# SÉANCE MENSUELLE DU MARDI 17 JANVIER 1967.

Présidence de M. A. BEUGNIES, Président.

#### Présentation de nouveaux membres :

M. ROGER VAN FRANK, Docteur en médecine, 21, avenue des Ortolans, Bruxelles 17; présenté par MM. A. Delmer et R. Legrand.

M. CHAPOUR MOZAFARI, Université de Téhéran, Faculté technique, Téhéran, Iran; présenté par MM. A. Beugnies et A. Delmer.

## Communications des membres :

L. VAN WAMBEKE. — Étude de quelques venues radioactives des pegmatites du Congo et du Ruanda. (Texte ci-après.)

J. JEDWAB. — Minéralisation en greigite de débris végétaux d'une vase récente (Grote Geul). (Texte ci-après.)

## Étude de quelques venues radioactives des pegmatites du Congo et du Rwanda,

par L. VAN WAMBEKE, C.C.R. Euratom, Ispra, Italie

RÉSUMÉ. — Des minéraux d'uranium et parfois de thorium s'observent dans les pegmatites sodo-lithiques de Buranga (Rwanda) ainsi que de Mapembe et de Liha (Congo-Kinshasa).

La majeure partie de la radioactivité se concentre généralement dans les minéraux de la série microlite mais localement l'uranothorogummite et le zircon (Mapembe) ainsi que l'euxénite, la tantalpolycrase et la tanteuxénite (Liha) peuvent être aussi présents. En outre, les colombo-tantalites contiennent parfois un faible pourcentage d'éléments radioactifs.

Les observations montrent qu'au cours de la différenciation des pegmatites sodolithiques caractérisées par un accroissement progressif du rapport  $Ta_2O_5/Nb_2O_5$  des colombo-tantalates, les solutions résiduelles s'appauvrissent en éléments radioactifs. Il en résulte que les microlites de dernière génération, les plus riches en Ta, sont souvent exemptes de radioactivité.

#### L. VAN WAMBEKE. — ÉTUDE DE QUELQUES

ABSTRACT. — Uranium and more rarely thorium minerals occur in the sodalithic pegmatites of Buranga (Rwanda) and also of Mapembe and Liha (Congo-Kinshasa). The main radioactivity is generally concentrated in the minerals of the microlite series but also uranothorogummite and zircon (Mapembe) euxenite, tantalpolycrase and tanteuxenite (Liha) may be present. Moreover, columbotantalites have sometimes a low content of radioactive elements.

This study shows that during the soda-lithic pegmatitic differentiation which is characterized by a gradual increasing of the  $Ta_2O_5/Nb_2O_5$  ratio of the columbotantalates, the residual solutions become impoverished in radioactive elements. The result is that the microlites of the last generation, which have the highest content of Ta, are often devoid of radioactivity.

Des concentrations de minéraux radioactifs s'observent assez fréquemment dans les pegmatites du Congo et du Rwanda et ont déjà fait l'objet de quelques descriptions antérieures [1] [2]. La principale minéralisation radioactive jusqu'ici reconnue est localisée dans la pegmatite à béryl de Kobokobo, où l'uraninite et surtout les minéraux secondaires d'uranium sont assez fréquents (curite, autunite, phosphuranylite, kivuïte, évansite uranifère) [3] [4]. Des minéralisations secondaires similaires existent dans les pegmatites minéralisées en Nb, en Ta et en Sn de la région de Buranga, au Rwanda [5]. Un caractère commun à ces venues uranifères est leur concentration préférentielle dans la phase sodo-lithique souvent riche en colombo-tantalite et en amblygonite. A Kobokobo, l'uraninite se rencontre dans la phase albitique et est antérieure au dépôt des phosphates de Fe, Mn, Ca, Li [20].

Nous donnerons ci-après un aperçu de quelques manifestations radioactives en essayant d'en tirer des conclusions géochimiques.

#### 1. BURANGA (RWANDA).

Les pegmatites de la région de Buranga, outre des minéraux secondaires (gummite, autunite), renferment des microlites radioactives [1] [5]. Il existe, dans ce gisement, trois variétés de microlites respectivement de couleur noire, verdâtre et brun rosé. Les deux premières sont pratiquement métamictes et contiennent un pourcentage élevé d'uranium.

Trois analyses chimiques ont été effectuées par la Société Billiton et complétées par quelques dosages en fluorescence X. Les résultats sont indiqués au tableau I — 1, 2, 3. Les impuretés étaient représentées par du quartz et de la kaolinite.

Compte tenu des impuretés minérales, on peut déduire des analyses chimiques les formules suivantes :

#### a) Microlite noire.

b) Microlite verdâtre.

 $\begin{bmatrix} U_{0,129} \operatorname{Na}_{0,127} \operatorname{Ca}_{0,083} \operatorname{Fe}_{0,026} \operatorname{Pb}_{0,017} \operatorname{Mn}_{0,012} \operatorname{K}_{0,006}(\operatorname{Th}, \operatorname{Sr})_{0,001} \end{bmatrix}, \\ [\operatorname{Ta}_{1,43} \operatorname{Nb}_{0,42} \operatorname{Ti}_{0,08} \operatorname{Sn}_{0,04} \operatorname{Fe}_{0,02}^{\mathrm{II}} \operatorname{Zr}_{0,01} ] \operatorname{O}_{5,45}(\operatorname{OH})_{0,90}.$ 

