

Reconstitution des conditions paléo-environnementales du dépôt du soufre oligocène des Camoins, à Marseille (Bouches-du-Rhône, France); rôle des bactéries dans la constitution et dans l'évolution des sédiments d'une lagune continentale aux eaux sulfatées

par CLAUDE ROUSSET*, VINCENT A. JACQ** et NICOLAS MAGNAN*

Mots-clés. – Provence-France, Marseille, Oligocène, Paléohydrologie, Soufre (minerais de), Lacustre (sédimentation), Lagunes, Cycle biologique du soufre, Sulfo-oxydation photosynthétique, Malaigues, Dystrophiques (crises).

Résumé. – Les collines des Camoins abritent une nappe d'eau sulfatée et sulfureuse froide qui alimente la station thermale de Camoins-les-Bains. La minéralisation de l'eau est assurée par la traversée d'un massif de laminites à gypse, carbonates, matière organique et soufre natif, d'âge stampien. L'examen des roches, minéraux et macéraux, en surface et dans l'ancienne mine de soufre, permet de constater la liaison des dépôts originels avec une activité bactérienne. En comparant les biotopes à l'origine des dépôts des Camoins, tels qu'on peut les reconstituer, à des milieux actuels, a été proposé un modèle de lagune continentale peu profonde, sujette à l'assèchement en climat chaud et aride, avec des eaux sulfatées stratifiées, sièges d'activités intenses de bactéries photosynthétiques du cycle du soufre, en particulier lors de crises dystrophiques périodiques. Les conditions exigées pour accumuler puis minéraliser le soufre élémentaire sont assez exceptionnelles pour expliquer qu'il n'existe que quatre sites dans l'Oligocène de France (Midi méditerranéen actuel) où le soufre sédimentaire ait pu faire l'objet d'une exploitation.

Hypothesis about the palaeoenvironmental conditions during the deposition of the sulphur ore of «Les Camoins» (Marseilles, France) and the role of bacteria metabolism in the process, into a sulphated continental lagoon

Key-words. – Provence-France, Marseilles, Oligocene, Palaeohydrology, Sulphur ore, Lacustrine (sedimentation), Lagoons, Sulphur biological cycle, Photosynthetic sulphide-oxidation, Dystrophic crisis.

Abstract. – The groundwater lying under the small hills around Les Camoins (Marseilles, South France) is sulphated and sulphurous. For more than one hundred years, this water has been used for the hydropathic establishment of «Les Camoins-les-Bains». It is mineralized when passing through a rocky massive, formed during the Stampian (Oligocene times), and composed of gypseous and carbonated laminites, in which organic beds and native sulphur were observed.

The study of mineral and organic materials, along the outcrops and into the old sulphur mine, showed that bacterial activity was the most important factor explaining the deposit. The comparison between original sediments and similar deposits generated under actual bioclimatic conditions allowed to propose a naturalistic model for this Stampian sedimentation.

We hypothesize that the deposit was formed in a shallow continental lagoon of sulphated and biologically stratified water, which dried periodically under contrasted tropical climate. Photosynthetic sulphur bacteria activity, resulting in an intracelullar accumulation of elemental sulphur, was, at time intervals, enhanced by sudden, short and strong dystrophic crisis, enriching the sediment with both organic matter and sulphur. During the arid conditions that ended each crisis, elemental sulphur was protected from any microbial reduction by a layer of gypsum.

Such bioclimatic conditions were rarely encountered, and this may explain the scarcity of mining sites for Stampian sedimentary sulphur in France: the four existing are located in the Mediterranean area.

ABRIDGED ENGLISH VERSION

Parts of the results and the arising hypothesis were presented at the 4th French Sedimentology Congress [Rousset *et al.*, 1993]. They are part of Magnan's thesis [1992], which studies geological environment of «Les Camoins-les-Bains» thermal sulphurous spring. The main interest of the Oligocene rocks of this aquifer is that they contain native sulphur. The contribution of microbiology is useful to explain both the formation and deposition of the sulphur ore, whereas geology explains why only four similar deposits of the same Stampian epoch were exploited in France.

Introduction. – During Oligocene times, the Marseilles basin occupied a particular geodynamical position, apparently off the West European rift system. This one is limited into the S-E of France basin by two Hercynian-unherited lineaments: the Cévennes fault and the Aix-en-Provence fault. Some recent geological work showed an early influence of the «liguro-provençal» N-S extensional zone as an explanation for both this complex geometry and the development, along a W-E direction, of the Marseilles basin. This one was less subsident than the basins of the true rift.

Only four mining sites for Oligocene sulphur ore were exploited in France. They are located in the south of the country, and supposed to be from a similar origin. But the mechanism of their sedimentation was not evidenced. The main interest of this study is to explain why such a low number of sulphur ore mining sites originating from lagoonal-lacustrine Oligocene deposits were encountered.

* Lab. Chimie et Environnement, case 29, Univ. Provence, 3, place Victor-Hugo, 13331 Marseille cedex 3.

** Lab. ORSTOM de Microbiologie des Anaérobies (LOMA), case 87, Univ. Provence, 3, place Victor-Hugo, 13331 Marseille cedex 3.
Manuscrit déposé le 22 juin 1995; accepté après révision le 19 janvier 1996.



Fonds Documentaire ORSTOM

Cote : Bx 8257 Ex : 1

I. – Situation of the sulphur mine. – Les Camoins are located near the eastern limits of the city of Marseilles, on the southern foothills of the Allauch massive, at about 130 m NGF (fig. 1 & 2). The deposits of the Marseilles basin are Stampian to latest Oligocene in age. At «Les Camoins», the Oligocene beds are deepening to the south, in relation with the uplift of the Allauch massive during and after the sedimentation. So, this site was apart from the high velocity streams that deposited the detritic sediments of the basin.

The ore, containing 10% of S, was exploited from 1898 to 1946. A hydraulic relation between the mine and the thermal spring was demonstrated during the last years of the exploitation.

II. – General lithostratigraphic characteristics. – Northward, the Oligocene calcareous and sulphated beds lie upon the Ruissatel and the Allauch Mesozoic rocks. Southward, they are related to (and covered by) detrital beds. Some drills permitted to drawn a general section showing the alternance of groups of gypso-carbonated laminites and blue marls (fig. 3). Organic matter was present in both facies, but sulphur was not always observed.

III. – Details of the organo-mineral association. – The rock (pl., photos 1-6) is mainly formed of gypsum, in association with carbonates, often dolomitic, and silicates, as shown by field studies, and, in the laboratory, by geological, physical and chemical methods. The organic matter is a poorly evolved kerogene, interlayered with stromatolitic carbonated beds. The gypsum crystallization was clearly linked to evaporitic and early diagenetic processes. So was the silica present in authigenic grains of quartz and which could form flints. Clay minerals had a detrital origin, excepted the smectites, that may be neofomed. The sulphur was partly a primary one, that was or interlayered with organic matter beds, or forming nodules or dendrites into gypsum laminae – and partly a secondary one, reworked by a later diagenesis.

IV. – Palaeogeography and running of the Oligocene basin. – The Triassic gypsum-containing formation, upon which the Oligocene was deposited at «Les Camoins», provided the ionic material for both the Oligocene gypsum and the sulphur ore. A probable model explaining the deposit (fig. 4) is a shallow lagoon, in which the water was biologically rich, strongly mineralized (Ca, Mg, Si, HCO₃, SO₄) and periodically drying up.

V. – Comparisons with actual models. – An actualist interpretation of the sulphur deposit is done using the observations on lacustrine environments in which the upper layer of transparent sulphated water was favourable to the development of both cyanobacteria and algae because of high light and oxygene availability. This water strata overlaid an anoxic water rich in sulphides. Today, algal and bacterial blooms or mats, including bacteria producing sulphur from hydrogen sulphide, can be observed in the chemocline of many shallow lagoonal-lacustrine environments. The Oligocene basin (fig. 5) was most probably similar to actual tropical lagoons.

Following hypothesis may explain the origin of the elemental sulphur deposit : (i) the water of the basin was favourable to the microflora of the biological sulphur cycle (fig. 6 & 7); (ii) during sudden, short and strong dystrophic crisis (mainly due to an increase of temperature), a significant quantity of elemental sulphur was accumulated into the cells of blooming photosynthetic sulphur bacteria (i.e. *Chromatiaceae*); (iii) when the water evaporated, these bacteria died, leading to sulphur accumulation at the surface of the sediment; (iv) in the more arid conditions that ended each dystrophic crisis, this sulphur was covered by gypsum (as indicated in fig. 6 & 8), and remained protected from microbiological reduction. Later, the sulphur was reorganized by biodiagenesis.

Each laminite containing the elemental sulphur was interlayered between an organic layer (formed mainly by cyanobacteria) and a mineral layer (in which gypsum was the main component) and corresponded to a dystrophic crisis. The estimated duration of the whole sedimentary cycle of «Les Camoins» sulphur ore is about 500,000 years. The number of sulphur laminae in the rock permits to estimate the average periodicity of the strong dystrophic crisis to approximately 15-35 years.

Conclusion. – Three kinds of factors are involved in the formation and preservation of sedimentary native sulphur : (i) geological factors, which were hydrochemical, geodynamical and diagenetical, (ii) climatic factors, which controlled evaporitic conditions, and (iii) biological factors, which determined sulphur species. During Tertiary times, the few sulphur ore deposits linked to small favourable lacustrine lagoons of the Oligocene West European rift *l.s.* markedly differed from the large deposition, under homogeneous conditions, of Miocene sulphur ore into marine lagoons along the Paratethys shorelines.

INTRODUCTION

La place géodynamique du bassin de Marseille dans le craton ouest européen, à l'Oligocène, présente une certaine originalité. En effet, les zones de dépôts subsidents de cet âge sont généralement liées étroitement au système « rift » (zone du rift, fig. 1), en dehors des pénétrations localisées de l'Atlantique et des mers septentrionales et du bras de mer alpin. Les linéaments, dont la remobilisation permet cette tectonique d'extension, confèrent au système son allongement dominant sub-méridien. Parmi les grands types de bassins à évaporites [Perthuisot, 1980], ceux du rift de l'Oligocène relèvent de milieux continentaux. Ainsi, dans

la partie cratonique du Sud-Est de la France, les bassins élémentaires du couloir rhodanien et de Provence s'inscrivent dans la bande mobile d'axe N020°E limitée par les failles des Cévennes et d'Aix-en-Provence [Rousset, 1986], à l'exception des plus méridionaux, ceux de Marseille et de Bandol [Nury et Rousset, 1986]. Ceux-ci sont localisés dans des déchirures de la couverture provençale [Guieu, 1968; Guieu et Rousset, 1980] et à l'est de la faille d'Aix-en-Provence. Des travaux récents [Hippolyte *et al.*, 1991] font apparaître que la proximité de la zone « liguro-provençale », de direction d'extension NW-SE, et dont le fonctionnement débute à l'Oligocène terminal, a contribué à leur conférer leur géométrie spéciale.

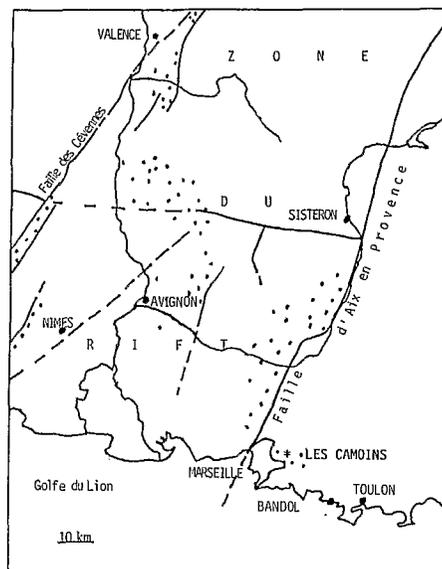


FIG. 1. - Situation géodynamique du bassin oligocène de Marseille (par rapport au rift ouest-européen). Le cadre linéaire est indiqué en traits appuyés (tiretés, sous couverture récente). Les zones de points noirs désignent les principaux affleurements de terrains oligocènes.

