

MINÉRAUX ARGILEUX ET VERMICULITE-AL DANS QUELQUES SOLS ET ARÈNES DES VOSGES. HYPOTHÈSE SUR LA NÉOFORMATION DES MINÉRAUX A 14 Å

Yves TARDY et Jean-Yves GAC

Centre de Recherches de Sédimentologie et de Géochimie de la Surface de Strasbourg (C.N.R.S.)
Laboratoire de Géologie et de Paléontologie de l'Université de Strasbourg (*)
Office de la Recherche Scientifique et Technique d'Outre-Mer

RÉSUMÉ. — L'inventaire des minéraux argileux des sols et arènes des Vosges cristallines est ici poursuivi. On a pu montrer l'existence d'un minéral à aluminium interfoliaire, la vermiculite-Al, qui avait été jusqu'à présent considéré comme un interstratifié vermiculite-chlorite. L'illite des sols n'est pas un minéral de néoformation mais un produit hérité des micas primaires des roches et des séricites probablement nées dans la zone de rétrodiagenèse. La vermiculite et la montmorillonite sont des produits de dégradation de ces édifices micacés. Mais on admet également que ces minéraux pourraient être néoformés à partir des éléments libérés lors de l'hydrolyse des feldspaths.

L'étude de l'évolution des minéraux argileux dans les profils d'altération de l'Alsace et des Vosges a déjà été entreprise par CAMEZ (1962). Nous avons voulu poursuivre l'inventaire des espèces minérales contenues dans les fractions fines des arènes et des sols des Vosges cristallines et mesurer ainsi l'influence de la nature des roches mères sur la composition des produits d'altération. Ce travail a été entrepris par GAC (1968) et nous présentons ici les résultats de l'étude minéralogique.

I. — PRÉLÈVEMENTS

Les prélèvements ont été effectués sur onze massifs granitiques choisis en raison de leur étendue, de leur homogénéité pétrographique et de leur diversité de composition chimique. On a également échantillonné des roches acides et basiques de mode de gisement

(*) Travail effectué avec le Concours de la Délégation Générale à la Recherche Scientifique et Technique.

O. R. S. T. O. M.

Collection de Référence

n° 14141

11 JUIL. 1970

varié : roches volcaniques du Dévono-Dinantien et ignimbrites permienes du Nideck, roches basiques de Lerchenmatt, durbachites, diorite du Neuntelstein et enclaves dioritiques de deux granites.

Les prélèvements de sols ont tous été effectués dans l'horizon (B) plus argileux. Les analyses minéralogiques ont porté sur trois cents diagrammes de diffraction aux rayons X.

II. — MÉTHODES D'ÉTUDE DE LA FRACTION $< 2 \mu$

La fraction fine des sols et des arènes est constituée de minéraux cristallisés et de matières amorphes. Les matières amorphes sont dosées par voie chimique et les minéraux argileux cristallisés sont déterminés par diffraction des rayons X.

A. — DOSAGE DU MATÉRIEL AMORPHE

Les dosages du matériel amorphe qui sont donnés ici ont été faits les uns au Centre O.R.S.T.O.M. de Bondy par la méthode cinétique de SÉGALEN (1968), les autres au Centre de Pédologie de Nancy par la méthode du réactif combiné de TAMM plus hydrosulfite de sodium (DUCHAUFOR et SOUCHIER, 1966).

B. — DÉTERMINATION DES MINÉRAUX ARGILEUX

1. Techniques de préparation.

La fraction fine des échantillons à analyser par diffraction des rayons X est déposée sur une lame de verre sous forme d'agrégats orientés. Dans la grande majorité des cas on n'a pas pu obtenir de bons diagrammes de diffraction sans traitement préalable. Un lavage à l'eau suivi d'une agitation énergique ne suffit pas (fig. 1).

Les préparations obtenues après déferrisation par attaque à l'acide oxalique (N) en présence de zinc métallique jusqu'à décoloration des échantillons ne permettent pas non plus une bonne diffraction (fig. 1). On a donc employé une méthode inspirée de l'expérience de SÉGALEN (1968). Un traitement à HCl (8N) pendant 30 minutes suivi d'une attaque NaOH (0,5N) pendant 5 minutes au bain-marie permet :

- d'éliminer la plus grande partie des éléments amorphes collés aux argiles;
- d'assurer une dispersion efficace et une très bonne orientation des particules grâce à l'emploi de NaOH.

Les résultats comparés sont présentés fig. 1. Le traitement à HCl + NaOH permet d'obtenir d'excellents diagrammes. Ceux qui sont obtenus après simple lavage à l'eau ne peuvent, dans la plupart des cas, être interprétés. Ce traitement est très énergique mais il conserve la vermiculite, la chlorite, la montmorillonite, l'illite et l'hallowysite. Il est cependant certain qu'on doit détruire une partie des édifices et que les minéraux fragiles ou

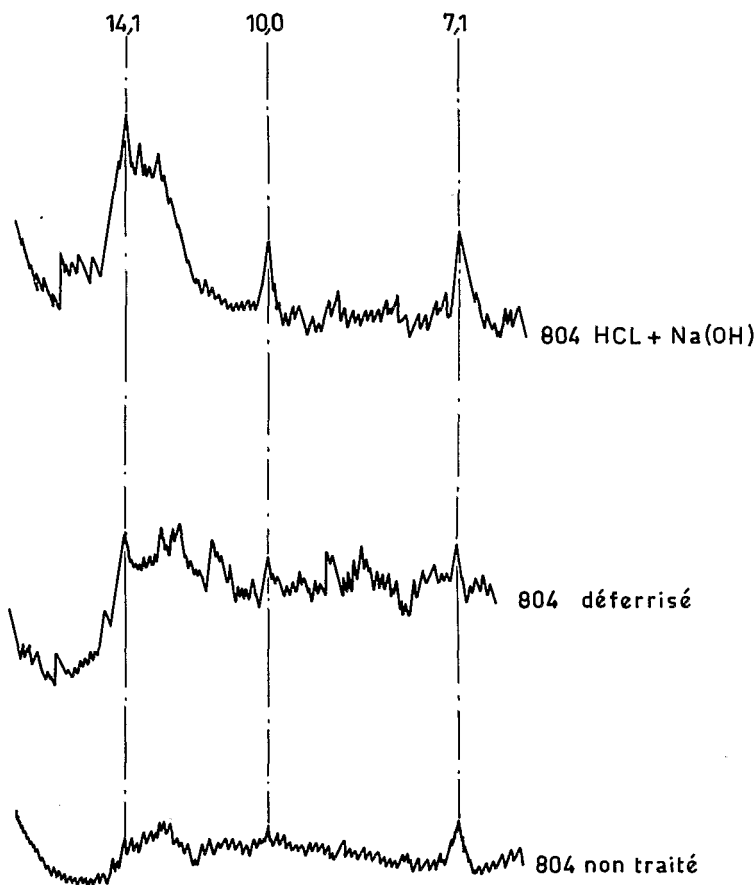


FIG. 1. — Influence des méthodes de traitement sur la qualité des diagrammes de diffraction aux rayons X.

présents en faible quantité peuvent être éliminés. Nous n'avons le choix qu'entre deux méthodes : l'une, très vigoureuse, est efficace malgré ses inconvénients, l'autre respecte les minéraux mais n'a donné aucun résultat dans le cas des sols des Vosges.