#### c) Microlite brun rose.

 $[Ca_{0,785} Na_{0,675} U_{0,02} Ba_{0,015} Fe_{0,01} (Sr, K, Pb, Mn, Th)_{0,025}], \\ [Ta_{1,86} Nb_{0,09} Fe_{0,02}^{II} Sn_{0,015} Ti_{0,01} Zr_{0,005}] O_{6,19} [F_{0,31}, OH_{0,29}].$ 

Si l'on considère la formule générale de la série pyrochlore-titanopyrochlore-microlite (6) :

 $A_y B_2 X_{7-Z},$ 

où A = ensemble des cations; B = ensemble des anions; X = O, OH, H<sub>2</sub>O, F,

et

 $0 < y \leq 2;$   $0 \leq z \leq 2,$ 

les microlites noires et verdâtres de Buranga peuvent être considérées comme des uranmicrolites (djalmaïte) qui sont caractérisées par un large déficit du groupe cationique où seulement un quart environ des positions A sont occupées. Comme dans pratiquement tous les minéraux de cette série à large déficit en cations, une partie des atomes d'O sont remplacés par des groupes (OH) ou par des molécules ( $H_2O$ ) et la teneur en F est généralement très faible. La microlite brun rose, par contre, est une Na-Ca microlite normale.

En diffraction, la microlite brun rose donne le spectre typique de la série pyrochlore-microlite avec un paramètre  $a_o = 10,424 \pm 0,004$  Å. Les uranmicrolites, pratiquement métamictes, donnent par chauffage à l'air à 90 °C un spectre complexe composé d'au moins

9

## TABLEAU I.

# Analyses des tantalates des pegmatites congolaises et rwandaises.

Éléments dosés	1	• 2	3	4	5	6	7	8
Na2O	0,59	0,85	4,0	2,9	0,80	······································		
K <sub>2</sub> O	0,04	0,06	0,07	<0,1	0,10			
Ca O	0,98	1,0	8,4	11,50	7,4	0,56	3,7	2,6
Sr O	0,005	0,003	0,18	0,14	0,23		0,03	0,02
Ba O	<0,02	<0,02	0,45	0,22	0,12			
$U_3O_8$	11,6	7,8	0,92	0,04	4,4	<u></u>	2,75	2,50
$Th O_2 \dots \dots \dots \dots$	0,02	0,02	0,02	<u></u>	0,26		4,1	4,8
Pb O	1,0	0,80	0,15	0,04	1,3		0,50	0,58
Mn O	0,36	0,18	0,041	0,08	0,30	1,0	0,16	0,14
Fe O	0,80	0,4	0,02	0,36	0,70	11,5	0,25	0,31
$\Sigma T Ce_2O_3 \dots \dots \dots$		· · · · ·		<u> </u>	0,14 ( <sup>1</sup> )	<u> </u>	1,76(3)	1,39(5)
$\Sigma T Y_2 O_3 \dots \dots \dots$		-			0,03 (²)		12,00 (4)	9,93 ( <sup>6</sup> )
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,31	0,33	0,32	n.a.	0,13		2,75	2,80
$Nb_2O_5$	11,4	12,2	2,3	2,6	5,2	1,4	9,5	9,7
$Ta_2O_5$	64,0	68,0	78,6	77,6	70,0	81,5	38,4	40,2
Ti O <sub>2</sub>	0,98	1,4	0,13	1,8	3,4	0,52	20,0	20,6

$\operatorname{Sn} O_2$	• •••		•••••	. 1	0,92	1,3	0,47	0,16	0,17		0,10	0,12
$Zr O_2 \dots$					0,26	0,22	0,14	0,06	0,20		0,11	0,17
Cr O <sub>3</sub>	• •••	•				-	0,003					
F					<0,1	<0,1	1,13	0,75	<0,1	· · ·	_	··· <u>···</u>
H <sub>2</sub> O+	• •••	•			3,9	3,6	1,1	0,44	0,44	3,5	3,47	4,03
$H_2O^-\dots$	• •••	•••	••••••		1,86	1,13	0,16	0,02	0,91	—	0,13	0,29
Si O <sub>2</sub>	• •••	•••	n in		1,0	0,89	1,1	1,4	1,3	3,8	·	
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>		•••	• •••		0,29	0,30	0,33	·	0,25	·	0,50	0,42
As2O5	• •••				· ;					0,05		
Total	• •••				100,315	100,483	100,214	100,83	100,83	100,31	100,31	100,65
0 = F							-0,486	0,31	-			
							99,728	99,80			-	

LÉGENDE :

1. Microlite noire de Buranga [impureté : kaolinite (0,73 %), quartz (0,66 %)].

Microlite verdâtre de Buranga [impuretés : kaolinite (0,75 %), quartz (0,54 %)].
Microlite brun rose de Buranga [impuretés : kaolinite (0,83 %), quartz (0,71 %)].
Microlite légèrement radioactive de génération postérieure — Mapembe, Ituri [impuretés : quartz (0,91 %), albite (0,72 %)].

