

## Contribution à l'étude des minéraux argileux du type « Mixed Layers »,

par R. VANDERSTAPPEN et J. CORNIL.

### 1. — INTRODUCTION.

Différents auteurs, GRUNER [1], GRIM et ROWLAND [2], NAGELSCHMIDT [3], BRINDLEY [4] et d'autres, ont attiré l'attention au cours des dernières années, sur des minéraux argileux qui sont en réalité des interstratifications régulières ou irrégulières de minéraux argileux de différents types.

Ces « mixed layers », comme on les appelle dans la littérature anglo-saxonne sont importants, surtout parce qu'ils peuvent jeter quelque lumière sur la façon dont les minéraux argileux évoluent, s'altèrent ou se forment.

Au cours de l'examen de la fraction argileuse d'une roche nous avons découvert la présence d'un tel minéral, d'un type qui n'a pas encore été décrit.

Dans ce qui suit, nous exposons et discutons les résultats obtenus.

### 2. — GISEMENT ET DESCRIPTION DE LA ROCHE.

L'échantillon répertorié sous le n° C<sub>321</sub> a été prélevé par G. WAEGEMANS et J. CORNIL lors des travaux de mise en place d'un pont métallique enjambant le ruisseau Nionzi, à l'endroit où il se jette dans la rivière Lubuzi. Ce point est situé à 5 km à l'Ouest du centre commercial de Tshela, dans le territoire du Mayumbe (Bas-Congo belge).

La roche est un grès à grains très fins, pyriteux, à ciment argileux, légèrement micacé (paillettes de muscovite sur les plans de stratification).

Les grains de pyrite évalués à 10 % de la roche sont de dimensions variables, à contours anguleux et non altérés. Les paillettes de muscovite se présentent sous forme d'hexagones arrondis.

La roche se délite facilement dans l'eau en commençant par s'exfolier.

L'analyse granulométrique ci-dessous rend compte des finesse de grains. La pyrite se retrouve dans chacune de ces fractions granulométriques sauf dans celle inférieure à 2 microns.



C. — Analyses thermo-pondérale et thermique différentielle (fig. 1 et 2) :

Perte au feu ... ..	13,28 %
H <sub>2</sub> O de 380° à 1.000° ... ..	3,73 %
Matériel séché à 380° ... ..	90,45 %

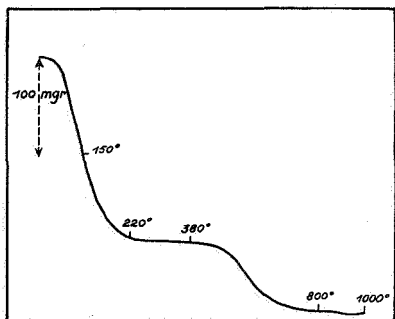


Fig: 1

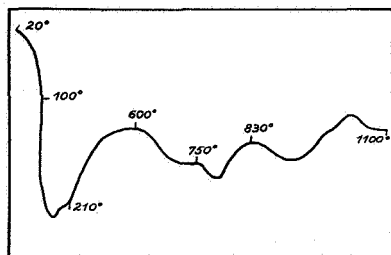


Fig: 2

D. — Röntgenographie :

Les examens aux rayons X ont été effectués par la méthode Debye-Scherrer à l'aide d'une caméra ayant un diamètre de 114 mm et en utilisant la radiation Co.  $k\alpha$  (fig. 3 a, b, c).

Ci-dessous les résultats du dépouillement des diagrammes.



FIG. 3a. —  $C_{321} < 2 \mu$ .



FIG. 3b. —  $C_{321} < 2 \mu$  à la glycérine.



FIG. 3c. —  $C_{321} < 2 \mu$  chauffé à 500°.