2. Détermination.

D'une manière générale et désormais classique, la détermination des minéraux argileux par la méthode des agrégats orientés se fait à partir de trois essais : sur l'échantillon naturel, après chauffage à 490 °C et après traitement à l'éthylène glycol.

On détermine la présence d'illite, de vermiculite, de chlorite, de montmorillonite, de kaolinite et d'interstratifiés (10-14_V), (10-14_O), (10-14_M), (14_C-14_V), selon les critères décrits par LUCAS, CAMEZ, MILLOT (1959), CAMEZ (1962) et LUCAS (1962).

Il faut comprendre avec MILLOT (1964) que ces argiles sont chimiquement mal définies et que le nom qui leur est donné traduit seulement un comportement aux rayons X identique à celui des espèces minéralogiques types.

3. Minéraux dioctaédriques et trioctaédriques.

On peut distinguer les minéraux dioctaédriques des minéraux trioctaédriques d'après la position de la raie (060) comprise entre 1,485 Å et 1,520 Å pour les minéraux dioctaédriques et entre 1,515 Å et 1,560 Å pour les trioctaédriques (NAGELSCHMIDT, 1937 et WALKER, 1950). Ce critère est employé par de nombreux auteurs. On doit cependant éviter les confusions possibles avec une raie du quartz située à 1,54 Å et une raie de la kaolinite à 1,49 Å (BROWN, 1953). Les muscovites et séricités présentent par ailleurs un pic à 5 Å qui les distinguent des biotites et phlogopites qui n'en n'ont pas (NAGELSCHMIDT, 1937; BROWN, 1961).

4. Difficultés d'interprétation.

a) Chlorite et kaolinite.

En présence de chlorite, de faibles quantités de kaolinite sont difficilement décelables. Les réflexions 002 de la kaolinite et 004 de la chlorite sont situées de part et d'autre de $2\theta = 25^\circ$ l'une à 3,53 Å, l'autre à 3,58 Å (LUCAS, 1962). Cela permet parfois de distinguer ces deux minéraux; mais, souvent, un seul pic apparaît vers 3,56 Å et toute détermination précise devient alors très difficile. Cette distinction est encore possible lorsqu'on est en présence de chlorite-Al. Le pic à 7 Å de ce minéral disparaît à 400° alors que celui de la kaolinite subsiste encore à cette température (JONES, MILNE et ATTWILL, 1964).

b) Vermiculite et montmorillonite.

WALKER (1957) et GJEMS (1963) soulignent la difficulté de faire la distinction entre vermiculite et montmorillonite. Leur comportement dépend de la taille des particules et de la nature du cation interfoliaire. WALKER (1958) préconise la saturation Mg avant le traitement au glycol pour distinguer les vermiculites (stables à 14 Å) des montmorillonites (gonflant à 17 Å). Dans le cas présent, les résultats ont toujours été identiques avant et après la saturation Mg.

5. Minéraux à Al interfoliaire.

Les vermiculites, chlorites et montmorillonites des sols, peuvent retenir entre leurs feuillets une certaine quantité d'Al hexacoordonné analogue au Mg des feuillets brucitiques des chlorites. Cet Al n'est pas échangeable et sa présence perturbe les réactions des minéraux argileux aux différents tests de saturation, de glycolage et de chauffage qui permettent de la diagnostiquer.

La vermiculite type (réflexion à 14 Å) saturée par K^+ donne une réflexion à 10 Å après chauffage à 110° (BARSHAD, 1948). Cette même vermiculite, saturée par Al^{3+} , garde sa réflexion à 14 Å lorsqu'on la sature à nouveau par K^+ (CARTER, HARWARD et YOUNG, 1963); c'est-à-dire que les argiles -Al ont une capacité d'échange réduite qui augmente lorsqu'on élimine ce cation.