FIG. 1. - Geodynamical situation of the Marseilles Oligocene basin (in regard to the West-European rift). The continuous lines correspond to the lineaments (dotted under recent cover), and the clouds of dark dots represent the main outcrops of Oligocene deposits.

Nous avons pu montrer [Nury et Rousset, 1986] que le petit bassin de Bandol se trouvait sur le passage de courants fluviaux qui rejoignaient celui de Marseille, depuis les reliefs de socle méridionaux. Le premier constituait une aire peu subsidente en amont du second, « piège à sédiments » en extension active, au dépôt-centre duquel on peut estimer à plus de 1 000 m l'épaisseur cumulée des dépôts du Stampien et de l'Oligocène terminal. On peut cependant remarquer la relative faiblesse de cette subsidence par rapport à celle des fossés du rift, de profondeur pluri-kilométrique et même, à celle de la petite « fosse à sel » de Manosque dans lequel la halite seule atteint 1 000 m de puissance [Carte Géologique de Manosque, à 1/50 000, 1972].

Les gisements de soufre sédimentaire oligocène de France sont tous localisés dans la partie actuellement méditerranéenne. Il en existe quatre : Malvézy dans le bassin de Narbonne-Sigean, Biabaux et les Tapets dans celui d'Apt-Forcalquier, et les Camoins. Dans tous les cas, comme les dépôts évaporitiques oligocènes, de l'Alsace [Fontes *et al.*, 1991] à la Basse Provence [Fontes *et al.*, 1980], ils sont liés à des milieux de dépôt laguno-lacustres, sans influence marine. Des arguments géochimiques, notamment la pauvreté en alcalins et en halogènes [Magnan, 1992] en apportent la démonstration. A l'exception du soufre lié aux diapirs pétrolifères du Sud-Ouest, ces quatre sites constituent les seuls gisements de France métropolitaine, et eux seuls ont été exploités pour le soufre.

Il apparaît important de connaître les raisons de la présence de ce minéral sur seulement quatre sites. Cette relative rareté surprend en comparaison de la fréquence et de l'importance quantitative des gisements du Miocène de la Paratéthys [Rouchy, 1979]. Elle étonne par rapport à la fréquence et à l'extension des dépôts-centres à sulfates et /ou chlorures de l'Oligocène. Que se passait-il de spécial à Malvézy, Biabaux, les Tapets ou les Camoins ?

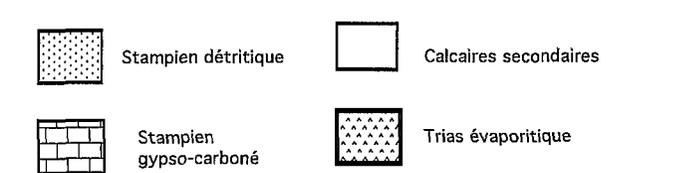
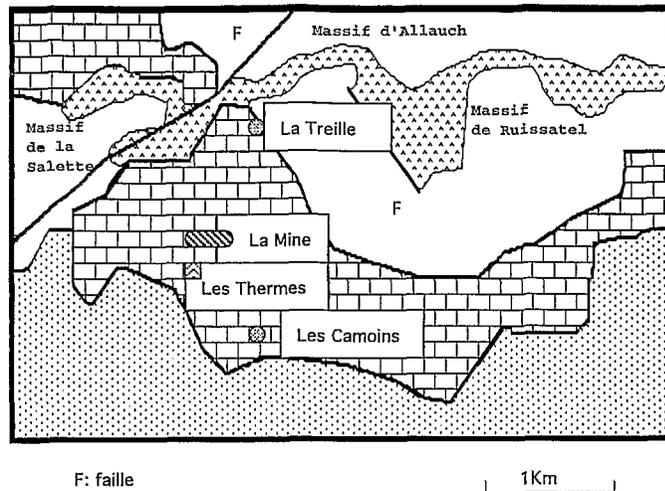


FIG. 2. - Carte géologique simplifiée de la zone des Camoins, indiquant la situation des thermes et de la mine de soufre.

FIG. 2. - A simplified geological map of « Les Camoins » area, showing the situation of both sulphurous spring and sulphur mine.

La particularité la plus intéressante du sédiment des Camoins est donc la présence, avec le gypse, banal dans les sédiments lagunaires du Stampien, du soufre natif. La contribution de la microbiologie a été essentielle pour définir les conditions favorables à la formation, au dépôt et à la conservation du soufre sous sa forme élémentaire dans le biotope, tandis que l'apport paléo-environnemental de la géologie a permis d'expliquer son caractère exceptionnel dans les dépôts de cet âge et de ce type. Une réflexion plus générale, sur les milieux actuels et anciens, résulte de la rencontre des deux disciplines.

On ne s'étonnera donc pas de constater qu'à un exposé géologique, étroitement lié au terrain et aux échantillons des Camoins, succède une partie plus spécialement consacrée aux hypothèses microbiologiques. Celles-ci ont été établies *a posteriori*, sur l'observation de cas actuels, afin d'interpréter la spécificité du site. C'est sur la base de ces deux démarches successives et complémentaires que notre étude peut expliquer la mise en place du gisement des Camoins. Par extrapolation, elle permet de suggérer une origine similaire pour les quatre sites français précités, et de dégager des lignes générales permettant d'interpréter les conditions de la sédimentation de soufre dans des lagunes continentales.

I. - SITUATION DU GISEMENT DE SOUFRE DES CAMOINS

A) Situation géographique

Les Camoins sont situés, de nos jours, à l'est de la ville de Marseille, en bordure nord de la vallée de l'Huveaune et au sud du massif d'Allauch (fig. 2). L'établissement thermal se trouve dans le vallon de la Treille, à environ 130 m d'altitude.

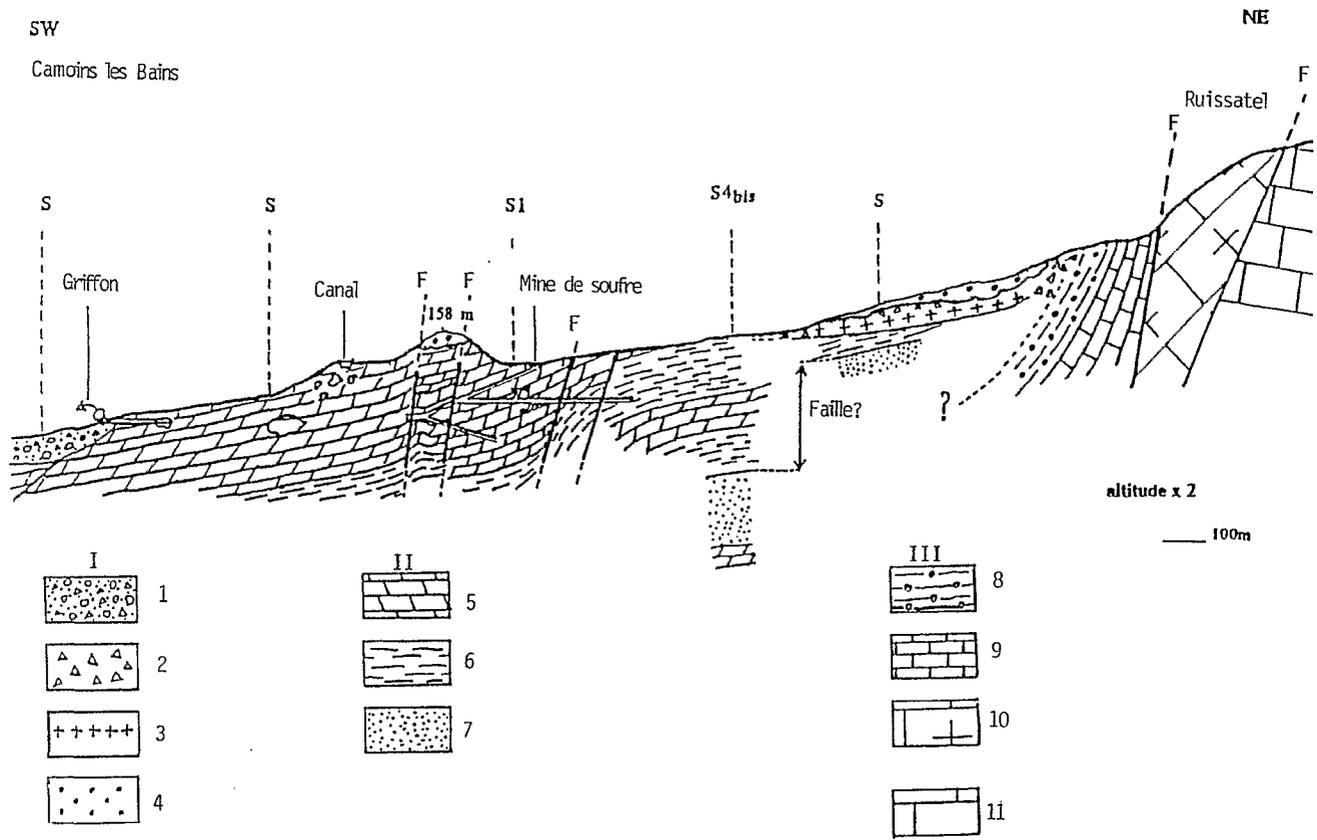


FIG. 3. - Coupe géologique du massif des Camoins. F: faille; S: sondage.
 I - Pleistocène-Holocène : 1 : alluvions et colluvions; 2 : brèches; 3 : travertins; 4 : grès.
 II - Oligocène : 5 : laminites gypso-carbonatées; 6 : argiles et marnes; 7 : sable meuble.
 III - Substrat mésozoïque : 8 : grès et marnes du Sénonien; 9 : calcaires de l'Aptien-Albien; 10 : Urgonien (Barrémien); 11 : calcaires valanginiens.

FIG. 3. - Geological section of « Les Camoins » area. F: fault; S: drill.
 I - Pleistocene-Holocene : 1 : alluvial and colluvial deposits; 2 : breccia; 3 : travertines; 4 : sandstones.
 II - Oligocene : 5 : gypso-carbonated laminites; 6 : clays and marls; 7 : unconsolidated sand.
 III - Mesozoic substratum : 8 : sandstones and marls (Senonian); 9 : Aptian-Albian limestones; 10 : Urgonian limestones (Barremian); 11 : Valanginian limestones.

Des collines basses, de topographie sommitale aplanie entre 160 et 170 m, s'étendent à l'est du vallon, en piedmont du relief du Ruissattel, légèrement détaché du massif d'Allauch, qui culmine à 450 m NGF. Elles abritent, dans leur partie ouest, l'ancienne mine de soufre, dont le puits d'accès s'ouvre environ deux cents mètres à l'est du griffon thermal.

naient largement le promontoire sud du horst, par le sud et le sud-ouest, vers les deux sous-bassins est (nord d'Aubagne) et ouest (Marseille-ville).