5. Microlite radioactive de Liha [impuretés : kaolinite (0,63 %), quartz (1,01 %)].

6. Tapiolite de Mapembe [impuretés : quartz, microlite (traces), mispickel (traces)].

7. Tantalpolycrase de Liha - Zone interne plus ou moins altérée.

8. Tantalpolycrase de Liha - Zone externe altérée.

- (1) Dont Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 0,10 % et Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 0,04 %.
- (2) Uniquement Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.
- 73Ń
- (5)
- $\begin{array}{l} \text{Dont } Ce_2O_3 \ 0,43 \ \%; \ Pr_2O_3 \ 0,11 \ \%; \ Nd_2O_3 \ 0,71 \ \%; \ Sm_2O_3 \ 0,48 \ \%; \ La_2O_3 \ 0,03 \ \%. \\ \text{Dont } Y_2O_3 \ 10,22 \ \%; \ Gd_2O_3 \ 0,60 \ \%; \ Tb_2O_3 \ 0,12 \ \%; \ Dy_2O_3 \ 0,73 \ \%; \ Er_2O_3 \ 0,23 \ \%; \ Yb_2O_3 \ 0,10 \ \%. \\ \text{Dont } Ce_2O_3 \ 0,36 \ \%; \ Pr_2O_3 \ 0,10 \ \%; \ Nd_2O_3 \ 0,50 \ \%; \ Sm_2O_3 \ 0,41 \ \%; \ La_2O_3 \ 0,02 \ \%. \\ \text{Dont } Y_2O_3 \ 0,49 \ \%; \ Tb_2O_3 \ 0,11 \ \%; \ Dy_2O_3 \ 0,63 \ \%; \ Er_2O_3 \ 0,20 \ \%; \ Yb_2O_3 \ 0,09 \ \%. \end{array}$ (6)

deux phases distinctes dont une correspond à la microlite, l'autre ou les autres restant indéterminées.

Du point de vue géochimique, les microlites de Buranga présentent quelques particularités intéressantes. Les U-microlites qui se sont formées quasi contemporainement, outre leur teneur élevée en U, ont un rapport  $Ta_2O_5/Nb_2O_5$  voisin de 5,6. Si on les compare à la Na-Ca microlite de cristallisation postérieure, on observe pour cette dernière une diminution sensible de la teneur en U et une augmentation considérable du rapport  $Ta_2O_5/Nb_2O_5$  qui atteint 34.

Lors du processus de différenciation des pegmatites sodo-lithiques, nous assistons donc à une concentration préférentielle du Nb, de l'U et aussi du Ti dans les microlites de première cristallisation et un enrichissement des solutions résiduelles en Ta, Sr, Ba et en F. Un certain enrichissement en Sr et Ba a été aussi observé dans la phase finale riche en phosphates de Koboko et pourrait expliquer la formation dans certaines pegmatites de Ba-microlites (rijkeboerite) comme au Brésil [6].

## 2. MAPEMBE-ITURI (RÉPUBLIQUE DU CONGO).

Une série de minéraux radioactifs s'observe à Mapembe. La première association minérale se compose d'uranothorogummite, de microlites et de zircon radioactifs ainsi que de tantalite niobifère. Une seconde association de génération postérieure est constituée par de la tapiolite et de la microlite.

# A. — Les uranothorogummites.

Les uranothorogummites se présentent soit en masses cristallisées de couleur orange brun sur le zircon (type I), soit sont associées à des feldspaths altérés (type II). La différence majeure entre ces uranothorogummites est la teneur en U nettement plus élevée dans le type II.

En dehors de Mapembe, de la thorogummite pratiquement exempte d'U est connue dans des filons de quartz à Kasika, Kivu [1] et a été aussi détectée dans les carbonatites de la Lueshe. Toutes donnent un spectre de diffraction sans chauffage préalable, indiquant qu'il s'agit bien de thorogummite. Deux analyses chimiques ont été effectuées par la Société Billiton et complétées par quelques dosages en fluorescence X. Les résultats sont indiqués au tableau II — 1, 2.

#### VENUES RADIOACTIVES DES PEGMATITES

#### TABLEAI II.

Analyses des silicates radioactifs de Mapembe.

				<u> </u>				
Éléments dosés				1	2	3		
Th O <sub>2</sub>	•••			•••		68,0	56,5	2,33
U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>	,				•••	4,6	18,1	0,46
Pb O	•••			•••		0,06	0,037	0,036
Mn O			••••		•••	0,08	0,01	0,03
Fe O			•••	•••	••••	0,1	0,1	0,83
Mg O	•••		•••	•••		2,0	1,50	
Ca O	<i></i>	•••	•••	••••	•••	-		0,04
Sr O	•••	• • •	•••	••••				0,01
$\rm Fe_2O_3$		•••		•••	•••	0,8	1,50	0,38
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	•••		•••	•••		0,50	0,50	0,1
$\Sigma T Ce$	2O3	•••			•••	<0,05	<0,05	0,10( <sup>1</sup> )
$\Sigma T Y_2$	O3		·	•••	•••	0,10	0,06	0,38 (²)
$Ta_2O_5$	•••			•••	•••			0,10
$Nb_2O_5$	•••	•••		•••	•••		_	0,10
Zr O <sub>2</sub>	•••	••••		<i>.</i>	•••	n. d.	n. d.	58,5
Hf O2	•••	•••	•••	•••		n. d.	n. d.	4,7
Ti O <sub>2</sub>	•••		•••	••••	•••	0,15	0,28	0,07
Si O2				•••		7,7	9,5	26,2
$P_2O_5$		<i>.</i>	·• • •	•••	•••	3,1	1,1	0,1
$H_2O^+$	•••		•••		•••	6,15	6,8	3,9
H <sub>2</sub> O-	•••	•,• •	•••	• • •	• • •	5,70	3,45	2,06
Total	•••			•••	•••	100,24	100,437	100,426

LÉGENDE :

Uranothorogummite du type I associée au zircon.
Uranothorogummite du type II associée au feldspath.
Zircon de Mapembe.

(1) Dont Ce<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 0,05 %; Sm<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 0,03 %; (La, Nd)<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 0,02 %. (2) Dont Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 0,18 %; Dy<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 0,11 %; Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 0,06 %; Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 0,03 %.

Des analyses chimiques, on peut déduire les formules suivantes : Type I.

