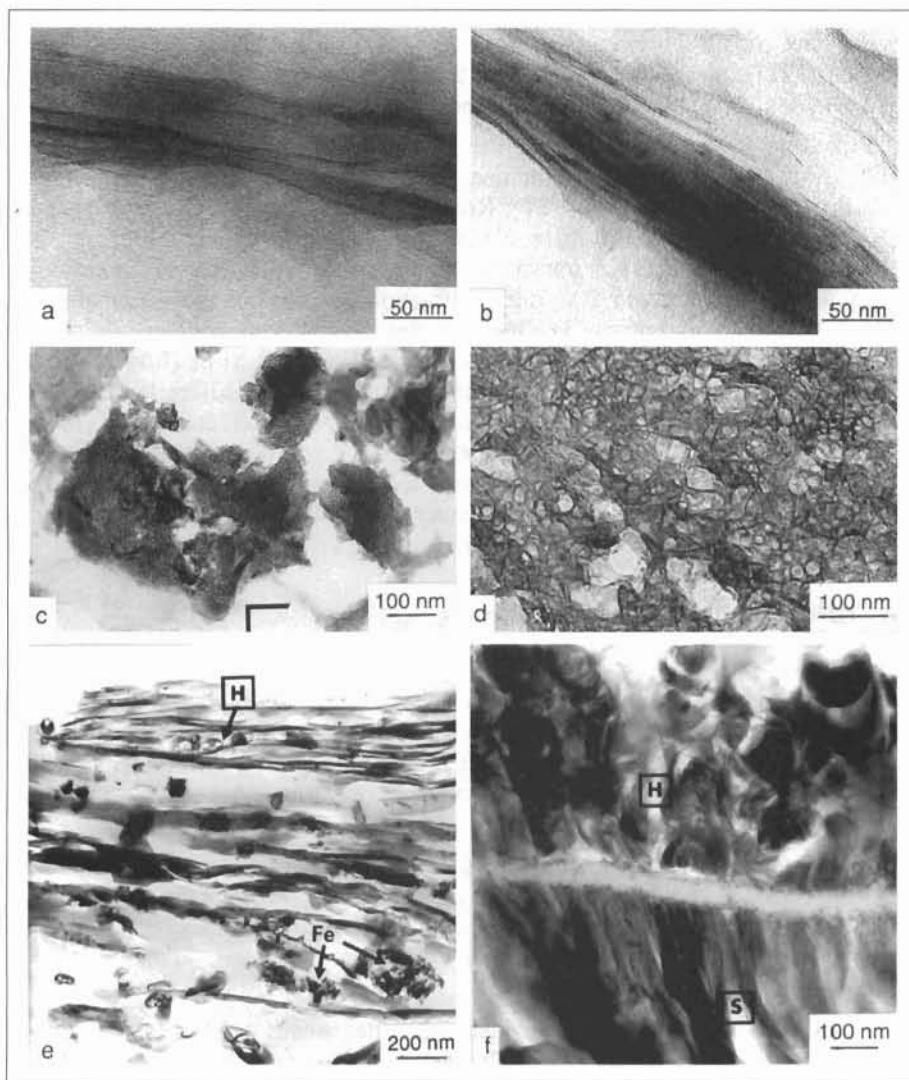


Planche 2. Formation et évolution des argiles dans les sols.

- a. Nontronite oxydée.
- b. Nontronite réduite.
- c. Evolution de feldspaths en gels (allophanes).
- d. Evolution de feldspaths en « précurseurs d'argile ».
- e. Formation d'halloysites (H) et d'oxydes de fer (Fe) dans un cristallite de mica.
- f. Nanosystème : formation de smectite (S) et d'hallosyite (H) dans un pseudomorphe de pyroxène.

TAZAKI et FYFE, (1987), EGGLETON et BUSECK (1980), BANFIELD et EGGLETON (1990) ont pu mettre en évidence des composés précurseurs des argiles qui se présentent sous forme circulaire de 15 à 20 nm de diamètre, avec des franges d'interférence de 1,4 à 2 nm.

Les études en microscopie électronique permettent de montrer également que l'halloysite est un des premiers minéraux 1:1 à apparaître au sein des verres (TAZAKI, 1982), mais aussi au sein des feldspaths ou des micas (TAZAKI et FYFE, 1987 ; ROMERO *et al.*, 1992 a et b) (planche 2 e).

Toutes les études récentes démontrent l'importance des composés cristallisés à courte distance : espèces polycationiques de fer ou d'aluminium, hétéropolycation Si, Al ou Si, Fe (EGGLETON 1987 ; ROMERO *et al.*, 1992 b). Ces gels sont les précurseurs pour la ferrihydrite, l'hématite et la gibbsite et les principaux phyllosilicates 1:1 et 2:1. Les transformations peuvent être suivies par microscopie électronique à transmission avec microdiffraction électronique et microanalyse X, mais des techniques comme la diffusion des rayons X se révèlent des outils indispensables à la caractérisation des systèmes Al-Fe, Si-Al, Si-Fe (BOTTERO *et al.*, 1980, 1991). De même, l'EXAFS est un outil unique pour suivre la structure à courte distance des composés du fer (COMBES *et al.*, 1989). L'étude en résonance magnétique nucléaire de Si et Al permet, en caractérisant les différents environnements des atomes, de compléter les connaissances que l'on a de ces composés mal cristallisés, dont l'importance apparaît grande pour la genèse des constituants secondaires des sols et pour les propriétés physiques et chimiques.

Les microsystèmes d'altération ou d'agrégation

HÉNIN *et al.* insistent dès 1968 sur la relativité de la notion de stabilité ou d'instabilité des minéraux en fonction des conditions du milieu et dégagent la notion de système d'agression. Ces systèmes qui agissent à différentes échelles peuvent être mis en évidence expérimentalement (BESSON *et al.*, 1975) ou dans les conditions naturelles.

