
**PRÉSENCE D'UN TONSTEIN
A LEVERRIERITE ET GOETHITE
DANS LE HOULLER DE MONTGIROD-LES-CHAPELLES
(TARENTEISE)**

par Jean FABRE et Jean SARROT-REYNAULD

Historique (J. S.-R.).

De nombreux auteurs se sont attachés à l'étude des tonstein :
A. BOUROZ, J. CHALARD, P. DOLLE, R. HOCART, K. HOEHNE,
P. F. KERR, G. KULBICKI, J. DE LAPPARENT, P. PRUVOST, C. S. ROSS,
J. SCHEERE, P. TERMIER, P. VETTER.

Comme eux, nous appellerons « tonstein » les roches argileuses fréquemment intercalées dans les veines de charbon ou à leur voisinage et dont le minéral caractéristique est la leverriérite, « édifice épitaxiale de kaolinite et de muscovite présentant un aspect vermiculé ».

En 1890, dans son ouvrage sur le Bassin houiller du Gard (p. 86-88 et pl. IV), GRAND-EURY figure, sous le nom de bacillarites, des vermicules de leverriérite observées par lui dans certains niveaux du Houiller.

En 1899, P. TERMIER fait de ces bacillarites une espèce minérale nouvelle du groupe des phyllites qu'il appelle leverriérites et dont il donne les caractéristiques :

Angle des faces : 128° .

Les propriétés optiques mesurées par M. WALLERANT sont :

Réfringence $ng = 1,582$; $np = 1,554$.

Biréfringence $ng - np = 0,028$.

$0 < 2V < 50^\circ$

Composition chimique (échantillon provenant du puits Fontannes à Rochebelle) :

SiO ₂	= 49,9.
Al ₂ O ₃	= 37,02.
Fe ₂ O ₃	= 3,65.
MgO	= 0,30.
CaO	= traces.
K ₂ O	= 1,3.
H ₂ O	= 8,65.

En 1895, A. LACROIX (Minéralogie de la France, t. 1, p. 461) décrivant les caractères minéralogiques de la kaolinite et ses divers faciès indique l'existence de deux variétés :

- la leverriérite se présentant en cristaux vermiculés;
- la pholérîte formée de lamelles de plusieurs millimètres de diamètre.

Si A. LACROIX n'est pas très catégorique sur l'existence en tant qu'espèce de la leverriérite, il nie celle de la pholérîte qui n'est pour lui que de la kaolinite. Cependant il donne les propriétés optiques suivantes :

- 2 V # 90° pour la kaolinite et la pholérîte;
 - 45° < 2 V < 52° pour la leverriérite,
- et les analyses de ces minéraux.

Pholérîte de Fins (Allier)	Kaolin de St-Yrieix	Leverriérite <i>in</i> Termier, An. Min. 1890
SiO ₂ : 42,93	SiO ₂ : 48,68	SiO ₂ : 46,4
Al ₂ O ₃ : 42,07	Al ₂ O ₃ : 36,92	Al ₂ O ₃ : 38,4
H ₂ O : 15,00	H ₂ O : 13,13	H ₂ O : 15
	Na ₂ O : 0,58	GlO : 0,5
	MgO : 0,52	CaO : 1,2

En 1910 (Minéralogie de la France, t. 4, p. 741), A. LACROIX, reprenant les analyses de P. TERMIER, suggère qu'il est possible que la leverriérite soit un des termes de la série muscovite-kaolinite.

Dès 1923, P. TERMIER est sûr que la leverriérite provient de la recristallisation diagénétique de sédiments argileux suffisamment fins et purs.

En 1934, J. de LAPPARENT publie les résultats de ses études sur la leverriérite qui, selon lui, se présente de deux manières.

Type I. — Association avec une phyllite détritique (mica noir) partiellement décomposée. Entre les feuillettes, la kaolinite a recristallisé. Le fer éliminé reste, en certains échantillons, collé au cristal de mica sous forme de goethite. On y trouve associées de la brookite et de l'anatase provenant de l'élimination du fer et du titane du mica.

Type II. — Vermiculure kaolinique avec mica blanc : édifice épitaxique formé par l'association de lamelles de kaolinite et de muscovite régulièrement orientées les unes par rapport aux autres. Cet empilement correspond à une saturation des forces électrostatiques entre la kaolinite et la muscovite, donnant une grande cohérence à l'édifice cristallin.