 $[Th_{0,755} Mg_{0,146} U_{0,047} Zr_{0,029} (Ti, Fe^{II}, Fe^{III}, Al, Y, Pb, Mn)_{0,023}],$ 

$$[(Si_{0,376}, P_{0,128})O_{3,10}][OH]_{1,00}0,93H_2O.$$

Type II.

 $[Th_{0,597} U_{0,180} Mg_{0,105} Fe_{0,052}^{III} Al_{0,027} Zr_{0,023} (Ti, Fe^{II}, Y, Mn, Pb)_{0,016}],$ [(Si\_{0,443}, P\_{0,044})O\_{2,97}][OH]\_{1,06} 0,54 H\_2O.

Dans les uranothorogummites du type I, un quart des groupes  $[SiO_4]$ sont remplacées par  $[PO_4]$ . La somme des groupes  $[SiO_4]$  et  $[PO_4]$ dans les deux types atteint à peine 0,5. En considérant la formule générale des thorogummites Th $[SiO_4]_{1-x}[OH]_{4x}$  où x = 0,5, les pourcentages théoriques en poids devraient être les suivants :

					70
$ThO_2$	•••		·	••••	80
SiO <sub>2</sub>	•••	••••			9,1
H <sub>2</sub> O	•••	•••	•••	•••	10,9
					100

Les groupes [OH] dans les deux types d'uranothorogummites sont déficitaires de moitié environ par rapport à la formule générale, même en tenant compte d'une substitution des groupes  $[PO_4]$  par 3 [OH]. Il est donc probable que les molécules d'eau comblent entièrement (type I) ou partiellement (type II) ce déficit et entrent donc dans la formule chimique. Ces deux uranothorogummites sont aussi caractérisées par une teneur assez élevée en Mg.

Le zircon de Mapembe se présente en masses cristallines. Ce minéral radioactif a fait l'objet d'une analyse chimique complétée par des dosages en fluorescence X. Les résultats sont indiqués au tableau II -3.

De l'analyse chimique, on peut déduire la formule suivante :

 $[Zr_{0,891}Hf_{0,042}Fe^{II}_{0,022}Th_{0,016}(Fe^{III}, TR, Al, U, Ti, Ca, Nb, Mn, Ta, Pb, Sr)_{0,029}],$ [(Si\_{0,819}, P\_{0,002})O\_{3,62}][OH]\_{0,41}0,22H\_2O.

14

Le minéral contient une concentration appréciable en Hf.

Le rapport pondéral Zr/Hf est égal à 10,9 contre 48,9 en moyenne pour les zircons. Il concentre aussi préférentiellement les terres yttriques par rapport aux terres cériques (rapport  $TY_2O_3/TCe_2O_3$ = 3,8).

#### C. — Les microlites et les tantalites radioactives.

Associés aux deux minéraux précédents on trouve, outre la tantalite, deux types de microlites. Le type I est représenté par une microlite noire, métamicte, qui contient de 10 à 15 % d'U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> et correspond à une uranmicrolite. Le type II est représenté par une microlite brune contenant entre 3 à 6 % d'U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>. Ce minéral est partiellement métamicte. La tantalite radioactive possède une teneur en U qui ne dépasse pas 0,3 % d'U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>. Le rapport Fe/Mn est supérieur à 1. L'ordre de cristallisation est le suivant : tantalite-microlite noire — microlite brune. Les rapports Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> et U/Th ont été mesurés en fluorescence X et sont reportés au tableau III.

#### TABLEAU III.

Variation des rapports pondéraux  $Ta_2O_5/Nb_2O_5$   $et\ U/Th$  dans les tantalates.

Rapports	Tantalite	Microlite noire	Microlite brune
Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> /Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	2	22	25
U/Th	4,5	24	3,8

Au fur et à mesure de la cristallisation, on note une augmentation du rapport  $Ta_2O_5/Nb_2O_5$  et une diminution de la concentration en U et en Th pour les microlites.

D. — LA TAPIOLITE ET LES MICROLITES DE GÉNÉRATION POSTÉRIEURE.

Ces minéraux appartiennent à une génération postérieure à l'association minérale précédente et ne présentent guère de radioactivité à l'exception d'une microlite légèrement uranifère, probablement antérieure au dépôt de la tapiolite. Ce dernier minéral, identifié par son spectre de diffraction, est à son tour remplacé par une microlite non radioactive.

La microlite légèrement radioactive a fait l'objet d'une analyse chimique par la Société Billiton et a été complétée par quelques dosages en fluorescence X.

Les résultats sont indiqués au tableau I — 4.

De cette analyse, on peut déduire la formule suivante :

 $[Ca_{1,04} Na_{0,46} Fe_{0,025} (Ba, Sr, Mn, Pb, U)_{0,02}],$  $[Ta_{1,78} Ti_{0,11} Nb_{0,10} (Sn, Zr)_{0,01}] O_{6,26} [(O H)_{0,12} F_{0,10}].$ 

Son paramètre est  $a_0 = 10,417 \pm 0,003$  Å. Le rapport pondéral Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> atteint 29,8. Cette microlite possède des teneurs légèrement supérieures en Ba et en Sr et nettement inférieures en Zr et U comparativement aux microlites radioactives associées à l'uranothorogummite et au zircon.

La *tapiolite* se présente en masses compactes et a fait l'objet d'une analyse chimique dont les résultats sont indiqués au tableau I - 6.

L'analyse montre qu'il s'agit de la variété ferrifère. Le rapport pondéral  $Ta_2O_5/Nb_2O_5$  atteint 58,2.

