H2 74682 2F B42493/2

Formation géochimique d'horizons stratiformes dans un sédiment altéré : relais entre néoformation de kaolinite et ferrolyse. Bassin de Taubaté, Brésil

Heloisa F. Filizola et René Boulet

Résumé Dans des altérites de roches sédimentaires sableuses, on observe la formation de niveaux argilosableux blancs, à aspect de strate, par néoformation de kaolinite. Plus haut dans la séquence sédimentaire, ces niveaux se transforment par ferrolyse en matériel sableux ocre.

Mots-clés : Néoformation de kaolinite, Ferrolyse, Brésil.

Abstract Geochemical formation of stratiform horizons in an altered sediment: shift between kaolinite neoformation and ferrolysis, Taubaté basin, Brazil

The formation of argilo-arenaceous layers was observed in the alteration material of arenaceous sedimentary rocks, with the aspect of strata, by kaolinite neoformation. Analogous layers become sandy material by ferrolysis.

Keywords: Kaolinite neoformation, Ferrolysis, Brazil.

Abridged English Version

HE Taubaté basin is a graben filled by Tertiary and Lower Quaternary sediments. The most recent formation (Pindamonhangaba Formation, Riccomini, 1989) on which the observations here described were made, is formed by a fluvial complex where kaolinitic material (argillaceous rocks) are interstratified with coarser levels (sandy and quartzose pebble layers).

The sedimentary material immediately subjacent to the pedological cover kept the stratification but suffered important changes since deposition. Microscopic study of the argillites showed that their plasma essentially consisted of kaolinized muscovite pseudomorphs of the same size as coarse silt.

Also observed in the sandy strata are argillo-arenaceous layers of centimetric to decimetric thickness, constituted by coarse arenaceous skeleton grains and even by pebbles, totally cemented by white clay. There are also, in ochre sandy layers, white argilo-arenaceous domains, similar to the preceding argillo-arenaceous layers, from which they seem to derive, appearing in centimetric discontinuous horizontal beds, with ochre borders.

The aim of this Note is to study the origin of these two facies.

ORIGIN OF WHITE ARGILLO-ARENACEOUS LAYERS

Under the microscope, in the base of the a layer, was observed a sandy material with granular fabric, forming a highly porous complex, where some voids are filled by groups of kaolinite booklets often branched (figure 3). These branches are perpendicular to the lamellae, which excludes the possibility of being pseudomorphs of muscovites that exfoliate in the extremity of the lamellae or parallel to this. Upwards these groups multiply at the same time as an isotropic plasmic fabric of

GÉOSCIENCES DE SURFACE/ SURFACE GEOSCIENCES (PÉDOLOGIE/PEDOLOGY)

C.R. Acad. Sci. Paris, t. 320, série II *a*, p. 1087 à 1093, 1995

H. F. F. : EMBRAPÀ/CNPMA, Rodovia Campinas/Mogi Mirim, Km 127,5, CP 69, CEP 13820-000 Jaguariúna, SP Brasil ;

R. B. : Institut Français de Recherche Scientifique pour le Développement en Coopération, ORSTOM, UR 12, Instituto de Geociências, DGG, CP 20899, CEP 01498-970 São Paulo-SP, Brasil.

minum rougis Ducumentaire

Note

1087

présentée par Georges Pédro. remise le 21 novembre 1994, acceptée après révision le 28 mars 1995.

e i B e

,

kaolinitic composition appears. This fabric fills the s-matrix (figures 5 and 6). It is possible to infer that these argillo-arenaceous beds result from the kaolinite neoformation.

TRANSFORMATION OF THE WHITE ARGILLO-ARENACEOUS LAYER INTO OCHRE SAND

Under the microscope, the s-matrix on the top of the layer consists of a coarse quartzose skeleton-grain and by a continuous isotropic plasma. The scarce voids are small and their borders are strongly encrusted by iron oxide (neoferran) and surrounded by a quasiferran (figure 7). Neoferran fragments disrupt and partially fill the void (figures 8 and 9). On the base of the layer remains only quartz that is irregularly bordered by the neoferran (figure 10). A microprobe analysis shows that the plasma has kaolinitic composition and is very poor in iron. The neoferran is rich in iron but has a kaolinitic background.