POUR de LAPPARENT, les vermicules de leverriérite résultent soit de néogenèses simultanées de kaolinite et de muscovite, soit de la kaolinisation de micas détritiques.

Ces résultats sont en opposition avec ceux de C. S. ROSS et P. F. KERR qui, en 1931, avaient affirmé l'identité de la leverriérite avec la kaolinite, mais en 1939, J. de LAPPARENT montre, avec R. HOCART, que les radiogrammes de la leverriérite comportent à la fois les raies caractéristiques de la kaolinite et celles de la muscovite. Si la composition de la leverriérite semblait ainsi élucidée, *son origine*, et par suite celle des tonstein où on la rencontre a été vivement discutée.

P. PRUVOST l'a attribuée au lessivage d'arènes granitiques, d'autres auteurs ont voulu y voir des projections de cendres volcaniques, mais K. HOEHNE, en 1948, s'est opposé à cette idée en proposant une hypothèse selon laquelle les tonstein se seraient formés par floculation à l'état de gel, d'argiles colloïdales, hypothèse correspondant bien aux idées émises par G. MILLOT (1949), mais qui n'explique pas le mode de formation de la leverriérite elle-même.

Partant de l'idée d'une genèse colloïdale des tonstein, deux courants d'idées se sont fait jour.

J. SCHEERE (1955), après avoir analysé par les méthodes radio-cristallographiques, chimiques et thermiques un grand nombre de tonstein prélevés en Belgique lors d'études très détaillées, affirme que la leverriérite est constituée uniquement de kaolinite; il se place ainsi en opposition avec H. SCHULLER et H. GROSSMANN qui ont pu déterminer la formule chimique de la leverriérite :



Pour lui, les tonstein sont des sédiments argileux résultant de « l'évolution » d'un milieu argileux banal sous l'influence de l'acidité créée dans ce milieu par les pyrites et les matières organiques abondantes au voisinage des couches de charbon.

Les vermicules, et en particulier les micas que l'on observe dans ces roches, se sont développés postérieurement au dépôt du sédiment : ce sont des minéraux « authigènes ». Cette conclusion coïncide avec celle de ROSS et KERR quant à la genèse des vermicules. G. KULBICKI et P. VETTER (1956) ont étudié certains gores et rocs sédas du Massif Central français qui sont pour la plupart des tonstein. Selon leurs observations au microscope et par l'analyse thermique différentielle, la leverriérite est constituée de kaolinite associée à des paillettes de mica et correspond à la kaolinisation des micas avec croissance diagénétique de la kaolinite dans un milieu ambiant acide. Dans les tonstein, la leverriérite et la kaolinite sont accompagnées de quartz, rutile, apatite et de débris carbonneux. Pour ces auteurs, la leverriérite se serait formée avant la consolidation du tonstein, car les vermicules contiennent parfois du quartz ou bien sont remaniés dans la roche. La leverriérite serait donc détritique.

L'un de nous (J. S.-R.) a pu montrer, en collaboration avec P. DOLLE (1954), grâce aux méthodes radiocristallographiques, que la leverriérite de certains tonstein du Nord de la France était bien formée par l'association de muscovite et de kaolinite conformément à la définition du type II donnée par J. de LAPPARENT; les tonstein du Nord de la France doivent faire l'objet d'une étude approfondie de P. DOLLE qui reviendra sur cette question.

Si l'étude statistique des tonstein, que poursuit l'un de nous (J. S.-R.) dans divers bassins houillers, a pu montrer que, dans des régions telles que le bassin de St-Eloy (Massif Central français), certains « gores » sont essentiellement kaoliniques¹, il est prouvé que dans les bassins houillers des Alpes, tel celui de La Mure, les tonstein à leverriérite du type II sont bien représentés.

**

Une observation nouvelle a pu être faite sur un échantillon provenant du Houiller de la zone briançonnaise en Savoie.

Cet échantillon provient de couches attribuées à un Westphalien indéterminé (Calamites, Lepidodendron), probablement

¹ Fait normal si l'on songe aux énormes accumulations de kaolin de la région des Colettes distante d'à peine 1 kilomètre.

peu élevé (Westphalien moyen) affleurant au-dessus de Montgirod, dans la commune des Chapelles, sur la rive droite de l'Isère ($x = 942,1$; $y = 375,9$; $z = 1\ 650$).