La microlite non radioactive qui remplace partiellement la tapiolite ne contient plus d'U (teneur inférieure à 0,002 %) et est encore légèrement enrichie en Sr et en Ba par rapport à la précédente. Le dosage en fluorescence X indique 0,25 % de SrO et 0,30 % de BaO. On note également une forte augmentation du rapport pondéral Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> qui atteint 75 et une diminution de la teneur en Ti (0,66 % de TiO<sub>2</sub>). En résumé, à Mapembe comme à Buranga, on observe au fur et à mesure du dépôt des tantalates en général, un enrichissement en tantale et une diminution des teneurs en éléments radioactifs dans les différentes générations de microlites.

#### 3. LIHA-ITURI (RÉPUBLIQUE DU CONGO).

Dans les alluvions de la rivière Liha on rencontre, outre de la colombite et de la microlite radioactives, de l'euxénite, de la tantalpolycrase et de la tanteuxénite. Ce dernier minéral a déjà fait l'objet d'une description antérieure [7]. Le rapport moléculaire Ta + Nb/Tidans les deux tantalates yttrifères est voisin de 1, de sorte qu'une légère variation de la teneur en Ti conduit à la formation de tantalpolycrase ou de tanteuxénite.

#### A. — LA COLOMBITE ET L'EUXÉNITE.

L'euxénite est souvent associée en gerbes avec la colombite, mais de la colombite légèrement uranifère (0,1 à 0,4 % d'U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>) et parfois plombifère (0,5 à 1 % de PbO) se rencontre aussi indépendamment de l'euxénite.

Les rapports pondéraux  $Ta_2O_5/Nb_2O_5$  varient légèrement autour de 1 (de 0,8 à 1,3), tant pour les colombites que pour l'euxénite. Ce dernier minéral diffère de la tantalpolycrase et de la tanteuxénite non seulement par sa teneur inférieure en Ta, mais aussi en Ti, et par des teneurs supérieures en terres yttriques.

#### B. — LA TANTALPOLYCRASE ET LA TANTEUXÉNITE.

Ces deux minéraux, de formation quasi contemporaine, se présentent en cristaux aplatis plus ou moins altérés. Dans un même cristal, le passage de la tantalpolycrase (zone interne) à la tanteuxénite (zone externe) s'observe parfois par diminution de la teneur en Ti, souvent accompagnée par un accroissement du rapport pondéral  $Ta_2O_5/Nb_2O_5$ . Il est intéressant de noter ici que ces deux tantalates yttrifères se rencontrent également dans le gisement de Woodgina, Australie.

#### Spectre de diffraction.

Les deux minéraux ont un spectre identique. Nous avons déjà indiqué le spectre de diffraction de la tanteuxénite après chauffage à 930 °C pendant huit heures à l'air [7]. Le spectre est composé de deux phases, l'une appartenant à la série microlite-pyrochlore, l'autre au rutile. Cependant, à 1.000 °C, dans les mêmes conditions expérimentales, le spectre devient beaucoup plus complexe par apparition

d'au moins quatre phases distinctes. En plus des phases précitées, on observe des raies correspondant à l'euxénite et à la blomstrandine (phase priorite de J. LIMA DE FARIA) [8] [9]. Le composé de structure microlite-pyrochlore possède comme paramètre  $a_0 = 10,262 \pm 0008$  Å et se rapproche probablement de l'obruchévite. Le tableau IV donne les valeurs de d et les phases correspondantes obtenues après chauffage à 1.000 °C, à l'air, pour les tantalates yttrifères.

#### TABLEAU IV.

après chauffage à 1.000 °C à l'air.								
Valeurs de <i>d</i> en Å	1/11	Phase rutile	Phase micro- lite	Phase euxénite [8]	Phase blomstran- dine [9]	Phase indéter- minée		
5,90	3		×			•		
3,67	10			×				
3,36	6		-	×		•		
3,26	19	×				•		
3,08	11	•	×		×	•		
2,995	100			×	×			
2,952	78		×		×			
2,907	46	•	×		×	•		
2,786	13	•		×		•		
2,746	5		•	•	×	•		
2,620	9	•		•		×		
2,600	7	•		×		•		
2,562	25	•	×	•	•	•		
2,520	9	•		•	•	×		
2,501	7	×						
2,453	5				×			
2,434	8			×				
2,33	4,5		×	× ×				

Spectre de diffraction des tantalates yttrifères

Valeurs de <i>d</i> en Å	I/Iº	Phase rutile	Phase micro- lite	Phase euxénite [8]	Phase blomstran- dine [9]	Phase indéter- minée
2.250						
2,250	4	•	•	•	×	•
2,205	7,5	•	•	×	•	•
2,123	•		•	•	×	•
1,990	7,5		•	•	×	•
1,952	6		•	×	×	•
1,904	9	•		×		
1,854	7	.•		<b>.</b> .	×	
1,832	12		•	×	•	· ·
1,809	36	•	×	-		•
1,778	9	•	-	×	× ?	•
1,734	9	•	-	×	•	•
1,705	10	•	×			
1,687	.7	•			×	
1,640	4	•	•	×	.	
1,574	10	•	•	•	×	•
1,563	7 .	•	•	×	•	•
1,545	27	•	•	×	•	.
1,512	5	•		.	×	•
1,495	6	•	•	×	×	•
					1	

TABLEAU IV (suite).

### Composition chimique.

Deux analyses chimiques ont été effectuées par la Société Billiton sur un cristal de tantalpolycrase et ont été complétées par des dosages en fluorescence X. Les parties analysées correspondent aux zones interne et externe plus altérée du cristal. Les résultats de ces analyses chimiques sont indiqués au tableau I -7, 8. De ces analyses chimiques, nous pouvons déduire les formules suivantes :

a) Zone interne déjà quelque peu altérée, de couleur noire à brun foncé.