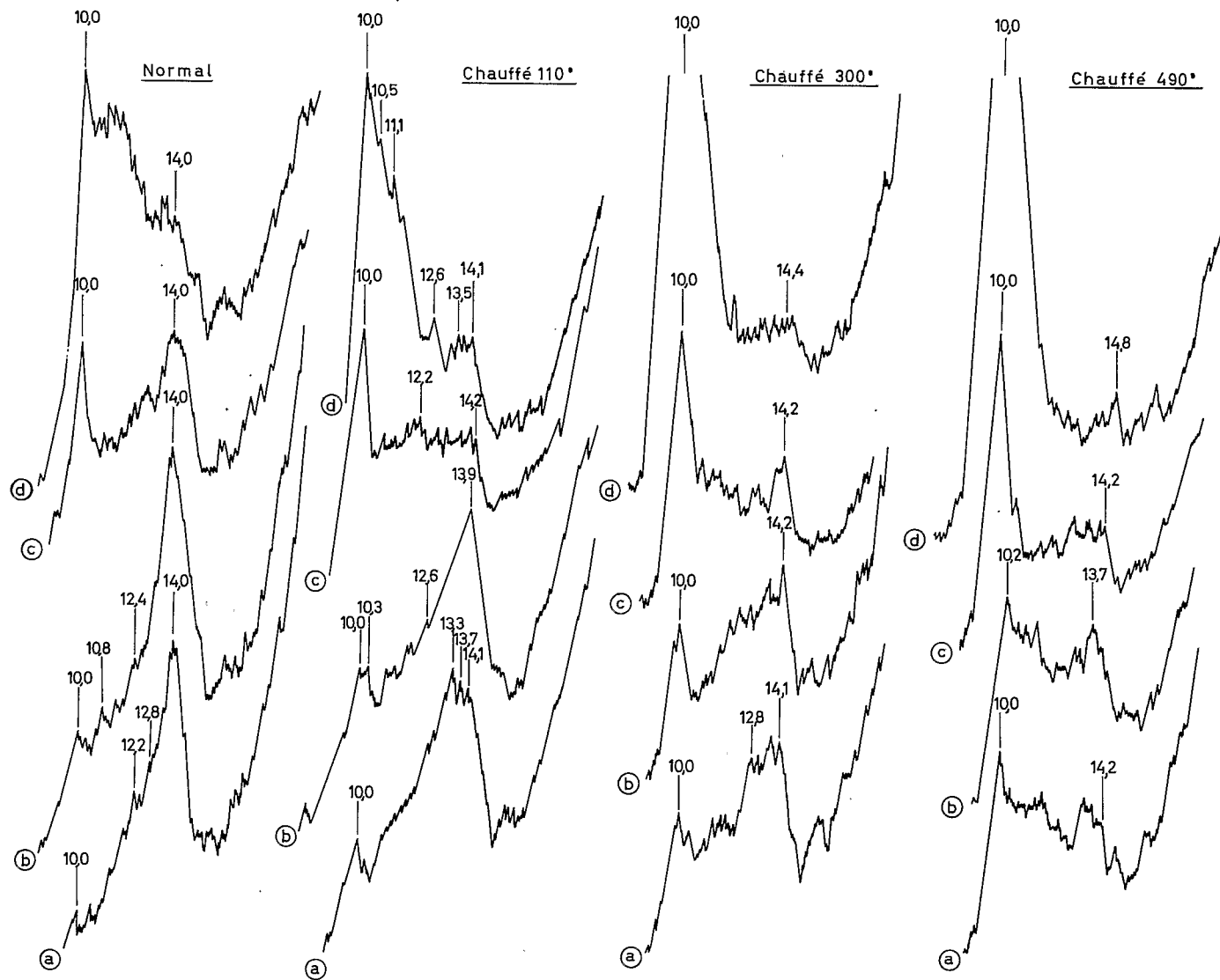


FIG. 2. — Echantillon 925. Diagrammes de diffraction des rayons X.
 a) non traité; b) traitement KCl (N); c) citrate de Na (N); d) traitement NH₄F (N).

De nombreux auteurs ont abordé ce problème et préconisent, pour enlever l'aluminium interfoliaire, deux méthodes chimiques : l'une à base de citrate de Na (N), l'autre à base de NH_4F (N). Ce sont : BROWN, 1953; BARSHAD, 1954; RICH et OBENSHAIN, 1955; TAMURA, 1956 et 1958; SAWHNEY, 1960; RICH, 1960; SHEN et RICH, 1962; WEED et NELSON, 1962; PAWLUK, 1963; RICH et COOK, 1963; HSU PA HO et BATES, 1964; JONES, MILNE et ATTIWILL, 1964; FRINK, 1965; RICH, 1968.

Pour notre part nous avons employé les tests suivants :

- saturation KCl (N) pendant 48 heures;
- traitement au citrate de Na (N), puis saturation KCl pendant 24 heures;
- traitement à NH_4F (N) pendant 5 minutes à ébullition.

Les résultats obtenus sur l'échantillon 925 sont reportés fig. 2.

On remarque que le traitement KCl n'affecte pas les minéraux à 14 Å et qu'aucune différence essentielle n'apparaît entre l'échantillon non traité et l'échantillon saturé K. Il ne s'agit donc pas de vermiculite *sensu stricto*. Par contre, après traitement au citrate de Na ou à NH_4F , une partie des minéraux à 14 Å s'écrasent à 10 Å après saturation par K^+ ou NH_4^+ . Ce n'est donc qu'après départ de l'Al interfoliaire qu'une partie des minéraux à comportement initial de chlorite acquièrent les caractéristiques de la vermiculite.

Ces mêmes traitements, appliqués à des chlorites-Mg de chlorito-schistes finement broyées, ne provoquent pas d'écrasement à 10 Å après saturation par K^+ . Le pic à 14 Å reste en place. Jusqu'à preuve du contraire, on considérera donc que les réactifs employés sont spécifiques de l'aluminium. Les pics à 14 Å qui résistent à ces traitements pourront être attribués aux chlorites-Mg.

En résumé, la présence d' $\text{Al}(\text{OH})_3$ dans les interfoliaires des vermiculites et montmorillonites donnent à ces minéraux des comportements de chlorites. Aussi les auteurs anglo-saxons les ont-ils appelés « dioctahedral analogue of vermiculite » (BROWN, 1953), « chlorite like intergrade » (WEED et NELSON, 1962), « chlorite like mineral » (KLAGES et WHITE, 1957), « intergrade chloritic montmorillonite or chloritic vermiculite » (JACKSON, 1965), « vermiculite-chlorite mixed layering » (TAMURA, 1958). On les appellera ici chlorite-Al ou vermiculite-Al.

III. — RÉSULTATS

A. — RÉSULTATS D'ENSEMBLE

On a groupé dans le tableau I les résultats d'analyses minéralogiques de la fraction fine extraite de 65 échantillons d'arènes et de sols.

On y trouve les proportions approximatives de chacun des minéraux sans tenir compte du quartz, des feldspaths et des matières amorphes. Les abréviations HP, MP, BP signifient que l'échantillon a été prélevé en haut de pente, à mi-pente ou en bas de pente. La colonne de l'illite est divisée en trois : B signifie biotite, M muscovite ou séricite; la partie du milieu est réservée aux cas où la distinction n'a pas été possible.

De ce tableau on peut dégager plusieurs constatations.

MASSIFS	Minéraux de la Roche-mère	N° de Terrain	Type de Terrain	Horizon	Situation Topographique	Illite			Vermiculite	Chlorite	Montmorillonite	Interstratifiés				Kaolinite	Halloysite	Dioctaédrique et Trioctaédrique	
						B	M					10 - 14 _c	10 - 14 _v	14 _c - 14 _v	10 - 14 _m			Dioct.	Trioct.
Granite de Natzwiller	Quartz 27 %	848	sol	B	HP		1		5	3					2		80	20	
		{ 847	sol	B	MP		1		3	4			2				80	20	
	Feldspaths 60 % Biotite 11 %	{ 844	arène	C	MP	7		1			2							50	50
		856	sol	B	BP			3			2				2		70	30	
		{ 971	sol	A	MP		1			2		1			6				
		{ 972	sol	A	MP		tr.			4		1			4				
		{ 973	sol	B	MP		tr.			4	2	2	tr.		2			70	30
		{ 975	arène	C	MP	5					tr.	1		2		2			
Granite de la Serva		818	sol	B	HP		1		6	tr.			2	1		60	40		
Enclave dioritique		{ 816	sol	B	HP			1	6	tr.			2		1		100		
	{ 816	arène	C	HP	1				tr.	tr.					9				
Granite de Dambach	Quartz 32 %	883	sol	B	HP	2		1	7	tr.					tr.				
		{ 874	sol	B	MP				3	7								100	
	Feldspaths 51 %	{ 877	arène	C	MP					10									
		{ 884	sol	B	BP		5			3			2						
		{ 889	arène	C	BP					10	tr.								
	Muscovite 9 %	{ 889	arène	C	BP					10	tr.								
		895	sol	B	BP					6	2	tr.			2			100	
Biotite 5 %	896	sol	B	BP	3		2		3			2		tr.		70	30		
Granite du Kagenfels	Quartz 35 %	840	sol	B	HP	1			6	tr.	1			2			80	20	
		831	sol	B	MP		1			5	2			2					
	Feldspaths 60 %	{ 825	arène	C	MP								8		1				
		{ 828	arène	C	MP		1						7		2				
		{ 835	sol	B	BP		1				9								
		{ 837	arène	C	BP			2					8						
Granite de la région d'Orbey		983	sol	A	HP	8		2											
		{ 985	sol	B	MP					6				4				40	60
		{ 987	arène	C	MP	10					tr.								
		982	sol	B	BP		6								4			100	
Granite de la région de Metzeral	Quartz 29 % Feldspaths 43 % Biotite 18 %	{ 961	sol	B	MP		1		6	tr.					1		50	50	
		{ 962	arène	C	MP	2				2		2	4						

a) *L'illite* est partout présente, sauf sur la diorite du Neuntelstein. Abondante dans l'extrait $< 2\mu$ des arènes, elle ne représente en général qu'une faible partie de la fraction fine des sols. L'illite est trioctaédrique sur le granite de Natzwiller (844,975), le granite de la région d'Orbey (983,978) et les durbachites (946,947) qui sont des syénites surmicacées à biotite, amphibole et microcline. Elle est dioctaédrique sur le granite de Dambach contenant de la muscovite, sur les granites de Senones, du Hohwald et sur la roche basique de Lerchenmatt; puisque ces trois dernières roches ne contiennent pas de muscovite, il s'agit donc de séricite.