Etude pétrographique (J. F.).

La roche forme un ou deux petits bancs irréguliers, de quelques centimètres d'épaisseur au milieu de schistes noirs sans fossiles, constituant le toit stratigraphique d'une petite veine d'antracite. Celle-ci est indiscutablement en place. En effet, elle repose sur un « mur » à radicules et *Stigmaria ficoïdes* et le charbon est, pour une part, encore intact et lité.

La roche étudiée est compacte, dense, brun noir, tachant les doigts, zonée de bandelettes plus claires, luisantes, de 1 à 2 mm de large. Au premier abord, on pourrait la prendre pour un de ces lits carbonatés fréquents dans ce type de dépôts.

En lame mince, la plus grande partie de la roche est noire, opaque. Les bandelettes plus claires sont des zones hâchées de petites fissures serrées, perpendiculaires à la schistosité (boudinage). Ces cassures sont remplies, non de quartz, mais d'un minéral incolore à réfringence et biréfringence basses, cristallisé perpendiculairement aux épontes en lamelles à fines macles polysynthétiques. Il s'agit très probablement de kaolinite sous le faciès « Pholérite » (selon A. LACROIX).

De petits grumeaux d'impuretés opaques ou brunes s'insinuent entre les lamelles ou, le plus souvent, occupent le centre de la fissure. Ces grumeaux semblent formés essentiellement par un minéral transparent, brun rouge, très dispersif qui, exceptionnellement, peut se présenter sous forme de bâtonnets très courts, à extinction droite probable. Ce minéral pourrait être la goethite.

Etude radiocristallographique (J. S.-R.).

L'étude radiocristallographique de l'échantillon a été effectuée par la méthode des poudres, d'une part avec la radiation $K\alpha$ du cobalt et une chambre de Debye-Scherrer de 240 mm de circonférence, d'autre part avec la radiation $K\alpha$ du cuivre rigoureusement monochromatique et une chambre de 480 mm de circonférence. Ces derniers essais ont été nécessaires pour déterminer avec précision la nature des minéraux phylliteux contenus dans la roche.

Les diagrammes ainsi obtenus ont mis en évidence les raies à 4,18 — 2,69 — 2,45 — 2,18 — 1,80 — 1,72 — 1,563 — 1,450 et 1,420 Angströms, caractéristiques de la goethite ($FeO,OH\alpha$).

L'intensité des raies de diffraction correspondant à ce minéral

permet d'affirmer qu'il constitue une part très importante de la roche.

L'étude de la phase argileuse a permis de mettre en évidence en particulier les raies à : 7,1 — 3,57 — 2,34 — 1,49 Angströms, caractéristiques de la kaolinite, et des raies à : 11,2 — 3,35 — 2,61 — 2,017 très voisines des raies à 10,1 — 3,36 — 2,635 — 2,022 Angströms, caractéristiques de la série biotite-illite ferrique, mais qui correspondent à une légère modification de la maille réticulaire sans doute par chloritisation de la biotite, de telle sorte que l'on ne peut pas préciser à quel terme de la série l'on a affaire (ALEXANIAN, 1954).

De même, il est difficile de déterminer la proportion kaolinite/biotite étant donné la grande différence des coefficients d'absorption pour la radiation $K\alpha$ du cuivre, de la kaolinite : 30,8, et des termes ferromagnésiens : 107.

Le degré de chloritisation de la biotite est certainement assez faible puisque, malgré le dispositif employé pour avoir une bonne précision aux petits angles, il a été impossible de déceler la raie à 14 Å caractéristique de la chlorite (les autres raies de la chlorite n'étant guère caractéristiques, car communes à la kaolinite et à certaines montmorillonites), ni celle à 12,2 Å caractéristique du terme de la série biotite-chlorite désignée sous le terme de stilpnométane (WINCHELL). Nous n'avons pas pu mettre en évidence les spectres de l'anatase et de la brookite.

Analyse chimique.