B) Place dans le bassin oligocène de Marseille

C) L'exploitation minière et « thermale » (fig. 3)

Les dépôts du bassin oligocène de Marseille, dont l'âge s'échelonne du Stampien à l'Oligocène terminal [Nury, 1987], s'étalent largement, dans sa partie ouest, entre la mer et les collines de l'Etoile et de Carpiagne-Marseille-veyre. A l'est, le bassin présente un étranglement, dû à la surrection du horst d'Allauch et, plus tardivement, à la tendance au chevauchement de celui de Carpiagne. Les Camoins se situent au début d'une nouvelle zone élargie qui se développe en direction d'Aubagne. Les couches oligocènes sont ici affectées d'un pendage net vers le sud, ce qui souligne la montée du horst d'Allauch pendant et après leur dépôt.

La mine de soufre des Camoins a été exploitée jusqu'en 1946. Le gisement avait fait l'objet de deux concessions contiguës (les Accates et les Camoins), en 1898. Ces concessions furent exploitées, avec plus ou moins de bonheur, avant d'être renoncées en 1967. Le soufre était utilisé en mélange avec du soufre de Sicile, pour l'agriculture. La reprise d'exploitation de la mine des Camoins, pendant la Seconde Guerre Mondiale, avait des visées stratégiques.

Le site des Camoins est donc clairement proche de la limite NW de la partie orientale du bassin de Marseille. Il en résulte qu'au moment du dépôt soufré, ce site était à l'abri des torrents de fort hydrodynamisme qui contour-

Le minéral extrait présentait une teneur pondérale en soufre de 10 %, et de ce fait, était considéré comme pauvre. Les niveaux fertiles s'organisaient en bancs de 0,70 à 2 m de puissance. Les données d'exploitation et les relevés de sondages ont montré que l'essentiel de la minéralisation gisait sous le carreau et au sud-ouest de celui-ci.

L'exploitation s'effectua d'abord dans un réseau de petites galeries que l'on atteignait par des puits, entre 0 et - 20 m. On travailla ensuite sur un niveau médian, à - 24 m, en « chambres et piliers », avec une descenderie d'accès, une galerie d'allongement NE-SW et plusieurs grandes salles. Enfin, on passa au niveau profond, à - 42 m. On

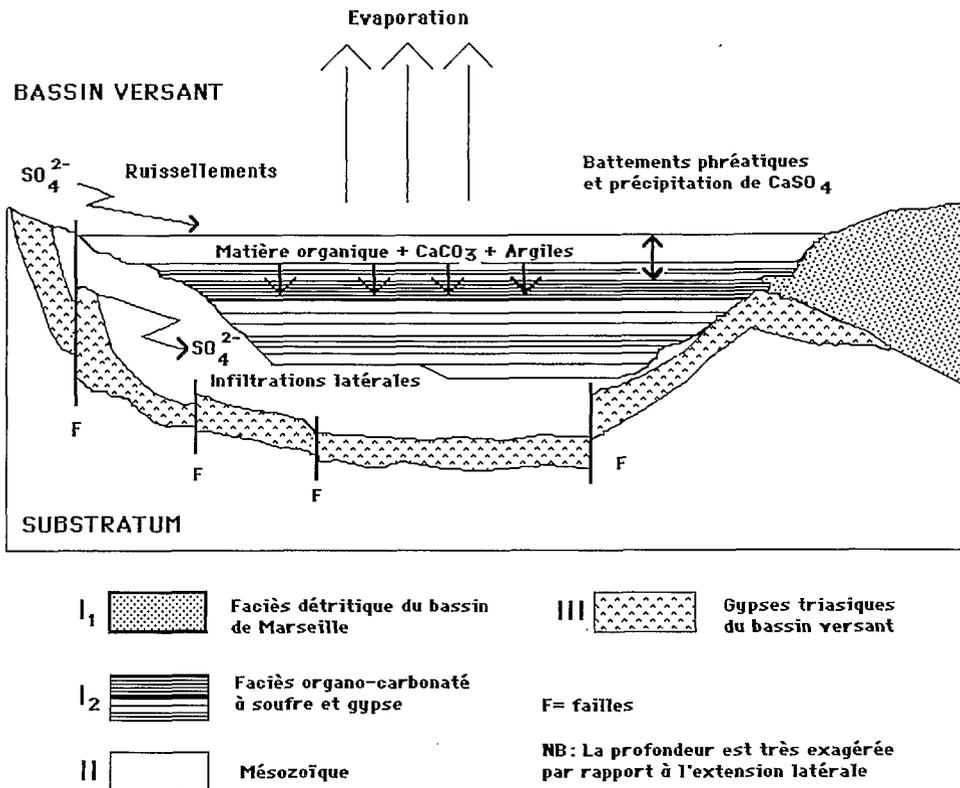


FIG. 4. - Schéma paléogéographique.

I - Oligocène : 1 : faciès détritiques ; 2 : faciès sulfaté et carbonaté des Camoins, avec matière organique et soufre.
 II - Mésozoïque.
 III - Gypse du Trias.

FIG. 4. - Palaeogeographical scheme.

I - Oligocene : 1 : detrital deposits ; 2 : sulphated and carbonated formation of « Les Camoins », with organic matter, and containing the sulphur.
 II - Mesozoic.
 III - Triassic gypsum.

peut encore accéder aux travaux par le puits de mine, mais l'on atteint, à -26 m, la surface libre de l'eau sulfureuse qui noie le fond.

La source de la station thermale débitait, jusqu'à ces dernières années, entre 300 et 500 m³/jour. Son eau est froide, sulfureuse et sulfatée calcique. A l'émergence, elle accumule une biogée bactérienne. Un tarissement de la source, lié aux pompages dans la mine, a clairement établi les relations hydrogéologiques entre la mine et la source [Corroy, 1946]. On exploite aussi actuellement un forage installé dans le parc de l'établissement et dont l'eau présente à peu près les mêmes caractéristiques. On trouve de nombreux puits contenant une eau chimiquement voisine dans le valon de la Treille et ses versants [Magnan, 1992].

II. - LITHOSTRATIGRAPHIE GÉNÉRALE

Le massif calcaire et gypseux oligocène des Camoins s'appuie (fig. 2 et 3), au nord sur les calcaires crétacés du Ruissatel et, au NW, sur les formations calcaires et gypseuses du Trias de la Salette. On note au nord, dans le massif d'Allauch, des affleurements de calcaires gréseux, mais aussi de calcaires à silex, comme au Ruissatel. Au sud, la formation des Camoins passe latéralement à des termes détritiques qui viennent ensuite la recouvrir. Ce petit massif a été reconnu par des sondages qui permettent, avec la nou-

velle étude de surface et en mine, d'en proposer une coupe générale (fig. 3).

Dans le sondage S-4bis, on note à la base (-121 m cote sol) une première série de laminites carbonatées de 10 m d'épaisseur, contenant des lits de soufre. Elle est recouverte par 40 m de sables meubles à rares passées calcaires. Sur ces sables gisent 23,50 m d'une argile bleue compacte, dont les carottes montrent des traces de soufre, puis 19 m de laminites gypso-carbonatées, fortement fracturées, avec nodules de soufre. Viennent ensuite 26 m d'argiles bleues recouvertes enfin par 2 m de calcaires laminés.

Dans le sondage S-1, qui a traversé l'ancienne mine, la formation laminée supérieure repose, à -58 m cote sol, sur des marnes « à gypse, soufre et bitume » très enrichies en filets de soufre sur les 1,5 m supérieurs et reconnues jusqu'à la cote -94,25 m. Ces marnes, traversées ici sur 36 m d'épaisseur, correspondent aux « argiles bleues » supérieures de S-4bis.

Dans l'ensemble, on a donc affaire, à l'échelle du massif, à une alternance de dépôts détritiques très fins, bien décantés, constituant le faciès des argiles compactes, et de dépôts plus « chimiques », carbonatés et sulfatés. La matière organique est présente dans ces deux faciès, en proportions variables, pouvant atteindre 20 à 30 % du sédiment. Le sable meuble, reconnu en sondage, mais « non carottable », n'a pu, de ce fait, être étudié : il se peut qu'il soit constitué de dépôts siliceux détritiques très purs, isolés de toute diagenèse tardive par la couche d'argile surincombante.

III. – DÉTAILS DE LA PARAGENÈSE ORGANO-MINÉRALE

A) Introduction

Le corps sulfaté et carbonaté principal (qui constitue la formation laminée supérieure) abrite la mine et donne naissance à la source. Il a pu être étudié, dans l'ancienne exploitation, puis au laboratoire, en utilisant des surfaces polies et des lames minces et les méthodes de l'analyse physico-chimique. Cette « roche des Camoins » est formée essentiellement de gypse, associé à des carbonates, qui sont souvent de la dolomite, et à des silicates. Elle est enrichie en matière organique assez faiblement évoluée. De telles caractéristiques se retrouvent dans toutes les laminites des bassins oligocènes du Sud-Est. Seul le soufre présente une originalité certaine...

B) Carbonates et sulfates

La phase carbonatée est formée de calcite et de dolomite. Elle constitue de très fines lamines d'allure stromatolitique. Celles-ci présentent assez souvent des bords enroulés par la dessiccation de la boue originelle, suivant des figures classiques de tapis algaires ou de voiles cyanobactériens (pl. I, ph. 1 et pl. II, ph. 4), observées ici après tassement. Effectivement, les lamines organiques qui leur sont associées montrent, au microscope, une texture filamenteuse feutrée, caractéristique des tapis de cyanobactéries qui sont donc à l'origine de ce kérogène. Ce mode d'association des carbonates et de la matière organique évoque ainsi le faciès des « schistes bitumineux ».

Le gypse constitue la totalité des dépôts de sulfate de calcium (pl. I, ph. 2). Il se présente en petites lentilles, en nodules ou en cristaux dispersés. Les lentilles sont disséminées dans la matrice microsparitique des laminites carbonatées. Des figures typiques d'une croissance polyphasée évoquent des épisodes de dessiccation du milieu. Les nodules se sont développés par diagenèse précoce et déforment les lamines. Quant aux cristaux isolés, ils participent à une véritable « gypsarénite » carbonatée, dont ils peuvent représenter jusqu'à 75 % du volume.

C) Silice et silicates

On rencontre dans la roche des Camoins des grains de quartz authigènes, contenant des inclusions d'anhydrite et

des sphérolites de calcédoine ou de lussatite. Dans les coupes des sondages, comme à l'affleurement en mine, on a pu décrire des silex. Ceux-ci sont constitués de silice fibreuse qui a, en particulier, épigénisé le gypse, comme le montre la présence de fantômes de cristaux de ce sulfate, lors d'épisodes précoces de la diagenèse.

L'étude des minéraux argileux a montré l'association de silicates détritiques, illites et kaolinite, constituant la phase fine décantée, à des smectites que l'on peut penser néoformées dans le milieu sédimentaire confiné en silice que nous indiquent les quartz authigènes.