b) *La vermiculite* est le minéral qui domine partout sauf dans les échantillons en provenance des granites d'Orbey et d'Andlau.

c) *La chlorite, la montmorillonite et les interstratifiés* apparaissent épisodiquement sans qu'il soit possible de tirer des lois concernant leur répartition en fonction du type de roche mère et de la situation des profils dans la topographie.

d) *La vermiculite-Al et la chlorite-Al.* — Les traitements au citrate de sodium et au fluorure d'ammonium appliqués à six échantillons ont permis de mettre chaque fois en évidence qu'une partie de ce qu'on a appelé chlorite ou interstratifiés chlorite-vermiculite (14_C-14_V) ou illite-chlorite ($10-14_C$) est en fait de la vermiculite-Al. On trouvera les résultats dans le tableau II.

TABLEAU II
Détermination des vermiculites-Al

minéraux N°	chlorite	14_V-14_C	vermiculite	vermiculite-Al	montmorillonite	illite	kaolinite	Remarques
925	6		2			2		non traité
	2		2	4		2		traité
924	1	3	6					non traité
			6	4				traité
928	4	3	2			1		non traité
			2	7		1		traité
847	7		3					non traité
	4		3	3				traité
848	6		4					non traité
	5		4	1				traité
973	1		5		2		2	non traité
	1		5	0	2		2	

Après les traitements, certains feuillets de chlorite demeurent et il est alors très difficile de dire s'il s'agit de chlorite-Al ou de chlorite-Mg. La chlorite est en tous cas trioctaédrique dans les échantillons d'arène du massif du Hohwald et de Thannenkirch. Mais ces deux roches, lorsqu'elles sont saines, contiennent déjà de la chlorite-Mg.

e) *Minéraux dioctaédriques et trioctaédriques.* — La distinction ne s'applique que difficilement au mélange de plusieurs minéraux. La biotite et la chlorite sont trioctaédriques; la muscovite et la sérícite sont dioctaédriques et il semblerait que les vermiculites et montmorillonites le soient aussi.

f) *Minéraux à 7 Å.* — Ces minéraux sont faiblement représentés dans les arènes et les sols à l'exception des profils sur granite de Natzwiler où la kaolinite domine; dans une enclave basique du granite de la Serva, on trouve de l'halloysite en proportion importante.

B. — COMPOSITION MINÉRALOGIQUE DES ARÈNES

Les observations sur l'arénisation dans les Vosges rejoignent celles de COLLIER (1961) dans le Massif Central. La roche perd très vite de sa cohésion sans accuser pour autant une altération très poussée; le taux de matière fine reste faible dans la plupart des cas. L'altération se manifeste par un blanchiment des plagioclases qui deviennent pulvérulents et prennent un aspect crayeux. Ce sont les premiers minéraux altérés. Les biotites se décolorent parfois pour devenir légèrement verdâtres.

Pour préciser l'origine des argiles trouvées dans les arènes, on a effectué des séparations par procédé magnétique entre minéraux ferromagnésiens (biotites) et minéraux blancs (feldspaths, quartz, muscovite, séricite).

1. Altération des biotites.

Huit échantillons de biotites altérées ont été étudiés. Deux évolutions sont possibles, l'une vers la chlorite (granite de Thannenkirch et du Hohwald), l'autre vers l'hydrobiotite, les interstratifiés 10-14_v, la vermiculite ou la montmorillonite (granites de Natzwiller, du Hohwald, d'Andlau, des Crêtes, de Senones et de Metzeral).

Dans le premier cas, les roches mères saines contiennent déjà de la chlorite et de la biotite. La chlorite apparaît là comme un produit de rétrodiagenèse des biotites (LELONG et MILLOT, 1966). Mais dans la zone superficielle d'altération, cette évolution amorcée en profondeur semble continuer car, dans les arènes, la biotite est complètement chloritisée. Ce phénomène n'est d'ailleurs que transitoire; en effet, dans les tailles fines (< 2 μ), la chlorite est absente et fait place aux interstratifiés (14_r-14_v) et à la vermiculite. C'est la preuve qu'ici la chlorite évolue vers la vermiculite.

Du point de vue chimique, l'altération des biotites en vermiculites se fait selon le schéma suivant (tableau III) :

- lessivage du potassium des espaces interfoliaires;
- départ de magnésium des octaèdres;
- augmentation des cations trivalents dans les octaèdres.

TABLEAU III
Altération des biotites

	octaèdres		espaces interfoliaires	tétraèdres	
	Mg ²⁺	R ³⁺	K ⁺	Si ⁴⁺	Al ³⁺
B ₉₄₅	1,24	0,53	0,53	2,98	1,02
B ₉₃₆	1,01	0,71	0,43	2,99	1,01
B ₉₁₆	0,80	0,90	0,34	3,15	0,85
B ₈₆₇	0,53	0,94	0,04	3,24	0,76

↓
Altération
croissante

Ces observations s'accordent bien avec celles des nombreux auteurs qui ont étudié la transformation des micas en vermiculite (JOHNSTONE, 1889; MURRAY et LEININGER, 1956; MORTLAND, LAWTON et UEHARA, 1956; HARRISON et MURRAY, 1959; de MUMBRUM, 1963; et surtout FOSTER, 1963; NEWMAN et BROWN, 1966).

Il semble bien qu'au cours de cette transformation le rapport Si/Al reste à peu près constant, bien qu'on puisse remarquer que les substitutions de Si par Al dans les tétraèdres diminuent. Ceci peut être dû à la présence de faibles quantités de montmorillonite. CAILLÈRE et HÉNIN (1951) montrent en effet que lorsque le phlogopite s'altère en vermiculite le rapport Si/Al des tétraèdres reste inchangé, alors que si l'altération conduit à la montmorillonite le rapport Si/Al passe de 2,4 à 5,9.

2. Altération des feldspaths.

Les résultats de l'étude minéralogique de la fraction fine extraite des feldspaths de quelques arènes sont les suivants :

granite d'Andlau	montmorillonite (9)	kaolinite (1)	
granite de Natzwiller	montmorillonite (4)	kaolinite (4)	séricite (2)
granite de Metzeral	montmorillonite (5)	(10-14 _v) (5)	
granite de Thannenkirch	montmorillonite (1)	métahalloysite (2)	vermiculite (2)
		séricite (5)	
granite de Senones	kaolinite (8)	(10-14 _c) (1)	séricite (1)
granite des Crêtes	métahalloysite (3)	(10-14 _c) (2)	vermiculite (4)
		séricite (1)	

On remarque que la kaolinite, la métahalloysite et la séricite apparaissent presque partout. La montmorillonite est parfois dominante; elle est dioctaédrique (réflexion 060 à 1,49 Å). La vermiculite et les interstratifiés (10-14_v) sont quelquefois représentés en quantités importantes.