L'analyse de l'échantillon, faite au Laboratoire de Chimie du B.R.G.G.M., a donné les résultats suivants (Analyse n° 953) :

SiO ₂	10,44
Al ₂ O ₃	3,41
Fe ₂ O ₃	47,25
TiO ₂	0,20
MnO	0,61
CaO	0,49
MgO	0,81
Na ₂ O	traces
K ₂ O	traces
FeS ₂	0,47
P ₂ O ₅	1,15
Carbone	23,28
H ₂ O—	0,46
H ₂ O+	11,80

100,37

Ces résultats permettent de préciser les données fournies par l'examen en lames minces et aux rayons-X. La plus grande partie du fer doit être sous forme de goethite (environ 50 %), comme l'a montré l'examen aux rayons-X. Les minéraux accessoires de la roche sont en outre : la pyrite, vraisemblablement l'ilménite FeO , TiO_2 , et le rutile TiO_2 .

Il existe dans la roche un peu moins de 1 % d'apatite P_2O_5 , 3CaO . Le reste des phosphates présents se trouve sous forme de phosphate de fer : P_2O_5 , 3FeO , $8\text{H}_2\text{O}$ vraisemblablement.

Le carbone décelé à l'analyse correspond à la présence d'une forte quantité de particules charbonneuses dans l'échantillon. Les constituants essentiels de la phase argileuse sont : la kaolinite Al_2O_3 , 2SiO_2 , $2\text{H}_2\text{O}$ et un silicate d'alumine ferro-magnésien contenant probablement quelques traces d'alcalis K_2O et Na_2O . Il ne peut s'agir que d'une biotite ou d'un mica ferro-magnésien plus ou moins chloritisé (J. S.-R.) à moins qu'il ne s'agisse du stilpnomélane (J. F.).

L'excès de silice que montre l'analyse chimique correspond à l'existence de quartz détritique dans la roche.

Devant la convergence des résultats des diverses méthodes d'analyse, on peut dire que nous sommes en présence d'une roche à leverriérite du type I, selon J. de LAPPARENT, puisque nous y observons l'association d'une phyllite ferro-magnésienne, de kaolinite et de goethite.

Par ailleurs, étant donné les observations faites au microscope, on peut se demander si la pholérite décrite par les auteurs n'est pas un assemblage d'un mica noir et de kaolinite, de même que la leverriérite du type II (leverriérite classique de LACROIX) est un édifice épitaxique de kaolin et de muscovite, sans pour cela que ces édifices constituent de véritables espèces minérales.

La présence de leverriérite *sensu lato* de J. de LAPPARENT permettrait donc de définir l'échantillon étudié comme un « tonstein » à « leverriérite et goethite », et ce serait, nous le croyons, le premier de ceux-ci signalé dans les Alpes françaises.

La présence d'apatite est normale mais mérite d'être soulignée car, dans la plupart des tonstein connus, elle est assez abondante : c'est le cas des tonstein du Nord de la France (observations P. DOLLE, QUINOT, J. SARROT), de ceux étudiés en Belgique par J. SCHEERE et enfin de ceux signalés par G. KULBICKI et P. VETTER dans le Massif Central.

La radioactivité $\beta + \gamma$ de notre échantillon, malgré sa forte teneur en phosphate, est très faible, pratiquement nulle. Cette anomalie est due à la présence surabondante de charbon et d'oxyde de fer (voir J. S.-R., 1953).

Conclusion.

L'échantillon étudié présente les caractères d'un tonstein à leverriérite et goethite, mais où la leverriérite se présente conformément aux idées de J. de LAPPARENT, non sous forme d'une association kaolinite-muscovite (leverriérite *sensu stricto*) mais d'une association kaolinite-mica noir.

Interprétation des conclusions.

Si la nature pétrographique de notre échantillon est bien déterminée, il n'en est pas de même de son origine. Deux hypothèses peuvent être faites sur la genèse de ce tonstein.

Dans la première hypothèse (J. F.), les minéraux constituant du tonstein ne sont pas originels. L'étude en lames minces de très nombreux schistes et grès à ciment schisteux du Permo-Carbonifère de la zone briançonnaise a toujours montré une recristallisation complète de l'argile en séricite, comme de la silice en quartz. Cette trame phylliteuse a d'ailleurs pu, dans certains cas, être localement « digérée » par des phénoblastes d'albite tardifs. Dans cette hypothèse, la goethite, le stilpnomélane présumé² et évidemment la kaolinite (puisqu'elle se trouve tout au moins en partie en remplissage de fissures) seraient des produits de la paragenèse alpine ou des produits d'altération. Nous aurions ainsi une sorte de « tonstein reconstitué », d'un type d'ailleurs aberrant.