## Enregistrements Röntgenographiques.

$C_{321} < 2 \mu$		Muscovite	Quartz		$C_{321} < 2 \mu + \text{glycérine}$
11,30	10	9,98 s.	—	—	17,87 (10)
7,22	0,75	—	—	—	9,94 } (5)
6,48	0,50	—	—	—	9,15 } (5)
5,79	0,50	—	—	—	7,22 (0,5)
4,91	0,75	5 s.	—	—	—
4,45	5	4,49 s.	—	—	—
4,22	4	—	4,21	7	etc.
3,89	0,5	—	—	—	identiques
3,79	0,5	3,91 w.	—	—	à $C_{321} < 2 \mu$
3,74	3	3,73 w.	—	—	—
3,42	2	3,50 m.	—	—	—
3,31	7	3,33 v.s.	3,35	10	—
3,21	2	3,20 m.	—	—	—
2,96	4	3,00 m.	—	—	—
2,89	2	2,88 m.	—	—	—
2,76	3	2,80 m.	—	—	—
2,56	7	2,57 v.s.	—	—	—
2,46	1	2,475 w.b.	—	—	—
2,44	1	—	2,45	3	—
2,37	4	2,385 m.	—	—	—
2,26	1	2,28	2,285	3	—
2,23	2	2,19	2,235	1	—
2,15	2bd.	—	—	—	—
2,12	3	2,134 s.	2,129	3	—
2,05	2	2,03 w.	—	—	—
1,97	3,5	1,995 v.s.	1,981	2	—
1,92	2	1,95 w.	—	—	—
1,82	1	1,83 w.	—	—	—
1,81	2,5	—	1,814	8	—
1,79	1	—	—	—	—
1,68	2	1,73 v.w.	—	—	—
1,66	0,5	1,66 w.	1,667	3	—
1,656	0,5	—	—	—	—
1,638	0,5	1,651 s.b.	—	—	—
1,621	0,5	—	—	—	—
1,59	0,75	1,60 w.	—	—	—



Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ... ..	22,12
K <sub>2</sub> O ... ..	5,84
Mg O ... ..	3,28

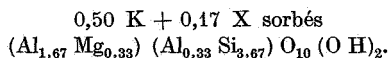
## d) Répartition moléculaire du minéral argileux :

H <sub>2</sub> O .. ... ..	228,50	millimolécules	ou 1,05
Si O <sub>2</sub> . ... ..	806	millimolécules	ou 3,70
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> . ... ..	217	millimolécules	ou 1
K <sub>2</sub> O .. ... ..	62,10	millimolécules	ou 0,283
Mg O . ... ..	82	millimolécules	ou 0,378

Tenant compte du K<sub>2</sub>O et Mg O sorbé on obtient approximativement :

(O H) ... ..	2
Si .. ... ..	3,67
Al .. ... ..	2
K .. ... ..	0,5
Mg. ... ..	0,33

## e) Formule de constitution théorique :



Les 0,17 X sorbés correspondent à une sorption théorique de 50 mE q/100 g, sans broken bonds.

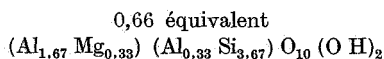
## f) Remarques :

1. Le pouvoir de sorption de 56 mE q trouvé sur matériel brut correspond à environ 60 mE q sur matériel argileux (compte tenu du quartz, etc.).

2. On sait qu'une sorption de 0,33 théorique d'une montmorillonite peut aller pratiquement jusqu'à 120 milliéquivalents/100 g, d'où 0,17 peut égaler environ 60 mE q/100 g et l'accord est parfait.

## 4. — DISCUSSION DES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX.

Le minéral obtenu ayant la formule globale



peut être considéré comme une illite théorique (hydro-muscovite).

Dans le cas présent ce serait une hydro-muscovite magnésienne. L'analyse chimique et la sorption indiquent que sur

0,66 équivalent interlamellaire, il y a 0,17 équivalent échangeable. Ce chiffre correspond d'ailleurs à la sorption coutumière d'un matériel illitique.

Vu sous cet aspect, le matériel étudié serait uniformément illitique. Sa courbe d'analyse thermique différentielle devrait alors être représentative d'un matériel illitique; or ceci ne se vérifie pas sur l'enregistrement thermique différentiel effectué. Les röntgenogrammes montrent d'autre part une ligne à 11,30 KX et une suite de lignes superposables à celles de la muscovite, sans pourtant révéler la présence de la ligne forte de 9,8 KX et de 5 KX. Le minéral a donc nettement la structure micacée; il a toutefois une ligne à 11,30 KX nettement supérieure à celles des muscovites et illites.