Quelques analyses montrent que le pourcentage d'alumine amorphe dans la fraction inférieure à 2 μ extraite des feldspaths est compris entre 0,70 et 1,90 %.

C. — MATIÈRES AMORPHES DANS LES SOLS

Des analyses effectuées au Centre de Pédologie de Nancy par la méthode TAMM et au Centre O.R.S.T.O.M. de Bondy par la méthode SÉGALEN, montrent que dans les sols étudiés les matières amorphes se répartissent à peu près comme suit : Al₂O₃ : 1 à 10 %; SiO₂ : 0,4 à 4 %; Fe₂O₃ : 2 à 10 %. Le rapport moléculaire SiO₂/Al₂O₃ est compris entre 0,18 et 0,85.

IV. — INTERPRÉTATIONS

La fraction fine des sols et des arènes contient des matières amorphes et des minéraux argileux. Il faut essayer de connaître l'origine de chacune de ces phases.

A. — ORIGINE DES MATIÈRES AMORPHES

Les matières amorphes existent toujours en plus ou moins grande quantité dans les sols; dans les Vosges on trouve même des andosols qui contiennent 6 % d'alumine amorphe (HÉTIER et TARDY, 1968; HÉTIER, 1968). Pour certains auteurs (MILLOT, LUCAS, PAQUET, 1965; CLOOS, FRIPIAT, VIELVOYE, 1961), les matières amorphes peuvent provenir de la dégradation extrême des minéraux argileux des sols. Sans vouloir exclure cette voie, nous pensons qu'une importante partie du matériel amorphe provient de la décomposition des feldspaths et notamment des plagioclases. Cette « amorphisation » n'est que le prolongement, dans les tailles fines, de la microdivision des feldspaths qui prennent un aspect crayeux et pulvérulent. Amorcée dans les arènes, cette transformation s'accroît dans les sols.

B. — LA KAOLINITE, MÉTAHALLOYSITE ET HALLOYSITE

Ces minéraux sont néoformés. La silice et l'alumine qui entrent dans leur composition peuvent provenir des feldspaths ou des micas comme le suggère WILSON (1966). Mais les minéraux à 7 Å sont déjà présents dans les feldspaths décomposés des arènes. C'est donc plus volontiers à partir des produits de l'hydrolyse de ces derniers que s'élabore la néoformation des minéraux de la famille de la kaolinite.

C. — LES ILLITES

On appelle couramment illites les minéraux micacés de la fraction fine des sols. Elles peuvent être en fait de la biotite, de la muscovite ou de la séricite plus ou moins dégradées. On a souvent tendance à augmenter la part qui revient à la séricite, car bien souvent les édifices à 10 Å ne sont que des biotites et muscovites fragmentées qui apparaissent dans les petites tailles.

Dans les feldspaths altérés des arènes, on a trouvé des interstratifiés (10-14_v), de la vermiculite et de la montmorillonite. On peut penser, bien entendu, que ces minéraux proviennent tous de la dégradation de la séricite et c'est ce qui expliquerait qu'on ne la retrouve plus qu'en petite quantité. Mais les micas blancs sont généralement très stables et il faut être prudent avant d'affirmer qu'ils peuvent se dégrader très vite au cours des premiers stades de l'altération.

Nous pensons plutôt avec COLLIER (1961) et LELONG et MILLOT (1966) que la séricite provient des roches mères saines et qu'elle ne naît pas dans les arènes en surface.

D. — LES INTERSTRATIFIÉS ET LES MINÉRAUX A 14 Å

Dans les sols et arènes des Vosges, plusieurs cas permettent d'affirmer avec certitude que la vermiculite, la chlorite et la montmorillonite sont des produits de dégradation des micas primaires des roches. C'est ce que l'on obtient en séparant, par triage magnétique, les biotites altérées des arènes. Les transformations des micas ou des chlorites en interstratifiés (10-14_v) ou (14_c-14_v), en vermiculite ou en montmorillonite, ont déjà été abondamment décrites. Des schémas de synthèse sont donnés par JACKSON (1959), CAMEZ (1962), MILLOT, LUCAS et PAQUET (1965). Différents minéraux sont reconnus selon que l'on part d'un mica dioctaédrique ou trioctaédrique. Mais il semble bien que les produits finaux aient tendance à devenir dioctaédriques. C'est le cas des montmorillonites des podzols (BROWN et JACKSON, 1958; GJEMS, 1960) et ceci, même lorsqu'on part d'un mica trioctaédrique (GLENN, JACKSON, HOLE et LEE, 1960). Il est vrai cependant que MACEWAN (1948) et WALKER (1950) observent des montmorillonites trioctaédriques lorsque la roche mère est basique ou que le drainage est mauvais.

E. — HYPOTHÈSE DE LA NÉOFORMATION DES MINÉRAUX A 14 Å

Face à ces schémas de dégradation désormais classiques et qu'il n'est pas question de remettre en cause, apparaît une autre hypothèse : celle de la néoformation des minéraux à 14 Å.

On trouve en effet de la vermiculite et de la montmorillonite dans les arènes et les sols du granite du Kagenfels, de la diorite du Neuntelstein et du gabbro de Lerchenmatt. Or ces roches ne contiennent à l'origine que très peu de micas et il devient alors assez difficile d'expliquer l'origine des vermiculites et montmorillonites autrement que par la néoformation. On a vu d'autre part qu'on trouvait parfois une proportion notable de montmorillonite dioctaédrique dans les plagioclases altérés (granite d'Andlau). Il est vrai que la fraction fine étudiée ne représente souvent qu'une très faible partie des échantillons (< 10 %) et qu'il est difficile dans ce cas d'avancer des preuves très nettes. Néanmoins l'éventualité des néoformations de vermiculite a déjà été avancée par WALKER (1949); CLARK, BRYDON, FARSTAD (1963); MITCHELL (1963) et BARSHAD (1966).

F. — LA VERMICULITE-AL ET LA CHLORITE-AL

La présence de vermiculite-Al est reconnue dans de nombreux sols en pays tempérés et cela a déjà été longuement décrit, notamment par KLAGES et WHITE (1957), RICH et OBENSHAIN (1955), TAMURA (1957), JACKSON (1963), JONES, MILNE et ATTWILL (1964), FRINK (1965), RICH (1968).

L'aluminium hexacoordonné en position interfoliaire joue le même rôle que le feuillet

brucitique des chlorites. Il accroît la stabilité des minéraux et les protège de la dégradation (RICH et OBENSHAIN, 1955).