Mais on peut aussi admettre (J. S.-R.) que ce tonstein s'est formé à partir d'un sédiment argileux très riche en fer, dans une eau peu profonde, pour donner une sorte de *terra rossa* qui, évoluant au cours des temps géologiques, a vu sa pâte se transformer peu à peu en donnant de la leverriérite par kaolinisation de biotites détritiques, probablement en partie déjà décomposées

² La présence de biotite suggérée par l'examen aux Rayons-X est improbable, du point de vue sédimentologique et pétrographique. En effet, ce minéral, même altéré, est extrêmement rare dans les roches du Carbonifère de la zone houillère en Savoie. Il ne peut donc s'agir de biotite détritique. D'autre part, la biotite « alpine » n'a été trouvée, jusqu'à présent dans cette zone, que dans la série beaucoup plus métamorphique du Ruitor (J. F., obs. inéd.).

Le minéral ferromagnésien sans alcalins, donnant des raies voisines de celles de la biotite, doit être un chloritoïde, probablement du Stilpnomélane. Il ne semble pas possible de dénommer « biotite » cette phyllite brune si fréquente et souvent tardive dans les séries qu'atteint le front de métamorphisme alpin. Sa présence a d'ailleurs été reconnue dans d'autres roches du Carbonifère de cette zone.

puisqu'on ne connaît pratiquement pas de biotites intactes dans les roches sédimentaires.

Il est probable qu'une forte part du titane contenu dans la roche provient de l'altération des biotites et, si l'on peut admettre qu'un métamorphisme assez faible ait atteint les minéraux de notre échantillon, provoquant la dégradation des biotites *détritiques* en chlorites ou plus vraisemblablement en chlorbiotites, cette transformation n'a que très peu affecté la structure du réseau biotite qui est encore décelable aux rayons-X. La présence du stilpnomélane qui n'a pu être vu en lames minces, et dont les caractères radiocristallographiques sont, selon WINCHELL, une raie à 12,2 Å absente de nos diagrammes, ne peut donc être prouvée³. C'est pourquoi l'hypothèse d'une origine purement sédimentaire de notre tonstein par kaolinitisation de micas (légèrement chloritisés, lors de l'altération superficielle contemporaine de la sédimentation) permet de rejoindre les idées sur la genèse des tonstein de KULBICKI et VETTER qui ont par ailleurs signalé, dans la région de Decazeville, des faciès argileux analogues, riches en fer et comparables à ceux signalés dans le Carbonifère anglais par BRINDLEY et ROBINSON.

BIBLIOGRAPHIE

- ALEXANIAN (C.), ROUGE (P.-E.), VATAN (A.). — Progrès récents dans l'étude minéralogique des roches sédimentaires à grain fin (*Revue de l'I. F. P.*, vol. 9, 1954).
- BOUROZ (A.), CHALARD (J.), DOLLE (P.). — Extension géographique et valeur stratigraphique des niveaux de tonstein du bassin houiller du Nord de la France (*Soc. Géol. Nord*, t. 73, 1953, p. 98).
- BRINDLEY et ROBINSON (K.). — An X ray study of Some kaolinitic Fire Clays (*Trans. Brit. Ceramic Soc.*, vol. 46, p. 49-62, 1947).
- CHALARD (J.) (1951). — Tonstein du bassin houiller du Nord de la France (C. R. 3^e Congrès Avancement Et. Strat. Carb., Heerlen, p. 73).
- CHALARD (J.). — Les tonstein du bassin houiller du Nord de la France dans la région de Valenciennes (*Soc. Géol. Nord*, 1951).
- DOLLE (P.). — Tonstein de la partie supérieure de l'Assise de Bruay (*Annales Soc. Géol. du Nord*, t. 74, 1954, p. 39).
- DOLLE (P.) et SARROT-REYNAULD (J.). — Etude de quelques tonstein du Nord de la France (C. R. S. G. F., n^o 13, p. 287, 8 nov. 1954).