Nous pourrions donc parler ici d'une hydro-muscovite à haute sorption et relativement dilatable. En effet, la ligne de 11,3 KX peut augmenter légèrement avec une humidité plus grande et passe vers 17,9 KX en traitant l'échantillon à la glycérine.

Notons encore qu'un chauffage de l'échantillon à 500° pendant quelques heures ramène la ligne de 11,3 KX à 10 KX caractéristique des micas.

La présence d'un minéral plus hydraté que les illites est donc virtuellement certaine [4]. La courbe d'analyse thermique différentielle montre d'ailleurs une inflexion endothermique importante vers les 100° analogue à celle des montmorillonites; une deuxième inflexion débutant vers 570° et qui se fait recouvrir en partie par une troisième vers les 700°. Ces deux inflexions peuvent être caractéristiques de l'illite et de la montmorillonite. Une quatrième inflexion endothermique relativement importante vers 800° peut être due à la somme illite et montmorillonite et serait également satisfaite pour de la muscovite.

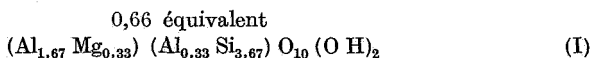
Le terme hydro-muscovite employé plus haut tend donc à se préciser par l'appellation « mixed layers ».

Signalons ici qu'un mélange pur et simple de montmorillonite et de muscovite (toutes deux magnésiennes) à raison de 50/50 pour satisfaire la formule moléculaire établie est à écarter, car vu les teneurs présentes les RX montreraient nettement un départage des lignes muscovite et montmorillonite et particulièrement celles de 9,8 KX de la muscovite et 12,13 ou 14 KX de la montmorillonite.

Nous sommes donc en présence d'un « mixed layer » pouvant contenir des couches interstratifiées de montmorillonite, de muscovite et même d'illite (hydro-muscovite).

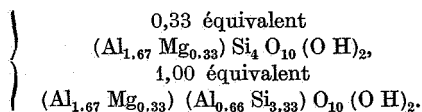
La suite de l'exposé nous montrera que le minéral peut être un « mixed layer » contenant sur trois feuillets, un feuillet montmorillonite, un feuillet illite et un feuillet muscovite. Il pourrait aussi, du moins théoriquement, être un « mixed layer » contenant sur deux feuillets, un feuillet montmorillonite et un feuillet muscovite (cette dernière hypothèse quoique théoriquement possible ne semble toutefois pas devoir être retenue par des considérations formulées ultérieurement).

La formule générale



de notre « mixed layer » est équivalente à la combinaison des deux formules suivantes :

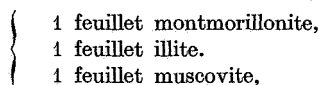
(II) = 2 × (I) est équivalent à l'ensemble :



Ceci représenterait un « mixed layer » muscovite-montmorillonite qui théoriquement donnerait un espacement moyen de  $10 \text{ KX} + 14 \text{ KX} = 24 \text{ KX} : 2 = 12 \text{ KX}$ .

Cette valeur est toutefois relativement élevée par rapport à celle obtenue lors des enregistrements RX effectués sur l'échantillon. Remarquons que la formule (I) reste toujours valable, si, au « mixed layer » (II) montmorillonite-muscovite, nous ajoutons un nombre quelconque de feuillets illite identiques à (I).

Nous pourrions avoir ainsi :



ou





ou encore

$$\left\{ \begin{array}{l} 2 \text{ micas,} \\ 1 \text{ illite,} \\ 2 \text{ montmorillonites, etc.} \end{array} \right.$$

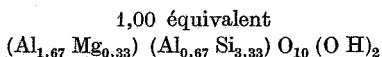
Deux choses sont à prendre en considération ici : premièrement, en augmentant le nombre de feuillets illite, on diminue de plus en plus l'espacement moyen du groupe qui se rapprochera de 10 KX (caractéristique de l'illite); deuxièmement, si on augmente le nombre de feuillets montmorillonite, il faut automatiquement pour satisfaire la formule moléculaire totale, un nombre égal de feuillets muscovites.