Récemment, une méthode de microprélèvement a permis de pousser plus loin l'analyse de ces systèmes en poursuivant l'analyse microscopique par des études en diffraction X ou par des études en microscopie électronique à transmission (VAN OORT *et al.*, 1990). On passe donc ainsi de l'échelle millimétrique ou micrométrique à l'échelle nanoscopique.

De tels microsystèmes, mis en évidence dans les arènes par MEUNIER et VELDE (1979) en relation avec les conditions de drainage (fissures), peuvent éventuellement se retrouver à l'échelle nanoscopique (planche 2 f) avec la formation de smectite à l'extérieur d'une microfissure et d'halloysite à l'intérieur (VAN OORT *et al.*, 1991).

Des études réalisées au niveau microscopique montrent que de tels microsystèmes existent aussi au plan biologique, que ce soit pour :

– l'altération des minéraux (ROBERT et BERTHELIN, 1986 ; JAILLARD, 1987 ; CALLOT *et al.*, 1985), où les êtres vivants dissolvent et précipitent autour d'eux ;

– l'agrégation, où il est possible de montrer que chaque être vivant réorganise les particules minérales autour de lui en façonnant un microenvironnement (DORIOZ et ROBERT, 1987 ; ROBERT et CHENU, 1992).

Relations entre l'organisation et les propriétés physiques et chimiques des argiles

Dans ce domaine, plus encore que dans les études d'altération, la connaissance de l'organisation des argiles à leurs différentes échelles est une nécessité pour établir le lien entre les caractéristiques structurales des argiles et leurs propriétés. Les travaux commencèrent par l'étude d'argiles de référence bien connues par ailleurs, puisqu'elles avaient fait l'objet d'études cristallographiques et physico-chimiques plus poussées.

Organisation des argiles de référence

Ces études ont conduit à définir une typologie des grands types de particules argileuses. Les kaolinites et illites présentent toujours des particules à faciès planaire. Leur taille peut aller, suivant les matériaux, de quelques micromètres à quelques nanomètres. Il a été montré par de nombreux auteurs que la taille des feuillets et des particules dépend des conditions de genèse (planche 3 a, b). Chez les kaolinites, par exemple, des cristallites de taille supérieure à 2 μm sont observés dans les altérites. Leur composition chimique se rapproche alors de la formule idéale. Lorsque les cristallites sont de plus petite taille, la présence de fer est la règle et la taille des cristallites peut descendre jusqu'à 0,1 μm (TANDY *et al.*, 1990).

Dans le cas des argiles micacées, le changement de la taille des particules correspond le plus souvent à une microdivision des micas au cours de l'altération (ROBERT, 1971) (planche 3 c). On distingue généralement les micromicas des illites des sols, car ces dernières sont encore plus fines. Les cristallites ou agrégats de cristallites ne dépassent pas alors 0,5 μm (planche 3 d).

Avec les smectites, le faciès caractéristique est celui à base de réseau. Contrairement aux autres argiles, il n'est pas possible de distinguer des particules isolées, mais des microstructures « rubanées » (planche 3 e). Seul le microscope électronique à transmission (MET) permet de distinguer les feuillets et les cristallites constitutifs du réseau (figure 3 f). L'épaisseur et le développement latéral du réseau dépendent en particulier de la taille des feuillets eux-mêmes, du nombre de feuillets empilés les uns au-dessus des autres, ainsi que du degré de chevauchement des feuillets. Les travaux de TOURET *et al.* (1990) ont montré que les smectites de basse charge ($\approx 0,4$) possèdent un déficit de charge essentiellement octaédrique et tendent à avoir les feuillets les plus grands. Elles présentent de ce fait les faciès en réseau les plus caractéristiques. A contrario, les argiles dont la charge électrique est la plus forte possèdent une charge tétraédrique avec des feuillets de plus petite taille.

Organisation des argiles de sols

En fonction de ce qui précède et des données sur la texture de ces argiles, les argiles de sols se distinguent avant tout des argiles de gisement par leur degré de division. Les argiles à caractère smectitique ne présentent que très rarement le faciès en réseau, excepté, semble-t-il, pour les argiles de transformation des glauconites (TESSIER, 1984 ; planche 4 a). Leur organisation apparaît le plus souvent au MET comme des amas de cristallites (planche 4 b). Le MET indique que la taille des feuillets est extrêmement petite ($< 100 \text{ nm}$). Le nombre de feuillets constituant les cristallites de l'argile est toujours de quelques unités pour les minéraux 2:1. Il a été

montré par ROBERT *et al.* (1991 b) que le nombre de feuillets dépend du degré de transformation de l'argile. Au plan statistique, les smectites des sols se présentent donc comme des organisations à base de microparticules à espace interfoliaire anhydre, donc de type mica, mais ne dépassant pas 2 à 5 feuillets environ (planche 4 c). Le terme ultime (monofeuillet) peut même être atteint au cours de l'altération (ROMERO *et al.*, 1992 a) dans les sols (smectites pures), tandis que les argiles intermédiaires possèdent statistiquement des particules plus épaisses (2 à 6 feuillets). Une illite vraie est composée de cristallites ayant de 5 à 10 feuillets. A cette échelle, il faut