I. INTRODUCTION

Le bassin de Taubaté est situé dans le graben de Paraiba, dont l'origine est liée à l'évolution du système de rifts continentaux qui bordent le bassin de Santos (Almeida, 1976). Les formations sédimentaires qui comblent ce graben appartiennent au Tertiaire et au début du Quaternaire. La formation la plus récente (Formation Pindamonhangaba, Riccomini, 1989), sur laquelle ont été faites les observations présentées ici, est constituée d'un complexe fluviatile où alternent des sédiments kaolinitiques (argilites) intercalés avec des niveaux plus grossiers (sables et niveaux de galets quartzeux). Le climat est de type tropical humide avec une pluviosité moyenne annuelle variant de 1 000 à 1 500 mm. Les températures moyennes mensuelles varient de 25 à 30°C pour les maxima et de 5 à 10°C pour les minima.

Les matériaux sédimentaires immédiatement sous-jacents à la couverture pédologique, conservent leur stratification où alternent des couches subhorizontales, décimétriques à métriques, d'argilite, de sables et de galets. L'étude microscopique The ferruginous grains in the voids are made up only of iron. There is then a destruction of kaolinite by ferruginous encrustation, that corresponds to the ferrolysis (Brinkman, 1970, 1979). The ferruginous grains, in their turn, are destroyed during the phases of reduction (figure 11).

CONCLUSIONS

The white argillo-arenaceous layers result from kaolinite neformation in the arenaceous material. This implies a supply aluminium as the arenaceous material does not contain it. The silica is also probably brought into solution as the quartz does not show any dissolution figure. Analogous layers lose their clay through ferrolysis that releases silica and aluminium of the kaolinite. Silica and aluminium can be used to create new deeper argillo-arenaceous layers. The global balance of these two mechanisms can then be considered as a shift between silica-aluminium and iron.

indique (Filizola, 1993) que ces matériaux ont subi d'importantes transformations depuis leur dépôt. Ainsi, les couches que l'on peut considérer comme des argilites, avec des teneurs en argile supérieures à 70 %, atteignant 90 %, montrent en lame mince que le plasma est essentiellement constitué de fantômes de muscovites, souvent très fines (30 à 50 µm) kaolinisées, la fraction sableuse étant quartzeuse, avec quelques minéraux accessoires, zircon, tourmaline, sphène, stautoride. Aucun feldspath ou fantôme de feldspath n'a été observé. Les niveaux sableux sont quartzeux, avec fréquemment quelques muscovites, kaolinisées ou non, et les rares minéraux accessoires précédemment cités.

On observe toutefois, dans les couches sableuses, des niveaux curieux, stratiformes, constitués de sables ou même de galets, dont les interstices sont totalement comblés par de l'argile blanche, ne comportant que quelques pores tubulaires. Ces niveaux, dont l'épaisseur peut atteindre 50 cm, jouent un rôle important dans la dynamique de l'eau des couvertures pédologiques que l'on a étudiées (Filizola, 1993), car ils constituent sou-

1088

vent le plancher des nappes perchées qui fluctuent à l'aval de ces couvertures. Il existe des interprétations sédimentologiques de tels niveaux comme le remplissage d'un dépôt grossier par décantation de matériaux fins consécutive à une diminution de compétence du courant, la diagenèse (Suguio, 1980), les mouvements de masse, etc.

On observe également, au sein de niveaux de sable moyen à grossier, de couleur ocre, des domaines argilo-sableux blancs, à squelette jointif, dont l'aspect est analogue à celui des niveaux stratiformes blancs décrits ci-dessus. Ces domaines se présentent généralement en bandes horizontales de quelques centimètres d'épaisseur et de quelques décimètres de longueur, plus rarement, en îlots isodiamétriques. Leur limite inférieure est diffuse, de couleur ocre.