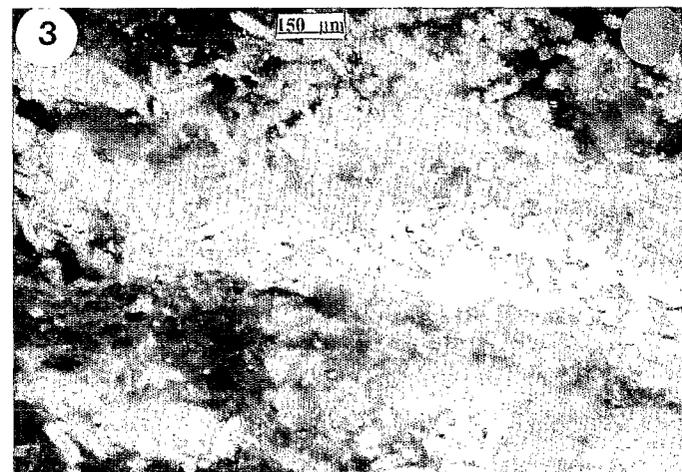
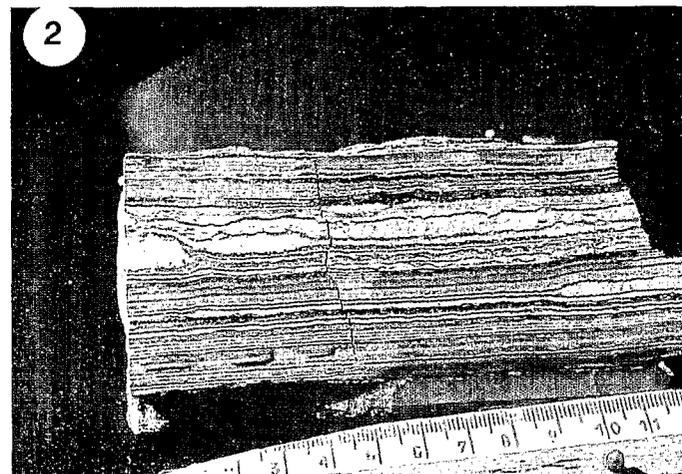
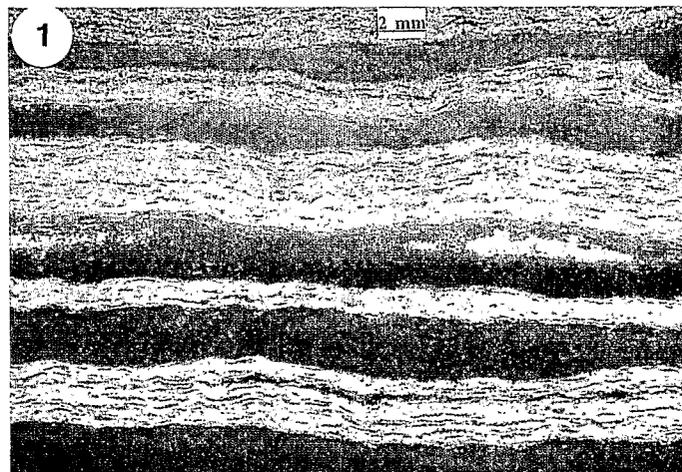


PLANCHE I. – Quelques aspects de la roche des Camoins.

1 – Photographie en lumière naturelle montrant une succession de lamines organiques (sombres) et carbonatées (claires).

Noter les phases alternées de dominance de la sédimentation organique (à base de cyanobactéries) et de la sédimentation carbonatée, ainsi que l'allure contournée des fines lamines qui évoque l'intervention d'épisodes de dessiccation.

1 – *Natural light photo evidencing the interlayered laminae, composed by organic matter (dark) (mainly cyanobacterial mat) and carbonates (clear). The alterned periods of dominance of organic then of carbonated sedimentation, and the crooked forms of the thin laminae indicate the action of drying processes.*

2 – Echantillon de gypse laminaire en alternances avec des passées plus micritiques, et avec des couches de soufre (en jaune clair). Ces dernières présentent une lamination continue, surtout pour les couches situées en haut et en bas de l'échantillon – et des aspects nodulés.

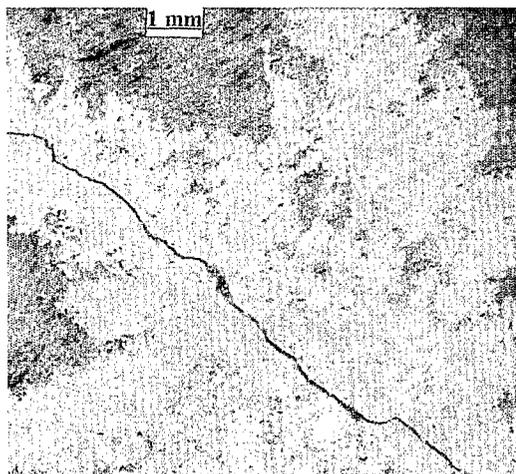
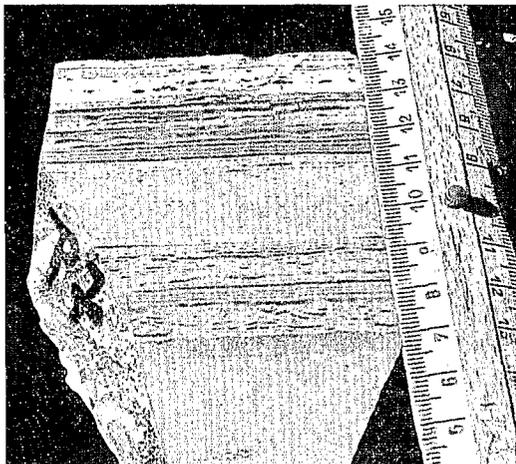
2 – *Laminar gypsum beds alternated with carbonates and with sulphur (pale yellow). This one can form continuous microlayers in the upper and lower parts of the photography or nodulized beds.*

3 – Le soufre primaire en accumulation de bâtonnets cylindriques forme des interlits dans la matrice microsparitique (MEB, surface polie).

3 – *Primary sulphur accumulation showing cylindric small sticks interbedded into the microsparitic matrix (SEM, polished face).*

pu être classé en deux groupes de faciès, tant du soufre primaire, directement d'origine bactérienne, qu'un soufre secondaire, remanié par diagenèse [Dian, 1992].

Le soufre primaire est compact. Il gît en lits intercalés dans les laminites de matière organique. L'utilisation de la microscopie électronique à balayage a permis de montrer la forme pour origine des inclusions bactériennes :



On y retrouve les formes (empreintes cellulaires) de ces microorganismes, en mélange avec des filaments de cyanobactéries (pl. I, ph. 3). Le soufre forme aussi des nodules qui déforment le litage des argilites (pl. II, ph. 4). Enfin, il se présente parfois en dendrites au sein de la matrice des lits de gypse (pl. II, ph. 5). Ces trois formes de soufre sont manifestement liées à la stratification originelle.

Au contraire, le soufre secondaire, qui se présente en général sous un faciès terreux, en amas stratiformes, montre une géométrie contrôlée par la fracturation (pl. II, ph. 6). On l'a rencontré parfois en beaux cristaux automorphes, plus franchement jaunes, en association avec du gypse déposé dans des fractures.

IV. – PALÉOGÉOGRAPHIE ET FONCTIONNEMENT DU BASSIN OLIGOCÈNE

Nous avons indiqué en introduction la place particulière du bassin de Marseille parmi tous ceux du Sud-Est de la France et précisé (§ I, B) quel pouvait être le contexte hydrodynamique particulier du site des Camoins. Sa situation d'abri n'était cependant pas unique et d'autres laminites carbonatées se sont déposées dans le bassin de Marseille à divers moments de l'Oligocène : à l'Estaque, au Carénage, à Piédaury et entre Allauch et les Camoins, sans pour autant contenir de soufre.

Et pourtant, des rapports étroits unissent aussi les laminites à gypse d'Allauch à des affleurements de gypse triasique sur lesquels elles se sont en partie déposées. L'étude isotopique [Vernet et Vernet-Sindali, 1980] ne paraît pas ici nécessaire pour admettre une filiation entre les sulfates tertiaires et ceux du trias !

Le plan d'eau oligocène des Camoins (fig. 4) se présentait ainsi comme biologiquement riche, mais, parce que peu profond, sujet à des phénomènes de dessiccation (§ III, B). Il était chargé en hydrogénocarbonates et en sulfates, en calcium et en magnésium, par le massif voisin dont il recevait aussi la silice, sans doute libérée par la pédogenèse à partir des silex, des marnes et des argilites bauxitiques.

V. – RAPPROCHEMENT AVEC DES MODÈLES ACTUELS

Le modèle proposé pour expliquer à la fois la sédimentation de soufre colloïdal d'origine bactérienne, en « feuillette » suggéré par les lamines, et sa conservation sous sa forme élémentaire, repose sur l'observation des traces de microflores laissées dans le sédiment et mises en évidence

PLANCHE II. – Quelques aspects de la roche des Camoins.

4 – Soufre primaire interstratifié dans les laminites gypso-organiques avec, localement, déformation des lamines : formation synsédimentaire et de diagenèse précoce du minéral.

4 – Primary sulphur interlayered with beds of gypso-organic laminites, presenting some local deformation of the laminae, indicating that this kind of ore was formed during the sedimentation, or immediately after it.

5 – Croissance dendritique de soufre primaire par épigénie d'une gypso-arenite.

5 – A dendritic pattern of the primary sulphur grown up by epigeny of a gypso-arenite.

6 – Zone de soufre délavé (secondaire) sur environ 1,2 mètres. A noter, à la limite de la gangue, un liseré d'hydroxydes de fer, pouvant correspondre à la réoxydation d'un sulfure ferreux ; la forme des auréoles suggère une remobilisation du soufre à une époque où le niveau piézométrique était plus élevé.

6 – Secondary sulphur ore (the deposit, on the photograph, reaches 1.2 metre). The iron hydroxides may correspond to a reoxidated iron monosulphide deposit, suggesting that this sulphur was remobilized when the piezometric level was higher.

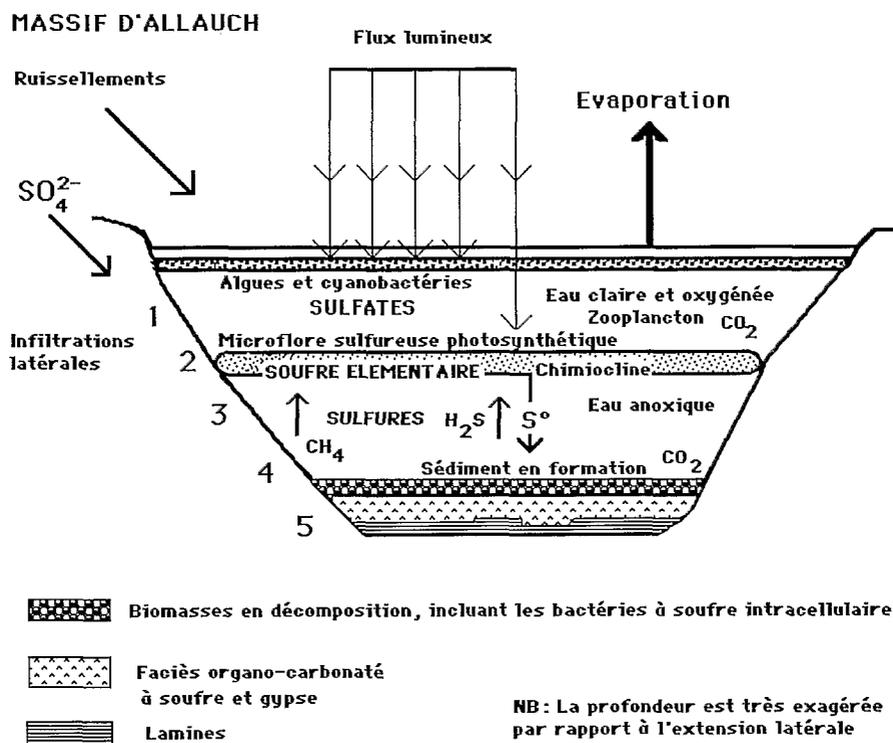


FIG. 5. — Schématisation de la zonation des eaux et des sédiments dans la cuvette initiale en phase d'équilibre biologique.

1 à 3 — Zonation des eaux :

1 : zone de surface, claire et aérée ; algues, cyanobactéries et zooplancton ; sulfates.

2 : zone intermédiaire des photosynthèses anoxygènes (chimiocline) ; bactéries sulfureuses pourpres (*Chromatiaceae*) et/ou vertes (*Chlorobiaceae*) ; oxydation des sulfures en sulfates ou en soufre élémentaire.