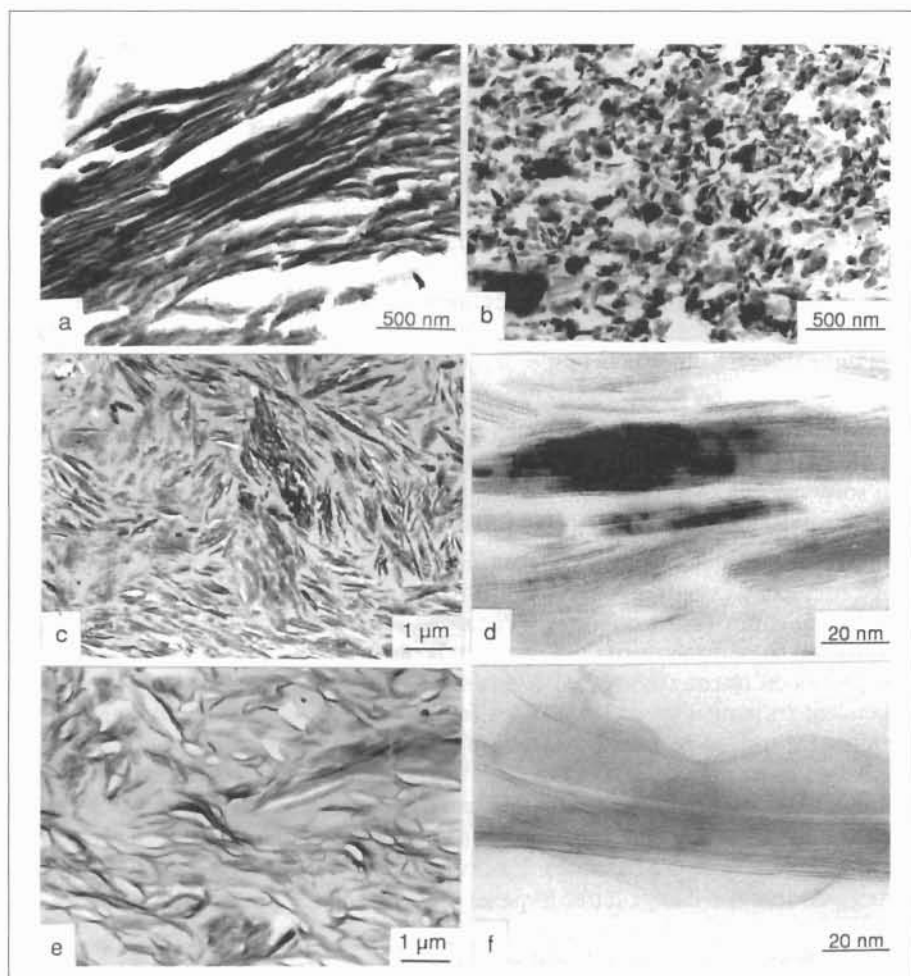


Planche 3. Organisation des argiles.

- a. Cristallites de kaolinite de grande taille (horizon C d'un sol de Guyane).
- b. Cristallites de kaolinite de petite taille (horizon B d'un sol ferrallitique de Guyane).
- c. Agrégats de micromicas
- d. Cristallites élémentaires.
- e. Structure rubanée des smectites (faible grandissement).
- f. Mise en évidence des feuillets des smectites (fort grandissement).

donc considérer les argiles 2:1 des sols comme essentiellement différentes par leur texture, avec un nombre de feuillettes par particule de plus en plus faible lorsque l'on passe des illites aux smectites. Ceci a conduit ROBERT *et al.* (1991 a) à définir l'interstratification « texturale » (planche 4 c) comme étant la superposition de très petites particules ménageant des espaces interparticulaires pouvant éventuellement gonfler (NADEAU *et al.*, 1984). En diffraction des rayons X, l'empilement grossièrement face à face de particules argileuses composées d'un nombre réduit de feuillettes conduit à des diagrammes analogues à ceux des interstratifiés « vrais ». Il résulte de ceci que le modèle d'interstratification « vraie » ou structural, comme on le trouve dans la transformation des micas en vermiculites, ne paraît pas pouvoir être appliqué aux sols, sauf dans les particules les plus grosses de la fraction argile (micromicas altérés).

Par ailleurs, le microscope électronique permet d'identifier chez les argiles 2:1 des sols les organisations plus macroscopiques. AYLMOORE et QUIRK (1971) ont ainsi défini le domaine comme un assemblage de cristallites grossièrement face à face. Leur existence et leur stabilité dans le temps résultent de structures héritées de la roche initiale ou sont assurées par la présence d'oxyhydroxydes de fer exsudé au moment de l'altération (ROBERT *et al.*, 1987). La présence de matière organique est aussi capable d'assurer la cohésion du système à cette échelle d'organisation (CHENU et JAUNET, 1990).

Cette organisation en domaines ou agrégats de cristallites est particulièrement bien développée chez les kaolinites. Dans les altérites, par exemple, la néogénèse de kaolinites de très grande dimension, très pures, avec ségrégation de la goëthite en lits à la manière d'un « sandwich », apparaît la règle dans un premier stade de l'altération (TANDY *et al.*, 1990 ; ROBAIN *et al.*, 1990) (planche 4 d). Du fait de la pédogénèse et de l'activité biologique sous ses différents aspects (pédoturbation), les oxydes se répartissent de manière beaucoup plus diffuse au sein de la matrice argileuse. Ce seraient alors des espèces mal cristallisées ou polycationiques (Fe, Al) qui interviendraient (planche 4 e).

Ce type d'organisation du fer apparaît la règle dans les microstructures des sols ferrallitiques (CHAUVEL, 1977 ; KILASARA et TESSIER, 1991).

Relations avec les propriétés

S. Hénin avait, dès 1937, pu observer les changements d'organisation des micelles argileuses au sein d'une suspension en cours de dessiccation. La forme anisométrique des micelles était clairement visible au microscope optique. L'apport des travaux récents a été de montrer que l'organisation des argiles est d'abord fonction de leur minéralogie.

Pour les smectites, TESSIER (1984) a d'abord montré que le comportement et l'organisation dépendent de la valeur globale de la charge électrique des feuillettes. A l'échelle des feuillettes, les cristallographes avaient ainsi démontré que l'ordre d'empilement dans les trois directions de l'espace (distribution des distances interfoliaires et ordre dans l'empilement suivant ab) augmentaient avec la charge (SUQUET et PEZERAT, 1987). Les travaux sur le comportement et la microstructure en ont montré les répercussions sur les propriétés macroscopiques. Ainsi, l'augmentation de la charge est, dans le domaine de l'activité de l'eau des sols ($a_w > 0,98$), à l'origine d'une baisse des propriétés d'hydratation. En d'autres termes, plus la charge électrique est basse, plus une argile 2:1 peut s'hydrater et inversement. Les travaux de STUCKI et TESSIER (1991) indiquent qu'un changement de l'état

d'oxydation du fer (passage du fer ferrique au ferreux du réseau cristallin) induit à toutes les échelles du matériau argileux des caractéristiques analogues au passage d'une smectite à une vermiculite. Corrélativement à ce changement, d'autres propriétés sont aussi altérées : surface spécifique, capacité d'échange en cations, hydratation et gonflement (STUCKI et TESSIER, 1991). De manière inverse, et par oxydation du fer ferreux, des illites et glauconites « ouvertes », ROBERT (1971) ainsi que ROBERT et BARSHAD (1972) avaient pu noter un passage vermiculite -> smectite.