 $[TY_{0,375} Ca_{0,211} Th_{0,057} T Ce_{0,042} U_{0,036} Al_{0,036} (Fe^{II}, Mn, Pb, Sr)_{0,031}],$  $[Ti_{0,942} Ta_{0,054} Nb_{0,269} Fe^{III}_{0,129} (Zr, Sn)_{0,006}] O_{5,57} [OH]_{0,72}.$ 

b) Zone externe, plus altérée, de couleur brune à brun jaunâtre.

 $[TY_{0,300}Ca_{0,169}Th_{0,066}U_{0,033}TCe_{0,030}Al_{0,030}(Fe, Pb, Mn, Sr)_{0,033}],$ 

 $[\mathrm{Ti}_{0,934}\mathrm{Ta}_{0,662}\,\mathrm{Nb}_{0,166}\,\mathrm{Fe}_{0,127}^{\mathrm{III}}(\mathrm{Zr},\,\,\mathrm{Sn})_{0,010}]\,\mathrm{O}_{5,36}\,[\mathrm{O\,H}]_{0,78}.$ 

Comparée à la formule classique de la série euxénite-polycrase,  $A\,B_2X_6,$ 

où

A = TR, Th, U, Ca, Mn, Fe<sup>II</sup>; B = Ti, Ta, Nb, Fe<sup>III</sup>, Sn, Zr; $X = O, OH, H_2O,$ 

nous observons pour la tantalpolycrase de Liha un déficit dans les éléments qui occupent les positions A. Quatre cinquièmes (zone interne) à deux tiers environ (zone externe) des positions A sont occupées et une partie des atomes d'O sont remplacés par des groupes [OH] ou des molécules [H2O]. Nous retrouvons ici les mêmes effets d'altération principalement d'origine superficielle que dans la série pyrochlore-microlite-titanopyrochlore. Si nous comparons l'analyse de la tantalpolycrase de Liha par rapport à celles qui ont été publiées [10], nous notons un déficit notable en poids des terres rares compensé partiellement par une teneur anormalement élevée en Ca. En tenant compte des effets d'altération superficielle et en supposant la composition chimique du cristal assez constante dans son ensemble, ce qui paraît valable dans notre cas, les pourcentages en poids des éléments facilement lessivés, en l'occurrence le Ca et les terres rares, devraient atteindre théoriquement et approximativement les valeurs suivantes :

CaO	••••	•••			5,6	
TCe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	•••	•••	•••		2,4	19
TY <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	•••	•••	•••	•••	15,6	

%

20

Compte tenu des effets d'altération superficielle, les pourcentages en terres rares restent assez nettement inférieurs à la teneur moyenne de la série euxénite-polycrase, qui atteint environ 25 % d'oxydes de terres rares. Nous nous trouvons donc en présence d'une variété de tantalpolycrase plus ou moins hydratée, assez riche en calcium, dont la composition chimique pour les éléments en position A se rapproche d'une titano-tantalo-obruchévite (Y-microlite ou Y-pyrochlore) mais en diffère cependant, outre ses formes cristallines, par une teneur plus élevée des éléments occupant les positions B dans la formule.

Une autre analyse effectuée sur un cristal plus ou moins altéré en fluorescence X a donné les valeurs corrigées suivantes :

				70
TiO <sub>2</sub>	•••			19,0
Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	•••	•••	•••	9,1
$Ta_2O_5 \dots$		•••	•••	42,9

%

Le minéral qui donne un spectre identique à la tantalpolycrase est donc une tanteuxénite, caractérisée par un rapport moléculaire Ta + Nb/Ti supérieur à 1 et par un accroissement du rapport pondéral Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> égal à 4,71.

La densité des tantalpolycrases et des tanteuxénites varie légèrement en fonction de la composition chimique et du degré d'altération entre 4,80 et 5,00. Il en est de même pour les indices de réfraction compris entre 2,10 et 2,13.

#### Géochimie.

La tantalpolycrase et la tanteuxénite de Liha sont caractérisées par une prédominance nette des terres yttriques avec un rapport  $\Sigma TCe_2O_3/\Sigma TY_2O_3$  voisin de 0,14 et par un assemblage complexe de terres rares avec :

 $Y \ge Dy > Nd > Gd > Sm > Ce > Er > Tb > Pr > Yb > La.$ 

Ces minéraux tantalifères sont de formation généralement plus tardive que l'euxénite dans les pegmatites. Comparés à ce dernier minéral, les terres rares (en dehors de l'Y) montrent une teneur plus élevée en terres cériques avec prédominance du Nd et en ce qui concerne les terres yttriques un pic analogue à l'euxénite pour le Dy [11]. Lors du processus d'altération, dû principalement aux agents atmosphériques, nous observons une lixiviation partielle des terres rares, qui affecte plus particulièrement le Nd dans le cas des terres cériques et l'Y, le Gd et le Dy dans le cas des terres yttriques. Le rapport pondéral  $Ta_2O_5/Nb_2O_5$  varie de 4 pour les tantalpolycrases à 4,7 et plus pour les tanteuxénites et est nettement plus élevé que pour la colombite ou l'euxénite. L'évolution du rapport  $Ta_2O_5/Nb_2O_5$  qui se fait dans le sens d'un enrichissement en Ta des niobotantalates lors de la différenciation pegmatitique [12] indique que les tantalates yttrifères ont cristallisé postérieurement à l'euxénite et à la colombite. Du point de vue géochimique, ces tantalates possèdent une teneur anormalement élevée en Ca, qui pourrait signifier un début de microlitisation. Cette microlitisation éventuelle n'est cependant pas visible au microscope après attaque. Dès lors, il semble bien que le Ca fasse partie intégrante de la structure des tantalates yttrifères et remplace partiellement les terres rares, d'où la teneur si anormalement basse de ces dernières par rapport aux autres minéraux de la série euxénite-polycrase.