3 : zone profonde (eaux anoxygènes) ; microflore réductrices (sulfato- et sulfo-réducteurs) ; hydrogène sulfuré et sulfure ferreux.

4 & 5 — Zonation des vases.

4 : alternance de couches d'origine biologique (algues, cyanobactéries et autres organismes en décomposition) et minérale (argiles et marnes) ; sulfures et polysulfures.

5 : Sédiment en réorganisation, lamines et couches organo-carbonatées à soufre et gypse.

FIG. 5. — Scheme of water and sediment zonations in the Stampian basin (biologically equilibrated status)

1 à 3 — Water :

1 : top aerated and transparent water ; algae, cyanobacteria and zooplankton ; sulphates.

2 : chemocline ; anoxygenic photosynthesis zone : purple sulphur bacteria (*Chromatiaceae*) and/or green sulphur bacteria (*Chlorobiaceae*) ; microbial sulphides oxidation into sulphates or elemental sulphur.

3 : reduced water ; sulphate- and sulphur-reducing bacteria ; hydrogen sulphide and iron sulphides.

4 & 5 — Underlying sediment :

4 : alternated layers of decaying organic matter and of mineral deposits ; iron sulphides and polysulphides.

5 : reorganization of the laminae and of the organo-carbonated layers containing sulphur and gypsum.

au MEB. Il est bâti sur l'observation de systèmes lagunaires actuels, qui nous permet d'expliquer l'intense production de soufre d'origine bactérienne, et son dépôt dans le fond de la cuvette originelle.

Cette hypothèse suppose les quatre phases événementielles suivantes, qui sont détaillées ensuite :

— (1) l'installation d'un bassin dans lequel, lors de multiples stades successifs, le climat, de type tropical, et d'autres conditions écologiques, ont été propices, pendant tout le Stampien, à une importante production organique et à une forte activité de la microflore du cycle biologique du soufre ;

— (2) l'intercalation, entre deux phases d'équilibre biologique, de « crises » permettant successivement le développement d'une importante biomasse microbienne piégeant le soufre sous forme élémentaire, et le dépôt de ce soufre en fond de cuvette ;

— (3) une phase de dessiccation rapide des vases, permettant la minéralisation du soufre élémentaire à l'intérieur du sédiment ;

— (4) le piégeage du soufre, après sédimentation et compactage, de telle façon qu'il soit inaccessible à toute microflore sulfo-réductrice (qui le réduirait en anaérobiose dans un dépôt biologiquement actif).

A) Description du biotope originel : un milieu aquatique sulfaté peu profond à microflore bactérienne spécialisée

Le modèle proposé est un bassin fermé ou une lagune continentale peu profonde. Ses dimensions doivent être relativement réduites, en surface et en profondeur (fig. 5), pour permettre, à chaque épisode plus sec, une rupture d'équilibre biologique suivie d'une évaporation complète. On connaît, dans la nature actuelle, des milieux similaires, mais qui ne vont pas toujours jusqu'à l'évaporation. C'est le cas, sous le climat aride du Sahel, comparable à celui de l'Oligocène français, du delta du fleuve Sénégal, dans le Djoudj, où les eaux saumâtres des bras morts sont très rapidement eutrophisées dès qu'intervient un déficit hydrique. Des ruptures brutales d'équilibre biologique sont également

observées dans des milieux laguno-lacustres ou des lagunes de plus grande taille en relation avec la mer. C'est le cas de la lagune Ebrié (Côte d'Ivoire), alimentée, à chaque saison des pluies, en eaux douces se maintenant au-dessus des eaux saumâtres, ce qui provoque des modifications de la microflore [Caumette, 1985].

Les eaux du biotope originel du site des Camoins étaient certainement chargées en sulfates, ce qui explique une intense activité de la microflore du cycle du soufre, et les quantités de soufre déposées. Compte-tenu de la nature des dépôts entourant le minerai [Magnan, 1992], elles étaient hydrogénocarbonatées calciques et magnésiennes. Pour être favorable à la vie microbienne, leur pH devait être proche de la neutralité. Elles devaient être oxygénées en surface et de faible turbidité pour favoriser la photosynthèse dans les couches superficielles. Elles devaient être douces à peu salées, car on ne connaît pas de halite dans l'environnement proche anté-Oligocène. Ces conditions de faible salinité sont compatibles avec une activité importante et simultanée des cyanobactéries et des algues vertes.

Dans un tel milieu, en phase d'équilibre et en fonction de la pénétration de la lumière et de l'oxygénation, il se crée une zonation biologique de la phase liquide. Une telle zonation est bien connue : elle a été décrite dans les lacs actuels par Jørgensen *et al.* [1979] et Bault [1986], et dans les lagunes, par Caumette *et al.* [1983].

La cuvette originelle a pu être schématisée (fig. 5) par comparaison avec les biotopes lacustres ou lagunaires décrits par les auteurs précédents. On peut distinguer, à partir de la surface et même sous une faible épaisseur de la tranche d'eau, au minimum 3 lames d'eau :

1) une zone éclairée et oxygénée, de ce fait propice aux algues vertes, au phytoplancton et aux cyanobactéries. L'analyse du sédiment des Camoins a montré que ces dernières, en se déposant, constituent l'essentiel de la biomasse des lamines carbonées [Magnan, 1992]. Dans cette lame superficielle, les composés soufrés sont sous leur forme oxydée, les sulfates ;

2) une zone de photosynthèses anoxiques, dans laquelle l'apport énergétique de la lumière permet des métabolismes d'oxydation des sulfures en présence de traces d'oxygène. Cette zone intermédiaire constitue la chimiocline. C'est seulement à ce niveau que l'on peut rencontrer le soufre sous forme élémentaire ;

3) une zone anaérobic stricte (anoxique), d'épaisseur variable, surmontant directement le sédiment en formation (4), et d'autres sédiments plus anciens, mais similaires (5). Cette zone profonde et le sédiment en formation sont le siège d'intenses activités sulfato- et sulfo-réductrices : tous les composés soufrés sont sous forme réduite (hydrogène sulfuré, sulfures et polysulfures).

L'analyse des flux de composés soufrés peut être également interprétée en liaison avec cette zonation (fig. 6) :

La zone aérée contient les sulfates des apports fluviaux (I), et ceux résultant de l'activité sulfo-oxydante (VI) des thiobacilles et/ou des bactéries photosynthétiques filamenteuses et non pigmentées (*Beggiatoa*), qui oxydent l'hydrogène sulfuré qui diffuse, à l'abri de l'oxygène, à partir de la zone profonde et du sédiment. Dans ce dernier, en conditions très réductrices, H₂S et les sulfures ferreux (IX) sont le résultat de la réduction des sulfates par une microflore sulfato-réductrice très active (II).

La chimiocline est le domaine des bactéries photosynthétiques sulfureuses vertes (*Chlorobiaceae*) et rouges ou pourpres (*Chromatiaceae*), dont certaines sont filamenteuses ou agglomérantes. Elles produisent, suivant les métabolismes microbiens décrits par Pfennig [1978],

Pfennig et Trüper [1981] et Trüper et Genovese [1982], du sulfate (IIIa) ou du soufre élémentaire (IVa), sous la forme de granules intra- et extra-cytoplasmiques (IIIb et IVb), toujours en oxydant le H₂S en provenance de la zone profonde.

Ces métabolismes couplés, permettant le passage des sulfures à l'état de soufre élémentaire et de sulfates, sont détaillés sur la figure 7, pour indiquer leurs relations avec la sulfato- ou la sulfo- réduction et avec les sources de carbone (acétate et CO₂). Ils fonctionnent généralement en boucles (A et B des fig. 6 et 7). Les possibilités de passage à la forme soufre élémentaire, réalisées par des associations de microflores décrites par Matheron et Baulègue [1976], ne concernent qu'une part minime du stock de composés soufrés.

De ce fait, le soufre ne peut se maintenir en quantités notables dans la zone des photosynthèses anoxiques, ni même dans la zone sous-jacente, totalement privée d'oxygène, où, à la mort des cellules, il sédimente par gravité (fig. 6, IIIc et IVc). Dans les vases, il est rapidement réduit en sulfures par la microflore sulfo-réductrice (V) du sédiment, et en particulier par *Desulfuromonas acetoxidans* [Pfennig et Biebl, 1976]. Cette bactérie est particulièrement active en anaérobiose stricte et en présence de composés organiques (l'acétate en particulier) résultant de la décomposition hétérotrophe du plancton et de divers composés végétaux en fond de cuvette (VII et VIII). En zone tropicale, des populations importantes de ces bactéries ont été mises en évidence par Traoré et Jacq [1991] dans les sédiments de mangroves et les sols de rizières inondées.

Le modèle décrit en phase d'équilibre est conforté par plusieurs observations actuelles. C'est ainsi que la présence simultanée d'algues et de cyanobactéries en surface, de microflores photosynthétiques sulfo-oxydantes (dont *Chromatium* et *Chlorobium*) à la chimiocline, et de bactéries sulfato- et sulfo-réductrices dans les zones profondes, a été décrite dans l'eau saumâtre de la lagune Ebrié en Côte d'Ivoire [Caumette, 1985]. La présence d'une microflore sulfureuse photosynthétique pourpre, très active, est aussi signalée dans certains lacs japonais [Takahashi et Ishimura, 1978], et en Sicile, dans le lac Faro [Trüper et Genovese, 1968] où elle se maintient en permanence à un niveau tel que le lac, relativement profond, est constamment rouge.

B) Des crises dystrophiques de type « malaigues »

L'alternance de lamines sulfatées et de lamines carbonatées dans le dépôt des Camoins, décrite par Magnan [1992], et telle que l'on peut l'observer planche I, photographie 1, ne peut s'expliquer, avec un tel milieu initial, que par des variations hydrochimiques et climatiques, que l'on peut qualifier, au point de vue géologique, de « mineures », mais qui constituent, pour l'ensemble des microflores précitées, des « accidents écologiques » majeurs.

En période « sulfatée » (celle décrite ci-dessus, dite d'équilibre) le système fonctionne habituellement en boucle fermée H₂S-sulfates, et le soufre, produit en faible quantité dans la zone des photosynthèses anoxiques, constitue seulement une phase transitoire, non fossilisable. Seul un couplage exceptionnel de phénomènes biologiques et sédimentaires permet à la fois son accumulation en fond de bassin et sa conservation dans le sédiment. Il faut donc envisager des relations différentes entre le cycle biologique du soufre et les conditions climatiques suivant un scénario original.