L'objet de cette Note est d'étudier l'origine de ces deux derniers faciès (niveaux argilo-sableux blancs et compacts d'une part, bandes blanches dans les sables ocre d'autre part).

II. ORIGINE DES NIVEAUX D'ARGILE BLANCHE À SQUELETTE QUARTZEUX JOINTIF

L'échantillon choisi correspond à une bande argilo-sableuse blanche, épaisse d'environ 3 cm, dans un niveau sableux de couleur rose pâle, à stratification subhorizontale. Le choix d'un niveau mince qui constitue une bande nous permet d'avoir l'ensemble sur une seule lame. Au microscope, on observe, à la base de la bande, un matériel sableux, en assemblage granulaire lâche, dont certains vides sont obturés par des amas d'accordéons de kaolinite, souvent ramifiés perpendiculairement aux lamelles (figures 3 et 4) ou par des cristallisations plus petites, formant un *patchwork* (figure 1) ou les deux, le patchwork paraissant alors constitué de fragments des accordéons (figure 2). Il arrive également que des accordéons soient développés au contact des faces d'une muscovite saine (figure 4) ; ils paraissent résulter d'une croissance épitaxique de la kaolinite sur les plans 001 de la muscovite saine. En allant vers le sommet de la bande, ces cristallisations de muscovite se multiplient, en même temps qu'apparaît un plasma isotrope (figures 5 et 6) à composition de kaolinite (microsonde), les deux finissant par obturer la totalité des vides. Au contact du matériel sableux sus-jacent, apparaissent des figures de corrosion par le fer que nous décrivons plus loin.

Ces accordéons de kaolinite pourraient être considérés comme des fantômes de muscovite, seul minéral primaire présent dans le sédiment et susceptible de se kaoliniser. On élimine cette hypothèse au bénéfice d'une néoformation à partir de solutions, en constatant que ces accordéons se ramifient perpendiculairement aux lamelles, alors que les muscovites, observées au microscope optique, s'exfolient à leurs extrémités ou parallèlement aux lamelles. Cette ramification ne présente pas, d'autre part, l'aspect d'une exfoliation mais semble due aux déformations du réseau de la kaolinite, qui l'empêchent de croître indéfiniment. D'autres observations vont dans le même sens, comme la taille et la forme de ces accordéons, sans rapport avec celles des muscovites saines (figures 3 et 4) ou altérées (figure 2) présentes dans ce matériau.

Ces bandes argilo-sableuses blanches, très compactes, qui miment des strates sédimentaires sont donc le résultat de la néoformation de kaolinite, au sein d'un matériel sableux. Cette kaolinite est largement cristallisée lorsque le matériel est encore grossièrement poreux, puis apparaît, conjointement aux accordéons, un plasma mal cristallisé ou amorphe, qui ferme le reste de la porosité.

III. TRANSFORMATION DES BANDES ARGILO-SABLEUSES BLANCHES EN MATÉRIEL SABLEUX OCRE

L'échantillon choisi correspond à l'une des bandes blanches, compactes, horizontales, isolées au sein d'un matériel sableux ocre, épais de plus de 1 m. Son épaisseur est d'environ 2 cm, sa limite supérieure est soulignée par une fine bande brune, sa limite inférieure est progressive, la teneur en argile diminuant vers le bas, tandis que la couleur passe graduellement du blanc à l'ocre. Figure 1 Base de la bande d'argile blanche à squelette quartzeux jointif. Vide intergranulaire comblé par de petits accordéons en *Patchwork* (PK) ; Q = Quartz, AK = Grand accordéon de kaolinite.

Base of the white argillo-arenaceous layer. Void filled by groups of small kaolinitic booklets (*patchwork*: PK); Q = Quartz, AK = large kaolintic booklet.

Figure 2 Grand accordéon de kaolinite en partie fragmenté. MA : Muscovite altérée.

Large partly fragmented kaolinitic booklet. MA: weathered muscovite.

Figure 3 Grand accordéon de kaolinite ramifié perpendiculairement aux lamelles. MS : Muscovite peu altérée.