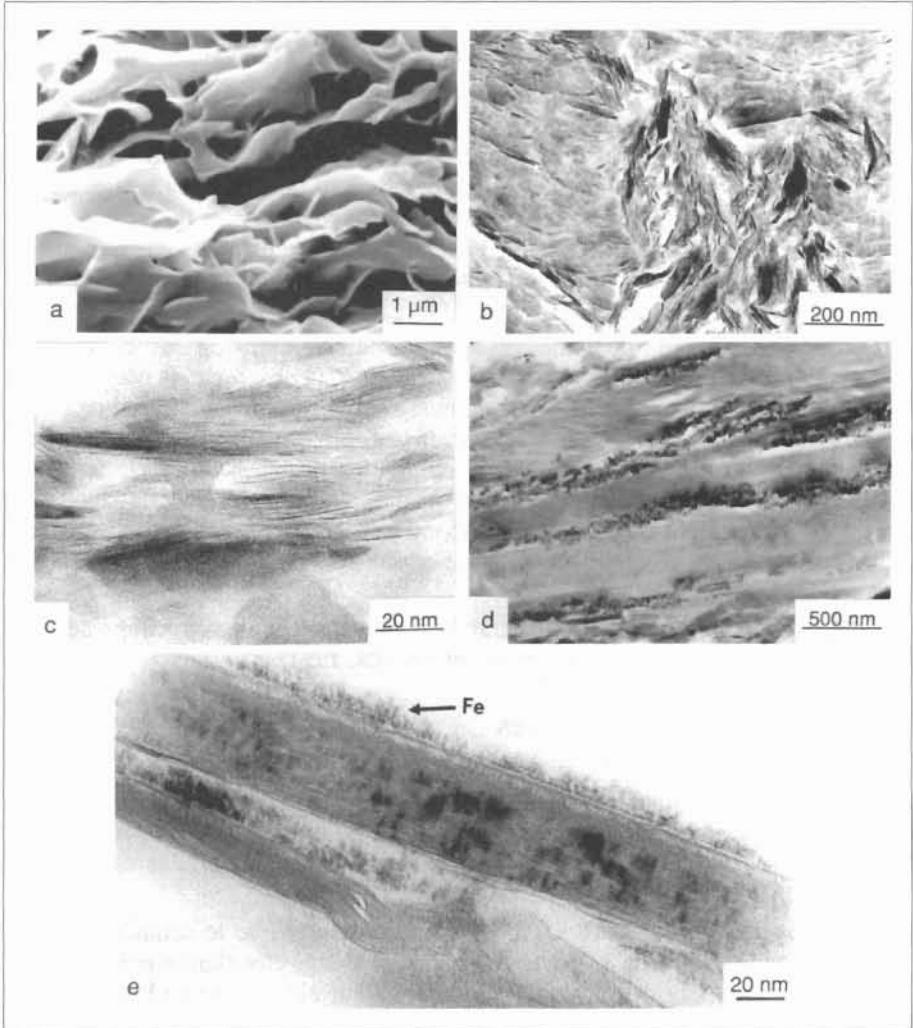


Planche 4. Organisation des argiles de sols.

- a. Particules de smectites (origine glauconites) au MEB.
- b. Organisation des particules de smectites de sol au MET.
- c. Smectites typiques de sols présentant le phénomène d'interstratification texturale.
- d. Ségrégation de goëthite lors de la formation des kaolinites à partir de micas (Guyane).
- e. Polycations ou gels de fer en revêtements sur des argiles.

Le passage d'une argile de caractère smectitique (texture très fine) à un caractère illitique (texture plus grossière) se traduit aussi par un changement des propriétés de gonflement-retrait très important pour les sols. Ainsi, quand une argile prend un caractère illitique, l'aptitude au retrait est beaucoup moins forte et l'apparition d'un point d'entrée d'air se produit à de relativement faibles contraintes hydriques (TESSIER *et al.*, 1992). Cela va de pair avec un changement de l'organisation, qui passe du « réseau » caractéristique des smectites au « domaine » tel qu'il a été défini par J.P. Quirk. De ce fait, les illites et kaolinites donnent les plus faibles cohésions et sont les plus instables physiquement et mécaniquement. Elles perdent notamment leur stabilité sous l'effet d'humectations rapides. Avec des particules minces et souples, les smectites conduisent en revanche à des propriétés spécifiques. Elles sont les seules argiles à donner des états de gel. Elles conduisent à des propriétés de gonflement-retrait exceptionnelles.

L'explication des propriétés d'hydratation des différentes argiles se trouve principalement dans le type d'eau présent et la localisation de l'eau. La plus grande partie de l'eau est interparticulaire et se trouve dans des pores dont la taille est inférieure à 1 μm . Il est aussi connu, depuis longtemps, que le sodium échangeable Na^+ joue dans les sols le rôle de dispersant, d'où son influence sur l'instabilité structurale des sols (HALTIM *et al.*, 1984). Les données sur l'organisation indiquent que le gonflement et la dispersion sont avant tout un phénomène de microdivision des particules. Sans négliger les variations de distance interfoliaire (présence d'une couche diffuse), il est nécessaire d'insister sur cet aspect puisqu'il conditionne largement la taille des pores de l'argile et donc des propriétés aussi importantes que la cohésion, la perméabilité ou l'accessibilité à différentes molécules (BEN OHOUD et VAN DAMME, 1990). D'un autre côté, il ressort de résultats récents relatifs à l'organisation des argiles que l'ion K^+ induit des comportements et des organisations analogues à Na^+ . Il peut être à l'origine de l'instabilité structurale (TESSIER, 1988 ; HARTMANN, 1991). Le pourcentage seuil de 15 % de K^+ échangeable, c'est-à-dire analogue à celui que l'on donne généralement pour Na^+ dans les sols, paraît provoquer les mêmes effets.