Pour expliquer une sédimentation importante du soufre élémentaire à partir du modèle proposé, il faut avancer l'in-

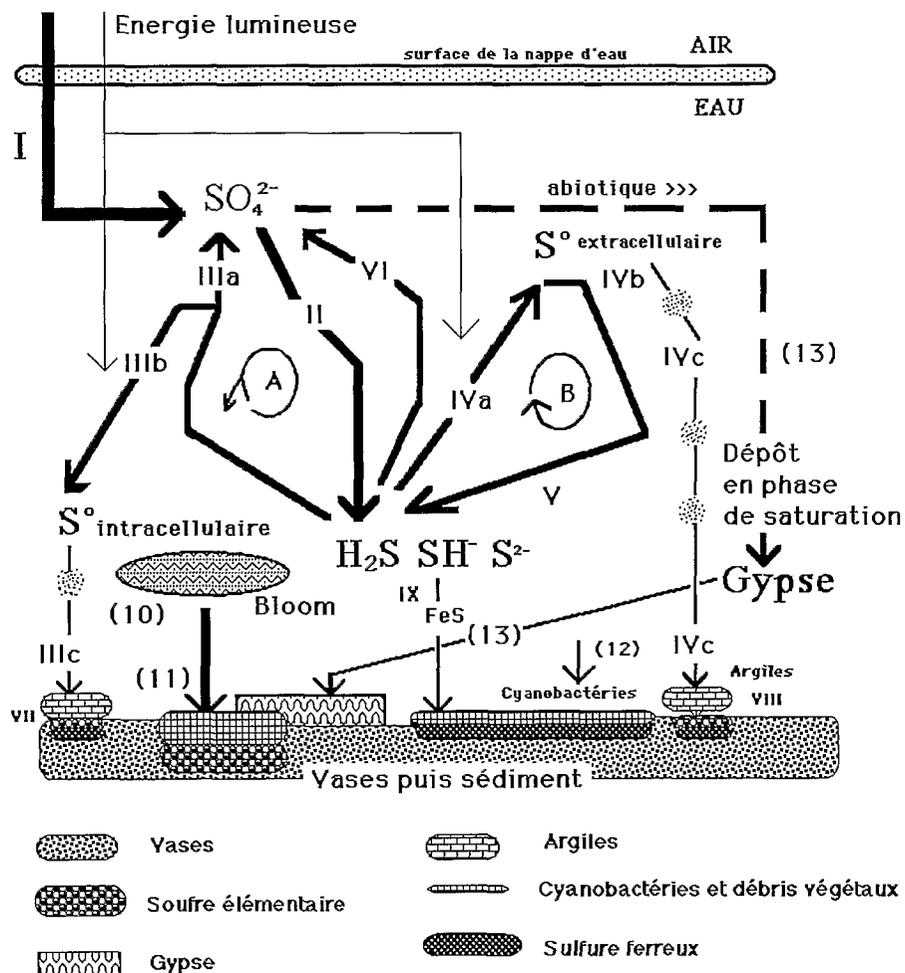


FIG. 6. — Flux simplifié des composés sulfurés dans la cuvette initiale.

— De I à IX : flux en phase d'équilibre :

I : apports de sulfates ;

II : sulfato-réduction par *Desulfovibrio*, *Desulfotomaculum* et autres sulfato-réducteurs ;

III et IV : sulfo-oxydations photosynthétiques (photosynthèses anoxygènes) par bactéries sulfureuses pourpres (*Chromatiaceae* : IIIa, boucle A) et par bactéries sulfureuses vertes (*Chlorobiaceae* : IVb : boucle B) ; IIIb et IVb : constitution d'un stock de soufre intra-cellulaire (A) et extra-cellulaire (B) ;

IIIc et IVc : sédimentations par gravité à la mort des cellules ;

V : sulfo-réduction (par *Desulfuromonas*) en phase aqueuse ;

VI : sulfo-oxydations par des thiobacilles ou des bactéries sulfureuses photosynthétiques non pigmentées (*Beggiatoa*) ;

VII & VIII : recouvrement du dépôt de soufre élémentaire par des argiles, suivi d'une sulfo-réduction dans les vases ;

IX : sédimentation de sulfure ferreux (FeS) et minéralisation sous forme de polysulfures

— De (10) à (13) : flux pendant la crise dystrophique :

(10) : formation d'un bloom bactérien à bactéries sulfureuses pourpres (*Chromatiaceae*) ;

(11) : croissance puis décantation de ce bloom ;

(12) : décantation des cyanobactéries et des biomasses algales et planctoniques ;

(13) : sédimentation par saturation et cristallisation-recristallisation de gypse, couvrant tous les autres dépôts en phase de dessiccation.

FIG. 6. — Simplified biological sulphur cycle in the Stampian basin.

— I to IX— In biologically equilibrated water :

I : sulphates (from the older sulphated rocks) ;

II : microbiological sulphate-reduction (by *Desulfovibrio*, and *Desulfotomaculum*) ;

III and IV : anoxic photosynthetic sulphide-oxidations by purple (IIIa, ring A) and green (IVa, ring B) sulphur bacteria ; IIIb and IVb : intra-(A) and extra-(B) cellular sulphur ; IIIc and IVc : deposition of dead cells ;

V : sulphur-reduction (by *Desulfuromonas*) ;

VI : sulphide-oxidation by *Thiobacillus* and/or unpigmented photosynthetic bacteria (as *Beggiatoa*) ;

VII and VIII : elemental sulphur deposit covered with clays, and sulphur reduction occurring into the sediment ;

IX : iron monosulphide (FeS) production ; mineralization as polysulphides (Fe_xS_y).

— (10) to (13) — Processes occurring during dystrophic crisis :

(10) : bacterial bloom, mainly constituted by *Chromatiaceae* ;

(11) : mass bacterial bloom and sedimentation ;

(12) : deposition of the other mats (cyanobacteria, algae and phytoplankton) ;

(13) : underlying deposit and cristallisation of gypsum covering all the preceding deposits when the remaining water get evaporated.

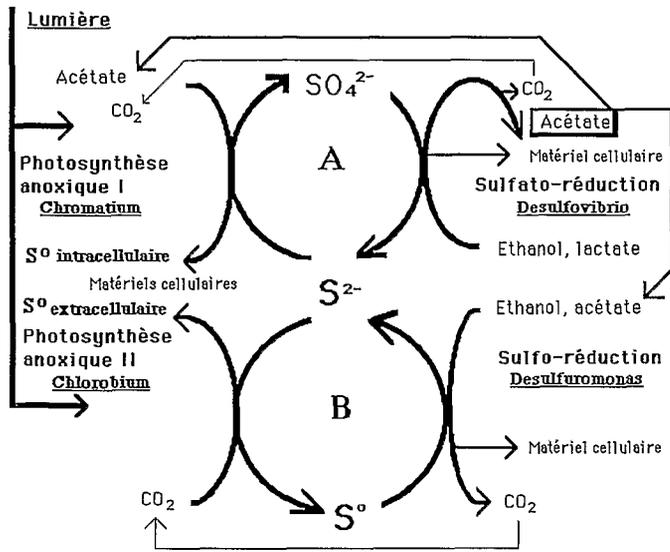


FIG. 7. - Associations syntrophiques dans la chimiocline des eaux de la cuvette initiale, en phase d'équilibre biologique :

Boucle A (ouverte) : photosynthèse anoxygène I, associant une sulfato-réduction (à *Desulfovibrio*, transformant du lactate en acétate) à une photosynthèse anoxygène par *Chromatiaceae* qui utilise cet acétate, ainsi que la lumière et le CO_2 , pour produire en oxydant le H_2S , (si cet apport de sulfures est continu) du sulfate et une quantité limitée de soufre élémentaire intra-cytoplasmique. Seule cette infime partie du stock de soufre peut échapper à la boucle quand les cellules sédimentent.

Boucle B (fermée) : photosynthèse anoxygène II, associant une sulfo-réduction (à *Desulfuromonas acetoxidans*, transformant de l'acétate en CO_2) à une photosynthèse anoxygène par *Chlorobiaceae*, qui, en oxydant aussi le H_2S , en présence de lumière et de CO_2 , est à l'origine du soufre élémentaire extra-cytoplasmique.

FIG. 7. - *Syntrophic associations in the water chemocline.*

Ring A (open) : anoxic photosynthesis, form I, associating the sulphate-reducing metabolism by lactate oxidiser *Desulfovibrio*, that accumulate acetate, to a sulphide-oxidation by *Chromatiaceae*, that use light, acetate and CO_2 to produce - only when sulphides are continuously provided - sulphate and intracytoplasmic sulphur. The sulphur granules are deposited at the death of the microorganisms.

Ring B (closed) : anoxic photosynthesis, form II, associating the acetate-using and sulphur-reducing *Desulfuromonas acetoxidans* to a sulphide-oxidation by *Chlorobiaceae*, that use light and CO_2 to produce extracytoplasmic sulphur.

tervention périodique de crises « dystrophiques », qui entraînent chacune une rupture de l'équilibre biologique et permettent une phase de sédimentation.

La rupture d'équilibre biologique d'une masse d'eau relativement importante peut avoir de multiples causes. Dans un bassin isolé, elle peut être provoquée par des incidents liés aux crues : brassage important et destruction de la zonation, apports d'argiles qui augmentent la turbidité des eaux [Kling, 1987], arrivées de phosphates et/ou de matière organique [Dufour et Maurer, 1979], qui provoquent une eutrophisation par prolifération de la biomasse algale. Elle peut être liée à une augmentation de la salinité, par ouverture d'une communication avec le milieu marin ou avec une autre cuvette plus riche en chlorure de sodium, etc... Cependant, aucune des causes précédemment citées ne peut expliquer une augmentation de la proportion de soufre sous forme élémentaire.

Le plus vraisemblable est que la cause principale de chaque crise a été une élévation de température et une diminution des précipitations, autrement dit un changement climatique. La baisse des teneurs en oxygène, qui en est la conséquence immédiate, se traduit, à son tour, par une modification de la microflore, et en particulier, par la mul-

tiplication, et une activité intense, des bactéries sulfureuses photosynthétiques situées dans la chimiocline et sur les sédiments.

Les phénomènes de « malaigues » ou « eaux rouges » sont liés à une anoxie totale, comme cela a été décrit par Caumette et Baleux [1980] et Caumette [1986], dans l'étang du Prévost (Languedoc). Dans cet étang, la présence d'eaux rouges est périodique, mais elle se produit toujours en saison chaude (eaux à 25-30°C) à pluviométrie réduite, correspondant à l'été méditerranéen, dans des étendues d'eau de faible profondeur (de l'ordre du mètre). On sait que la raréfaction de l'oxygène est d'autant plus rapide que la masse d'eau est plus faible. La présence d'eaux rouges peut aussi être permanente dans certains systèmes fermés de grande profondeur, très peu oxygénés [Trüper et Genovese, 1968].

La crise dystrophique décrite par Caumette et Baleux [1980] suit toujours le développement d'un « bloom algal ». Elle se déclenche quand les teneurs en oxygène tendent vers zéro, et que celles en H_2S deviennent supérieures à 5 ppm (5 milligrammes par litre). Sur le plan microbien, elle se caractérise essentiellement par la croissance rapide de bactéries photosynthétiques appartenant aux genres *Chromatium*, *Thiospirillum* et *Rhodospirillum*, qui, par leur pigments, donnent aux eaux cette teinte rouge très caractéristique. Le fort accroissement de la biomasse formée par ces bactéries, qui possèdent toutes des granules intracellulaires de soufre, est à l'origine du piégeage de quantités notables de soufre élémentaire. Ces bactéries décaissent rapidement (en quelques jours) au maximum de leur « bloom microbien », accumulant sur le fond du soufre colloïdal qui est recouvert de dépôts organiques.

Dans le cas des Camoins, que nous pensons similaire, *mutatis mutandis*, à celui de l'étang du Prévost [décrit par Caumette *et al.*, 1993], nous avons signalé sur la même figure 6 la formation du bloom bactérien en (10), sa sédimentation en (11), son recouvrement (ou sa décantation simultanée) par une biomasse algale à base de cyanobactéries en (12).

Le modèle décrit en phase de rupture d'équilibre correspond donc à des observations actuelles : cette sédimentation brutale et totale de la biomasse contenant du soufre cytoplasmique a été signalée plusieurs fois en Languedoc, mais aussi au Japon, dans des lacs non salés. Matsuyama et Shirouzu [1978], et Takahashi et Ishimura [1978] ont souligné le rôle important des bactéries du genre *Chromatium* dans la constitution d'importants dépôts organiques. Mais, dans ces lacs ou ces étangs actuels, si les producteurs primaires de composés carbonés (algues et cyanobactéries) sédimentent et se décomposent rapidement, on constate que l'évaporation ne va pas à son terme. De ce fait, en fin de crise, le soufre cytoplasmique des bactéries photosynthétiques sédimentées reste, en anaérobiose, accessible à la microflore sulfo-réductrice, bien avant que le gypse de fin d'été ne se dépose à son tour.