Par conséquent, l'arrangement le plus simple en accord avec les deux considérations précédentes est de la forme :

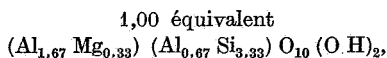
$$\left\{ \begin{array}{l} 1 \text{ feuillet montmorillonite,} \\ 1 \text{ feuillet illite,} \\ 1 \text{ feuillet muscovite.} \end{array} \right.$$

L'identification et l'existence d'un pareil « mixed layer » correspond vraisemblablement à un processus naturel d'altération d'un mica.

En effet, que le mica ait été magnésien au départ et de la forme

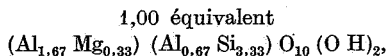


ou que nous ayons eu au départ de la muscovite vraie soit  $(\text{Al}_2) (\text{Al, K Si}_3) \text{O}_{10} (\text{O H})_2$ , qui se soit transformée par substitution isomorphique pour arriver au type (1)

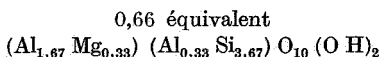


ultérieurement le processus d'altération sera le même.

Le passage de ce type de mica au type illite (hydro-muscovite) étudié peut alors se faire aisément. En effet, de



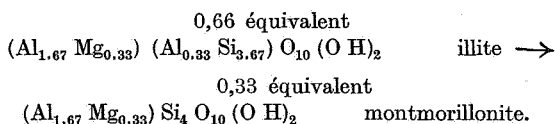
nous passons à



(1) Ou solution solide muscovite-phlogopite.

par départ d'aluminium tétraédral et remplacement isomorphique par Si; ceci est d'ailleurs un phénomène admis.

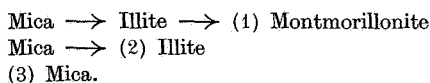
Le passage de l'illite vers la montmorillonite [4] est d'ailleurs un autre phénomène admis :



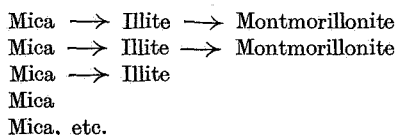
Il est donc logique d'envisager l'altération d'un mica en illite et éventuellement de l'illite ainsi formée en montmorillonite; ceci tant au point de vue théorique que pratique.

Le Professeur W. DEKEYSER [5] a d'ailleurs mis l'accent sur l'éventualité d'une pareille évolution lors de l'étude des sols des polders belges.

Il est de plus naturel qu'un groupe de feuillets mica ne s'altère pas uniformément mais progressivement. Le schéma suivant illustre, si l'on veut, une pareille transformation pour un groupe de trois feuillets mica. On passe ici du mica à la montmorillonite par l'intermédiaire de l'illite (hydro-mica).



Lorsque le premier feuillet mica est arrivé au stade montmorillonite, le deuxième est au stade illite et le troisième encore, du moins théoriquement, inaltéré. On pourrait continuer de la sorte et arriver à plusieurs feuillets montmorillonite et mica :



ou d'avantage encore de feuillets montmorillonite, mais nécessairement toujours pour le cas étudié, un nombre égal de feuillets mica.

Au stade où en est l'évolution du minéral, il contiendrait des zones quasi intactes ou micacées, des zones illitiques ou partiellement évoluées et des feuillets plus évolués encore ou montmorillonitiques. Ceci avec des espacements interlamellaires différents entre feuillets de natures différentes.

La succession suivante par exemple est en accord avec les considérations théoriques et expérimentales précédentes :

0,50 K	↑	10 KX	
Muscovite	↑		
0,50 K + 0,50 K	↑	10 KX	
Illite	↑		
0,17 X + 0,17 X	↑	12 KX	
Montmorillonite	↑		68 KX
0,17 X + 0,17 X	↑	14 KX	
Montmorillonite	↑		
0,17 X + 0,17 X	↑	12 KX	
Illite	↑		
0,50 K + 0,50 K	↑	10 KX	
Muscovite	↑		
0,50 K			

En effet, cet édifice comprend deux feuillets mica, deux feuillets illite (hydro-muscovite) plus ou moins dilatables et deux feuillets montmorillonite. Il correspond à la formule moléculaire établie, et sa sorption est également concordante (sur 4 équivalents interlamellaires il y en a trois K et un sorbé, soit 0,5 K et 0,17 sorbé par unité). De plus les RX obtenus sont en accord avec cette représentation car l'espacement moyen est de  $68 \text{ KX} / 6 = 11,3 \text{ KX}$ .