L'origine de l'aluminium interfoliaire est discutée. Il peut provenir :

- soit de la couche octaédrique des argiles devenues acides par lessivage des cations alcalins et alcalino-terreux; ce phénomène est bien connu; il a déjà été décrit par MANTIN, GLAESER et MÉRING (1959) et COLEMAN (1962); il s'agit dans ce cas d'un processus de dégradation selon le schéma de MILLOT, LUCAS et PAQUET (1965), où l'aluminium descend de la couche octaédrique pour migrer dans l'espace interfoliaire;
- soit de l'extérieur du minéral, notamment du matériel amorphe; les minéraux argileux captent l'aluminium qui ne peut s'individualiser; c'est ce que JACKSON (1963) appelle phénomène « antigibbsite ». Il s'agirait là d'une véritable agradation (SAWHNEY, 1958).

G. — MÉCANISME D'UNE ÉVENTUELLE NÉOFORMATION

La néoformation de vermiculite pourrait être expliquée selon le schéma que JACKSON (1965) utilise pour expliquer la néoformation de montmorillonite sur un feuillet micacé.

Sur la figure 3 on remarque plusieurs stades : en (a) fixation d'ions Al sur un feuillet micacé; en (b) adjonction de SiO_4H_4 sur la surface alumineuse interfoliaire; en (c) polymérisation et adjonction d'un second feuillet siliceux; en (d) individualisation du nouveau feuillet formé. On conçoit ainsi que l'aluminisation des feuillets soit comprise dans ce cas comme une étape intermédiaire dans la voie de la néoformation. Naturellement ces minéraux de néoformation ne sont appelés vermiculites qu'à cause de leur comportement aux rayons X. On ne connaît rien, par exemple, de leur pourcentage de substitutions tétraédriques.

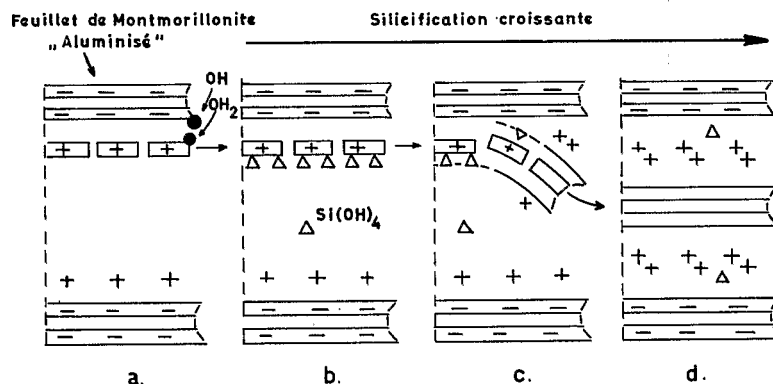


FIG. 3. — Schéma de néoformation de feuillets du type 2 : 1 dans les espaces interfoliaires des argiles (selon JACKSON, 1965).

CONCLUSIONS

L'étude de la fraction fine de quelques sols et arènes des Vosges a montré l'existence de plusieurs phases minérales.

— Des matières amorphes parfois abondantes dans les sols (10 %) et faibles dans les arènes (2 %); Al_2O_3 en est le constituant essentiel tandis que le rapport moléculaire moyen $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ est de l'ordre de 0,4.

— Des minéraux à 10 Å dioctaédriques ou trioctaédriques où la proportion de séricite n'est pas importante. Ils sont hérités des roches mères et ne sont pas néoformés dans le sol.

— Des minéraux à 7 Å dont la proportion reste assez faible. Ce sont des minéraux de néoformation, nés des produits d'hydrolyse des feldspaths.

— Des minéraux à 14 Å, vermiculite, montmorillonite et chlorite ainsi que des interstratifiés (14_v-14_c), ($10-14_M$), ($10-14_v$) et ($10-14_c$). Certains feuillets de vermiculite admettent en position interfoliaire des couches d' $\text{Al}(\text{OH})_3$ qui leur confèrent un comportement de chlorite. Cette chlorite dioctaédrique est stable tandis que la chlorite trioctaédrique issue des roches mères se transforme rapidement en vermiculite. Deux voies permettent d'expliquer la genèse des minéraux à 14 Å.

La première fait appel à la dégradation des feuillets micacés hérités des roches mères. Ces minéraux peuvent être les muscovites, les biotites, les chlorites de rétrodiagenèse des minéraux ferromagnésiens et les séricites de rétrodiagenèse des minéraux alumineux. Dans cette dégradation les interstratifiés ($10-14_v$) ou ($10-14_M$) sont des édifices de transition. L'aluminisation des feuillets peut être également considérée comme une étape de la dégradation. L'aluminium qui quitte les feuillets se dispose en position interfoliaire et résiste dans certaines conditions à l'hydrolyse et à l'évacuation. Cette première voie est connue et maintes fois démontrée. Elle se vérifie ici dans certains exemples. Le problème est de savoir si elle est la seule.

La deuxième voie fait appel à la néoformation des vermiculites et montmorillonites. Elle paraît indispensable pour expliquer la présence de ces minéraux dans les feldspaths altérés et dans les sols qui sont développés à partir des roches dépourvues de micas. Dans ces conditions où la silice est mal évacuée, des feuillets à deux couches de silice prendraient naissance et s'organiseraient en vermiculite ou montmorillonite néoformées. Il s'agit ici de ce que PEDRO (1964) appelle la bisiallisation.

Une voie intermédiaire se définit si l'alumine libérée par l'hydrolyse des feldspaths vient garnir les espaces interfoliaires des édifices micacés débarrassés de leur population de cations solubles. Dans ce cas les minéraux-Al, vermiculite-Al et chlorite-Al ne sont pas dégradés mais en voie d'agradation.

Ce travail montre que la voie de la dégradation n'est probablement pas la seule. Pour démontrer l'autre, plusieurs méthodes sont utilisables : l'étude de l'altération des roches absolument dépourvues de micas, chlorites et séricites, l'étude thermodynamique des solutions et l'étude des bilans géochimiques.

Quoi qu'il en soit, si, au cours de l'altération en pays tempéré, le devenir des micas est connu, celui des feldspaths est plus ambigu. Ils sont à l'origine des matières amorphes et des minéraux de la famille de la kaolinite dont le rapport $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ est bas. L'altération est alors allitique dans un cas et monosiallitique dans l'autre. Ils sont également à l'origine

de minéraux plus riches en silice : séricites dans la zone de rétrodiagenèse et vermiculites ou montmorillonites dans la zone d'altération superficielle (altération bisiallitique).

Si les conditions de l'altération (néoformation de gibbsite) et de la monosiallisation (néoformation des minéraux de la famille des kaolinites) commencent à être bien connues en pays tropical, nous approchons ici celles de la bisiallisation en climat tempéré. Toutes les issues proposées par l'expérience et par le raisonnement se retrouveraient dans la nature.