Large kaolinitic booklet branched perpendicularly to the lamella. MS: Small weathered muscovite.

Figure 4 Grands accordéons de kaolinite (AK) paraissant présenter une croissance épitaxique sur les plans 001 d'une kaolinite parfaitement saine (MS).

BEIGH

Large kaolinitic booklets (AK) which seem with epitaxic growth on perfectly fresh muscovite (MS).

Figures 5 (LP) **et 6** (LN) : Sommet de la bande : accordéons de kaolinite (AK) et plasma isotrope (PI). Ai : Artefact d'imprégnation.

Top of the white argillaceous layer: Kaolinitic booklets (AK) and isotropic

Barre = 0,5 mm Photographies 2 à 4, = 1 mm pour les autres.

plasma (PI). Ai: impregnation artefact.

(SECURE)

Bar = 0.5 mm: Photographs 2 to 4, = 1 mm for other photos.

1090



Figure 1



Figure 2



Figure 3

Figure 6

En lame mince, le sommet de la bande (figure 7) est constitué d'un squelette quartzeux grossier (0,5 à 1 mm), dont les interstices sont comblés par un plasma isotrope (éteint en lumière polarisée). Les vides sont de petite taille et rares. Leurs bords sont fortement incrustés d'oxydes de fer (néoferrane selon Brewer, 1964). Vers le plasma, le néoferrane est bordé d'une bande de couleur orange, qui s'estompe progressivement ou, plus souvent, est limitée par un fin liseré ferrugineux très opaque, qui accompagne la paroi du pore à une distance de 50 à 80 µm. Ce liseré constitue un quasi-ferrane (Brewer, 1964). La paroi ferruginisée du pore est très irrégulière et le pore lui-même est plus ou moins obstrué par les débris ferrugineux, souvent contigus à la paroi ou reliés à celle-ci par un isthme (figure 9). Vers le bas, l'abondance et la taille des vides augmentent, leur paroi présentant toujours la même organisation. Au stade ultime (figure 10), le matériel n'est plus constitué que de grains de sable présentant des pellicules ferrugineuses dis-



Figure 4



Figure 5

continues, analogues aux néoferranes, certaines d'entre elles étant séparées du quartz par une mince bande de plasma orange. Ces pellicules se prolongent fréquemment dans les vides par des amas de grains ferrugineux compacts ou filiformes et ramifiés (figure 10). Cette organisation est celle du sable ocre, dans lequel se trouvent les bandes et dont la couleur est due à ces pellicules ferrugineuses.

La différenciation des parois des pores évoque l'oxydation d'un objet en fer, qui se desquame en petites pellicules de rouille. Pour cette raison, on a appelé cette évolution morphologique des parois des pores, très fréquente dans les argilites, corrosion par le fer. Il semble en effet difficile d'expliquer cette séquence d'organisations autrement que par une imprégnation du plasma de la bordure des vides par le fer, suivie d'un démantèlement du plasma ainsi incrusté, les débris s'accumulant dans les vides. L'étude à la microsonde (analyse semi-quantitative) fait apparaître que :

- Le plasma isotrope est constitué de silice et d'aluminium dans des proportions qui sont celles de la kaolinite. Sa teneur en fer est extrêmement faible.

- Le quasi-ferrane montre un net enrichissement en fer, sur un fond alumino-siliceux analogue au plasma précédent.

- Le néoferrane est principalement constitué de fer, mais il persiste un fond alumino-siliceux.

- Les débris ferrugineux qui s'accumulent en bordure des vides sont essentiellement ferrugineux, les pics de la silice et de l'alumine étant à peine visibles.

L'analyse par diffraction des rayons X de la partie inférieure de la bande indique la présence de goethite, de kaolinite, avec un fond amorphe.