Cet édifice théorique est évidemment équivalent aux édifices suivants, où les fluctuations ioniques dans les espaces interlamellaires sont moins brutales :

0,50 K	↑	10 KX	
Muscovite	↑		0,50 K
0,66 K + 0,17 X	↑	10 KX	Muscovite
Illite	↑		0,83 K + 0,17 X
0,33 K + 0,17 X	↑	12 KX	Illite
Montmorillonite	↑		0,17 K + 0,17 X
0,33 X	↑	14 KX	Montmorillonite
Montmorillonite	↑	68 KX	0,33 X
			Montmorillonite

0,33 K + 0,17 X	$\updownarrow$	12 KX	$\updownarrow$	0,17 K + 0,17 X
Illite				Illite
0,66 K + 0,17 X	$\updownarrow$	10 KX	$\updownarrow$	0,83 K + 0,17 X
Muscovite				Muscovite
0,50 K				0,50 K

ou des édifices semblables de même type de structure. A chacun de ces édifices on peut assigner une hauteur de 68 KX, si l'on prend 10 KX entre micas et micas-illites, 12 KX environ entre illites et montmorillonites (vu 0,17 X interlamellaires et la diminution de K) et 14 KX entre montmorillonites.

L'échantillon traité à la glycérine montre d'autre part un espacement moyen vers 17,9 KX qui s'explique si on ajoute 3,7 KX d'élévation à 14 KX de la montmorillonite. On obtient alors  $68 \text{ KX} + 3,7 \text{ KX} = 71,7 \text{ KX}$ , ce qui peut s'identifier par une réflexion due à  $71,7 \text{ KX} / 4$ , soit 17,9 KX, comme l'indique très nettement l'enregistrement RX.

En résumé nous dirons que le minéral étudié est un « mixed layer » à interstratification régulière de feuillets mica, hydro-mica et montmorillonite, en proportions égales. Sa structure est hautement celle de la muscovite. Sa dilatation par l'eau et la glycérine et sa sorption relativement élevée sont dues à l'insertion de feuillets montmorillonite.

La présence de ces trois minéraux différents interstratifiés et le squelette muscovitique de l'ensemble contribuent à classer le minéral argileux étudié comme un des termes très intéressant dans l'évolution d'un mica.

Nous tenons à remercier spécialement M. le Prof. W. DEKEYSER qui supervisa la présente étude et sommes reconnaissants à M. G. WAEGEMANS pour la découverte de la roche qui contribua à la réussite de nos recherches.

Décembre 1957.  
LABORATOIRE DE RECHERCHES  
DU MINISTÈRE DES COLONIES,  
TERVUREN.

**BIBLIOGRAPHIE.**

1. GRUNER, 1934, Vermiculite and hydrobiotite structures. (*Am. Min.*, 19, pp. 557-575.)  
— 1948, Progress in Silicate structure. (*Ibid.*, 33, pp. 679-691.)
  2. GRIM and ROWLAND, 1942, Differential thermal analysis of clay minerals and other hydrous minerals. (*Ibid.*, 127, pt. 2, pp. 801-818.)
  3. NAGELSCHMIDT, 1944, X-Ray diffraction experiments on illite and bra-vaisite. (*Min. Mag.*, 27, pp. 59-61.)
  4. BRINDLEY, 1951, X-Ray identification and crystal structures of clay minerals.
  5. DEKEYSER, W., HOEBEKE, F. et VAN KEYMEULEN, J., 1955, Les minéraux argileux des Polders et de quelques autres régions naturelles. (*C. R. de l'I.R.S.I.A.*, n° 14.)
-