La phase finale de la vie microbienne dans la cuvette en fin d'évaporation peut suivre le modèle décrit par Raymond [1988] et Caumette *et al.* [1993] dans les marais salants de Salin-de-Giraud (Provence). Dans ce biotope très salé, on constate de nos jours, une zonation identique des mats microbiens (fig. 8), et en particulier, du gypse cristallisé qui surmonte une couche rouge de bactéries photosynthétiques et un sédiment noir à sulfure ferreux (FeS) et gypse.

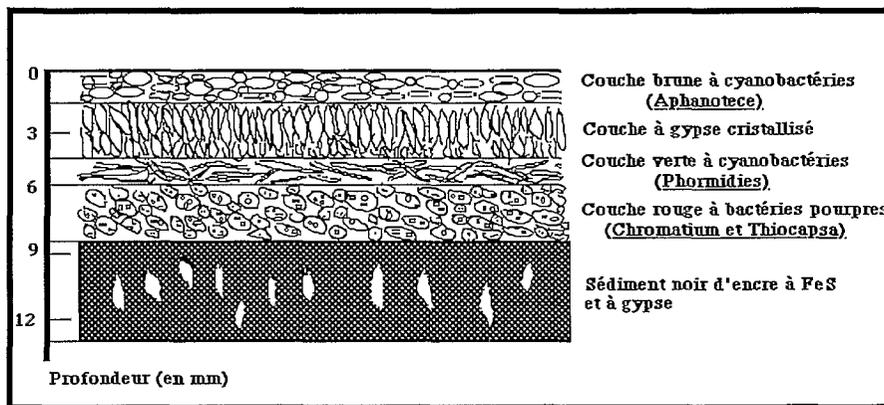


FIG. 8. — Schéma d'un dépôt microbien et chimique, en fines lamines, observé dans les marais salants de Salin-de-Giraud. Cette zonation met en évidence, sous un premier tapis brun de cyanobactéries unicellulaires en décomposition dans un mucus, la superposition d'une couche de cristaux de gypse, d'une couche verte de cyanobactéries filamenteuses, d'une zone rouge formée de bactéries sulfureuses pourpres, surmontant un sédiment récent, dont la couleur noire est due au sulfure ferreux (FeS), et qui contient également des cristaux de gypse. Ce schéma, de Caumette *et al.* [1993] a été présenté avec leur autorisation.

FIG. 8. — Scheme of microbial chemical structure deposited as laminae, in ponds of the marine saltern of Salin-de-Giraud, showing the zonation, from top to bottom, of: a brown layer of dead unicellular cyanobacteria embedded in a mucoid substance, a crystalized gypsum crust, a green layer of filamentous cyanobacteria, a red layer formed by phototrophic purple bacteria, and the sediment, blackened by FeS, that contained some crystals of gypsum. Reprinted from Caumette *et al.* [1993] with their permission.

C) Une phase rapide, mais prolongée, de dessiccation des vases

A chaque crise dystrophique devait succéder immédiatement une phase d'assèchement complet, pour interdire toute possibilité de remaniement bactériologique du soufre élémentaire par les deux seules microflores aptes à le réduire en sulfures dans un milieu humide et réducteur. Ce sont les bactéries sulfo-réductrices [Pfennig et Biebl, 1976] et les rares bactéries sulfato-réductrices capables de réduire le soufre colloïdal, décrites par Biebl et Pfennig [1977] et Fauque [1979]. Il est aussi possible d'imaginer que, pendant un certain temps, l'acétate, produit par la décomposition des biomasses organiques sédimentées, qui constitue (fig. 7) la seule source carbonée utilisable par les bactéries sulfo-réductrices [Pfennig et Biebl, 1976], ne soit pas disponible : il a pu être utilisé, en anoxie extrême, par des bactéries méthanogènes acétoclastiques.

L'assèchement rapide entraîne la mise en place, sur ces sédiments biologiques, d'une couche de gypse, en phase de saturation (fig. 6 : (13)). Très peu accessible à la microflore, elle joue un rôle protecteur et évite la réduction du soufre par les bactéries sulfo-réductrices qui s'installent dès que la situation hydrologique se rétablit. Chaque couche de soufre élémentaire est ainsi protégée et n'évoluera que sous des contraintes physico-chimiques. Aux Camoins, chaque lamine soufrée, avec le feuilletage intercalaire de gypse et cyanobactéries associé, constitue ainsi la trace sédimentaire d'une crise. Cette interprétation par crises successives s'adapte bien à la structure observée *in situ*.

Les phases de rupture d'équilibre et d'assèchement devaient se succéder dans un laps de temps relativement court. Il n'y a pas de production de soufre si l'évaporation des eaux est lente : un des auteurs l'a constaté dans le lac Retba (Sénégal), ancienne lagune séparée de la mer par un cordon dunaire sableux. Ses eaux se sont fortement salinisées (plus de 300 g de NaCl/litre) en plusieurs siècles d'évaporation, et sa microflore initiale a été modifiée. Les cyanobactéries sont désormais limitées aux zones de berges (peu salées à cause d'arrivées latérales d'eaux douces, voir Reynaud et Roger [1981]) et les bactéries photosynthétiques sulfo-oxydantes ont disparu. La teinte rose des eaux n'est pas due

à une microflore sulfureuse pourpre, mais à la présence d'*Artemia salina*. Il n'y a pas de précipitation de soufre et seul le monosulfure ferreux, FeS, de couleur noir d'encre, se retrouve dans le sédiment, qui reste cependant propice à l'activité de bactéries sulfato-réductrices très halotolérantes [Ollivier *et al.*, 1994a].

D) Des remaniements biodiagénétiques rapides

Nous pensons avoir ainsi démontré qu'une grande partie du soufre primaire de la mine des Camoins, celle associée aux lamines de gypse et de matière organique, résulte de l'activité de bactéries photosynthétiques sulfureuses. Dans ce contexte, l'accumulation et la conservation du soufre ont été sous le contrôle d'une série de facteurs dont la coexistence et l'enchaînement sont exceptionnels, même dans la ceinture aride qui est nécessairement impliquée. Qu'en est-il du soufre primaire sous la forme de nodules et de dendrites ?

Un cas assez proche de celui des Camoins, décrit dans la nature actuelle, concerne deux mètres d'argiles gypseuses déposées depuis moins de 5000 ans dans la sebkha de Nardmch'a, en Mauritanie [Hébrard, 1978]. Le soufre natif y est localisé dans des niveaux feuilletés, en minces filets entre des lits gypseux, en nodules centimétriques ou encore accompagnant du gypse de recristallisation. L'ensemble est pris dans une matrice de vase gypseuse, noire et fluide, qui dégage du H₂S en abondance. Les filets synsédimentaires correspondent au soufre apporté par les bactéries rapidement piégées lors des crises dystrophiques, alors que les nodules et le soufre associé au gypse secondaire résultent d'une biodiagenèse précoce dans la vase. Pour ce second mode d'évolution, l'activité de bactéries sulfo-oxydantes, qui utilisent le H₂S produit par les sulfato-réductrices doit être le précurseur immédiat de la croissance cristalline du soufre et des sulfates. Ceci s'applique aussi au cas des Camoins.

Enfin, dans ce gisement, le soufre secondaire ne serait, tout comme le soufre colloïdal participant au gisement « thermo-minéral » actuel, que le produit d'activations bactériennes très postérieures au dépôt. En ce sens, il est à rapprocher du soufre de « cap-rock » des pétroliers, né de la réjuvenation de gypse par des eaux phréatiques.

E) La genèse du soufre des Camoins : un modèle original

Le site des Camoins est original parce que nous avons constaté que la quasi-totalité du minerai de soufre est constituée par du soufre primaire, et pu montrer que chaque couche a été produite, accumulée et conservée dans une lagune continentale, obligatoirement peu profonde pour permettre, lors de phases plus chaudes, une mise à sec rapide.

Sans posséder d'éléments pour une chronologie précise, on peut cependant penser, par référence à la durée de l'Oligocène et à la situation approximative de la colonne lithostratigraphique des Camoins dans cette période, que le dépôt des argilites et des laminites à soufre a duré à peu près un million d'années. Puisque l'épaisseur totale des laminites est de 70 m environ (ce qui peut représenter 500 000 ans de sédimentation), et que la distance de la base d'une lamine à celle de la lamine suivante est de l'ordre de 2 à 5 mm, la formation d'une lamine pourrait représenter une durée moyenne de 15 à 35 ans. Cet intervalle de temps constituerait le temps nécessaire pour réaliser un cycle complet entre deux crises dystrophiques aiguës.

CONCLUSIONS

Les milieux propices à la sédimentation, puis à la conservation du soufre natif dans les roches sédimentaires, sont des milieux exceptionnels. Les multiples rôles que jouent les microflores diverses liées au soufre, dans des contextes extrêmes actuels suggèrent leur intervention dans l'évolution de tels milieux, sous le contrôle de facteurs physiques externes et internes.

Pour s'en tenir au Tertiaire et à l'Europe, deux contextes géodynamiques fort différents peuvent être décrits. Dans le cas de la Paratéthis et de la Méditerranée messinienne, les lagunes étalées sur leurs berges ont présenté des conditions homogènes sur de vastes étendues et, quand ces conditions ont été favorables à la sédimentation du soufre, c'est à une grande échelle d'espace et de temps qu'ont pu s'y accumuler d'importants gisements [Jørgensen, 1982].

Au contraire, les bassins oligocènes du Sud-Est de la France étaient de taille relativement réduite, avec des « effets de berges » d'autant plus forts que la tectonique extensive était active. Par ces effets, il faut entendre non seulement l'héritage géochimique, assez souvent favorable, mais aussi le nourrissage détritique, franchement défavorable, par exemple dans le bassin de Marseille, qu'il se soit agi d'apports lointains ou d'écroulements locaux, accompagnés par la bréchification des vases à peine indurées.

Ce n'est donc que dans des dépressions assez isolées, occupées par de grandes flaques sujettes à des phases périodiques de dessiccation, qu'ont pu se réaliser les conditions

favorables à la paragenèse soufrée, à intervalles réguliers et pendant un laps de temps suffisant pour engendrer des gisements exploitables. Les conditions de cet isolement, générateur de singularité, étaient certainement assez différentes suivant le cas que l'on considère : Malvézy, les Tapets, Biabaux ou les Camoins. Mais dans ces cadres divers, grâce à cet isolement, purent évoluer les mêmes éléments biogéochimiques, pour arriver à la mise en place de quatre gisements de soufre sédimentaire, très limités en extension, mais qui ont fait l'objet d'une exploitation minière.

Ainsi, la comparaison du gisement de soufre sédimentaire des Camoins avec des milieux actuels, s'est révélée très fructueuse. Elle nous a permis d'établir que les facteurs de l'accumulation et de la conservation du soufre, dans les dépôts d'une cuvette lacustre ou lagunaire, sont à la fois de nature microbiologique, climatique et géologique.

La source initiale du soufre ressort du contexte hydrogéochimique : eau de mer ou roches riches en sulfates. L'isolement de lacs et lagunes plus ou moins sulfatés, thalasso-dépendants ou non, est d'origine géodynamique. L'évolution évaporitique de ces nappes d'eau résulte du climat général et du microclimat local. La caractérisation des espèces du soufre, dans le dépôt et dans la roche évaporitique qui en résulte, est sous la dépendance de l'activité de bactéries sulfureuses photosynthétiques puis de la diagenèse, ce qui n'est pas sans rappeler la maturation biochimique et géochimique des combustibles minéraux. Enfin, la conservation et la remobilisation éventuelle du soufre, dans le massif rocheux, dépendent de ses rapports avec les nappes aquifères et leur microflore...