La pauvreté en fer du plasma implique que cet élément est apporté en solution dans les pores. La diminution, puis la disparition de la silice et de l'aluminium lorsqu'on va du plasma aux débris ferrugineux, montrent que l'incrustation par le fer de la paroi des pores s'accompagne d'une destruction de la kaolinite qui lui sert de support. Il s'agit d'une ferrolyse. Ce phénomène a été mis en évidence pour la première fois par Brinkman (1970, 1979) dans les horizons supérieurs de sols à gley de surface et de planosols des pays tempérés et tropicaux, où les alternances de réduction et d'oxydation liées aux variations saisonnières des précipitations provoquent une hydrolyse de l'argile par libération de protons lors de l'oxydation du fer ferreux en fer ferrique. Brinkman distingue ainsi la chéluviation, agent de la podzolisation, où il y a chélatation de fer II et III, ainsi que de l'aluminium, de la ferrolyse où la matière organique ne provoque pas de chéluviation et où le fer ferreux migre sous forme ionique en conditions réductrices puis s'oxyde en libérant des protons. Ambrosi et al. (1986) font ensuite intervenir la ferrolyse dans le processus de formation des glaebules ou concrétions ferrugineuses.

Le produit final étant ici la goethite, les réactions peuvent se résumer par les équations suivantes :

 $\begin{array}{rcl} 2 \ \mathrm{Fe}^{2 +} & \Leftrightarrow & 2 \mathrm{Fe}^{3 +} + 2 e^{-} \\ 2 \ \mathrm{Fe}^{3 +} + 4 \ \mathrm{H_2O} & \Leftrightarrow & 2 \ \mathrm{FeO}(\mathrm{OH}) + 6 \ \mathrm{H^+} \\ \mathrm{Si_2Al_2O_5(\mathrm{OH})_4} + 6 \ \mathrm{H^+} \\ & \Leftrightarrow & 2 \ \mathrm{Al^{3 +}} + 2 \ \mathrm{H_4} \ \mathrm{SiO_4} + \mathrm{H_2O} \end{array}$

L'intérêt du présent modèle est que la ferrolyse est l'unique mécanisme qui s'y manifeste et qu'il aboutit à la disparition quasi-totale du plasma kaolinique. Mais on a signalé que ce mécanisme intervient également de façon locale dans les argilites et l'un d'entre nous l'a observé très fréquemment dans les altérites à structure conservée de migmatite, sous des couvertures ferrallitiques épaisses de Guyane française (figure 12) où il attaque plus particulièrement les fantômes de biotite kaolinisée. Le milieu dans lequel il se manifeste est probablement la zone de battement de la nappe, ce que l'on ne peut plus vérifier actuellement, puisque les observations ont été faites sur des coupes artificielles profondes qui ont draîné cette nappe. Dans la séquence d'organisation présentée, on constate également que les débris ferrugineux qui s'accumulent dans les vides comblent presque entièrement ceux-ci dans les premiers stades (figures 7 et 8), puis que, bien que toujours présents, Figures 7 à 10 Les divers stades de la ferrolyse. Pl : Plasma isotrope, Q : quartz, V : Vide. Electron Different ferrolysis development status.

Pl: Isotropic plasma, Q: Quartz, V: Void. Figure 11 Grain d'hydroxyde de fer dans un vide. Image en électrons

rétrodiffusés.

Figure 12 Ferrolyse de fantômes de biotite kaolinisée dans un matériau d'altération à structure conservée de migmatite. Guyane française. BK : Biotite kaolinisée.

Ferrolysis of kaolinized biotite pseudomorph in an alterite of migmatite with petrographic conserved structure. French Guyana. BK: Kaolinized biotite.

Barre = 0,5 mm Photographies 2 à 4, = 1 mm pour les autres.

Bar = 0.5 mm: Photographs 2 to 4, = 1 mm for other photos.



Figure 7



Figure 8



Figure 9

Figure 11

Figure 10

Figure 12

ils n'occupent plus qu'un volume de plus en plus réduit par rapport à celui des vides. Ceci indique que ces débris sont eux-mêmes exportés, sans doute par dissolution lors des phases de réduction. La photo en électrons rétrodiffusés (figure 11) d'un grain ferrugineux situé dans un vide, montre que ces grains présentent une zonation festonnée plus ou moins concentrique au grain. Mais on observe aussi, au centre du grain, des vides planaires qui recoupent cette zonation et lui sont donc postérieurs. Sans que l'on ait d'explication pour leur forme planaire, ces vides ne peuvent correspondre qu'à une dissolution postérieure à la formation du grain à structure zonée.

