

**Un nouveau minéral radioactif congolais de l'Ituri :
la tanteuxénite.**

Un cas spécial de détermination par rayons X,

par L. VAN WAMBEKE (*).

RÉSUMÉ. — *Un nouveau minéral radioactif congolais, la tanteuxénite a été déterminé sans analyse chimique préalable en combinant la diffraction et la fluorescence X. Après recristallisation par chauffage à l'air on obtient deux composés, l'un correspondant au rutile et l'autre appartenant à la série microlite-pyrochlore. L'analyse spectrographique X montre, d'autre part, qu'il s'agit d'un tantalate d'yttrium assez riche en titane. Par sa composition chimique et son spectre de diffraction identique à celui obtenu sur les tanteuxénites de Wodgina (Australie), le minéral congolais est bien une tanteuxénite.*

I. — INTRODUCTION.

M. L. CAHEN, Conservateur à la section géologique au Musée Royal du Congo Belge, a bien voulu nous soumettre pour étude une série de minéraux radioactifs congolais en provenance de l'Ituri. Ces échantillons furent donnés au Musée par la Compagnie Minière des Grands Lacs Africains, que nous remercions ici de son aimable autorisation de publier cette note. En dehors des colombites radioactives (uranium et parfois thorium) et également plombifères, nous avons trouvé plusieurs minéraux métamictes dont certains analysés ci-dessous, appartiennent à la série euxénite-polycrase-tanteuxénite.

Déjà en 1935, VAN AUBEL [7] mentionnait l'existence d'euxénite au Kivu. Cependant, la détermination de ce minéral fut basée uniquement sur des tests qualitatifs et reste donc très douteuse. Il faut cependant ajouter qu'à cette époque, VAN AUBEL ne possédait pas les moyens d'investigation voulus pour la détermination très délicate des minéraux métamictes.

La tanteuxénite en provenance de l'affluent G 18 de la rivière Liha, sous-affluent de l'Ituri, se présente en tablettes mais ne possède pas de formes cristallographiques bien définies. Le minéral a une couleur noire, une cassure conchoïdale et est associé à de la colombite. Il est métamicté, c'est-à-dire que

(*) Manuscrit remis en séance.

son réseau cristallin a été détruit sous l'effet du bombardement des particules alpha et du rayonnement gamma. Sa densité est de 5.22.

II. — ÉTUDE PAR RAYONS X DU MINÉRAL.

Nous avons déjà souligné précédemment l'importance qu'il y a d'utiliser à la fois la fluorescence et la diffraction pour l'étude des minéraux métamictes [8, 9]. Dans la plupart des problèmes, il est apparu clairement que les analyses par fluorescence X pouvaient donner non seulement des renseignements très précieux sur la composition chimique du minéral mais également contrôler les résultats obtenus par diffraction.

En effet, la diffraction ne permet pas toujours une détermination de la série (par exemple la série euxénite-polycrase) car il se passe, dans certains cas, des transformations après chauffage à l'air ou sous vide à 900° C et naissance de nouvelles combinaisons chimiques sous la forme de deux ou même trois composés différents. C'est ainsi que dans le cas d'un pyrochlore bien cristallisé et assez radioactif du Ruanda, nous avons observé au microscope à réflexion après chauffage à l'air à 900° C, l'apparition très nette d'une texture de démixion.

Des transformations après chauffage ont déjà été signalées à plusieurs reprises par MM. ORCEL et FAUQUIER [5, 6]. Nous les avons aussi notées, surtout dans la série microlite-pyrochlore-bétafite et dans la série euxénite-polycrase-tanteuxénite. Nous considérons d'ailleurs la bétafite comme faisant partie de la série microlite-pyrochlore et comme une variété titanifère et uranifère de cette série. Une étude non publiée a été faite au laboratoire des rayons X de Mol. Dans une publication récente M. J. SATTERLY a montré les analogies de la série microlite-pyrochlore et de la bétafite [10].

Le cas du minéral G 18 de Liha est précisément un de ceux où l'analyse par fluorescence constitue une aide très précieuse et permet une détermination du minéral radioactif sans analyse chimique préalable. Il faut aussi noter que les analyses chimiques de ces oxydes complexes sont souvent longues et très laborieuses.

a) Composition chimique du minéral.

Comme les spectres de diffraction ne permettent pas une identification directe, il est très important de connaître la

composition chimique du minéral. Cette dernière a été déterminée essentiellement au moyen des spectres X de fluorescence, mais il a fallu différentes techniques pour obtenir une analyse spectrographique complète.

Nous avons utilisé un spectromètre General Electric, différents cristaux analyseurs et plusieurs types de compteurs.

Pour les éléments qui présentent des raies entre 0,4 et 2 Å nous avons employé deux techniques : la première comportait un cristal courbe de mica et un compteur de Geiger comme détecteur. La seconde se composait d'un cristal plan de fluorure de lithium et d'un compteur proportionnel à remplissage de krypton. La première technique donne une meilleure dispersion du spectre tandis que la deuxième est caractérisée par un gain élevé en sensibilité grâce à l'emploi du compteur proportionnel. Ce dernier permet de détecter jusqu'à 0,5 % de Ti, mais il faut cependant noter que ce compteur à remplissage de krypton est surtout sensible pour le rayonnement X relativement dur (de 0,6 à 1,7 Å).