³ L'existence du stilpnomélane en tant qu'espèce est d'ailleurs loin d'être certaine. DONNAY et NOVACKI (*Crystal data Mém.* 60, Geol. Soc. of America, 1954) indiquent pour ce minéral, d'après la bibliographie, trois systèmes cristallins différents : orthorhombique, rhomboédrique, monoclinique et des compositions chimiques aussi diverses; la présence d'alcalins soulignée par certains est niée par les autres.

- GRIMM (R. E.). — Clay Mineralogy, New-York, 1953.
- GUTHÖRL. — Die Tonsteine des saar lothringischen karbons und ihre stratigraphische Bedeutung (C. R. 3^e Congrès Strat. géol. carbonifère, Heerlen, 1951).
- HOCART (R.) et LAPPARENT (J. de). — La leverriérite des formations latéritiques de l'A.-O.F. (C. R. Acad. Sciences, t. 208, 1939, p. 1465).
- HOEHNE (K.). — Die Entstehungsgeschichte der Tonsteine und ihre vermentliche Abkunft von Vulkanischen Gläsern (Aschen und Tuffen), *Glüchauf* 81-84, 1948; 25-26, p. 422 à 429).
- HOEHNE (K.). — Présence de lentilles isolées de Kaolin et de Cristaux de Kaolin dans les mines de charbon (*Neues Jahrbuch Geol. Paläontolog. Abhandlungen*, 1954, t. 100, n° 1, p. 1 à 10).
- KERR (P. F.) et ROSS (C. S.). — U. S. geol. Survey, 1931, The Kaolin minerals. (*Prof. Papers*, 165 E, p. 151-180).
- KULBICKI (G.) et VETTER (P.) (1956). — Etude des roches argileuses de quelques bassins houillers de la bordure occidentale du Massif Central (*B. S. G. F.*, t. 5, fasc. 7-9, p. 645, 1955).
- KULBICKI (G.) et VETTER (P.). — Sur la présence d'argiles bauxitiques dans le Stéphanien de Decazeville (C. R. Acad. Sciences, n° 1, 1955, p. 104).
- LACROIX (A.). — Minéralogie de la France, 1895-1910.
- LAPPARENT (J. de) (1934). — Constitution et origine de la leverriérite (C. R. Acad. Sciences, t. 198, p. 669, 12 fév. 1934).
- MILLOT (G.). — Relations entre la constitution et la genèse des roches sédimentaires argileuses (*Thèse Sciences*, Nancy, 1949).
- PRUVOST (P.). — Bassin houiller de la Sarre et de la Lorraine, t. IV, Description géologique, Lille, 1935, p. 19 à 31.
- SARROT-REYNAULD (J.). — Etude des propriétés radioactives du Houiller alpin (*Trav. Lab. Géol. Grenoble*, 1952, t. 30, p. 43).
- SCHEERE (J.). — Contribution à l'étude des tonstein des terrains houillers belges (Assoc. pour l'étude de la Paléontologie et la Stratigraphie houillères n° 19, 1955).
- SCHULLER (A.) et GRASSMANN (H.) (1949). — Über den Wachweiss von echten leverrierit in tonstein aus unterkarbonischen Steinkohlflözen (*Heidelberg Peitr. Min.*, Buhn, t. 2, p. 269).
- SCHULLER (A.) (1951). — Zur Nomenklatur und Genese der tonstein (*Neues Jahrbuch Min.*, Stuttgart, 1951, t. 5, p. 97).
- TERMIER (P.). — Sur une phyllite nouvelle, la leverriérite, et sur les bacillarites du terrain houiller (C. R. Acad. Sciences, t. 108, Paris, 1889, p. 1071).
- TERMIER (P.). — Etude sur la leverriérite (*Annales des Mines*, 8^e série, t. 17, 1890, p. 372-402).
- TERMIER (P.). — Notice sur la leverriérite (*Bull. Soc. Fr. Minéralogie*, t. 13, 1890, p. 325-330).
- TERMIER (P.). — Sur la composition chimique et les propriétés optiques de la leverriérite (*Bull. Soc. Fr. Min.*, t. 22, 1899, p. 27-31).
- TERMIER (P.) (1923). — Contribution à la connaissance des tonstein du Houiller de la Sarre (*B. S. G. F.*, t. 23, fasc. 4, p. 45-60).
- WINCHELL (A. H.) (1951). — Elements of optical mineralogy, Post II, New-York, 1951.