## C. — LA MICROLITE.

Associée aux minéraux précédents, il existe aussi à Liha une microlite de formation postérieure. Ce minéral a fait l'objet d'une analyse chimique par la Société Billiton, complétée par des dosages en fluorescence X dont les résultats sont indiqués au tableau I — 5.

De l'analyse chimique, nous pouvons déduire la formule suivante :

$$[Ca_{0,66} Na_{0,13} U_{0,08} Fe_{0,05}^{II} Pb_{0,03} Mn_{0,02} (Sr, K, Tr, Th, Ba)_{0,035}],$$
  
$$[Ta_{1,57} Nb_{0,19} Ti_{0,21} (Fe, Zr, Sn)_{0,03}] O_{5,76} [OH]_{0,90}.$$

Il s'agit donc d'une microlite partiellement hydratée où environ la moitié des positions A est vacante. Du point de vue géochimique, cette microlite est caractérisée par un rapport pondéral  $Ta_2O_5/Nb_2O_5$ = 13,5 nettement plus élevé que les autres niobotantalates de Liha, par une teneur faible mais néanmoins plus élevée en Sr et Ba et par un rapport TCe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/TY<sub>2</sub>O<sub>3</sub> égal à 7 très différent de celui des tantalates étudiés. La présence d'une teneur encore appréciable en U dans cette microlite, eu égard au rapport élevé  $Ta_2O_5/Nb_2O_5$  et de minéraux de la série euxénite-polycrase, surtout de leurs équivalents tantalifères à Liha, constitue une indication sur l'existence probable dans la région de pegmatites anormalement radioactives.

#### 4. ÉVOLUTION GÉOCHIMIQUE DE LA CONCENTRATION EN Nb, EN Ta ET EN ÉLÉMENTS RADIOACTIFS DANS LES PEGMATITES SODO-LITHIQUES.

Des concentrations de Nb, de Ta, d'U et de Th s'observent à différents stades de la différenciation pegmatitique. Une première concentration de ces éléments a lieu principalement dans les pegmatites potassiques, où l'ordre de cristallisation s'établit de manière générale comme suit : titanoniobates cérifères puis yttrifères radioactifs — niobates yttrifères radioactifs, colombite et uraninite. Cependant, une partie importante du Nb et du Ta, parfois associés à des éléments radioactifs, cristallisent, postérieurement, dans les pegmatites sodo-lithiques et apparaissent notamment durant le processus d'albitisation [12].

Une des caractéristiques géochimiques principales des pegmatites sodolithiques, notées d'ailleurs par un bon nombre d'auteurs [12] [13] [14], est l'accumulation sélective du Ta dans les derniers stades de ce processus, lors de la greisénisation et de la lépidolitisation des pegmatites. Cette règle générale concernant la géochimie du Ta s'applique également aux pegmatites sodo-lithiques congolaises et rwandaises [15]. Par contre, la géochimie des éléments radioactifs a été peu étudiée dans les pegmatites sodo-lithiques. L'U et le Th surtout ont tendance à se fixer plutôt au début du processus d'albitisation, soit sous la forme de minéraux d'U ou de Th (uraninite et plus rarement thorite), soit comme éléments accessoires des zircons, niobotantalates, xénotimes, etc. Le Ti suit une loi analogue à celle des éléments radioactifs et se concentre en ordre principal dans les premières générations de niobo-tantalates, caractérisés par un rapport Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/Nb<sub>2</sub>O<sub>3</sub> peu ou modérément élevé. Lors de la différenciation des pegmatites sodo-lithiques, nous observons donc une diminution progressive des teneurs en U. Th et Ti dans les minéraux et une augmentation également progressive du rapport Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>. La formation des minéraux radioactifs dépend aussi de la concentration en U ou Th des solutions qui ont engendré les pegmatites sodo-lithiques. Si la concentration en U et en Th des solutions est élevée, en dehors de l'uraninite et plus rarement de la thorite, il se formera tout d'abord des titanoniobates ou des niobates radioactifs du type euxénite-bétafite-pyrochlore-obruchévite et parfois aussi de la colombite légèrement radioactive. Dans une phase ultérieure, quand le rapport Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> augmente, peuvent cristalliser des tantalates radioactifs de la série euxénite-polycrase, des uranmicrolites, de la tantalobruchévite et, plus rarement, des tantalites légèrement radioactives.