Pour les éléments qui présentent des raies d'une longueur d'onde de 2 à plus de 5 Å, c'est-à-dire dans le domaine du rayonnement X mou, il a fallu travailler avec un tunnel d'hélium afin de réduire l'absorption. Le détecteur était constitué par un compteur à circulation continue de gaz, argon et méthane (flow counter). Il possédait une mince feuille de plastique (Mylar) comme fenêtre. Cette technique plus complexe permet de détecter aisément le Sc, Ca, Ba et une série d'autres éléments.

L'ensemble de ces différentes techniques a permis de définir la composition chimique du minéral d'une manière semi-quantitative dans le tableau ci-après.

La tanteuxénite G 18 de Liha est caractérisée par une teneur très élevée en Ta et une prédominance des terres yttriques, surtout l'yttrium. La teneur en Ti du minéral est assez élevée mais reste cependant un peu inférieure à celle des euxénites typiques. Une série d'essais comparatifs ont été effectués dans ce sens par rayons X. Les analyses effectuées sur des tanteuxénites d'Australie montrent également une teneur plus faible en Ti que les euxénites typiques (voir Dana Textbook of Mineralogy).

COMPOSITION CHIMIQUE DU MINÉRAL

Tanteuxénite de Liha

Éléments essentiels	Ta, Ti, Y Ta \gg Nb Ta > Ti > Nb
Éléments accessoires de 1 à 5 %	Nb, Th, U, Fe, Pb, Ca, TY (*) (Yb, Er, Dy, Gd, Ho) \gg TCe (**) (Ce, Nd, Sm)
Éléments en faibles teneurs :		
moins de 1 %	Sn, Mn, Ba

(*) TY : terres rares du groupe de l'yttrium.

(**) TCe : terres rares du groupe du cerium.

b) Analyse par diffraction du minéral.

Nous reproduisons dans le tableau ci-dessous les résultats de l'analyse par diffraction du minéral :

SPECTRE DE DIFFRACTION APRÈS CHAUFFAGE A 930° C
TANTEUXÉNITE DE LIHA

d en Å	I	hkl
3,275 (*)	m	—
2,966	TF	(222)
2,56	aF	(400)
2,49 (*)	f	—
1,817	F	(440)
1,543	F	(622)
1,4805	f	(444)
1,178	m	(555)
1,146	m	(840)
1,047	m	(844)
0,984	f	(666)

(*) Raies correspondant au rutile (TiO₂). Série microlite-pyrochlore : Cubique face centrée $a_0 = 10,25 \pm 0,03$ Å.

Le minéral analysé donne après chauffage à 930°C ⁽¹⁾ un spectre analogue à la série microlite-pyrochlore, plus deux raies secondaires appartenant au rutile. Donc, après recristallisation, il y a formation de deux composés : le principal est cubique face centrée alors que les formes extérieures du minéral sont *prismatiques*. Le minéral analysé ne peut cependant pas correspondre à la série microlite-pyrochlore, même en supportant une pseudomorphose, étant donné sa teneur en terres rares et surtout en Y.

c) **Détermination de la tanteuxénite.**

M. R. J. ARNOTT [1] a étudié les tanteuxénites de Wodgina (Queensland) et signale avoir obtenu sur ces minéraux un réseau cubique à faces centrées très semblable à celui de la série uraninite-thorianite avec des paramètres de 5,10 et 5,12 Å contre 5,40 à 5,62 Å pour la série uraninite UO_2 -thorianite ThO_2 .

Nous remarquons que les valeurs de paramètres obtenus sur les échantillons de Wodgina sont exactement la moitié du paramètre trouvé dans le cas du minéral de la rivière Liha. En effet, la valeur du paramètre de ce dernier minéral est de $10,25 \pm 0,03$ Å et de plus sa structure est également cubique à faces centrées.

M. R. J. ARNOTT a aussi étudié brièvement la série microlite-pyrochlore et spécialement la microlite d'Amelia Court House. Cette dernière comme beaucoup d'autres microlites donnent en général un nombre considérable de raies comparativement à la plupart des pyrochlores. En fait, le spectre de diffraction obtenu par ARNOTT sur les tanteuxénites de Wodgina est identique à celui de la série microlite-pyrochlore (voir son diagramme dans 1). Les intensités des raies correspondent bien à cette série et l'auteur note également la présence dans le spectre des tanteuxénites de raies très faibles qu'il n'a pas pu indexer avec la maille de son réseau. Il faut d'ailleurs souligner à ce propos que les plans (111), (333), (555), etc. de la série microlite-pyrochlore et en particulier dans le cas des pyrochlores donnent en général de faibles réflexions. En ce qui concerne le minéral de G 18 Liha, seul le plan (555) apparaît dans les spectres. La présence de plan et la comparaison des spectres obtenus sur