Note. — Une partie des recherches présentées ici a fait l'objet d'une communication au 4^{ème} Congrès Français de Sédimentologie [Rousset *et al.*, 1993], reprenant les aspects bio-sédimentologiques de la thèse de N. Magnan [1992].

Remerciements. — Ces recherches ont bénéficié d'une autorisation d'accès et de prélèvements de J. Caparros, et du soutien financier d'A. Aubert, Directrice de l'Etablissement Thermal de Camoins-les-Bains.

La partie analytique a été réalisée au Laboratoire de Chimie et Environnement de l'Université de Provence et grâce au concours de J.-C. Landry, Directeur de l'Institut Ecotoxicologique de Genève. La photographie en MEB est d'A. Prone.

Le texte anglais a été revu par P.A. Roger de l'ORSTOM.

Les auteurs remercient, pour leurs critiques constructives, B. Blavoux de l'Université d'Avignon, J. Philip et O. Thomas, de l'Université de Provence, ainsi que J. Gaudant et P. Durringer, leurs rapporteurs SGF, et aussi, pour l'aide apportée lors de l'interprétation microbiologique, P. Caumette, de l'Université de Bordeaux I.

Les auteurs dédient cette note à J.-Ch. Fontes, qui s'était montré très intéressé par le soufre de la mine des Camoins et ses problèmes biogéochimiques.

Références

- BAULT J. (1986). – Transformation of sulfur species by phototrophic and chemotrophic microbes. In : M. BERNHARD, F.E. BRINCKMAN & P.J. SADLER Eds., The importance of chemical speciation in environmental processes. – *Dalmen Konferenzen 1986*, Berlin, Germany, 255-273.
- BIEBL H. & PFENNIG N. (1977). – Growth of sulfate-degrading bacteria with sulfur as electron acceptor. – *Arch. Microbiol.*, **112**, 115-117.
- CARTE GÉOLOGIQUE DE MANOSQUE À 1/50 000 (1972). – BRGM, Orléans.
- CAUMETTE P. (1985). – Rôle des bactéries phototrophes et sulfato-réductrices dans les milieux lagunaires. – Mémoires et Thèses, ORSTOM, Paris, 304 p.
- CAUMETTE P. (1986). – Phototrophic sulfur bacteria and sulfate-reducing bacteria causing red waters in a shallow brackish coastal lagoon (Prévost Lagoon, France). – *FEMS Microbiol. Ecol.*, **38**, 113-124.
- CAUMETTE P. & BALEUX B. (1980). – Étude des eaux rouges dues à la prolifération des bactéries photosynthétiques sulfo-oxydantes dans l'étang du Prévost, lagune saumâtre méditerranéenne. – *Mar. Biol.*, **56**, 183-194.
- CAUMETTE P., MATHERON R., RAYMOND N. & RELEXANS J.C. (1993). – Microbial mats in the hypersaline ponds of Mediterranean salterns (Salin-de-Giraud, France) – *FEMS Microbiol. Ecol.*, **13**, 273-286.
- CAUMETTE P., PAGANO M. & SAINT-JEAN L. (1983). – Répartition verticale du phytoplancton, des bactéries et du zooplancton dans un milieu stratifié en baie de Biétry (lagune Ebrié, Côte d'Ivoire) : relations trophiques. – *Hydrobiologia*, **106**, 135-148.
- CORROY G. (1946). – Mine de soufre des Camoins : rapport géologique sur les arrivées d'eau d'exhaure pendant l'automne 1945 et sur le tarissement des eaux minérales de l'établissement des Camoins. – Rapp. inédit, 5 p.
- DUFOUR P. & MAURER D. (1979). – Pollution organique et eutrophisation en milieu tropical saumâtre. – *Rev. Biol. Ecol. Médit.*, **6**, 252.
- FAUQUE G. (1979). – Réduction du soufre colloïdal chez les bactéries sulfato-réductrices. – Thèse de Spécialité de l'Université de Provence, Marseille, 161 p.
- FONTES J.-Ch., FILLY A., GAUDANT J. & DURINGER Ph. (1991). – Origine continentale des évaporites paléogènes de Haute-Alsace : arguments paléocéologiques, sédimentologiques et isotopiques. – *Bull. Soc. géol. Fr.*, **162**, 4, 725-737.
- FONTES J.-Ch., GAUDANT J. & TRUC G. (1980). – Données paléocéologiques, teneurs en isotopes lourds et paléohydrologie du bassin gypsifère oligocène d'Aix-en-Provence. – *Bull. Soc. géol. Fr.*, (7), **II**, 491-500.
- GUIEU G. (1968). – Étude tectonique de la région de Marseille. – Thèse de Doctorat d'Etat de l'Université de Provence, Marseille, 604 p.
- GUIEU G. & ROUSSET C. (1980). – La Provence. – *Act. 26^e Congr. Géol. Intern.*, Paris, 65-80.
- HÉBRARD L. (1978). – Contribution à l'étude géologique du Quaternaire du littoral mauritanien entre Nouakchott et Nouadhibou. – Thèse de Doctorat de Géologie de l'Université de Lyon, n° 71, 210 p.
- HIPPOLYTE J.C., NURY D., ANGELIER J. & BERGERAT F. (1991). – Relations entre tectonique extensive et sédimentation continentale : exemple des bassins oligocènes de Marseille et de Basse-Provence. – *Bull. Soc. géol. Fr.*, **162**, 6, 1083-1094.
- JØRGENSEN B. (1982). – Ecology of the bacteria of the sulphur cycle, with special reference to anoxic-oxic interface environments : *Sulphur bacteria*. – *Phil. Trans. R. Soc., London*, **298**, 583-600.
- JØRGENSEN B., KUENEN J.G. & COHEN Y. (1979). – Microbial transformations of sulfur compounds in a stratified lake (Solar Lake, Sinaï). – *Limnol. Oceanogr.*, **24**, 799-822.
- KLING G.W. (1987). – Comparative transparency, depth of mixing and stability of stratification in lakes of Cameroon, West Africa. – *Limnol. Oceanogr.*, **33**, 27-40.
- MAGNAN N. (1992). – Contexte hydrominéral du soufre sédimentaire ; gîte aquifère – gîte minier ; le cas du site des Camoins (B.d.R., France). – Thèse de Doctorat de l'Université de Provence, Marseille, 174 p.
- MATHERON R. & BAULÈGUE R. (1976). – Bactéries fermentatives, sulfato-réductrices et phototrophes sulfureuses en cultures mixtes. – *Arch. Microbiol.*, **109**, 319-320.
- MATSUYAMA M. & SHIROUZE E. (1978). – Importance of photosynthetic bacteria, *Chromatium* sp., as an organic producer in Lake Kaiike. – *Jap. J. Limnol.*, **39**, 103-111.
- NURY D. (1987). – L'Oligocène de Provence méridionale : stratigraphie, dynamique sédimentaire, reconstitutions paléogéographiques. – Thèse Doctorat Etat, Université de Provence, Marseille, 348 p.
- NURY D. & ROUSSET C. (1986). – Extension des dépôts oligocènes de la région de Toulon (Var, Sud-Est France). Cadre structural et implications paléo-géographiques. – *Géol. Méditerr.*, **XII-XIII**, 3-4, 175-184.
- OLLIVIER B., CAUMETTE P., GARCIA J.-L. & MAH M.A. (1994a). – Anaerobic bacteria from hypersaline environments. – *Microbiol. Rev.*, **58**(1), 27-38.
- OLLIVIER B., HATCHIKIAN C.E., PRENSIER G., GUÉZENNEC J. & GARCIA J.-L. (1994b). – *Desulfohalobium retbaense* gen. nov. sp. nov., a halophilic sulfate-reducing bacterium from sediments of a hypersaline lake. – *Int. J. Syst. Bacteriol.*, **41**, 74-81.
- PERTHUISOT J.-P. (1980). – Sites et processus de la formation des évaporites dans la nature actuelle. – *Bull. Centre Rech. Explor. Prod. Elf-Aquitaine*, **4**(1), 205-233.
- PFENNIG N. (1978). – General physiology and ecology of photosynthetic bacteria. In : R. CLAYTON & W. SISTROM Eds., The photosynthetic bacteria. – Plenum Press Corporation, New York, 3-18.
- PFENNIG N. & BIEBL H. (1976). – *Desulfuromonas acetoxidans*, gen. nov., and sp. nov., a new anaerobic, sulfur-reducing, acetate-oxidizing bacterium. – *Arch. Microbiol.*, **110**, 3-12.
- PFENNIG N. & TRÜPER H.G. (1981). – Isolations of members of the families *Chromatiaceae* and *Chlorobiaceae*. In : M. STARR, H. STOLP, H.G. TRÜPER, A. BALOWS & H.G. SCHLEGEL, Eds., The prokaryotes, vol. 1. – Springer-Verlag, Heidelberg (Germany), 279-289.
- RAYMOND N. (1988). – Étude des bactéries sulfato-réductrices dans les sédiments anoxiques des milieux hypersalés de Salin-de-Giraud. – Mémoire de DEA Écosystèmes Méditerranéens Continentaux de l'Université Aix-Marseille III, 43 p.
- REYNAUD P.A. & ROGER P.A. (1981). – Variations saisonnières de la flore algale et de l'activité fixatrice d'azote dans un sol engorgé de dune. – *Rev. Ecol. Biol. Sol*, **18**, 9-27.
- ROUCHY J. (1979). – La sédimentation évaporitique sur les marges messiniennes. – 7th Int. Congr. Mediterr. Neogene (Athens, 1979). – *Ann. Géol. Pays Hellén.*, **3**, 1051-1060.
- ROUSSET C. (1986). – Le cadre linéaire du Sud-Est de la France, à partir d'observations nouvelles sur son rôle dans la sédimentation tardo- et post-hercynienne. – *Bull. Soc. géol. Fr.*, (8), **II**, 3, 487-497.
- ROUSSET C., MAGNAN N. & JACQ V.A. (1993). – Sédimentation soufrée dans l'Oligocène de Provence : l'exemple de Camoins-Lès-Bains. – 4^{ème} Congrès de Sédimentologie, Villeneuve d'Ascq, 17-19 nov. 1993, Résumés. – *Publ. A.S.F. Paris*, **19**, 323-324.
- TAKAHASHI M. & ISHIMURA S. (1978). – Vertical distribution and organic matter production of photosynthetic sulfur bacteria in Japanese lakes. – *Limnol. Oceanogr.*, **13**, 644-655.
- TRAORÉ S.A. & JACQ V.A. (1991). – A simple membrane-filter technique for the enumeration of S-reducing bacteria in soil and water samples. – *J. Microbiol. Methods*, **14**, 1-9.
- TRÜPER H.G. & GENOVESE S. (1968). – Characterization of photosynthetic bacteria causing red water in Lake Faro (Sicily). – *Limnol. Oceanogr.*, **13**, 225-232.
- TRÜPER H.G. & GENOVESE S. (1982). – Microbial process in the sulphur cycle through time. In : H.D. HOLLAND & M. SCHIDLOWSKI Eds, Mineral deposits and the evolution of the biosphere. – Springer Berlin, 5-30.
- VERNET M. & VERNET-SINDALI B. (1980). – Essai de discrimination par méthode isotopique de l'origine des eaux de systèmes karstiques. Application aux karsts continentaux et littoraux de basse Provence. – Thèse de Spéc., Université de Provence, Marseille, 208 p.