Abstract

The inventory of the clay minerals present in soils and « arènes » of the crystalline Vosges Mountains is carried on herein. The occurrence of an aluminum intergrade (Al-vermiculite), considered up to now as a (vermiculite-chlorite) mixed layer has been pointed out. Illite, identified in soils, is not an authigenic clay mineral but a product inherited from the primary micas of rocks and from sericite, probably formed in the zone of retrodiagenesis. Vermiculite and montmorillonite proceed from the degradation of these micaceous structures. But it may be assumed also that these clay minerals could be new-formed from elements which were released during the hydrolysis of feldspars.

Zusammenfassung

Die Tonminerale der Böden und Verwitterungsprofile des kristallinen Teiles der Vogesen werden untersucht. Es besteht ein Mineral mit Zwischenschicht Aluminium, der Al-Vermikulit welcher bis jetzt als Zwischenschichtstruktur Vermikulit-Chlorit angesehen wurde. In den Böden wird Illit nicht neugebildet sondern ererbt aus primären Glimmern der Gesteine und Sericiten die wahrscheinlich in der retrodiagenetischen Zone entstanden sind. Vermikulit und Montmorillonit sind Degradationsprodukte dieser Glimmerminerale. Andererseits könnten sich diese Minerale bei der Feldspathydrolyse aus freigewordenen Elementen Neubilden.

РЕЗЮМЕ

Глинистые минералы и вермикулит-"Al" в некоторых почвах и песках Vogезов. Гипотеза новообразования минералов в 14 Å

В этой работе осуществлена опись глинистых минералов в почвах и песках кристаллических Vogезов. Была доказана возможность существования минерала с междулистным алюминием. Вермикулит-"Al" считался до настоящего времени как иллит залегающий между напластованиями иллит-хлорит. Иллит почв не является минералом новообразования, но как унаследованный продукт первичных слюд пород и серицитов, наверно, зародившихся в зоне обратного диагенеза. Вермикулит и монтмориллонит являются продуктами разложения этих слюдяных структур. Также принято считать что эти минералы смогли бы быть новой формации из освобожденных элементов при гидролизе полевых шпатов.

BIBLIOGRAPHIE

- BARSHAD I. (1948). — Vermiculite and its relation to biotite as revealed by base exchange reactions, X ray analyses, differential thermal curves, and water content. *Amer. Min.*, 33, p. 655-678.
- BARSHAD I. (1954). — The use of salted pastles of soil colloïds for X rays analysis. *Clays and clay Min.* (2nd Nat. Conf., 1953), p. 209-217.
- BARSHAD I. (1966). — The effect of a variation in precipitation on the nature of clay mineral formation in soil from acid and basic igneous rocks. Proc. Intern. Clay Conf. Jerusalem, p. 167-173.
- BROWN G. (1953). — The dioctahedral analogue of vermiculite. *Clay min. Bull.*, 2, p. 64-69.
- BROWN G. (1961). — The X ray identification in the soil of north-east Scotland. *Min., Mag.*, 29, p. 72-84.
- BROWN B. E. et JACKSON M. L. (1958). — Clay mineral distribution in the Hiawatha sandy soil of Northern Wisconsin. *Clays and clay Min.* (5th Nat. Conf. 1956), p. 213-226.
- CAILLÈRE S. et HÉNIN S. (1951). — Etude de quelques altérations de la phlogopite à Madagascar. *C.R. Acad. Sci. Paris*, 233, p. 1383-1385.
- CAMEZ T. (1962). — Etude sur l'évolution des minéraux argileux dans les sols des régions tempérées. *Mém. Serv. Carte géol., Als. Lorr.*, 20, 90 p.
- CARTER D. L., HARWARD N. E. et YOUNG J. L. (1963). — Variation in exchangeable K and relation to intergrade layer silicate minerals. *Soil Sc. Soc. Amer. Proc.*, 27, 3, p. 283-287.
- CLARK J. S., BRYDON J. E. et FARSTAD L. (1963). — Chemical and clay mineralogical properties of the concretionary brown soils of British Columbia (Canada). *Soil Sc.*, 95, p. 344-352.
- CLOOS P., FRIPIAT J. J. et VIELVOYE L. (1961). — Mineralogical and chemical characteristics of a glauconitic soil of the Hageland (Belgium). *Soil Sc.*, 91, p. 55-65.
- COLEMAN N. T. (1962). — II. Decomposition of clays and the fate of aluminum. *Ecl. Geol. Helv.*, 57, p. 1207-1218.
- COLLIER D. (1961). — Mise au point sur les processus de l'altération des granites en pays tempérés. *Ann. agron.*, 12, 3, p. 273-331.
- DUCHAUFOUR P. et SOUCHIER B. (1966). — Note sur une méthode d'extraction combinée de l'aluminium et du fer libres dans les sols. *Sc. Sol.*, 1, p. 17-30.
- FOSTER M. D. (1963). — Interpretation of the composition of vermiculites and hydrobiotites. *Clays and clay Min.* (10th Nat. Conf., 1961), p. 70-89.
- FRINK C. R. (1965). — Characterization of aluminum interlayer in soil clays. *Soil Sc. Soc. Amer. Proc.*, 23, 4, p. 379-382.
- GAC J. Y. (1968). — Les altérations de quelques roches cristallines des Vosges. Etude minéralogique et géochimique. Thèse 3^e cycle, Fac. Sci. Strasbourg, 1968, 77 p.