Ces niobotantalates sont caractérisés par une prédominance des terres yttriques sur les terres cériques et le rapport U/Th est généralement supérieur à 1 [16]. Deux exceptions à cette dernière règle sont illustrées ici dans l'étude des venues radioactives de Mapembe et de Liha, où l'on observe cependant une fixation antérieure du Th par rapport à l'U. Dans les dernières phases de différenciation sodolithiques, les tantalates radioactifs sont représentés presque uniquement par des microlites à teneurs décroissantes en éléments radioactifs (surtout l'U) au fur et à mesure de la cristallisation. Les microlites de dernière génération, qui apparaissent principalement durant le processus de lépidolitisation, sont caractérisées par un rapport Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> élevé et ne contiennent plus guère d'éléments radioactifs ou seulement un faible pourcentage. Ce fait explique pourquoi les éléments radioactifs sont assez exceptionnels dans les zones riches en lépidolites, observation qui avait été notée par L. R. PAGE [17]. Ces microlites sont aussi plus riches en F que celles des générations précédentes, mais cet élément peut avoir été partiellement lessivé par altération superficielle. Dans le processus de lépidolitisation et de greisénisation, le F paraît jouer un rôle important dans la séparation du Ta et du Nb [18]. Une autre caractéristique géochimique des microlites de dernière génération est l'augmentation des teneurs en Ba et en Sr. qui peut conduire à la formation de Bamicrolite (rijkeboerite) [6] dans certains champs pegmatitiques anormalement riches en ces éléments comme au Brésil. En conclusion, dans les pegmatites sodo-lithiques, riches en éléments radioactifs, en Nb et en Ta. la formation des différents titano-niobo-tantalates est conditionnée par l'évolution géochimique des solutions résiduelles. Si, par contre, la concentration initiale en éléments radioactifs est peu élevée, l'U et le Th sont pratiquement fixés dans les premiers stades de l'albitisation. Il en résulte que les niobates et surtout les tantalates rapidement ne contiennent plus d'éléments radioactifs, alors que le rapport Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> est encore peu élevé. Un exemple de pegmatite de ce type est celle de Mumba, au Kivu, où l'U et le Th sont pratiquement absents. La paragenèse et les rapports pondéraux Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> s'établissent comme suit : mangano-tantalite niobifère 1,98; simpsonites niobifères de plusieurs générations 2,5 à 4,6; Pb-microlite translucide 4,5; Pb-microlite 4.5; microlite translucide 5.5; microlite non translucide 13.5 [19].

#### BIBLIOGRAPHIE.

- VAN WAMBEKE, L., 1957, Présence de minéraux radioactifs dans les filons et gisements alluvionnaires de la région orientale du Congo Belge et dans le Ruanda-Urundi. (Soc. Eur. En. Atomique, Coll. Géol. de l'Uranium, Madrid.)
- 1958, Application des rayons X à l'étude des minéralisations radioactives. (II<sup>e</sup> Conférence Internationale des Nations Unies sur l'utilisation de l'énergie atomique à des fins pacifiques, Conf. 15/P/106.)
- 1957, Étude préliminaire de la zone d'altération radioactive de la pegmatite de Kobokobo, Kivu. (Bull. Soc. belge de Géol., t. LXVI, fasc. 2, pp. 268-275.)
- 1958, Contribution à l'étude de la minéralisation radioactive de la pegmatite de Kobokobo. (*Ibid.*, t. LXVII, pp. 384-403.)
- DERRIKS, J. J., 1959, Quelques indications sur les minéralisations uranifères relevées au Ruanda. (Symp. sur la géologie de l'U en Afrique. Chronique des mines d'outre-mer et de la recherche minière, nº 279, pp. 297-299.)
- 6. VAN DER VEEN, A. H., 1963, A study of pyrochlore. (Ver. Kon. Ned. Geol. Mijnb. Gen., Geol. serie, deel 22.)
- VAN WAMBEKE, L., 1958, Un nouveau minéral radioactif de l'Ituri : la tanteuxénite; un cas spécial de détermination par rayons X. (Bull. Soc. belge de Géol., t. LXVII, pp. 121-127.)
- Комкоv, A. I., 1959, On the minerals of the euxénite-polycrase and prioriteblomstrandine series. (Doklady Acad. Sc. U.S.S.R., 126, pp. 641-644.)
- 9. LIMA DE FARIA, J., 1964, Identification of metamict minerals by X-ray powder photographs. (*Junta de Investigações do Ultramar*, nº 112.)
- 10. PALACHE, BERMAN and FRONDEL, 1958, Dana's system of mineralogy, vol. I.
- 11. BANDURKIN, G. A., 1964, Irregular variation of properties in the rare earths group. (*Geochimia*, vol. I, pp. 1-3.)
- BEUS, A. A. and SITNIN, A. A., 1961, Contribution to the geochemistry of tantalum and niobium in the hydrothermal-pneumatolytic process. (*Geochimia*, vol. 3, pp. 231-237.)
- 13. GOLDSCHMIDT, V. M., 1954, Geochemistry. Oxford.
- KUZ'MENKO, M. V., 1959, Geochemistry of tantalum and niobium. (Tr. Imgre. Akad. Nauk. S.S.S.R., nº 3.)
- 15. VARLAMOFF, N., 1961, Matériaux pour l'étude des pegmatites du Congo et du Ruanda. (Ann. Soc. geol. de Belgique, t. LXXXIV, pp. 257-278.)

#### 26 L. VAN WAMBEKE. — ÉTUDES DE QUELQUES, ETC.

- MINEEV, D. A., 1960, Certain geochemical peculiarities of the radioactive rare earths minerals. (*Geochimia*, vol. 2, pp. 156-166.)
- 17. PAGE, L. R., 1950, Uranium in pegmatites. (Ec. Geol., vol. 45, nº 1, pp. 12-34.)
- Ryss, I. G., 1956, Geochemistry of fluorine and its inorganic compounds. Goskhimizdat.
- SAFIANNIKOFF, A. et VAN WAMBEKE, L., 1961, Sur un terme plombifère du groupe pyrochlore-microlite. (Bull. Soc. Fr. de Min. et de Crist., vol. LXXXIV, pp. 282-284.)
- 20. 1967, La pegmatite radioactive à béryl de Kobokobo et les autres venues pegmatitiques et filonniennes de la région de Kamituga, Kivu, Rép. du Congo (*Mineralium Deposita* 2, 119-130.)