(1) On n'obtient pas de spectre de diffraction à température ordinaire car le minéral a son réseau cristallin détruit sous effet du bombardement des particules alpha et du rayonnement gamma.

des pyrochlores ont déterminé du reste la valeur 10,25 Å du paramètre, pour le minéral congolais. En l'absence de ce plan, les calculs paramétriques donneraient une valeur de 5,12 Å identique à celle obtenue sur les tanteuxénites de Wodgina. Il faut donc en conclure que les spectres obtenus sur les tanteuxénites de Wodgina appartiennent bien à la série microlite-pyrochlore avec un paramètre de 10,20 à 10,24 Å. Il n'est pas impossible aussi que certaines raies faibles des tanteuxénites de Wodgina correspondent, comme c'est le cas pour le minéral du Congo, à celles du rutile; malheureusement nous n'avons pu nous procurer d'échantillons de tanteuxénites australiennes aux fins de vérification.

Le chauffage des tanteuxénites métamictes vers 900° C a donc amené un réarrangement atomique important, la naissance d'une structure nouvelle plus simple et parfois l'apparition de raies du rutile. De leur côté, les euxénites et polycrases donnent un spectre de diffraction typique ⁽¹⁾ [voir 2] différent de celui de la série microlite-pyrochlore. Il en est de même pour les séries fergusonite-formanite et priorite-aeschnyrite qui donnent des spectres caractéristiques [2 à 9]. D'autre part, la tanteuxénite de G 18 Liha diffère des microlites et bétafites par ses formes cristallines et par une teneur élevée en Y. Elle se différencie de l'yttrotalite par son spectre de diffraction et par une teneur plus élevée en Ti.

Comme les tanteuxénites se comportent après chauffage à 900° C d'une façon très différente par rapport aux euxénites et polycrases, il semble bien que la composition chimique du minéral joue un certain rôle lors des recristallisations à 900° C. En effet, les tanteuxénites sont caractérisées par une haute teneur en Ta, tandis que les euxénites et polycrases sont riches en Nb. Nous noterons également qu'un certain nombre de tantalates artificiels, ceux de Ca et d'U [4] par exemple, sont cubiques à faces centrées et possèdent un paramètre voisin de ceux de la série microlite-pyrochlore (10,43 à 10,25 Å). D'autre part, les changements de phase sont assez fréquents dans les composés de Ta, Nb et Ti.

Par sa composition chimique caractérisée par une prédominance du Ta et de l'Y, par une teneur assez élevée en Ti ainsi que par son spectre de diffraction assez particulier et analogue à celui obtenu sur les tanteuxénites de Wodgina, le minéral

(1) Il y apparaît parfois les raies de TiO₂.

de l'affluent G 18 de la rivière Liha ⁽¹⁾ est bien une tanteuxénite et nous avons vérifié que ce minéral est bien distinct de toutes les séries titanifères que nous avons énumérées plus haut.

d) **Conclusion.**

Grâce à l'étude combinée du spectre de diffraction très particulier du minéral et de sa composition chimique établie par fluorescence X, il nous a été permis de déterminer une nouvelle espèce radioactive congolaise : la tanteuxénite.

CENTRE D'ÉTUDE NUCLÉAIRE.
MOL-DONK.

BIBLIOGRAPHIE.

1. ARNOTT, R. J., 1950, X ray diffraction data on some radioactive minerals. (*Am. Min.*, 35, pp. 386-400.)
2. BERMAN, J., 1955, Identification of metamict minerals by X ray diffraction. (*Ibid.*, pp. 805-827.)
3. FRONDEL, J. W. and FLEISCHER, W., 1955, Glossary of uranium and thorium minerals. (*U. S. G. S. Bull.*, 1009.)
4. GASPÉRIN, M., 1956, Synthèse d'un oxyde double de tantale et d'uranium. (*C. R. Ac. Sc.*, pp. 1334-1336.)
5. ORCEL, J., 1956, L'état métamict. (*Bull. Soc. belge Géol.*, 65.)
6. ORCEL, J. et FAUQUIER, D., 1957, Sur l'origine des oxydes de titane observés dans les bétafites et les euxénites recristallisées sous l'action de la chaleur. (*C. R. Ac. Sc.*, 6, pp. 701-703.)
7. VAN AUBEL, 1935. (*Ann. Soc. géol. Belg.*, 38.)
8. VAN WAMBEKE, L., 1956, Étude spectrographique de quelques minéraux radioactifs des pegmatites congolaises. (*Bull. Soc. belge Géol.*, 44, pp. 432-445.)
9. — 1957, Présence de priorite dans les monts Kibara et de fergusonite au Ruanda. (*Ibid.*, 46, pp. 35-53.)
10. SATTERLY, J., 1956, Radioactive Mineral Occurrences in the Bancroft Area. (*Ontario Dpt of Mines*, vol. LXV, pt 6.)

DISCUSSION.

Suite à une question de M. F. Kaisin sur les relations de ce minéral avec la roche-mère, MM. S. Cahen et A. Lhoest donnent quelques précisions sur le gisement.

(¹) Le spécimen est enregistré sous le n° RG 6115 des collections minéralogiques du Musée Royal du Congo Belge.