Le rôle de K^+ échangeable et de la présence de smectites en très faible quantité a aussi été montré par DELVAUX *et al.* (1990 a et b). Sur des sols à halloysite développés sur matériaux volcaniques, les smectites sont localisées préférentiellement à la périphérie des glomérules d'halloysite. Dans ce cas, le matériau présente, comme chez les smectites, l'aptitude à se disperser et à s'agréger suivant le type de cation (monovalent ou divalent). La sélectivité pour les cations divalents et monovalents est modifiée par rapport à une halloysite seule. Ainsi, une étude minéralogique et physico-chimique détaillée peut permettre de mieux comprendre le comportement des sols et aider à raisonner les pratiques de fertilisation et en révéler les conséquences au plan physique (DELVAUX *et al.*, 1992).

Pour expliquer ce rôle agrégeant des cations divalents, VAN OLPHEN (1963) avait conçu un modèle qui reposait sur l'existence d'interactions bord-face entre les particules. Cependant, les données de diffusion aux petits angles et de microscopie électronique indiquent que l'agrégation des particules argileuses est essentiellement le fait d'interactions face à face entre les feuillets. BEN RHAÏEM *et al.* (1987) ont montré que les espaces interfoliaires ne dépassent pas 1,86 nm avec Ca. Ils en ont déduit que l'essentiel de l'eau des smectites Ca, fortement hydratées, se trouve en dehors de l'espace interparticulaire. Cependant, c'est la présence d'espaces interfoliaires à 1,86 nm avec des molécules d'eau organisées autour des cations qui

est à l'origine des fortes cohésions macroscopiques observées dans les systèmes argileux calciques (FRIPAT et SETTON, 1987). La surface de contact devenant d'autant plus grande que l'argile est plus déshydratée, la cohésion macroscopique du matériau augmente dans les mêmes proportions. TESSIER (1984) a ainsi pu montrer que l'agrégation des particules apparaît consécutivement à la dessiccation, et donner une explication au phénomène d'hystérésis observé lors de l'humectation des smectites Ca et Mg. Des conclusions en ont été tirées pour comprendre le comportement des sols argileux, en particulier des vertisols. Leur densification en fonction des conditions climatiques a pu, par exemple, être mieux explicitée (WILDING et TESSIER, 1988).

De la même manière, la formation d'agrégats d'une taille de quelques microns à plus de 100 μm est possible par la fixation de polycations aux polymères d'aluminium et de fer, procédant majoritairement d'associations face à face entre les particules (ROBERT *et al.*, 1987).

La présence de polymères d'origine biologique (exsudat de type polysaccharide, par exemple) est également capable d'assurer à l'argile une cohésion macroscopique et d'en modifier l'espace poral à cette échelle (CHENU, 1989). Les conséquences au plan du sol peuvent être considérables, notamment dans le cas des argiles de type kaolinite, puisque la perte de cohésion de l'argile à l'échelle de l'assemblage des cristallites ne permet plus de conserver un espace poral à l'échelle millimétrique, c'est-à-dire assurant convenablement la circulation des fluides et la pénétration des racines (HARTMANN, 1991). De nombreux problèmes de dégradation physique des sols tropicaux mettent en jeu de tels mécanismes d'association entre des polymères et les cristallites élémentaires (CHAUVEL *et al.*, 1991).

Conclusion

Vers 1937, au début des travaux de S. Hénin, les argiles étaient encore considérées comme des colloïdes minéraux à caractère amorphe. En entreprenant, dans les années 50, les recherches sur la minéralogie des argiles et les études expérimentales d'altération et de genèse des constituants, S. Hénin a ouvert la voie aux recherches portant sur la relation minéralogie-comportements des sols.

Ces travaux ont permis de définir une typologie des grands types d'argiles et ainsi de les reconnaître par leurs grands types de faciès. De nouveaux travaux sur la genèse et les relations génétiques entre les constituants des sols ont vu le jour.

Ces études ont fait apparaître l'importance des paramètres d'ordre textural ou énergétique dans le comportement. Elles ont montré que la connaissance de tout matériau argileux exige la prise en compte simultanée de différents niveaux d'organisation, depuis l'échelle cristallographique jusqu'à l'agrégat de sol. Ces études ayant été menées simultanément sur des matériaux de référence et des échantillons de sol, les connaissances fondamentales des systèmes eau-argiles et l'étude de problèmes appliqués ont provoqué une synergie qui s'est révélée excellente pour le dynamisme des équipes de recherche en ce domaine. Dans le caractère essentiellement pluridisciplinaire des études initiées par S. Hénin (prise en compte simultanée de la minéralogie, cristallographie, rhéologie, géochimie, physico-chimie de surface et des propriétés physiques), se trouve certainement la voie à suivre pour l'étude de systèmes naturels, qui est le défi des années 2000.

Bibliographie

- ANDREOLI (C.), 1988. Evolution des phyllosilicates 2:1 en fonction de la dynamique du potassium. Thèse, Université Paris VI, 233 p.
- AYLMORE (L.A.G.), QUIRK (J.P.), 1971. Domains and quasicrystalline regions in clay systems. *Soil Sci. Soc. Am. Proc.*, 35 : 652-654.
- BANFIELD (J.F.), EGGLETON (R.A.) 1990. Analytical transmission electron microscope studies of plagioclase, muscovite, and K-feldspar weathering. *Clays and Clay Miner.*, 38 : 77-89.
- BEN OHOUD (M.), VAN DAMME (H.), 1990. La texture fractale des argiles gonflantes. *C.R. Acad. Sci.*, 311, II : 665-670.
- BEN RHAJEM (H.), PONS (C.H.), TESSIER (D.), 1987. « Factors affecting the microstructure of smectites. Role of cation and history of applied stresses ». In Proceedings of the International Clay Conference, Denver, 1985. L.G. Schultz, H. van Olphen, F.A. Mumpton (eds). Bloomington, The Clay Mineral Society, p. 292-297.
- BESSON (H.), CAILLÈRE (S.), HÉNIN (S.), 1975. Evolution de quelques silicates phylliteux en présence de composés magnésiens peu solubles. *C.R. Acad. Sci. Paris*, 281, D : 863-865.
- BOTTERO (J.Y.), CASES (J.M.), FIESSINGER (F.), POIRIER (J.E.), 1980. Studies of hydrolyzed chloride solutions. Nature of aluminum species and composition of aqueous solutions. *J. Phys. Chem.*, 84 : 2933-2939.
- BOTTERO (J.Y.), TCHOUBAR (D.), ARNAUD (M.), QUENNO, 1991. Partial hydrolysis of ferric nitrate salt. Structural investigation by dynamic light scattering and small angle X-ray scattering. *Langmuir*, 7 : 1365-1369.
- CALLE (C.), SUQUET (H.), PONS (C.H.), 1988. Stacking order in a 14.30 Å Mg vermiculite. *Clays and Clay Miner.*, 36 : 481-490.
- CALLOT (G.), MOUSAIN (D.), PLASSARD (C.), 1985. Concentrations de carbonate de calcium sur les parois des hyphes mycéliens. *Agronomie*, 5 (2) : 143-150.
- CHAUVEL (A.), 1977. Recherches sur les transformations des sols ferrallitiques dans la zone tropicale à saisons contrastées. Evolution et réorganisation des sols rouges en Moyenne Casamance. Paris, Orstom, 543 p. (Travaux et documents, n° 62).
- CHAUVEL (A.), GRIMALDI (M.), TESSIER (D.), 1991. Changes in pore-space distribution following deforestation and revegetation : An example from the Central Amazon Basin, Brazil. *For. Ecol. Management*, 38 : 259-271.
- CHENU (C.), 1989. Influence of a fungal polysaccharide, scleroglucan, on clay microstructures. *Soil Biol. Biochem.*, 21 (2) : 299-305.
- CHENU (C.), JAUNET (A.M.), 1990. Modifications in the textural organisation of a calcium montmorillonite following the adsorption of a polysaccharide. *C.R. Acad. Sci.*, 310, II : 975-980.
- COMBES (J.M.), MANCEAU (A.), CALAS (G.), BOTTERO (J.Y.), 1989. Formation of ferric oxides from aqueous solutions : A polyhedral approach by X-ray absorption spectroscopy. I. Hydrolysis and formation of ferric gels. *Geochimica Cosmochimica Acta*, 53 : 583-594.
- DELVAUX (B.), HERBILLON (A.J.), DUFÉY (J.E.), VIELVOYE (L.), 1990 a. Surface properties and clay mineralogy of hydrated halloysitic soil clays. I. Existence of interlayer K⁺ specific sites. *Clay Miner.*, 24 : 617-630.
- DELVAUX (B.), HERBILLON (A.J.), VIELVOYE (L.), MESTDAGH (M.M.), 1990 b. Surface properties and clay mineralogy of hydrated halloysitic soil clays. II. Evidence for the presence of halloysite/smectite (H/Sm) mixed-layer clays. *Clay Miner.*, 25 : 141-160.
- DELVAUX (B.), TESSIER (D.), HERBILLON (A.J.), BURTIN (G.), JAUNET (A.M.), VIELVOYE (L.), 1992. Morphology, texture, and microstructure of halloysitic soil clays as related to weathering and exchangeable cation. *Clays and Clay Miner.*, 40 (4) : 446-456.
- DORIOZ (J.M.), ROBERT (M.), 1987. « Aspects microscopiques des relations entre les microorganismes ou végétaux et les argiles. Conséquences sur les microorganismes et la microstructuration des sols ». In *Micromorphologie des sols*. Actes de la VII^e Réunion internationale de micromorphologie des sols, Paris, juillet 1985. N. Feodoroff, L.M. Bresson, M.A. Courty (éd.). Paris, Afes, p. 353-362.

- EGGLETON (R.A.), 1986. « The relation between crystal structure and silicate weathering rates ». In *Rates of chemical weathering of rocks and minerals*. London, Academic Press, p. 21-40.
- EGGLETON (R.A.), 1987. Non crystalline Fe-Si-Al oxyhydroxides. *Clays and Clay Miner.*, 35 : 29-37.
- EGGLETON (R.A.), BUSECK (P.R.), 1980. High resolution electron microscopy of feldspar weathering. *Clays and Clay Miner.*, 28 : 173-178.
- FRIPIAT (J.J.), SETTON (R.), 1987. Cohesion energy in anisotropic aqueous slurries. *J. Appl. Phys.*, 61 (5) : 1811-1815.
- GAULTIER (J.P.), MAMY (J.), 1979. « Evolution of exchange properties and crystallographic characteristics of bionic K-Ca montmorillonite submitted to alternate wetting and drying ». In *The soil-root interface*. J.L. Harley, R. Scott Russell (eds). Proceedings of an international symposium held in Oxford, England, March 28-31, 1978. London, Academic Press, p. 167-175.
- HALITM (A.), ROBERT (M.), PROST (R.), 1984. Influence des cations échangeables (Na⁺, Ca⁺⁺, Mg⁺⁺) et de la concentration saline sur le comportement physique (rétention en eau, conductivité hydraulique) de la montmorillonite. *Agronomie*, 4 : 451-459.
- HARTMANN (C.), 1991. *Evolution et comportement des sols sablo-argileux ferrallitiques sous culture de palmiers à huile. Cas de la plantation R. Michaux à Dabou (Côte-d'Ivoire)*. Thèse doctorat, Université Paris VI, 250 p.
- HÉNIN (S.), 1937. Asymétrie et orientation des micelles argileuses. *C.R. Acad. Sci.*, 204 : 1498-1501.
- HÉNIN (S.), PÉDRO (G.), ROBERT (M.), 1968. « Considérations sur les notions de stabilité et d'instabilité des minéraux en fonction des conditions du milieu ; essai de classification des systèmes d'agression ». In *Transactions of the 9th International Congress of Soil Science, Adelaide, Australia, 1968*. Sydney, International Society of Soil Science and Angus and Robertson Ltd, III, p. 79-90.
- JAILLARD (B.), 1987. Les structures rhizomorphes calcaires : modèle de réorganisation des minéraux du sol par les racines. Montpellier, Inra, 219 p.
- KILASARA (M.), TESSIER (D.), 1991. Intérêt des mesures physiques sur échantillons non remaniés dans la caractérisation des sols ferrallitiques. Application à la couverture ferrallitique du district de Muheza (Tanzanie). *Cah. Orstom, sér. Pédol.*, 26 (2) : 91-103.
- MAUGUIN (C.), 1928. Etude des micas au moyen des rayons X. *Bull. Soc. Fr. Minéral. Cristallogr.*, 51 : 285.
- MERING (J.), 1946. On the hydration of montmorillonite. *Trans. Farad. Soc.*, 42 : 205-219.
- MERING (J.), OBERLEN (A.), 1971. « The smectites ». In *Electron-Optical Investigation of Clays*. London, Mineralogical Society, p. 135-145.
- MEUNIER (A.), VELDE (B.), 1979. Weathering mineral facies in altered granites : the importance of local small scale equilibria. *Min. Mag.*, 43 : 261-268.
- MILLOT (G.), 1963. *Géologie des argiles*. Paris, Masson.
- NADEAU (P.H.), 1985. The physical dimensions of fundamental clay particles *Clays and Clay Miner.*, 20 : 499-514.
- NADEAU (P.H.), WILSON (M.J.), MCHARDY (W.J.), TAIT (J.M.), 1984. Interstratified clays as fundamental particles. *Science*, 225 : 923-925.
- OORT (F. VAN), JONGMANS (A.G.), JAUNET (A.M.), DOESBURG (J.D.J. VAN), ELSASS (F.), FEJTEL (T.C.J.), 1990. « Characterization of clay neogenesis features in thin sections. A case study on halloysite neoformation in weathered pyroclastic parent rock in Guadeloupe (F.W.I.) ». In *Transactions of the 14th International Congress of Soil Science (Kyoto, Japan, August 12-18, 1990)*. International Society of Soil Science, VII, p. 100-105.
- OORT (F. VAN), JONGMANS (A.G.), JAUNET (A.M.), 1991. The progression from optical light microscopy to transmission electron microscopy in the study of soils. (Soumis à *Clays and Clay Minerals*.)
- PAULING (L.), 1930. The structure of micas and related minerals. *Proc. Nat. Acad. Sci.*, 16 : 123-129.

- PONS (C.H.), ROUSSEAU (F.), TCHOUBAR (D.), 1981. Utilisation du rayonnement synchrotron en diffusion aux petits angles pour l'étude du gonflement des smectites. I. Etude du système eau-montmorillonite-Na en fonction de la température. *Clay Miner.*, 16 : 23-42.
- PONS (C.H.), ROUSSEAU (F.), TCHOUBAR (D.), 1982. Utilisation du rayonnement synchrotron en diffusion aux petits angles pour l'étude du gonflement des smectites. II. Etude de différents systèmes eau-smectites en fonction de la température. *Clay Miner.*, 17 : 327-338.
- PONS (C.H.), TESSIER (D.), BEN RHAJEM (H.), TCHOUBAR (D.), 1982. « A comparison between X-ray studies and electron microscopy observations of smectite fabric ». In Proceedings of the 7th International Clay Conference, Pavia, 1981. H. van Olphen, F. Veniale (eds). Amsterdam, Elsevier, p. 165-186 (Developments in sedimentology, 35).
- ROBAIN (H.), TESSIER (D.), GRIMALDI (M.), ELSASS (F.), 1990. On the importance of kaolinite texture in ferrallitic soils. Consequences for physical stability and soil organization. *C.R. Acad. Sci.*, 311, II : 239-246.
- ROBERT (M.), 1971. Etude expérimentale de l'évolution des micas (biotites). I. Les aspects du processus de vermiculitisation. *Ann. Agron.*, 22 (1) : 43-93.
- ROBERT (M.), BARSHAD (I.), 1972. Sur les propriétés et la détermination des minéraux argileux 2:1 expansibles (vermiculites smectites). *C.R. Acad. Sci.*, 275 : 1463-1465.
- ROBERT (M.), BERTHELIN (J.), 1986. Role of biological and biochemical factors in soil mineral weathering. Chapter in interactions of soil minerals with natural and microbes. *Soil Sci. Soc. Am.*, Spec. Publ. n° 17 : 453-495.
- ROBERT (M.), CHENU (C.), 1992. « Interactions between soil minerals and microorganisms ». In *Soil Biochemistry*. G. Stotzky, J.M. Bollag (eds). New York, M. Dekker, p. 307-404 (Vol. 7).
- ROBERT (M.), ELSASS (F.), ANDREOLI (C.), SRODON (J.), 1991 b. « The cycle of 2:1 clay minerals transformation in sediments and soils. New applications of HRTEM ». In Proceedings of the 7th Euroclay Conference, Dresden '91. M. Störr, K.H. Henning, P. Adolph (eds). Ernst-Moritz-Arndt-Universität Greifswald.
- ROBERT (M.), ELSASS (F.), HARDY (M.), RIGHI (D.), 1990. « Genesis, crystallochemistry and organization of soil clays derived parent materials in temperate regions ». In Transactions of the 14th International Congress of Soil Science (Kyoto, Japan, August 12-18, 1990). International Society of Soil Science, VII, p. 42-47.
- ROBERT (M.), HARDY (M.), ELSASS (F.), 1991 a. Crystallochemistry, properties and organization of soil clays derived from major sedimentary rocks in France. *Clay Miner.*, 26 : 409-420.
- ROBERT (M.), TESSIER (D.), 1992. « Incipient weathering : Some new concepts on weathering, clay formation and organization ». In *Weathering, soils and paleosols*. Amsterdam, Elsevier, p. 61-105 (Developments in earth surface processes, 2).
- ROBERT (M.), VENEAU (G.), ABREU (M.), 1987. « Etudes microscopiques d'associations aluminium-argile ou fer-argile » In *Micromorphologie des sols*. Actes de la VII^e Réunion internationale de micromorphologie des sols, Paris, juillet 1985. N. Feodoroff, L.M. Bresson, M.A. Courty (éd.). Paris, Afes, p. 467-474.
- ROMERO (R.), ROBERT (M.), ELSASS (F.), GARCIA (C.), 1992 a. Evidence by electron microscopy of weathering microsystems in soil formations developed from crystalline rocks. *Clay Miner.*, 27 : 21-33.
- ROMERO (R.), ROBERT (M.), ELSASS (F.), GARCIA (C.), 1992 b. Abundance of halloysite neoformation in soils developed from crystalline rocks. Contribution of transmission electron microscopy. *Clay Miner.*, 27 : 35-46.
- SRODON (J.), ANDREOLI (C.), ELSASS (F.), ROBERT (M.), 1990. Direct high resolution transmission electron microscopic measurement of expandability of mixed-layer illite/smectite in bentonite rocks. *Clays and Clay Miner.*, 38 : 373-379.
- STUCKI (J.W.), TESSIER (D.), 1991. Effects of iron oxidation state on the texture and structural order of Na-nontronite gels. *Clays and Clay Miner.*, 39 : 137-143.
- SUQUET (H.), PEZERAT (H.), 1987. Parameters influencing layer stacking types in saponites and vermiculites. *Clays and Clay Miner.*, 35 : 353-362.

- TANDY (J.C.), GRIMALDI (M.), GRIMALDI (C.), TESSIER (D.), 1990. « Mineralogical and textural changes in French Guyana oxisols and their relation with microaggregation ». In *Soil micromorphology : a basic and applied science*. Proceedings of the VIIIth International Working Meeting of Soil Micromorphology, San Antonio, Texas, July 1988. L.A. Douglas (ed.). Amsterdam, Elsevier, p. 191-198 (Developments in soil science, 19).
- TAZAKI (K.), 1982. « Analytical electron microscopic studies of halloysites formation processes morphology and composition of halloysite ». In Proceedings of the 7th International Clay Conference, Pavia, 1981. H. van Olphen, F. Veniale (eds). Amsterdam, Elsevier, p. 573-584 (Developments in sedimentology, 35).
- TAZAKI (K.), FYFE (W.S.), 1987. Primitive clay precursors formed on feldspar. *Can. J. Earth Sci.*, 24 : 506-527.
- TESSIER (D.), 1984. Etude expérimentale de l'organisation des matériaux argileux. Hydratation, gonflement et structuration au cours de la dessiccation et de la réhumectation. Thèse doctorat Sciences, Université Paris VII. Versailles, Inra, 361 p.
- TESSIER (D.), 1988. « Identifications of clays. Data from investigations with strongly hydrated systems ». In *Methodology in soil-K research*. Proceedings of the 20th Colloquium of the International Potash Institute, Baden bei Wien, Austria. Bern, IPI.
- TESSIER (D.), 1990. « Organisation des matériaux argileux en relation avec leur comportement hydrique ». In *Matériaux argileux : structure, propriétés et applications*. M. Decarreau (éd.). Paris, Société française de minéralogie et cristallographie, p. 387-440.
- TESSIER (D.), 1991. « Behaviour and microstructure of clay minerals ». In *Soil colloids and their associations in microaggregates*. M.F. De Boodt, M.H.B. Hayes, A. Herbillon (eds.). Plenum Press, p. 387-415.
- TESSIER (D.), BERRIER (J.), 1979. Utilisation de la microscopie électronique à balayage dans l'étude des sols. Observation de sols humides à différents pF. *Sci. Sol.*, 1 : 67-82.
- TESSIER (D.), BEAUMONT (A.), PÉDRO (G.), 1990. « Influence of clay mineralogy and rewetting rate on clay microstructure ». In *Soil micromorphology : a basic and applied science*. Proceedings of the VIIIth International Working Meeting of Soil Micromorphology, San Antonio, Texas, July 1988. L.A. Douglas (ed.). Amsterdam, Elsevier (Developments in soil science, 19).
- TESSIER (D.), LAUDIE (A.), PETIT (J.C.), 1992. Relation between macroscopic behaviour of clays and their microstructural properties. *Appl. Geochem.*, Suppl. Issue n° 1 : 151-161.
- TESSIER (D.), PÉDRO (G.), 1982. « Electronic microscopy of Na-smectite. Role of layer charge, salt concentration and suction parameters ». In Proceedings of the 7th International Clay Conference, Pavia, 1981. H. van Olphen, F. Veniale (eds). Amsterdam, Elsevier, p. 165-176 (Developments in sedimentology, 35).
- TESSIER (D.), PÉDRO (G.), 1987. « Mineralogical characterisation of 2:1 clays in soils. Importance of the clay texture ». In Proceedings of the International Clay Conference, Denver, 1985. L.G. Schultz, H. van Olphen, F.A. Mumpton (eds). Bloomington, The Clay Mineral Society, p. 78-84.
- TOURET (O.), PONS (C.H.), TESSIER (D.), TARDY (Y.), 1990. Etude de la répartition de l'eau dans des argiles saturées Mg²⁺ aux fortes teneurs en eau. *Clay Miner.*, 25 : 217-233.
- VEBLEN (D.R.), BUSECK (P.R.), 1980. Microstructure and reaction mechanisms in biopyriboles. *Am. Min.*, 65 : 599-623.
- WILDING (L.), TESSIER (D.), 1988. « Genesis of vertisols : shrink-swell-phenomena ». In *Vertisols : their distribution, properties, classification and management*. L. Wilding, R. Puentes (eds). College Station, Texas A and M, p. 55-81.