- GJEMS O. (1960). — Some notes on clay minerals in podzols profiles in Fennoscandia. *Clay Min. Bull.*, 4, p. 208-211.
- GJEMS O. (1963). — A swelling dioctahedral clay mineral of vermiculite-smectite type in the weathering horizons of podzols. *Clay Min. Bull.*, 5, p. 183-193.
- GLENN R. C., JACKSON M. L., HOLE F. D. et LEE G. B. (1960). — Chemical weathering of layer silicate clays in loess-derived Tama silt loam of southern Wisconsin. *Clays and clay Min.* (8th Nat. Conf., 1959), p. 63-83.
- HARRISON J. L. et MURRAY H. H. (1959). — Clay mineral stability and formation during weathering. *Clays and clay Min.* (6th Nat. Conf., 1957), p. 144-153.
- HÉTIER J. M. (1968). — Etude de quelques sols andosoliques sur roches volcaniques primaires des Vosges. Thèse 3^e cycle, Fac. Sci. Nancy 19, 54 p.
- HÉTIER J. M. et TARDY Y. (1968). — Présence de vermiculite-Al, montmorillonite-Al et chlorite-Al et leur répartition dans quelques sols des Vosges. *C.R. Acad. Sci. Paris* 268, p. 259-261.
- HSU PA HO et BATES T. F. (1964). — Fixation of hydroxyd-aluminum polymers by vermiculite. *Soil Sc. Soc. Amer. Proc.*, 28, 6, p. 763-769.
- JACKSON M. L. (1959). — Frequency distribution of clay minerals in major great soil group as related to the factors of soil formation. *Clays and clay Min.* (6th Nat. Conf., 1957), p. 133-143.
- JACKSON M. L. (1963). — Interlayering of expansible layer silicates in soils by chemical weathering. *Clays and clay Min.* (11th Nat. Conf., 1962), p. 29-46.
- JACKSON M. L. (1965). — Clay transformation in soils genesis during the Quaternary. *Soil Sc.*, 99, p. 15-22.
- JOHNSTONE A. (1889). — On the action of pure water and of water saturated with carbonic acid gas on the minerals of the mica family. *Quat. Journ. Geol. Soc.*, 45, p. 363-368.
- JONES L. H. P., MILNE A. A. et ATTIWILL P. M. (1964). — Dioctahedral vermiculite and chlorite in highly weathered red loams in Victoria Australia. *Soil Sc. Soc. Amer. Proc.*, 28, 1, p. 108-113.
- KLAGES M. G. et WHITE J. L. (1957). — A chlorite-like mineral in Indiana soils. *Soil Sc. Soc. Amer. Proc.*, 21, p. 16-20.
- LELONG F. et MILLOT G. (1966). — Sur l'origine des minéraux micacés des altérations latéritiques. Diagenèse régressive. Minéraux en transit. *Bull. Serv. Carte géol. Als. Lorr.*, 19, 3-4, p. 271-286.
- LUCAS J., CAMEZ T. et MILLOT G. (1959). — Détermination pratique aux rayons X des minéraux argileux simples et interstratifiés. *Bull. Serv. Carte géol. Als. Lorr.*, 12, p. 21-33.
- LUCAS J. (1962). — La transformation des minéraux argileux dans la sédimentation. Etudes sur les argiles du Trias. *Mém. Serv. Carte géol. Als. Lorr.*, 23, 202 p.
- MACEWAN D. M. C. (1948). — A trioctahedral montmorillonite derived from biotite. XVII Intern. Geol. Congr. Great-Britain, abstr., p. 128.
- MANTIN I., GLAESER R. et MERING J. (1959). — Observations sur montmorillonite acide. Cations H et Al. *Silic. Industr.*, 24, 1, p. 131-132.
- MILLOT G. (1964). — Géologie des argiles. Masson, Paris, 499 p.
- MILLOT G., LUCAS J. et PAQUET H. (1965). — Evolution géochimique par dégradation et aggradation des minéraux argileux dans l'hydrosphère. *Géol. Rundschau*, 55, p. 1-20.

- MITCHELL W. A. (1963). — Mineralogical aspects of soil formation on a granitic till. Intern. Clay Conf. Stockholm, p. 131-138.
- MORTLAND M. M., LAWTON K., UEHARA G. (1956). — Alteration of biotite to vermiculite by plant growth. *Soil Sc.*, 82, p. 477-481.
- MUMBRUM L. E. de (1963). — Conversion of mica to vermiculite by potassium removal. *Soil Sc.*, 96, p. 275-276.
- MURRAY H. H. et LEININGER R. K. (1956). — Effect of weathering on clay minerals. *Clays and clay Min.* (4th Nat. Conf., 1955), p. 340-347.
- NAGELSCHEIDT G. (1937). — X ray investigations on clays. III. The differentiation of micas by X ray powder photograph. *Zeitschr. Krist.*, 97, p. 514-521.
- NEWMAN A. C. D. et BROWN G. (1966). — Chemical changes during the alteration of micas. *Clay Minerals*, 6, p. 297-309.
- PAWLUK S. (1963). — Characteristics of a 14 Å mineral in the B horizon of podzolized soils of Alberta. *Clays and clay Min.* (11th Nat. Conf., 1962), p. 74-82.
- PEDRO G. (1964). — Contribution à l'étude expérimentale de l'altération géochimique des roches cristallines. *Ann. Agron.*, 15, 2-4, 344 p.
- RICH C. I. et OBENSHAIN S. S. (1955). — Chemical and clay properties of a red-yellow podzolic soil derived from muscovite schist. *Soil Sc. Soc. Amer. Proc.*, 19, p. 334-339.
- RICH C. I. (1960). — Aluminum in interlayers of vermiculite. *Soil Sc. Soc. Amer. Proc.*, 24, p. 26-32.
- RICH C. I. et COOK G. (1963). — Formation of dioctahedral vermiculite in Virginia soils. *Clays and clay Min.* (10th Nat. Conf., 1963), p. 96-106.
- RICH C. I. (1968). — Hydroxy-interlayers in expansible layer silicates. *Clays and clay Min.*, 16, p. 15-30.
- SAWHNEY B. L. (1958). — Aluminum interlayers in soils clay minerals montmorillonite and vermiculite. *Nature*, 182, p. 1595-1596.
- SAWHNEY B. L. (1960). — Weathering and aluminum interlayers in a soil catena Hollis-Charlton-Sutton-Leicester. *Soil Sc. Soc. Amer. Proc.*, 24, p. 221-226.
- SHEN M. J. et RICH C. I. (1962). — Aluminum fixation in montmorillonite. *Soil Sc. Soc. Amer. Proc.*, 26, p. 33-36.
- SÉGALEN P. (1968). — Note sur une méthode de détermination des produits minéraux amorphes dans certains sols à hydroxydes tropicaux. *Cahiers O.R.S.T.O.M., Serv. Pédol.*, VI, 1, p. 105-126.
- TAMURA T. (1956). — Weathering of mixed-layer clays in soils. *Clays and clay Min.* (4th Nat. Conf., 1955), p. 413-422.
- TAMURA T. (1957). — Identification of the 14 Å clay mineral component. *Amer. Min.*, 42, p. 107-110.
- TAMURA T. (1958). — Identification of clay minerals from acid soils. *Journ. Soil Sc.*, 9, p. 141-147.
- WALKER G. F. (1949). — The decomposition of biotite in the soil. *Min. Mag.*, 28, p. 693-703.
- WALKER G. F. (1950). — Trioctahedral minerals in the soil clays of North-East Scotland. *Min. Mag.*, 29, p. 72-84.
- WALKER G. F. (1957). — On the differentiation of vermiculites and smectites in clays. *Clay Min. Bull.*, 3, p. 154-164.

- WALKER G. F. (1958). — Reactions of expanding-lattice clay minerals with glycerol and ethylene glycol. *Clay. Min. Bull.*, 3, p. 302-313.
- WEED S. B. et NELSON L. A. (1962). — Occurrence of chlorite-like intergrade clay minerals in coastal plain, Piedmont and mountain soils of North-Carolina. *Soil Sc. Soc. Amer. Proc.*, 26, 4, p. 393-398.
- WILSON M. J. (1966). — The weathering of biotite in some Aberdeenshire soils. *Min. Mag.*, 35, 269-276, p. 1080-1093.

**MINÉRAUX ARGILEUX ET VERMICULITE-AL DANS QUELQUES SOLS
ET ARÈNES DES VOSGES. HYPOTHÈSE SUR LA NÉOFORMATION
DES MINÉRAUX A 14 Å**

par

[Yves TARDY] et Jean-Yves GAC

*Centre de Recherches de Sédimentologie et de Géochimie de la Surface de Strasbourg (C.N.R.S.)
Laboratoire de Géologie et de Paléontologie de l'Université de Strasbourg (*)
Office de la Recherche Scientifique et Technique d'Outre-Mer*