IV. CONCLUSIONS

Nous avons constaté la présence de couches argilo-sableuses, blanches, compactes, au sein de niveaux sableux. Ces couches miment des strates, mais résultent en réalité de la néoformation de kaolinite au sein du matériel sableux. Inversement, il existe des bandes argilo-sableuses blanches et compactes, qui perdent la quasi-totalité de leur plasma kaolinique par ferrolyse.

Il existe donc, au sein de la même formation, deux processus antagonistes de genèse et de destruction d'horizons kaoliniques stratiformes.

- La genèse de ces horizons nécessite un apport d'aluminium, car le matériau sableux n'en contient pratiquement pas, si l'on excepte quelques muscovites saines ou kaolinisées. Le silicium est lui-même probablement apporté en solution, car les quartz du squelette ne montrent pas de figures de corrosion plus importantes dans ces bandes qu'ailleurs.

- La destruction de ces horizons libère le silicium et l'aluminium, qui sont alors susceptibles de migrer en profondeur et de participer à la néoformation de kaolinite dans une pseudostrate en cours de formation. Une telle migration d'aluminium à travers les couvertures pédologiques a par ailleurs été montrée par Delvigne (1965), Lucas (1989), et Lucas *et al.* (1990).

Le bilan global de ces deux processus apparaît comme un relais (aluminium, silice)/fer. Les conditions de néoformation ou de ferrolyse de la kaolinite sont probablement liées à la dynamique de la nappe phréatique.

Remerciements : Les auteurs remercient la FAPESP (Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo) pour son aide financière, l'Instituto Astrônomico e Geofísico (USP) pour la réalisation des analyses à la microsonde et Yves Lucas pour ses judicieuses suggestions.

- ALMEIDA, F. F. M., 1976. The systems of continental bordering of the Santos Basin Brazil, An. Acad. Bras. Cienc. (suplemento). 48, p. 15-26.
- AMBROSI, J. P., NAHON, D. et HERBILLON, A. J., 1986. The epigenic replacement of kaolinite by hematite in laterite. Petrographic evidence and mechanisms involved, *Geoderma*, 37, p. 283-294.
- BREWER, R., 1964. Fabric and mineral analysis, J. Wiley and Sons, NY, 470 p.
- BRINKMAN, R., 1970. Ferrolysis, a hydromorphic soil forming process, *Geoderma*, 3, p. 199-206.
- BRINKMAN, R., 1979. Ferrolysis, a soil forming process in hydromorphic conditions, *Thesis*, Wageningen, 105 p.
- DELVIGNE, J., 1965. La formation des minéraux secondaires en milieu ferrallitique, Mém. Office Rech. Sci. Outre-Mer (ORSTOM), Paris, 13, 177 p.

- FILIZOLA, H. F., 1993. O papel da erosão química na evolução do modelado da bacia de Taubaté-SP Brasil, *Tese de Doutorado*, FFLCH-USP, 145 p.
- LUCAS, Y., 1989. Systèmes pédologiques en Amazonie brésilienne. Équilibre, déséquilibre et transformations, *Thèse Sci.*, Poitiers, 157 p.
- LUCAS, Y., BOULET, R. et CHAUVEL, A., 1990. Mise en évidence de transferts d'aluminium dans les sols de la zone tropicale humide (cas d'une couverture ferrallitique de l'Amazonie brésilienne), C. R. Acad. Sci. Paris, 311, série II, p. 247-252.
- RICCOMINI, C., 1989. O rift Continental do sudeste do Brasil, *Tese de Doutorado*, IG USP, 256 p.
- SUGUIO, K., 1980. Rochas sedimentares. Propriedades. Gênese. Importância econômica, Editoria Edgard Blücher Ltda, São Paulo, 500 p.

CINET AN AVENUE AND A STREET

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES