

LILLE 1984=n° d'ordre 1154

THESE présentée à l'Université des Sciences et

Techniques de Lille pour obtenir le titre de

DOCTEUR DE TROISIEME CYCLE

(mention géologie appliquée)

par Luc DORCHIES



Travail effectué au Laboratoire de Minéralogie de la FACULTE POLYTECHNIQUE de MONS (BELGIQUE) et à l'U.E.R. des Sciences de la Terre de l'UNIVERSITE de LILLE I (FRANCE) avec l'aide du GOUVERNEMENT BELGE.

AVANT-PROPOS

- 1 -

C'est dans le cadre d'une collaboration scientifique entre l'Université des Sciences et Techniques de Lille et la Faculté Polytechnique de Mons (F. P. Ms) que fut réalisé ce travail.

Sur proposition de M. le Professeur J.M. CHARLET (Laboratoire de Minéralogie de la F. P. Ms), en accord avec M. le Professeur M. WATERLOT (Laboratoire de Géologie Fondamentale de Lille I), j'entrepris la prospection radiométrique d'un secteur du Synclinorium de Neufchâteau.

Je tiens, en premier lieu, à remercier le gouvernement belge de m'avoir accordé une bourse d'étude (bourse de la Communauté Française de Belgique) qui m'a permis d'effectuer mon travail de recherche.

J'exprime mes plus vifs remerciements envers M. le Professeur J.M. CHARLET pour son encadrement scientifique constant. M'ayant accueilli dans son laboratoire, il a mis à ma disposition les moyens nécessaires à la réalisation de cette étude. Ses nombreux conseils, tant au laboratoire que sur le terrain, m'ont été très utiles. Son enseignement sur la Géologie de l'Uranium ainsi que sur les techniques de prospection m'ont ouvert les portes d'un domaine plus vaste. Je lui suis très reconnaissant de son permanent souci de formation.

J'exprime ma profonde gratitude à M. le Professeur M. WATERLOT. Après m'avoir accueilli dans son laboratoire en me proposant un D. E. A. puis une Thèse, c'est grâce à lui que j'ai fait la connaissance de M. le Professeur J.M. CHARLET. Il m'a grandement conseillé dans la mise au point de mon dossier de demande de bourse. Sa facilité à résoudre les problèmes matériels a contribué à la bonne marche de mes travaux. Qu'il reçoive ici l'expression de ma vive reconnaissance.

M. Y. QUINIF, Docteur ès Sciences (F. P. Ms, Belgique), spécialiste de la Géochimie de l'Uranium, par son aide et ses conseils, a largement contribué à la réalisation de ce travail. Il a accepté de le juger. Qu'il en soit particulièrement remercié.

M. P. DEBRABANT, Professeur à l'E. U. D. I. L. et à l'Université des Sciences et Techniques de Lille a bien voulu, en tant que spécialiste en Géochimie, faire partie de mon jury. Il me fait l'honneur de le présider. Je l'en remercie vivement et sincèrement.

M. L. DEJONGHE, Ingénieur principal au Service Géologique de Belgique, a accepté d'examiner ce travail qui est une prolongation de son initiative, étant l'instigateur de la prospection uranifère du Paléozoïque belge. Je lui exprime ma plus vive reconnaissance.

Je remercie très sincèrement M. R. MAGNE, Ingénieur-Géologue à la Cogema (Mission Nord Limagnes) de sa participation à mon jury de Thèse. Mon travail bénéficiera de la critique d'un spécialiste des gisements sédimentaires en uranium. Qu'il recoive l'expression de ma vive reconnaissance.

Je tiens aussi à remercier tout le personnel du laboratoire de Minéralogie de la F. P. Ms, pour l'ambiance sympathique de travail qui y règne et plus particulièrement Mme G. ARESU et M. R. BAVART pour leur aide lors des manipulations de laboratoire.

Je remercie tous mes camarades lillois qui m'ont accompagné et soutenu pendant mes études universitaires, et plus particulièrement :

- P. DE HEDOUVILLE, pour son humilité lors du tirage au sort réglant la vie interne de notre bureau.

- M. NDZIBA, qui a su "m'éclairer" dans mes recherches.

- Y. DESPEYROUX, T. IMBERT, P. MICONNET, qui, par leur humour sans doute amical, ont su créer une bonne ambiance.

J'ai également bénéficié de l'aide de nombreuses autres personnes qui ont contribué à la réalisation de ce travail :

- M. le Professeur H. CHAMLEY et M. T. HOLTZAPPFEL, du laboratoire de Sédimentologie de Lille I, pour l'étude des argiles.

- M. Ph. STEEMANS, du laboratoire de Palynologie de l'Université de Liège, pour la détermination des pollens.

- M. LIBER, du Service de Statistique Appliquée de la Faculté Polytechnique de Mons, pour les traitements informatiques.

- Mlle M.T. DORCHIES et bien d'autres, pour la relecture.

- Mme M. MASSINON et Mele C. MULIER, pour la frappe ;

Mme A. BREBION, pour le tirage offset ; M. J. CARPENTIER, pour les travaux photographiques et M. M. PLUQUIN, pour les nombreux autres problèmes matériels.

Je ne saurais achever ces remerciements, sans témoigner de ma profonde affection envers ceux qui sont à la base de cette thèse : mes parents. Je les remercie très sincèrement pour tout ce qu'ils m' ont consacré !

- MERCI A TOUS -

- 2 -

ABSTRACT

The radiometric prospection of the Siegenian in the southern edge of the Neufchâteau basin points out an East-West abnormal radioactive area (3 km long), cropping out in three areas. The abnormal sequences are a succession of shaly and sandy beds. Each of them exhibits the same palynological biozone. They could be attributed to the same stratigraphical "membre".

The field observations, and the sedimentological, geochimical and statistical analysis lead to differentiate two anomaly types :

- the first ones are bedded or lens-shaped and are concordant with the stratification. They occur in black shales where the uranium is syngenetic and fixed on the organic matter and on clay minerals ;
- the second ones result of a remobilization in porous media. They are epigenetic.

The heavy minerals contribution to the whole radioactivity is very low; this has been studied because of the hight local thorium amounts. Zircons, here radiogenic, account for the main part of heavy minerals; iron sulfides associated to secondary uranium are radioactive.

The autoradiography method and microprobe analysis point out secondary uranium minerals (belonging to torbernite-zeunerite family) in the redox interfaces. The uranium stoechiometric surplus could mean a previous stage of reduced uranium (U^{4+}) .

At Chiny-La Vierre the uranium is associated to layering. To a sedimentary concentration process in black shales succeed a remobilization and a precipitation in accordance with redox fronts. The occurence of pyrite rich layers in the Lower Siegenian has been an important factor in the secondary uranium precipitation processes.

Similar observations in the Neußchâteau North Synclinorium limb suggest an uranium concentration on a larger geographical area. The Cambrian anomalies could be the origin of the Lower Siegenian uranium concentrations.

TABLE DES MATIERES

| AVANT PROPOS | 1 |
|---|----------------|
| ABSTRACT | 3 |
| TABLE DES MATIERES | 5 |
| TABLE DES FIGURES | 11 |
| INTRODUCTION : PRESENTATION DU SUJET | 17 |
| l. Généralités | 19 |
| 2. Présentation du sujet et but du travail | 19 |
| CHAPITRE I : COMPORTEMENT DE L'URANIUM DANS LES TEMPS GEOLOGIQUES ET DANS L'ESPACE GEOLOGIQUE | 23 |
| 1.1. COMPORTEMENT DE L'URANIUM AU COURS DES TEMPS GEOLOGIQUES | 25 |
| l.l.l. Les sources de l'uranium | 25 |
| 1.1.2. De - 2,7 milliards d'années à nos jours | 26 |
| 1.2. COMPORTEMENT DE L'URANIUM DANS L'ESPACE GEOLOGIQUE | 28 |
| <pre>1.2.1. Comportement chimique</pre> | 29 29 29 |
| 1.2.2. Le cycle sédimentaire de l'uranium | 30 |
| <pre>1.2.3. L'uranium dans les schistes noirs 1.2.3.1. La matière organique 1.2.3.2. Le matériel phylliteux</pre> | 34 34 34 |
| 1.2.4. Environnements actuels du type " black shales" (B.S.) concentrant l'uranium (BELL, 1978) | 35 |
| CHAPITRE II : LOCALISATION ET PRESENTATION DU SECTEUR D'ETUDE | 38 |
| 2.1. LOCALISATION GEOGRAPHIQUE | 41 |

.

| 2.2. CADRE GEOLOGIQUE | 42 |
|--|----------|
| 2.2.1. Localisation géologique | 42 |
| 2.2.2. Présentation lithologique | 42 |
| 2.2.2.l. Le Siegénien inférieur : le faciès d'Anlier. | 44 |
| 2.2.2.2. Le Siegénien moyen : faciès de Bouillon | 44 |
| 2.2.2.3. Le Siegénien supérieur : faciès de Neufchâteau | 45 |
| 2.3. PRESENTATION PALEOGEOGRAPHIQUE DU SIEGENIEN DE L'ARDENNE | 45 |
| 2.4. DEFORMATIONS STRUCTURALES | 48 |
| 2.4.1. Le plissement | 48 |
| 2.4.1.1. Le secteur Ouest | 40 |
| 2.4.1.2. Le secteur Est | 50 |
| 2.4.2. La fracturation | 52 |
| CUADITOR III . IFS DESULTATS DES DECSDECTIONS BADIOMETRIOUES | |
| AUTOPORTEE ET PEDESTRE | 55 |
| 3.1. LES DONNEES PRELIMINAIRES DE LA PROSPECTION AUTOPORTEE | 57 |
| 3.1.1. Le bassin de Neufchâteau dans sa totalité | 57 |
| 3.1.2. L'anomalie du lac du barrage de la Vierre | 59 |
| 3.2. LA PROSPECTION SCINTILLOMETRIQUE PEDESTRE | 60 |
| 3.2.1. Appareillage et technique de prospection | 60 |
| 3.2.2. Conversion de la radioactivité totale "TC" en unité de radioactivité | 62 |
| 3.2.3. Présentation générale des résultats de la prospection | () |
| 3 2 3 1 to proposition du Signification infiniture | 63 42 |
| 3.2.3.2. La prospection du Siegénien moven | 67 |
| 3.2.3.3. La prospection du Siegénien supérieur | 64 |
| ererere za prospection da bregenten superreal | 04 |
| CHAPITRE IV : PRESENTATION ET ETUDE STRATIGRAPHIQUE DES DIFFERENTES | |
| ANOMALIES DU SIEGENIEN INFERIEUR | 68 |
| 4.1. LES SERIES ANOMALES DU SIEGENIEN INFERIEUR | 69 |
| 4.1.1. L'anomalie du lac de la Vierre | 69 |
| 4.1.1.1. Etude stratigraphique | 70 |

| 4.1.1.2. Localisation et allure des anomaliesa) Les anomalies sur quartzitesb) Les anomalies sur schistes noirs | 74 76 79 |
|---|--------------------------|
| 4.1.2. L'anomalie de Chiny | 80 |
| 4.1.2.1. Etude stratigraphique | 80 |
| 4.1.2.2. Localisation et allure des anomalies | 81 |
| 4.1.3. L'anomalie des Croisettes | 84 |
| 4.2. LES POINTEMENTS ANOMAUX OCCIDENTAUX | 86 |
| 4.2.1. Les anomalies stratoïdes | 86 |
| 4.2.2. L'anomalie d'Herbeumont | 87 |
| 4.3. CONCLUSIONS : ORIENTATIONS DANS LA SUITE DU TRAVAIL | 88 |
| CHAPITRE V : ETUDE PAR SPECTROMETRIE GAMMA | 95 |
| 5.1. PREPARATION DES ECHANTILLONS | 97 |
| 5.2. PRESENTATION GENERALE DE LA METHODE | 98 |
| 5.3. RESULTATS DES ANALYSES ET INTERPRETATIONS | 99 |
| 5.4. ETUDE DE L'EQUILIBRE RADIOACTIF | 107 |
| 5.5. RELATION RADIOACTIVITE TOTALE - TENEUR EN URANIUM | 109 |
| CHAPITRE VI : ETUDE MINERALOGIQUE DES SEDIMENTS DU SIEGENIEN | |
| INFERIEUR | 113 |
| 6.1. ANALYSES PETROGRAPHIQUES | 115 |
| 6.l.l. Analyse pétrographique des grès | 115 |
| 6.1.1.1. L'étude en microscopie optique | 115 115 116 117 |
| en spectrométrie gamma | 118 |
| 6.1.1.2. L'étude en diffractométrie des rayons X | 118 |
| 6.1.2. Analyse pétrographique des schistes | 119 |
| 6.1.2.1. L'étude en microscopie optique | 119 |
| 6.1.2.2. L'étude en diffractométrie des rayons X | 121 |

| 6.2. | ETUDE I | DES MINERAUX LOURDS | 124 |
|------|---------|--|-------------------|
| | 6.2.1. | Nécessité d'une telle étude | 124 |
| | 6.2.2. | Les minéraux lourds et la radioactivité dans les granites | 125 |
| | 6.2.3. | Méthode d'extraction et de séparation des minéraux lourds 6.2.3.1. Préparation de l'échantillon 6.2.3.2. Séparation par liqueurs denses | 127 127 127 |
| | 6.2.4. | Principe de la méthode d'analyse en anticoïncidence | 129 |
| | 6.2.5. | Les résultats d'analyses en anticoïncidence 6.2.5.1. Les schistes 6.2.5.2. Les grès | 129 129 131 |
| | 6.2.6. | Conclusions | 136 |
| 6.3. | ANALYS | E EN AUTORADIOGRAPHIE | 136 |
| | 6.3.1. | But de l'analyse | 136 |
| | 6.3.2. | Technique analytique | 137 |
| | 6.3.3. | Les résultats 6.3.3.1. Les schistes | 138 138 |
| | | 6.3.3.2. Les grès | 140 |
| | 6.3.4. | Bilan de l'analyse | 141 |
| | 6.3.5. | Données bibliographiques sur la pyrite en milieu sédimentaire 6.3.5.1. La formation de pyrite sédimentaire 6.3.5.2. Comportement de la pyrite associée au déplacement d'un front d'oxydo-réduction | 141 141 143 |
| | 6.3.6. | Interprétation de nos observations | 145 |
| 6.4. | ANALYS | E A LA MICROSONDE | 146 |
| | 6.4.1. | Les plages radioactives repérées dans les schistes 6.4.l.l. Détermination des éléments 6.4.l.2. Analyses quantitatives | 146 146 147 |
| | 6.4.2. | Les plages radioactives associées au "roll front" | 149 |
| | 6.4.3. | Interprétation | 150 |
| 6.5. | CONCLU | SIONS GENERALES DE L'ETUDE MINERALOGIQUE | 152 |

| | | | LANDI OCTOURS | 165 |
|----------|--------------------|--------------------------|---|-------------------|
| CHAPITRI | 5 VII : | ETUDES PA | | 102 |
| 7.1. | TECHNIC | QUE ANALYI | IQUE | 167 |
| 7.2. | CONNAIS | SSANCES PA | LYNOLOGIQUES ACQUISES SUR L'EODEVONIEN | |
| | DE L'AN | RDENNE | | 168 |
| 7.3. | LES RES | SULTATS | | 170 |
| 7.4. | CONCLUS | SIONS ET I | NTERPRETATIONS | 170 |
| CHAPITRI | E VIII : | ETUDE GE | COCHIMIQUE | 173 |
| 8.1. | LE DOSA | AGE DES MA | TIERES REDUCTRICES (M.R.) | 175 |
| 8.2. | LE DOSA | AGE DES EL | EMENTS TRACES | 178 |
| 8.3. | ANALYSI DU SIEC | E DE LA DI GENIEN INF | STRIBUTION DES RADIOELEMENTS DANS LES FACIES | 178 |
| | 8.3.1. | Généralit | és | 178 |
| | 8.3.2. | Principe U-Th-K | de l'analyse des faciès par les diagrammes | 179 |
| | | 8.3.2.1. | Diagrammes Th/II-II/K_O | 179 |
| | | 8.3.2.2. | Diagramme Th/K ₂ O | 181 |
| | 8.3.3. | Applicati du Siegér | ons des diagrammes Th-U-K aux sédiments nien inférieur | 182 |
| | | 8.3.3.1. | Analyse des échantillons du Siegénien | |
| | | | a) Le diagramme U/K ₂ O-Th/U | 182 182 |
| | | 8337 | b) Le diagramme $11 - x_2$ | 191 |
| | | 0.3.3.2. | a) Le diagramme U/K ₂ O-Th/U b) Le diagramme Th-K ₂ O. | 191 191 194 |
| | | 8.3.3.3. | Analyses en diagramme Th/K_O-Th/U | 198 |
| | | 8.3.3.4. | Conclusions | 199 |
| 8.4. | TRAITE | MENT DES I | OONNEES PAR ANALYSE FACTORIELLE | 201 |
| | 8.4.1. | Introduct | ion | 201 |
| | 8.4.2. | Généralit | tés sur l'analyse factorielle (A.F.) | 201 |
| | 8.4.3. | Applicati du Siegén | ion de l'analyse factorielle aux sédiments nien inférieur | 202 |
| | | 8.4.3.1. | Traitement I des variables radiométriques | 204 |
| | | 8.4.3.2. | T raiteme nt II des variables radio. et M.R | 204 |
| | | | | |

| 8.4.3.3. Traitement III des variables radio., M.R. et minéralogiques (ILL, I/C) | 208 |
|---|-----|
| 8.4.3.4. Traitement IV des variables radio., M.R., minéralogiques et éléments traces | 210 |
| 8.4.4. Conclusion d'ensemble et interprétation de l'A.F | 212 |
| CHAPITRE IX : CONCLUSIONS GENERALES | 215 |
| 9.1. PRINCIPAUX RESULTATS | 217 |
| 9.2. RECONSTITUTION PALEOGEOGRAPHIQUE | 220 |
| 9.3. PROBLEMES ET PERSPECTIVES | 223 |
| BIBLIOGRAPHIE | 225 |
| ANNEXES | 237 |
| 1. LA SPECTROMETRIE GAMMA | 239 |
| 2. LE DOSAGE DES MATIERES REDUCTRICES | 243 |
| 3. L'ANALYSE EN ANTICOINCIDENCE | 244 |

RESUME ET MOTS CLES..... 4e page de couverture

TABLE DES FIGURES

| CHAPITRE I | : | COMPORTEMENT DE L'URANIUM DANS LES TEMPS GEOLOGIQUES ET DANS L'ESPACE GEOLOGIQUE | |
|------------|-----|--|----|
| Fig. 1 | : | Schéma récapitulatif de l'histoire sédimentaire de l'uranium dans la croûte terrestre | 27 |
| Fig. 2 | : | Système U-0 ₂ -H ₂ O à 25°C et l atm. (d'après HOSTETLER et GARRELS, 1962) | 29 |
| Fig. 3 | : | Phases principales de l'uranium dans une solution simple d'eau (d'après CAMERON, 1980) | 30 |
| Fig. 4 | : | Concentration en radio-éléments de quelques types de sédiments et moyenne de l'écorce terrestre (d'après CLARK <i>et al.</i> , 1966) | 32 |
| Fig. 5 | : | Coupe schématique du gisement de <i>Mikouloungou</i> (Gabon) (d'après GANGLOFF, 1970) | 33 |
| Fig. 6 | : | Gisement de type "roll-front" | 33 |
| Fig. 7 | : | Environnements à dépôt de black shales (uranifères) (d'après THIEDE et VAN ANDEL, 1977) | 36 |
| CHAPITRE I | I : | : LOCALISATION ET PRESENTATION DU SECTEUR D'ETUDE | |
| Fig. 8 | : | Situation géographique | 41 |
| Fig. 9 | : | Localisation du domaine d'étude | 43 |
| Fig. 10 | : | Bassin dévonien du Nord-Ouest de l'Europe, localisation de l'Ardenne (d'après KENT, 1980) | 47 |
| Fig. 11 | : | Style de plis du secteur Ouest du terrain | 50 |
| Fig. 12 | : | Report sur stéréogramme des pôles des plans de stratification, associés aux plis du secteur Ouest | 50 |
| Fig. 13 | : | Style de plissement du secteur Est du terrain | 51 |
| Fig. 14 | : | Report sur stéréogramme des pôles des plans de stratification, associés aux plis cylindriques | 51 |
| Fig. 15 | : | Naissance de pli -failles (coupe barrage de la Vierre). | 51 |
| Fig. 16 | : | Pli-faille observé sur la rive gauche de la Semois en face du Rocher du Chat | 52 |
| Fig. 17 | : | Faille inverse observée dans le secteur de Chiny | 52 |
| Fig. 18 | : | Zone broyée appartenant à la faille d'Herbeumont. montrant des plis d'entrainement à plans axiaux inclinés vers le Nord | 53 |
| Fig. 19 | : | Rosace directionnelle des failles (portant sur une centaine de données) | 54 |

CHAPITRE III : LES RESULTATS DES PROSPECTIONS RADIOMETRIQUES AUTOPORTEE ET PEDESTRE

| | Fig. | 20 | ; | Teneurs moyennes en radio-éléments des formations du Dévonien inférieur enregistrées lors de la prospection radiométrique autoportée | 57 |
|----|--------|------|-----|--|----|
| | Fig. | 21 | : | Carte des anomalies radiométriques découvertes lors de la prospection autoportée dans le bassin de Neufchâteau (extrait de CHARLET et al., 1983) | 58 |
| | Fig. | 22 | : | Enregistrement de l'anomalie du barrage de la Vierre lors de la prospection autoportée | 59 |
| | Fig. | 23 | : | Conversion des anomalies de l'autoportée en concentration de radio-éléments (anomalie du Darrage de la Vierre) | 60 |
| | Fig. | 24 | : | Schéma du scintillomètre portatif employé de type Géométrics Modèle GR-101 A | 61 |
| | Fig. | 25 | : | Calibrage du scintillomètre sur la station d'étalonnage de la F. P. Ms | 61 |
| | Fig. | 26 | : | Localisation des anomalies découvertes selon les couches géologiques du bassin de Neufchâteau | 65 |
| CH | APITRI | E IN | 1 : | PRESENTATION ET ETUDE STRATIGRAPHIQUE DES DIFFERENTES ANOMALIES DU SIEGENIEN INFERIEUR | |
| | Fig. | 27 | : | Coupe de la série anomale du barrage de la Vierre (entre Izel et Suxy) | 69 |
| | Fig. | 28 | : | Colonne stratigraphique du compartiment méridional, Localisation et intensité des niveaux anomaux | 70 |
| | Fig. | 29 | : | Niveau bréchique synsédimentaire soulignant le passage des schistes noirs aux grès à faciès oxydé | 71 |
| | Fig. | 30 | : | Colonne stratigraphique du compartiment septentrional, localisation et intensité des niveaux anomaux | 72 |
| | Fig. | 31 | а | : Laminations onduleuses S' recoupant la stratification S | 73 |
| | Fig. | 31 | Ъ | : Stratifications entrecroisées | 76 |
| | Fig. | 32 | : | Chevauchement du compartiment méridional sur le compartiment septentrional | 74 |
| | Fig. | 33 | 1 | Panorama de l'anomalie du lac du barrage de la Vierre, localisation et répartition des niveaux anomaux | 75 |
| | Fig. | 34 | : | Plan compteur radiométrique sur affleurement gréseux, maille de 30 à 40 cm de côté, coupe de la Vierre | 76 |
| | Fig. | 35 | : | Anomalie radioactive liée à un front d'oxydo-réduction, sur des quartzites à faciès plus ou moins oxydé | 78 |
| | Fig. | 36 | : | Coupe de la série anomale de Chiny | 80 |
| | Fig. | 37 | : | Colonne stratigraphique de la série anomale de Chiny, localisation et intensité des niveaux anomaux | 81 |
| | Fig. | 38 | : | Panorama de l'anomalie de Chiny, localisation et répartition des niveaux anomaux | 83 |

| Fig. | 39 | : | Coupe de la série anomale des Croisettes | 84 |
|------|----|---|---|----|
| Fig. | 40 | : | Panorama de l'affleurement le plus septentrional de la zone anomale des Croisettes, localisation et répartition de quelques niveaux anomaux | 85 |
| Fig. | 41 | : | Pointement anomal de l'Abbaye des Conques, localisation de l'anomalie | 87 |
| Fig. | 42 | : | Pointement anomal de la Roche au Chat, localisation de l'anomalie | 87 |
| Fig. | 43 | : | Pointement anomal des Etangs des Epioux, localisation de l'anomalie | 87 |
| Fig. | 44 | : | Panorama de l'anomalie d'Herbeumont, localisation et intensité de l'anomalie | 88 |

CHAPITRE V : ETUDE PAR SEPCTROMETRIE GAMMA

| Fig. | 45 | : | Analyse par spectrométrie gamma des schistes noirs de l'anomalie du barrage de la Vierre | 100 |
|------|----|---|--|-----|
| Fig. | 46 | : | Analyse par spectrométrie gamma des schistes noirs de l'anomalie des Croisettes | 101 |
| Fig. | 47 | : | Levé radiométrique de l'anomalie du lac de la Vierre et distribution de l'Um (compartiment Nord) | 102 |
| Fig. | 48 | : | Levé radiométrique de l'anomalie du lac de la Vierre, compartiment Sud et distribution de l'Um | 103 |
| Fig. | 49 | : | Analyse par spectrométrie gamma des schistes noirs de l'anomalie de Chiny | 104 |
| Fig. | 50 | : | Levé radiométrique de l'anomalie de Chiny et distribution de l'Um | 105 |
| Fig. | 51 | : | Analyse par spectrométrie gamma des schistes noirs des pointements anomaux occidentaux | 106 |
| Fig. | 52 | : | Analyse par spectrométrie gamma des grès des anomalies de Chiny | 107 |
| Fig. | 53 | : | Analyse par spectrométrie gamma des grès des anomalies du barrage de la Vierre | 107 |
| Fig. | 54 | : | La famille de l'uranium | 108 |
| Fig. | 55 | a | : Diagramme de relation (Ur-Um) de l'ensemble des échantillons | 110 |
| Fig. | 55 | Ъ | : Diagramme de relation (Ur-Um) sans les échantillons où Um est supérieur à 200 ppm | 110 |
| | | | | |

CHAPITRE VI : ETUDE MINERALOGIQUE DES SEDIMENTS DU SIEGENIEN INFERIEUR

| Fig. | 56 | : | Grès à | ciment siliceux | 116 |
|------|----|---|-------------------|---|-----|
| Fig. | 57 | a | : Grès | à laminations phylliteuses | 116 |
| Fig. | 57 | ь | : Grès | à matrice phylliteuse | 117 |
| Fig. | 58 | : | Diagram rayons | me d'analyse des grès en diffraction des X | 119 |

- 13 -

| Fig. 60 : Diagramme d'analyse des schistes en diffraction des rayons X | Fig. | 59 | : | Dessin fait à partir d'une lame mince de schiste montrant que la pyrite est authigène et postérieure au dépôt des sédiments | 120 |
|--|------|----|---|---|-----|
| Fig. 61 : Analyse en diffraction X des minéraux argileux des schistes de l'anomalie de Chiny | Fig. | 60 | : | Diagramme d'analyse des schistes en diffraction des rayons X | 121 |
| Fig. 62 : Analyse en diffraction X des minéraux argileux des schistes de l'anomalie du barrage de la Vierre 123 Fig. 63 : Analyse en diffraction X des minéraux argileux des schistes de l'anomalie d'Herbeumont | Fig. | 61 | : | Analyse en diffraction X des minéraux argileux des schistes de l'anomalie de Chiny | 123 |
| Fig. 63 : Analyse en diffraction X des minéraux argileux des schistes de l'anomalie d'Hèrbeumont | Fig. | 62 | : | Analyse en diffraction X des minéraux argileux des schistes de l'anomalie du barrage de la Vierre | 123 |
| Fig. 64 : Diagramme de la corrélation simple Um-illite | Fig. | 63 | : | Analyse en diffraction X des minéraux argileux des schistes de l'anomalie d'Hèrbeumont | 123 |
| Fig. 65 : Intervalle de concentration en uranium des minéraux accessoires des granites | Fig. | 64 | : | Diagramme de la corrélation simple Um-illite | 124 |
| Fig. 66 : Répartition des minéraux lourds selon les densités 127 Fig. 67 : Principe et méthode de séparation des minéraux lourds. 128 Fig. 68 : Analyse en anticoïncidence des minéraux lourds des flottants à l'iodure de méthylène des schistes noirs. 130 Fig. 69 : Analyse en anticoïncidence des minéraux lourds des précipités à l'iodure de méthylène des schistes noirs. 130 Fig. 70 : Analyse en anticoïncidence des minéraux lourds des flottants à l'iodure de méthylène des grès. 132 Fig. 71 : Analyse en anticoïncidence des minéraux lourds des précipités à l'iodure de méthylène des grès. 132 Fig. 71 : Analyse en anticoïncidence de la magnétite contenue dans les grès. 132 Fig. 72 : Analyse en anticoïncidence de la fraction phylliteuse des grès. 134 Fig. 73 : Résultats en anticoïncidence de la fraction phylliteuse des grès. 135 Fig. 74 : Radioactivité intense enregistrée sur les contours des grains de pyrite par analyse en autoradiographie. 139 Fig. 76 : Schéma expliquant la formation de lits pyriteux (d'après DEBRABANT, communication orale). 143 Fig. 77 : Analyses à la microsonde. 144 Fig. 78 : Comparaison avec les compositions théoriques de la série torbernite-zeunerite. 148 Fig. 79 : Analyses à la microsonde. 149 | Fig. | 65 | : | Intervalle de concentration en uranium des minéraux accessoires des granites | 126 |
| Fig. 67 : Principe et méthode de séparation des minéraux lourds 128 Fig. 68 : Analyse en anticoïncidence des minéraux lourds des flottants à l'iodure de méthylène des schistes noirs 130 Fig. 69 : Analyse en anticoïncidence des minéraux lourds des précipités à l'iodure de méthylène des grès | Fig. | 66 | : | Répartition des minéraux lourds selon les densités employées | 127 |
| Fig. 68 : Analyse en anticoïncidence des minéraux lourds des flottants à l'iodure de méthylène des schistes noirs 130 Fig. 69 : Analyse en anticoïncidence des minéraux lourds des précipités à l'iodure de méthylène des grès | Fig. | 67 | : | Principe et méthode de séparation des minéraux lourds | 128 |
| Fig. 69 : Analyse en anticoĭncidence des minéraux lourds des précipités à l'iodure de méthylène des schistes noirs 130 Fig. 70 : Analyse en anticoĭncidence des minéraux lourds des flottants à l'iodure de méthylène des grès 132 Fig. 71 : Analyse en anticoĭncidence des minéraux lourds des précipités à l'iodure de méthylène des grès 132 Fig. 72 : Analyse en anticoĭncidence de la magnétite contenue dans les grès 134 Fig. 73 : Résultats en anticoĭncidence de la fraction phylliteuse des grès 135 Fig. 74 : Radioactivité intense enregistrée sur les contours des grains de pyrite par analyse en autoradiographie 139 Fig. 75 : Schéma expliquant la formation de lits pyriteux (d'après DEBRABANT, communication orale) 143 Fig. 76 : Schéma expliquant la formation de pyrite secondaire associée à des gisements de type "noll-énont" (d'après SAMAMA, 1982) | Fig. | 68 | : | Analyse en anticoïncidence des minéraux lourds des flottants à l'iodure de méthylène des schistes noirs | 130 |
| Fig. 70 : Analyse en anticoïncidence des minéraux lourds des flottants à l'iodure de méthylène des grès | Fig. | 69 | : | Analyse en anticoïncidence des minéraux lourds des précipités à l'iodure de méthylène des schistes noirs | 130 |
| Fig. 71 : Analyse en anticoïncidence des minéraux lourds des précipités à l'iodure de méthylène des grès | Fig. | 70 | : | Analyse en anticoïncidence des minéraux lourds des flottants à l'iodure de méthylène des grès | 132 |
| Fig. 72 : Analyse en anticoïncidence de la magnétite contenue dans les grès | Fig. | 71 | : | Analyse en anticoïncidence des minéraux lourds des précipités à l'iodure de méthylène des grès | 132 |
| Fig. 73 : Résultats en anticoĭncidence de la fraction phylliteuse des grès | Fig. | 72 | : | Analyse en anticoïncidence de la magnétite contenue dans les grès | 134 |
| Fig. 74 : Radioactivité intense enregistrée sur les contours des grains de pyrite par analyse en autoradiographie | Fig. | 73 | : | Résultats en anticoïncidence de la fraction phylliteuse des grès | 135 |
| Fig. 75 : Schéma expliquant la formation de lits pyriteux (d'après DEBRABANT, communication orale) | Fig. | 74 | : | Radioactivité intense enregistrée sur les contours des grains de pyrite par analyse en autoradiographie | 139 |
| Fig. 76 : Schéma expliquant la formation de pyrite secondaire associée à des gisements de type "roll-front" (d'après SAMAMA, 1982) | Fig. | 75 | : | Schéma expliquant la formation de lits pyriteux (d'après DEBRABANT, communication orale) | 143 |
| Fig. 77 : Analyses à la microsonde | Fig. | 76 | : | Schéma expliquant la formation de pyrite secondaire associée à des gisements de type "roll-front" (d'après SAMAMA, 1982) | 144 |
| Fig. 78 : Comparaison avec les compositions théoriques de la série torbernite-zeunerite | Fig. | 77 | : | Analyses à la microsonde | 148 |
| Fig. 79 : Analyses à la microsonde | Fig. | 78 | * | Comparaison avec les compositions théoriques de la série torbernite-zeunerite | 148 |
| | Fig. | 79 | : | Analyses à la microsonde | 149 |

CHAPITRE VII : ETUDE PALYNOLOGIQUE

| Fig. | 80 | : | Comparaisons biostratigraphique et lithostratigraphique | |
|------|----|---|---|-----|
| | | | entre le Sud et l'Est du synclinorium de Dinant | |
| | | | (tiré de STEEMANS, 1981) | 169 |
| Fig. | 81 | : | Schéma interprétatif d'un repli périsynclinal- | |
| | | | périanticlinal du "membre" de Chiny | 171 |

- 14 -

CHAPITRE VIII : ETUDE GEOCHIMIQUE

| Fig. | 82 | : | Dosage des matières réductrices | 176 |
|------|-----|---|--|-------------|
| Fig. | 83 | : | Dosage de c <mark>ertains</mark> éléments traces des échantillons de la série anomale du barrage de la Vie rre | 177 |
| Fig. | 84 | : | Diverses courbes porteuses en diagramme Th/U-U/K ₂ O (d'après QUINIF <i>et al.</i> , 1982) | 179 |
| Fig. | 85 | : | Valeurs des coefficients a, b, c et d des courbes porteuses de la figure 84 (d'après QUINIF <i>et al</i> ., 1982) | 18 0 |
| Fig. | 86 | : | Allure des courbes porteuses dans le diagramme Th/U-Th/K ₂ O | 181 |
| Fig. | 87 | : | Diagramme Um/K ₂ O-Th/Um de l'ensemble des échantillons du Siegénien inférieur | 183 |
| Fig. | 88 | : | Diagramme Um/K ₂ O-Th/Um des schistes du Siegénien inférieur | 183 |
| Fig. | 89 | : | Diagramme Um/K ₂ O-Th/Um des grès du Siegénien inférieur | 183 |
| Fig. | 90 | : | Valeurs des coefficients a, b et R de l'analyse d'ensemble du Siegénien inférieur en diagramme Th-U-K. | 184 |
| Fig. | 91 | : | Représentation des schistes du Siegénien inférieur en diagramme Ln (Th/Um)-Ln (Um/K ₂ 0) | 185 |
| Fig. | 92 | : | Représentation de l'ensemble schistes et grès du Siegénien inférieur en diagramme Ln (Th/Um)-Ln (Um/K ₂ O) | 186 |
| Fig. | 93 | : | Valeurs des coefficients c, d et R de l'analyse d'ensemble du Siegénien inférieur en diagramme Th-U-K. | 187 |
| Fig. | 94 | : | Diagramme Th-K ₂ O de l'ensemble des échantillons du Siegénien inférieur | 188 |
| Fig. | 95 | : | Diagramme Th-K ₂ O de l'ensemble des schistes du Siegénien inférieur | 188 |
| Fig. | 96 | : | Diagramme Th-K ₂ O de l'ensemble des grès du Siegénien inférieur | 188 |
| Fig. | 97 | : | Valeurs des coefficients a, b et R de l'analyse du Siegénien inférieur de la coupe de Chiny en diagramme Th-U-K | 19 1 |
| Fig. | 98 | : | Diagramme Um/K ₂ O-Th/Um de l'ensemble des échantillons de la coupe de ² Chiny | 192 |
| Fig. | 99 | : | Diagramme Um/K ₂ O-Th/Um des schistes de la coupe de Chiny | 192 |
| Fig. | 100 | : | Diagramme Um/K ₂ O-Th/Um des grès de la coupe de Chiny | 192 |
| Fig. | 101 | : | Représentation Th/U-U/K ₂ O des argiles V_3b-V_3c au sein de quelques sédiments détritiques de Belgique | 100 |
| | | | (d'après NDZIBA, 1982) | 193 |
| Fig. | 102 | : | Diagramme Th-K ₂ O de l'ensemble des echantillons de la coupe de Chiny | 195 |

Fig. 103 : Diagramme Th-K $_2^0$ des grès de la coupe de Chiny.....

Fig. 104 : Diagramme $Th-K_2^0$ des schistes de la coupe de Chiny....

en diagramme Th-U-K.....

Fig. 105 : Valeurs des coefficients c, d et R de l'analyse du Siegénien inférieur de la coupe de Chiny

195

195

195

196

- 15 -

| Fig. | 106 | : | Association minéralogique en fonction du pH et du Eh (d'après KRUMBEIN et GARRELS, 1952) | 197 |
|------|-----|---|---|-----|
| Fig. | 107 | : | Diagramme Th/K ₂ O-Th/U des schistes du Siegénien inférieur | 198 |
| Fig. | 108 | : | Diagramme Th/K ₂ O-Th/U des grès du Siegénien inférieur. | 199 |
| Fig. | 109 | : | Représentation dans le plan F-l, F-2 des variables de l'A.F. I | 203 |
| Fig. | 110 | : | Poids des variables selon F-1, F-2 dans l'A.F. I | 203 |
| Fig. | 111 | : | Représentation dans le plan F-l, F-2 des variables de l'A.F. II | 205 |
| Fig. | 112 | : | Poids des variables selon F-l, F-2 dans l'A.F. II | 205 |
| Fig. | 113 | : | Représentation dans le plan F-l, F-2 des variables de l'A.F. III | 207 |
| Fig. | 114 | : | Poids des variables selon F-l, F-2 dans l'A.F. III | 207 |
| Fig. | 115 | : | Représentation dans le plan F-l, F-2 des variables de l'A.F. IV | 211 |
| Fig. | 116 | : | Poids des variables selon F-1, F-2 dans l'A.F. IV | 211 |
| | | | | |

CHAPITRE IX : CONCLUSIONS GENERALES

| Fig. | 117 | : | Schéma | interp | rétatif | des | étapes | dans | la conc | centration | |
|------|-----|---|---------|---------|---------|-----|----------|------|---------|------------|-----|
| | | | en urar | nium du | Siegén | ien | inférieu | r du | bassin | ardennais. | 221 |

PLANCHES

_ _ _ _

| PLANCHE | I | | 89 |
|---------|-----|---|-----|
| PLANCHE | II | | 91 |
| PLANCHE | III | | 155 |
| PLANCHE | IV |] | L57 |
| PLANCHE | V | | 159 |
| PLANCHE | VI | | 161 |
| PLANCHE | VII | | 163 |

CARTE HORS TEXTE







- 19 -

PRÉSENTATION DU SUJET

. GENERALITES

La crise pétrolière de 1973 produisit une vigoureuse relance des programmes de prospection d'énergie de remplacement, notamment l'énergie nucléaire.

Les prix de l'uranium quintuplèrent alors passant de 10 \$ la livre à 50 \$. Actuellement, ils se sont stabilisés à 30 \$ la livre. Ceci eut pour effet, il y a quelques années, de procurer aux gisements d'uranium à faible teneur un intérêt autrefois inexistant.

Aujourd'hui, l'Amérique se détourne de la voie nucléaire, en raison de l'importance des autres formes d'énergie dont elle dispose (hydrocarbures, charbons, schistes bitumineux).

Quant à l'Europe, elle mise toujours fortement sur le nucléaire, une des rares "issues de secours" possibles. Il y a quelques années, l'offre et la demande en uranium s'équilibrant, on assista à l'élaboration de nombreux programmes de prospection. C'est dans ce cadre que la Communauté Economique Européenne (C.E.E.) a passé des contrats avec trois Universités de Belgique afin de réaliser la prospection en uranium du Paléozoïque belge :

- l'Université libre de Bruxelles fut chargée de la prospection hydrogéochimique,
- l'Université Catholique de Louvain-la-Neuve (Laboratoire de Géochimie) effectua la prospection géochimique en "stream sediment",
- La Faculté Polytechnique de Mons (Laboratoire de Minéralogie) entreprit la prospection radiométrique autoportée.

2. PRESENTATION DU SUJET ET BUTS DE TRAVAIL

a) Présentation du Sujet

La prospection radiométrique autoportée du Paléozoïque belge s'est déroulée sur 3 ans de 1979 à 1981. Elle comporta près de 20.000 km d'itinéraires.

La compilation de toutes ces mesures de terrain avait pour but essentiel :

- de définir les aptitudes de chaque formation sédimentaire à la concentration d'uranium,

- de définir à partir des teneurs moyennes de chacune d'entre elles, les anomalies radiométriques.

Celle-ci mit en évidence trois zones principales de répartition des anomalies (CHARLET et al , 1983) :

- le Viséen du Bassin de Dinant étudié par M. NDZIBA (1982),
- le Revinien supérieur de la bordure du massif de Stavelot,
- le Dévonien inférieur de la Haute Ardenne :
 - . le Gédinnien de l'Anticlinal de Bastogne,
 - . le Siegénien du Bassin de Neufchâteau.

Les deux premieres zones ne créèrent pas de surprise. Certaines étaient déjà connues en tant que zones anomales, et le faciès "schistes noirs" dans lequel elles apparaissent est classiquement considéré comme pouvant être enrichi en uranium.

Par contre, les anomalies du Dévonien inférieur sont totalement nouvelles. Leur apparition dans un contexte géologique susceptible d'être favorable au développement de concentrations d'uranium, leur intensité et leur nouveauté, font qu'elles présentent un intérêt certain.

Sur proposition de M. le Professeur J.M. CHARLET et en accord avec M. le Professeur M. WATERLOT, je pris à coeur d'effectuer des recherches sur la radiométrie du Siegénien du Synclinorium de Neufchâteau. Celles-ci entraient dans le cadre de la collaboration scientifique entre l'Université des Sciences et Techniques de Lille et la Faculté Polytechnique de Mons dont j'avais déjà fait l'heureuse expérience lors de mon Diplôme d'Etudes Approfondies(DORCHIES,1981).

b) Buts du travail

Les objectifs de mon travail étaient multiples :

- en premier lieu, à partir d'un levé radiométrique pédestre, à l'aide d'un scintillateur portatif, de resserrer la maille de prospection, afin de trouver de nouvelles anomalies possibles;
- de voir s'il existait des liens entre elles, stratigraphiques principalement;
- de préciser le contexte géologique dans lequel apparaissent les anomalies et d'en comprendre le contrôle géologique (sédimentologique et géochimique);
- de proposer un modèle précisant les conditions de dépôt des radioéléments.

- 20 -

Avant de présenter les résultats de nos travaux, un bref rappel sur le comportement géologique de l'uranium est nécessaire afin de cerner les connaissances actuelles sur les gisements de type sédimentaire.





CHAPITRE I

Comportement de l'uranium :

- dans les temps géologiques

- dans l'espace géologique





RAPPELS SUR LE COMPORTEMENT GEOLOGIQUE DE L'URANIUM

Avant tout il est bon de préciser que dans ce paragraphe, seules seront traitées les affinités sédimentaires de l'uranium qui se rapportent au présent travail.

Afin de donner à ce chapitre un ton volontairement général, nous traiterons d'abord du comportement de l'uranium durant les temps géologiques, en précisant la place des principaux gisements mondiaux connus de nos jours. Nous n'oublierons pas de replacer les anomalies du Siegénien dans ce contexte.

Puis nous traiterons du comportement de l'uranium dans l'espace géologique : affinités chimiques et géochimiques.

Enfin ces rappels porteront sur l'uranium dans les schistes noirs : support lithologique présumé des anomalies du Siegénien du Bassin de Neufchâteau.

1.1. COMPORTEMENT DE L'URANIUM AU COURS DES TEMPS GEOLOGIQUES

C'est aux travaux suivants : GARRELS et MAC KENZIE (1971), MENEGHEL (1980), MOREAU (1974) que nous emprunterons l'essentiel des informations de ce chapitre.

1.1.1. Les sources de l'uranium

Il y a plus de trois milliards d'années, la croûte terrestre était essentiellement constituée de roches basiques du type diabases et grauwackes. L'uranium, le thorium, le potassium étaient très peu abondants.

C'est probablement lors des granitisations et magmatisations majeures entre -3 milliards et -2,7 milliards d'années que ces éléments furent extraits du manteau supérieur du globe terrestre. Ces événements constituèrent les débuts de l'histoire de l'uranium dans la croûte terrestre, les roches magmatiques étant le premier hôte important.

A partir de cette période, l'uranium fut dispersé mécaniquement et chimiquement à travers les temps géologiques et fixé sous des conditions particulières par les roches sédimentaires.

1.1.2. De -2,7 milliards d'années à nos jours

Durant l'histoire atmosphérique anoxique de la Terre, les minéralisations en uranium furent essentiellement concentrées dans des conglomérats d'origine fluviatile. Elles consistaient en l'accumulation de grains détritiques de thorianite, d'uraninite, de branérite. L'âge de ces conglomérats est compris entre -2,7 et -2,2 milliards d'années. Ce sont les gisements que l'on rencontre au Canada (gisements de Blend River, et d'Elliot Lake), en Afrique du Sud.(gisement du Witwatersrand). Les gisements d'Elliot Lake et du Witwatersrand actuellement en exploitation constituent 30 % des réserves mondiales en uranium, avec des concentrations pouvant atteindre 0,15 %.

Alors qu'en atmosphère réductrice, le transport de l'uranium s'effectuait mécaniquement à partir des roches ignées acides, l'apparition de l'atmosphère oxydante vers -2,2 milliards d'années, provoque un mode de transport essentiellement chimique.

En effet, dès lors, l'uranium sous sa forme stable U⁴⁺ fut oxydé en U⁶⁺ conduisant à une large distribution de sels d'uranium solubles dans les eaux de surface.

Dès les débuts de cette atmosphère oxydante, les conditions réductrices restèrent intenses en domaine marin, en raison du fort développement de la vie. Ceci conduisit au développement d'un contexte géochimique qui sera favorable au dépôt ultérieur d'uranium dans les sédiments pélitiques organiques marins. Ces gisements, datés entre -1,9 milliard et 1,7 milliard d'années, se trouvent en Australie (gisements de Koongara, Ranger, Jabikula), au Canada (gisements du Saskatchevan) et en Afrique (Gabon). Ils représentent 30 % des réserves mondiales, avec des concentrations allant de 0,2 à 2 %.

Après -1,7 milliard d'années, atmosphère et hydrosphère devinrent très largement oxydantes. Le stock géochimique d'uranium disponible s'appauvrit : la quantité d'uranium dissoute dans les eaux de surface chuta considérablement.

Les conditions réductrices en zone marine devinrent de plus en plus rares. Celles-ci n'étaient réalisées que dans des domaines à l'écart du milieu marin : milieu de type "bassins continentaux."



Fig. l : Schéma récapitulatif de l'histoire sédimentaire de l'uranium dans la croûte terrestre. Ainsi, quelques concentrations plus faibles s'effectuèrent dans des sédiments du type "black shale", principalement durant l'époque Cambrien-Dévonien.

Le développement de la végétation terrestre entre -0,4 et -0,3 milliard d'années changea la physionomie de la Terre. La combinaison d'apports abondants de débris de végétaux avec les sédiments clastiques, fit prédominer entre -0,3 et -0,1 milliard d'années les gisements d'uranium du type "sandstone". Ici, la roche hôte est gréseuse, d'origine fluviatile ou deltaïque. Ces grès poreux chargés en débris organiques, s'intercalant avec des niveaux imperméables pélitiques, furent traversés par des circulations d'eau chargée en uranium. Cet uranium est précipité épigénétiquement dans les sables et grès par la matière organique. Ce type de gisement se rencontre aux Etats Unis(Wyoming), au Niger, en France (Coutras). Ils constituent 30% des réserves mondiales, avec des concentrations variant de 0,15 à 0,5 %.

C'est donc dans ce cadre qu'il faut replacer les anomalies du Dévonien inférieur et principalement celles du Siegénien du Bassin de Neufchâteau (-380 millions d'années) (voir fig. 1).

Tous ces types de gisements, en milieu sédimentaire, constituent les principales ressources d'uranium connues à ce jour. Bien sûr, il en a existé beaucoup d'autres mais d'importance mineure. Ce sont principalement des concentrations sur "black shale" ou sur phosphates qui excèdent rarement les 100 ppm.

A l'heure actuelle, si l'uranium se rencontre un peu partout à l'état de trace, les endroits de concentration sont rares. Un des seuls, relativement bien connu de nos jours, est la Mer Noire où l'uranium se concentre dans des sédiments contemporains de type "black shale". Elle nous servira dans cette présente étude, comme point de comparaison lors de l'édification d'un modèle paléogéographique.

1.2. COMPORTEMENT DE L'URANIUM DANS L'ESPACE GEOLOGIQUE

Les occurences sédimentaires d'uranium peuvent être classées en deux groupes :

- les occurences à minéraux d'uranium exprimés, distribués en concentrations locales dans les sédiments;

- les occurences où l'uranium ne s'exprime pas sous forme de minéral, mais se trouve à l'état diffus dans les sédiments.

- 28 -

Pour comprendre le comportement géochimique de l'uranium en milieu sédimentaire et son piégeage dans une grande variété de gisements, il est nécessaire de rappeler ses propriétés chimiques (GRANDSTAFF, 1976; LANGMUIR, 1978; GIBLIN *et al* 1981; MARTIN, 1962).

1.2.1. Comportement chimique

L'uranium est un élément lithophile qui se rencontre sous deux formes :

- ion tétravalent U^{++} - ion hexavalent U^{6+}

 U^{4+} existe en solution. Il est peu mobile et peu soluble. Il a une très forte tendance à s'oxyder en U^{6+} pour former des cations uranyles UO_2^{++} et même des ions uranates UO_4^{--} , $U_2O_7^{--}$

Pour avoir l'uranium sous la forme U⁴⁺, il faut un milieu très acide tel que les eaux hydrothermales sulfureuses.

L'ion U⁶⁺ fournit immédiatement dans l'eau l'ion complexe uranyle UO_2^{2+} . Ce dernier est l'ion le plus stable en solution. Il est facilement mobilisable.

Mais cet ion uranyle n'existe que dans des milieux très acides (pH < 2) (fig.2). Une augmentation du pH entraîne l'hydrolyse de UO_2^{++} avec formation d'ions $U_2O_5^{++}$,

ou $U_3O_6^{2+}$ ou $(UO_2(OH)_2UO_3)_n$ pour 2 < pH < 5. A pH = 5, i1 y a hydrolyse et précipitation de schoepite $(3UO_3, 7H_2O), (fig.2)$

Fig. 2 : système $U-O_2-H_2O$ à 25°C et 1 atm (d'après HOSTETLER et GARRELS, 1962)



En présence d'ions du type CO_3^{--} , SO_4^{--} , PO_4^{3-} , F, et d'acides organiques l'uranium forme très facilement des complexes (J. MARTIN, 1962). Les complexes uranyl-carbonates en environnement oxydant existent sur de très larges conditions de pH (fig. 3). Les complexes uranyl-sulfates ne dominent qu'à pH acide. Les complexes organiques et fulviques prédominent au voisinage de la neutralité.



Fig. 3 : Phases principales de l'uranium dans une solution simple d'eau.

(d'après CAMERON, 1980)

La précipitation de l'uranium intervient sous l'action des modifications de pH, d'Eh, de pression et de température. Sa fixation peut avoir lieu par des hydroxydes de fer, de manganèse, des minéraux argileux, des phosphates et des matières réductrices.

Si l'ion uranyle se trouve en milieu réducteur, il précipite sous forme d'uraninite.

1.2.2. Le Cycle sédimentaire de l'uranium

L'altération des sources primaires de l'uranium, par les eaux circulantes, a pour effet de le libérer sous sa forme hexavalente, stable en solution aqueuse dans une large gamme de pH. Ce lessivage se fait de manière plus efficace par les eaux de profondeur que par les eaux de surface (CHERVET et COULOMB, 1955 et 1958). L'uranium mobile peut se déposer de deux manières dans les sédiments :

- de manière syngénétique : c'est souvent le cas des gisements à uranium diffus;

- de manière épigénétique, c'est-à-dire par fixation dans les sédiments postérieurement au dépôt : c'est le cas des gisements à minéraux d'uranium exprimés.

Différents "pièges" peuvent intervenir, lors du cycle sédimentaire dans la fixation syngénétique de l'uranium :

- les phosphates fixent l'uranium par substitution des ions Ca²⁺ en U⁴⁺ (BATURIN, 1974; SLANSKY, 1980);

- les argiles fixent l'uranium, par absorption des ions uranium entre leurs feuillets (BROOKINS, 1982; DAVEY et al, 1956; FREDERICKSON, 1948; GOLDSTAUB et al, 1955; MERCIER et al, 1982);

- les oxydes métalliques de Mn et de Fe absorbent l'uranium (GUE-NIOT et al, 1982), ainsi que les nodules polymétalliques (BATURIN, 1973b);

- les sulfures en relation avec la décomposition de la matière organique joue le rôle d'agents réducteurs, précipitant l'uranium (GAUTHIER, 1962);

On peut encore citer :

- la fixation dans des tissus d'organismes lors de leur croissance : tissus animaux ou végétaux, surtout algaires (DISNAR, 1980);

- la fixation par la matière organique soit par absorption, soit par formation de complexes avec des acides organiques (BREGER, 1974,1955);

L'uranium se fixe préférentiellement par ordre décroissant sur les phosphates, la matière organique puis les argiles (SLANSKY, 1980). Il peut se rencontrer dans les minéraux accessoires résistants suivants : zircon, monazite, apatite, xénotime, rutile, leucoxène, sphène, épidote, hérités d'une source primaire (PAGEL, 1982; BASHAM et al, 1982; RANCHIN, 1968).

Suivant la nature des sédiments et leur situation particulière, les teneurs en uranium varient largement. Le tableau (fig. 4) donne les teneurs en radioéléments de différents faciès sédimentaires et de l'écorce terrestre. Il a été établi selon les travaux de CLARK et al (1966).

| type de roche | K(%) | U(ppm) | | Th (| ppm) | T | h/U | Th/K |
|---------------------------------------|---------|---------|---------------------|---------|---------------|------|----------------|---------|
| | moyenne | moyenne | valeurs extrêmes | moyenne | val. extr. | moy. | val. extr. | moyenne |
| sédiments arénacés | 1,4 | 1 | 0,5-2 | 3 | 2-6 | 3 | 1 10 | 2,1 |
| sédiments argileux | 2,7 | 4 | 1-13 | 16 | 2-47 | 4 | 1-12 | 5,9 |
| schistes noirs | 2,7 | 8 | 3-250 | 16 | - | 2 | écart large | 5,9 |
| calcaires | 0,3 | 2 | 1-10 | 2 | - | 1 | - | 6,6 |
| latérites | bas | 10 | 3-40 | 50 | 8- 132 | 5 | écart large | - |
| moyenne de l'écorce ter- restre | 2,1 | 3 | - | 12 | _ | 4 | - | - |

Fig. 4 : Concentration en radioéléments de quelques types de sédiments et moyenne de l'écorce terrestre (d'après CLARK et al., 1966)

L'uranium en terrain sédimentaire est l'objet d'une bibliographie établie par FIX (1959).

Cependant l'uranium peut être précipité épigénétiquement dans les roches sédimentaires. C'est le cas rencontré dans les gisements tectonosédimentaires (fig. 5) : gisement de *Mikouloungou* au Gabon (GANGLOFF, 1970) et dans les gisements de type "*noll-front*" (HARSHMAN, 1974; GRANGER et WARREN, 1969. 1974) . Dans les deux cas, on assiste à la diffusion de fluide oxydant chargé en U⁶⁺, remobilisé à partir de niveaux supérieurs dans des niveaux inférieurs présentant un caractère réducteur (matière organique, pyrite...). Cette remobilisation en milieu oxydant est drainée, soit par un plan tectonique particulier (faille), soit par des niveaux poreux; ce dernier cas correspondant au type "*noll-front*" décrit dans la figure 6. - 33 -



Fig. 5 : Coupe schématique du gisement de Mikouloungou (Gabon)



Plus spécialement dans les gisements de type "roll-front", nous avons en présence deux types de lithologie : un niveau poreux de nature gréseuse encadré par des niveaux imperméables de nature argileuse. Ces couches, basculées ou non après leur dépôt, sont le siège pour les niveaux les plus poreux de migrations de fluide. Ces grès présentant un faciès de type réducteur (matières organiques, pyrites) piègent l'uranium. Les eaux de circulation oxydantes, chargées en uranium U⁶⁺ percolent dans ces niveaux et déplacent un front d'oxydation - réduction où précipite l'uranium U⁴⁺. Le gisement est dynamique. A l'arrière de ce front, les faciès sont oxydés (hématite) tandis qu'à l'avant les faciès ne le sont pas encore (pyrites saines). Le mécanisme se "fossilise" quand le potentiel oxydant du fluide devient inférieur au potentiel réducteur de la couche gréseuse.

1.2.3. L'uranium dans les schistes noirs

Le principal caractère de ce type de gisement est la répartition diffuse de l'uranium au sein de la masse sans aucune expression minéralogique (GAUTHIER, 1962).

L'uranium a deux principaux agents fixateurs :

1.2.3.1. La matière organique (BREGER et al, 1955; BREGER, 1974)

L'affinité entre l'uranium et la matière organique est l'une des plus fortes (CAMERON, 1980). La nature exacte de cette association reste encore imprécise.

La fixation de l'ion uranyle par la matière organique peut se faire à deux stades :

- d'une part lors de la croissance de la plante qui peut accumuler dans ses tissus des teneurs relativement importantes en uranium (DEGENS et al, 1977);

- d'autre part, sur des débris de végétaux et ce, de deux façons (CAMERON, 1980) :

- . par adsorption de l'ion sur les solides organiques,
- . par la réduction de UO_2^{2+} en UO_2 insoluble dû au dégagement de H₂S provenant de la décomposition de la matière organique.

Cependant, il ne faut pas négliger l'action des acides organiques et fulviques dans la formation de sels ou de complexes organouranifères (BACH, 1980).

1.2.3.2. Le matériel phylliteux

Depuis longtemps, le lien entre les argiles et l'uranium a été constaté. Il se ferait par absorption des ions uranyles entre leurs feuillets (GOLDSTAUB et al,1955).

Les affinités de l'uranium avec la montmorillonite et la kaolinite sont les plus classiquement reconnues (GOLDSTAUB *et al*, 1955; NDZIBA, 1982).

Cependant, des affinités de l'uranium avec des argiles essentiellement héritées ont été également observées. Ainsi, E.DAUSACKER BIDONE en 1980 remarque dans des sédiments pliocènes du Bassin néogène du Roussillon des liens entre les niveaux radiogéniques et les niveaux argileux à illite-chlorite.
Récemment, l'Agence pour l'Energie Nucléaire a publié des travaux (A.E.N., 1979) portant sur l' "Utilisation des matériaux argileux pour l'isolement des déchets radioactifs".RANCON et al (1979) observent une rétention maximale par absorption pour un mélange argileux renrermant de l'attapulgite, bentonite et de l'illite.

Ce secteur d'étude reste encore relativement peu connu et les travaux sur ce sujet sont rares.

A ces deux principaux agents de fixation de l'uranium dans les schistes noirs, il faut ajouter les oxydes métalliques qui peuvent intervenir mais d'une façon moindre. Ainsi GUENIOT *et al* (1982) parlent de fixation de l'uranium sur des surfaces d'oxyhydroxydes de fer notamment de la lépidocrocite, ceci principalement par adsorption massive sur les surfaces, mais également par substitution dans les réseaux cristallins eux-mêmes.

1.2.4. Environnements actuels du type "black shales" (B.S.) concentrant l'uranium (BELL, 1978)

Avant de parler des gisements fossiles et afin de les mieux comprendre, je crois qu'il serait bon de s'intéresser aux endroits actuels précipitant l'uranium. Pour cette étude bibliographique, mon intérêt s'est porté sur les "black shales" uranifères, car la lithologie du Siegénien du bassin de Neufchâteau peut s'apparenter à ce type de dépôt.

- "La notion de B.S. est prise ici en tant que sédiment finement grenu à couleur foncée, due à la présence de matière organique : soit en composés carbonés solides (microplancton, spores, fragments de plantes terrestres ou marines), soit en matériel bitumineux. La fraction argileuse est importante et la phase carbonatée existante. La pyrite et la marcassite sont toujours présentes, souvent pour plusieurs pour-cent. Les "black-shales" renferment des concentrations anomales de beaucoup de métaux (U) à l'exception du thorium. Pour le matériel allant du Mésozoïque au Quaternaire, des coccolithes et d'autres éléments planctoniques sont souvent abondants". C'est ainsi que BELL (1978) définit la notion de B.S. avant de parler des milieux actuels concentrant l'uranium.
- La plupart des B.S. en régime récent à actuel concerne des bassins à circulation restreinte. Ils se rencontrent dans certains fjords, comme en Norvège, dans certains milieux confinés euxiniques à plus grande échelle tels que la Mer Baltique et la Mer Noire. Le cas de la Mer Noire est assez bien connu et fait l'objet de nombreuses publications. Etant

- 35 -

une mer fermée, elle est le siège d'un milieu euxinique. Sur les quelques 2200 mètres de profondeur des eaux, seules les eaux chaudes de surface sont oxygénées (fig. 7).



Fig. 7 : Environnements à dépot de black shales (uranifère), d'après THIEDE et van ANDEL (1977).

En dessous de ces eaux à hautes productivités biologiques vers 200 mètres, le milieu devient anaérobie et réducteur. Ces masses d'eaux profondes maintiennent un environnement réducteur consécutif à l'oxydation de la matière organique et au manque de ventilation.

BATURIN (1973a), DEGENS et al (1974) nous livrent une image complète de la Mer Noire (bathymétrie, taux de sédimentation, contenu en uranium et en carbone organique des sédiments de surface). Ils nous montrent l'affinité de l'uranium avec les régions à haut contenu organique, et avec les régions à faible taux de sédimentation tel le delta du Danube et pas nécessairement les plaines abyssales. De plus, il est à noter que ces auteurs ont étudié le contenu en uranium des eaux charriées par les fleuves vers la Mer Noire, nul ne révèle une région source fortement uranifère.

DEGENS et al(1977) signalent que les dépôts de surface de la Mer Noire essen tiellement constitués de coccolithes sont fortement uranifères (100 ppm). BATURIN et al (1971) décrivent le même phénomène sur des boues à diatomées du plateau sud-ouest africain. Les organismes vivants peuvent donc fixer de manière effective l'uranium. - Cependant en opposition aux B.S. uranifères de mer fermée, THIEDE et VAN ANDEL (1977), BATURIN *et al*(1971) décrivent des B.S. uranifères en mer ouverte. Ils notent leur présence sur les parties supérieures du talus de la marge continentale du Nord de l'Océan Indien et du Sud-Est de l'Océan Atlantique (fig. 7). Sous les eaux de surfaces oxygénées à haute productivité biologique se crée, sur le talus continental entre 200 et 1500 m, un milieu anoxique, consécutif à l'oxydation de la matière organique abondante. Le milieu devient ainsi réducteur et donc favorable à la précipitation d'uranium. BATURIN *et al* (1971) indiquent des concentrations en uranium sur le bord du plateau sud-Ouest africain de l'ordre de 60 ppm.

En dessous de 1500 m environ, les conditions redeviennent oxydantes grâce à la remontée des courants de fonds.

En conclusion à ce paragraphe, les conditions favorables au développement des B.S. uranifères sont (BELL, 1978) :

- une très lente sédimentation contrôlée par de rares décharges de matériels terrigènes : 0,1 cm/1000 ans selon BJORLYKKE (1974),

- un contenu en carbone organique élevé,

- une faible ventilation,
- la présence d'H₂S,
- un procédé de fixation biologique,

- une concentration maintenue et enrichie en solution dans l'eau (au moins deux ppb U).

Les conditions qui ont présidé au dépôt des "black shales" semblent se rapprocher de celles qui ont régné dans le bassin ardennais au Siegénien inférieur mis à part un taux de sédimentation nettement élevé en Ardenne, puisque le Siegénien peut atteindre 2 km d'épaisseur pour un intervalle de temps de 7 à 8 millions d'années.

CHAPITRE II

Localisation et présentation du secteur d'étude -:

- Localisation géographique

Cadre géologique

Présentation paléogéographique

Déformations structurales





LOCALISATION ET PRESENTATION DU SECTEUR D'ETUDE

2,1. LOCALISATION GEOGRAPHIQUE

Le terrain d'étude, sur lequel ont porté mes recherches, se situe dans le synclinorium de Neufchâteau (fig. 8); à l'Est du Massif de Givonne et au Sud du massif de Serpont (1). Il s'étend du Nord au Sud de Bertrix à Florenville ; d'Ouest en Est, d'Herbeumont à Suxy.

Il est traversé par deux rivières : la Semois et la Vierre (fig.9). Leurs vallées encaissées, surimposées au relief peu marqué de l'Ardenne, constituent les principales zones d'affleurements.



Fig. 8 : Situation géographique.

Ce secteur est presque totalement recouvert de forêts, exceptée sa partie extrême sud qui fait place à une végétation herbacée en liaison avec le sous-sol jurassique. La limite Primaire-Jurassique constitue la bordure sud de mon terrain d'étude.

 Rappelons que le synclinorium de Neufchâteau ainsi nommé par les géologues belges, est appelé Synclinorium de Charleville-Eifel par les français.

2.2. CADRE GEOLOGIQUE

2.2.1. Localisation géologique

Le synclinal de Neufchâteau est compris entre l'anticlinal de l'Ardenne au Nord, qui comprend les massifs de Rocroi, Serpont, Bastogne et l'anticlinal de Givonne au Sud.

Alors que sur ces anticlinaux la couverture de Dévonien inférieur fut complètement érodée, elle constitue les formations sédimentaires du synclinorium de Neufchâteau (fig. 9), plongeant vers l'Est.

A l'Ouest, il est recouvert par les transgressions jurassiques du Nord-Est du Bassin de Paris.

La partie occidentale du synclinorium de Neufchâteau, coincée entre les massifs de Rocroi et de Givonne, est très étroite. Elle est constituée par les formations précoces de l'Eodévonien : Gédinnien, Siegénien inférieur et moyen.

S'élargissant et s'approfondissant rapidement à l'Est, le synclinorium de Neufchâteau laisse apparaître dans sa partie centrale des assises de plus en plus récentes de l'Eodévonien: le Siegénien supérieur et l'Emsien (fig. 9).

Mon terrain d'étude se situe juste à cet élargissement. Il est essentiellement centré sur le bord sud du Synclinorium de Neufchâteau. Il est traversé d'Est en Ouest d'une faille à pendage Sud ou plutôt d'une zone faillée pouvant avoir 2 km de large, nommée la faille d'Herbeumont. Le compartiment méridional, constituant le flanc Nord du massif de Givonne est uniquement constitué de Siegénien inférieur. Quant au compartiment septentrional, il est le siège d'une terminaison périsynclinale du Siegénien supérieur.

2.2.2. Présentation lithologique

Dans le cycle transgressif de l'Eodévonien et à partir du Siegénien inférieur, on peut opposer dans les différentes assises éodévoniennes des faciès méridionaux à des faciès septentrionaux, ces derniers étant à forte tendance continentale (faciès rouges). Le passage entre les faciès se fait sur le bord oriental du bassin de Dinant.



 Cette étude ne concerne que les faciès méridionaux. Le Siegénien a été divisé par ASSELBERGHS (1946) en trois assises relativement distinctes dans toute l'Ardenne méridionale : le Siegénien inférieur, moyen et supérieur.

2.2.2.1. Le Siegénien inférieur : le faciès d'Anlier

En opposition avec son faciès homologue septentrional riche en quartzites, ce faciès méridional est marqué par l'abondance de roches argileuses, où alternent des schistes noir bleuté, à débit plus ou moins fin, des phyllades avec des bancs ou paquets lenticulaires de quartzites de teinte claire.

Il est courant d'y observer des ripple marks (Planche I, photo n°4 : ripple marks en contre-empreinte).

J'ai parfois remarqué au sein des formations schisteuses la présence de quelques rognons d'oxydes de fer plus ou moins aplatis selon le plan de schistosité. Ceux-ci sont sans doute à rattacher aux rognons de sidérose et de limonite décrits par ASSELBERGHS (1946) au bord sud du bassin de Dinant.

J'ai rencontré rarement, des niveaux schisteux contenant des petits nodules de calcaire de 1 à 2 centimètres de diamètre.

D'un point de vue paléontologique, le faciès d'Anlier n'est pas riche en fossiles (ASSELBERGHS, 1946); l'auteur signale quelques brachiopodes, ostracodes et débris de végétaux. Personnellement, je n'ai rencontré que des schistes à végétaux dans la zone faillée d'Herbeumont.

Selon ASSELBERGHS, le Siegénien inférieur atteint, dans ce secteur, une épaisseur de 500 à 1000 m.

2.2.2.2. Le Siegénien moyen : faciès de Bouillon

Le faciès de Bouillon est riche en éléments carbonatés. Il est formé d'alternance de quartzophyllades, de phyllades calcareux, de bancs fossilifères quartzocalcareux du type macigno , de phyllades bleus, de quartzites et parfois de lentilles de calcaire crinoïdique bleu.

Le Siegénien moyen dans le présent secteur est formé de phyllades calcareux, de quartzophyllades et de schistes calcareux ou non. Ces faciès ont des teintes grises. D'un point de vue paléontologique, il renferme la faune la plus riche de l'Eodévonien (ASSELBERGHS, 1946). Son épaisseur est de 4 à 500 m.

2.2.2.3. Le Siegénien supérieur : faciès de Neufchâteau

Le faciès de Neufchâteau est un faciès essentiellement phylladeux ou schisteux. Les teintes bleu-noir sont à nouveau dominantes. Il est souvent pyriteux. Cependant, quelques quartzophyllades sont présents. Des nodules carbonatés et des nodules ferrugineux y ont été remarqués.

D'un point de vue paléontologique, les fossiles sont rares. Son épaisseur est estimée par les auteurs entre 400 et 600 mètres.

Le Siegénien livre pour sa totalité une épaisseur de 2000 m,qui s'intègre dans le cycle transgressif de l'Eodévonien à sédimentation détritique, d'une épaisseur maximale de 9000 m dans le synclinal de Neufchâteau-Eifel (ASSELBERGHS, 1946). Ces épaisseurs importantes témoignent d'une forte subsidence, d'autant plus que les faciès du Siegénien et de l'Emsien sont reconnus par les auteurs comme des faciès marins peu profonds.

2.3. PRESENTATION PALEOGEOGRAPHIQUE DU SIEGENIEN DE L'ARDENNE

Après la phase brabançonne de l'orogenèse calédonienne responsable de la surrection du continent brabançon, les mers éodévoniennes reprirent possession de l'Ardenne, accumulant durant le Dévonien inférieur d'épaisses séries détritiques en liaison avec une forte subsidence.C'est le stade de la "sédimentation géosynclinale normale" du géosynclinal ardenno-rhénan (BLESS et al, 1980).

L'Eodévonien montre dans chacune de ses assises (stratigraphiques) une distribution spatiale caractérisée par des faciès septentrionaux littoraux à dominante arénacée et des faciès méridionaux néritiques à dominante pélitique. L'intensité de la sédimentation va croissante du Nord au Sud; pour atteindre son maximum dans le synclinorium de Neufchâteau-Eifel qui constitue le centre du bassin de sédimentation éodévonien belge.

Après des oscillations durant le Gédinnien, la transgression éodévonienne vers le Nord atteignit probablement son maximum au Siegénien moyen, dont les dépôts néritiques fossilifères se rencontrent sur le bord Nord du Bassin de Dinant (BLESS et al, 1980).

Cette transgression ardennaise ne s'est pas étendue très loin vers le Nord puisqu'au Nord de la ride bollandienne, sous la Campine, le sondage n'a pas mis en évidence l'Eodévonien (MICHOT, 1980) : "A Bolland, la puissance de l'Eodévonien probablement encore réduite par l'érosion avant le dépôt du Dévonien supérieur est de 940 mètres; ce qui implique une atténuation relativement rapide du prisme sédimentaire en direction du continent." Notons que la ride bollandienne, phénomène local de ride émergée, est restée sous les eaux éodévoniennes jusqu'à l'Emsien inférieur.

La figure 10 replace l'Ardenne dans le bassin dévonien du Nord-Ouest de l'Europe tout en considérant les positions actuelles. Ce schéma est une modification de la représentation de KENT P.E. (1980). Notons d'une part que les différents éléments ne sont pas remis en place comme antérieurement à l'orogenèse hercynienne. Elle tient compte des positions actuelles. D'autre part, le bassin ainsi représenté est valable pour tous les étages du Dévonien. Il est sûr que la mer siegénienne ne s'étendait pas aussi largement sur le Continent Nord Atlantique, selon ce qui a été dit précédemment.

D'après BLESS, BOUCKAERT et PAPROTH (1980), au Dévonien inférieur, le massif du Brabant et le massif gallois étaient raccordés au bouclier baltique par une plate-forme. Au Nord de ce bloc émergé, dans un domaine allant de l'Irlande à la Norvège, s'était effectuée une sédimentation continentale dans des bassins intramontagneux tandis qu'au Sud, une sédimentation marine de matériel terrigène s'était accomplie dans un bassin subsident.

ASSELBERGHS décrit dans ses travaux sur l'Eodévonien de l'Ardenne (1946) l'époque siegénienne comme un changement radical des conditions de vie dans les eaux. Alors que le Siegénien inférieur développait un milieu réducteur, hostile au développement de la vie dans les eaux (formation de schistes noirs pyriteux à matériaux organiques d'origine continentale), la vie "explose" au Siegénien moyen avec l'apparition de plus de 200 espèces fossiles , faisant de cette assise une des plus fossilifères du Dévonien de l'Ardenne. Les faciès ne sont plus ceux d'un milieu réducteur. Avec le Siegénien supérieur, on observe sensiblement le retour aux mêmes conditions que celles du dépôt de l'assise inférieure et à la réapparition de schistes noirs pyriteux.

Cette notion de vie aura une grande importance dans la suite du travail. En effet, la matière organique constitue un agent potentiel de fixation de l'uranium et savoir si cette matière organique est d'origine marine ou continentale, influera sur l'élaboration d'un modèle paléogéographique concentrant l'uranium.

- 46 -



Fig. 10 : Bassin dévonien du Nord-Ouest de l'Europe, localisation de l'Ardenne, d'après KENT (1980).

Selon ASSELBERGHS, la matière organique des sédiments du Siegénien et spécialement du Siegénien inférieur (que l'on étudiera plus précisément) est d'origine continentale (végétaux flottés). Mais l'exemple de la Mer Noire permet peut-être d'envisager une origine marine, en provenance de la vie dans les eaux superficielles. Ceci est peu probable car les seuls débris organiques observés sont des débris de végétaux ou des pollens. Pourquoi des organismes marins planctoniques ou autres ne seraient-ils pas conservés ?

2.4. DEFORMATIONS STRUCTURALES : Les données de terrain

L'étude des déformations et principalement l'étude des joints en compression ou en extension était l'un des pôles d'intérêt de mon étude de terrain. Lors de la prospection autoportée, des joints de déformations minéralisés en pranium furent observés en deux endroits :

- dans du Gédinnien à l'Ouest de mon terrain, près de Vresse sur Semois,

- dans du Siegénien, au Nord de mon terrain, près de Bertrix.

L'étude de ces anomalies en uranium associées à la fracturation fait l'objet des recherches d'une thèse d'Université de Lille préparée par P. DOREMUS, en collaboration avec la F.P.Ms..

Les observations de terrain ne m'ont livré aucun joint tectonique de ce type.

2.4.1. Le plissement

Le plissement hercynien en Belgique date de la fin du Westphalien. Sa vergence Sud-Nord, avec des déformations plus précoces dans la partie méridionale, implique tous les dépôts paléozoïques. Cette déformation plastique régionale subie par l'Ardenne étant la dernière, l'orogène varisque reste conservé dans sa forme originelle.

L'orogène varisque en Belgique est dû à un resserrement crustal N-S, dont les contraintes subhorizontales majeures ont une vergence Nord, vers l'avant-pays (MICHOT, 1980). Il est constitué d'anticlinoriums et de synclinoriums dont les plans axiaux des plis sont généralement très redressés. Dans les synclinoriums, tous les plis d'un même versant ont tendance à se déverser dans le même sens, lequel est dirigé vers la partie axiale du Synclinorium souligné par la présence des couches les plus jeunes. Le synclinorium de Neufchâteau-Eifel donne un excellent exemple de cette convergence des plans axiaux vers leur zone centrale.

Cependant, il faut différencier l'allure des plis selon les versants septentrionaux et méridionaux des synclinoriums. Alors que les plis des versants Nord sont simplement déjetés, ceux du flanc Sud présentent des plis déversés.

Le flanc sud des synclinoriums est généralement plus redressé que le flanc nord, lui procurant une allure générale de déversement du plan axial vers le Nord.

S'intégrant dans le bord Sud du synclinorium de Neufchateau, le style de plissement de mon terrain d'étude est formé en général de plis déversés vers le Nord. Toutefois, deux secteurs peuvent être distingués.

2.4.1.1. Le secteur Ouest

La coupe naturelle de la vallée de la Semois à l'Ouest des Epioux (fig. 11 et 12) montre une série du Siegénien inférieur intensément plissée et déversée vers le Nord dont les flancs des plis à tendance isoclinale sont inclinés de 40 à 50° en moyenne vers le Sud, voire certains très redressés à 70°.

D'une manière générale, chaque fois qu'il m'a été possible d'observer les plis dans leur totalité, le flanc Nord se présentait plus incliné que le flanc Sud (fig. 11) avec des plis mettant en évidence des axes de direction moyenne 110°N à ennoyage de 10 à 15° vers l'Est.

Le stéréogramme ci-après (fig. 12) établit les mesures de terrain concernant ces plis; il m'a été très difficile de distinguer les flancs inverses des flancs normaux. L'absence de critère de polarité, m'a obligé à porter mon attention sur la comparaison entre les inclinaisons de la schistosité de plan axial et de la stratification. Ces inclinaisons étant trop différentes et tenant compte de la marge d'erreurs, il m'a paru aberrant d'en tenir compte pour une éventuelle distinction. Ce nuage de points regroupe donc les deux flancs.

- 49 -





- Fig. 11 : Style des plis du secteur Ouest du terrain.
- Fig. 12 : Report sur stéréogramme des pôles des plans de stratification, associés aux plis du secteur Ouest.

J'ai également observé l'amplitude de certains de ces plis . Sur la rive gauche de la Semois, face au "Rocher du Chat", cette amplitude atteint 40 à 50 mètres (fig. 11).

Il faut remarquer que l'allure plus ou moins isoclinale de ces plis est directement en relation avec la nature et la compétence des roches impliquées.

2.4.1.2. Le secteur Est

A l'Est de Chiny, la série siegénienne apparaît moins intensément plissée. Les plis déversés vers le Nord subsistent, mais sont accompagnés de plis déjetés. De plus, ces plis se surimposent à de grands plis cylindriques. Ces grandes ondulations ont un axe sensiblement de même direction que les autres plis 100°N et présentant toujours un ennoyage Est. La coupe de la Vierre (fig. 13 et 14) combine ces deux types de plis.

- 50 -







Fig. 14 : Report sur stéréogramme des pôles des plans de stratification, associés aux plis cylindriques.

Il faut souligner ici la naissance, dans des bancs gréseux d'une quarantaine de cm d'épaisseur, de failles dans les flancs inverses septentrionaux, ans doute lors du passage plis déjetés-plis déversés. Ceci est le témoignage d'une contrainte majeure orientée vers le Nord. Ce sont des pli-failles en relation évidente avec la compétence des roches, mais pouvant traduire un phénomène à plus grande échelle sur des séries plus importantes(fig. 15).



Fig. 15 : Naissance de pli - failles (coupe du barrage de la Vierre).

- 51 -

En résumé, nous pouvons dire que les séries du Siegénien ont été intensément plissées et déversées vers le Nord entre les massifs de Givonne et de Rocroi et que, en dehors de ces massifs agissant comme les machoires d'un étau, le style garde toujours la même allure de déversement vers le Nord, mais avec des séries moins intensément plissées. Les plis présentent tous un ennoyage de leurs axes vers l'Est, témoignant d'un approfondissement oriental du bassin de Neufchâteau. Ces observations viennent préciser celles effectuées par ASSELBERGS (1946).

2.4.2. La fracturation : Les failles

Le Siegénien du bord Sud du Synclinorium de Neufchâteau est intensément faillé. Le report des données sur rosace fait apparaître une famille importante de failles à direction sensiblement Est-Ouest. Ces failles à pendage Sud de l'ordre de 50° sont en rapport avec la direction des plis et passent le plus souvent dans le voisinage d'une charnière anticlinale; un phénomène à plus grande échelle de petits pli-failles cités dans le paragraphe ci-dessus est à envisager, ainsi que de simples failles inverses (fig. 16 et 17) peu importantes dans l'espace.





Fig. 16 : Pli-faille observé sur la rive gauche de la Semois enface du Rocher du Chat.

Fig. 17 : Faille inverse observée dans le secteur de Chiny.

Cette famille de failles est à rattacher à la zone broyée d'Herbeumont qui n'est qu'une amplification de ces phénomènes locaux à l'échelle anticlinorium-synclinorium. Cette faille d'Herbeumont à pendage Sud, occupant le flanc méridional du Synclinorium de Neufchâteau est un charriage d'une partie de ce versant Sud et de l'anticlinorium de Givonne qui le suit sur la partie axiale du synclinorium de Neufchâteau(fig. 9).

Dans de nombreux cas, les failles sont accompagnées de plissotements qui sont soit des ondulations, soit des petits plis en chevron, témoins d'une tectonique d'entraînement.

Les plus beaux plis d'entraînement jalonnent la faille d'Herbeumont. Ces plis dont l'amplitude est d'une quarantaine de centimètres peuvent être des zones plus ou moins broyées (fig. 18) mais également des plis compacts (photo n°2, planche II). Nous sommes amenés à constater que ces plis d'entrainement ont un plan axial à pendage Nord, contrairement aux plis de déformation plastique.



Fig. 18 : Zone broyée appartenant à la faille d'Herbeumont, montrant des plis d'entraînement à plans axiaux inclinés vers le Nord.

Lorsque nous nous reportons à la rosace directionnelle des failles, nous observons des failles subverticales de très faible extension (fig. 19) appartenant à une seconde famille sensiblement N-S. Cette famille est sans doute, à rapprocher de la phase compressive E-W postérieure à la phase N-S évoquée par J.P. COLBEAUX (1977) dans son étude sur la fracturation du Nord de la France.



Fig. 19 : Rosace directionnelle des failles, (portant sur une centaine de données).

• 0 •

- 55 -CHAPITRE III Résultats des prospections radiométriques : autoportée pédestre



- 5**7 -**

CHAPITRE III

LES RESULTATS DE LA PROSPECTION RADIOMETRIQUE

3.1. LES DONNEES PRELIMINAIRES DE LA PROSPECTION AUTOPORTEE

3.1.1. Le Bassin de Neufchâteau dans sa totalité

La prospection en uranium de l'Ardenne effectuée par trois Universités de Belgique (voir paragraphe 1 de l'introduction) fait l'objet d'un ouvrage : "Reconnaissance survey for uranium in the Belgian Paleozoic" par CHARLET, DEJONGHE, DE WITTE, HENRY, HERBOSCH, LEFIN. MARTIN (1983).

Nous ne donnerons pas la description du matériel et des techniques utilisés par le Laboratoire de Minéralogie de la Faculté Polytechnique de Mons, lors de la prospection radiométrique autoportée. Il suffira pour cela de se reporter à l'ouvrage précédemment cité. Nous présenterons uniquement les résultats obtenus sur le Dévonien inférieur du Bassin de Neufchâteau et plus spécialement sur le Siegénien.

Le Siegénien apparaît être l'étage du Dévonien inférieur le plus favorable à la concentration de l'uranium. La figure 20 ci-dessous tirée du rapport de la prospection, nous livre les moyennes et les écart -types des différentes teneurs en radioéléments de trois assises du Dévonien inférieur, ainsi qu'une moyenne globale du Dévonien inférieur.

| Formations | | eU (ppm) | Th (ppm) | K (%) | TC (Ur) | Th/U | |
|--------------------|-----------|-------------|--------------|---------------|--------------|------------------------|--------------|
| Dévonien inférieur | Gédinnien | - x s | 3,35 1,52 | 9,83 2,99 | 2,16 0,72 | 18,59 5,37 | 4,23 7,98 |
| | Siegénien | - x s | 3,79 2,18 | 10,63 3,16 | 2,27 0,65 | 20,89 5,83 | 3,63 2,92 |
| | Emsien | - x s | 3,77 1,53 | 11,20 2,80 | 2,49 0,74 | 22,01 5,14 | 3,68 2,79 |
| | Dev.inf. | x s | 3,70 1,81 | 10,73 3,01 | 2,35 0,72 | 20,96 5, 5 8 | 3,76 4,27 |

Fig. 20 : Teneurs moyennes en radioéléments des formations du Dévonien inférieur enregistrées lors de la prospection radiométrique autoportée. Afin d'effectuer une représentation cartographique des secteurs anomaliques, les auteurs ont regroupé toutes les données de terrain selon trois classes :

une classe 1 de 0 à 3 ppm d'eU
une classe 2 de 3 à 6 ppm d'eU
une classe 3 supérieure à 6 ppm d'eU

Dans l'interprétation des cartes radiométriques, il y a lieu d'être cependant prudent. Les zones à forte intensité de rayonnement correspondent généralement aux régions d'affleurement. Ces zones ont souvent une morphologie allongée et sinueuse suivant les contours des vallées ou des routes, plutôt que selon la structure géologique. La rareté des anomalies dans certaines tégions est probablement liée à la rareté des affleurements due à l'absence de relief.

Sur les différents points (818) de levés radiométriques, introduits pour le traitement par ordinateur de la carte radiométrique du Dévonien inférieur du synclinorium de Neufchâteau, 88 révélèrent une concentration en eU supérieure à 6 ppm. La plupart de ceux-ci sont situés dans du Siegénien et principalement le Siegénien inférieur. La figure 21 nous montre la localisation de ces anomalies.



Fig. 21 : Carte des anomalies radiomériques découvertes lors de la prospection autoportée dans le bassin de Neufchâteau (extrait de Charlet et al., 1983) :

> G = Gédinnien, S = Siegénien inférieur, S = Siegénien moyen, S = Siegénien supérieur, E = Emsien .

- 58 -

Le flanc Sud du Synclinorium de Neufchâteau montre une série d'anomalies alignées Est-Ouest dans les forêts de Bouillon, Muno, Herbeumont, Chiny et Rulles.

Sur le flanc Nord du Synclinorium, trois anomalies sont localisées entre Bertrix et Neufchâteau dans le Siegénien inférieur.

La vérification sur le terrain par un levé pédestre montre en fait que des anomalies localisées par l'autoportée ne sont parfois que de fausses anomalies (parfois origine anthropique : anciennes scories liées au traitement de minérai de fer).

3.1.2. L'anomalie du lac du barrage de la Vierre

La figure ci-dessous(fig. 22) nous montre l'enregistrement de cette anomalie lors de la prospection autoportée.



Fig. 22 : Enregistrement de l'anomalie du barrage de la Vierre lors de la prospection autoportée

On observe nettement sur la courbe globale(TC) la localisation d'une zone anormale sur un fond radioactif plus faible (les anomalies sont ici graduées en millimètres). Les trois courbes supérieures d'enregistrement concernent: le potassium 40, la famille de l'uranium 238 (Bi 214), la famille du thorium 232 (Tl 208) . L'anomalie de radioactivité globale

- 59 -

se superpose à une anomalie en uranium et en potassium. La conversion des résultats de l'autoportée en concentration de radioéléments suivant la méthodologie développée par CHARLET et al.(1982) conduit aux résultats suivants (fig. 23).

| | K ₂ 0 (%) | eU (ppm) | Th (ppm) | Tc (Ur) |
|------------------|----------------------|----------|----------|---------|
| Barrage/Vierre 1 | 2.43 | 16.73 | 11.51 | 30.31 |
| Barrage/Vierre 2 | 4.21 | 11.34 | 15.57 | 33.53 |
| Barrage/Vierre 3 | .3.02 | 13.13 | 13.54 | 30.31 |
| Barrage/Vierre 4 | 3.91 | 14.93 | 13.54 | 38.35 |

Fig. 23.: Conversion des anomalies de l'autoportée en

concentration de radioéléments(anomalie du barrage de la Vierre) Cette anomalie fut le point de départ de mes travaux de recherche de thèse de 3ème Cycle. Dans un premier temps, mon travail a été d'étudier le contexte géologique dans lequel elles apparaissent et d'effectuer un levé radiométrique au scintillateur portatif afin de localiser avec précision les zones radioactives. Dans un second temps, partant des connaissances acquises sur l'anomalie de la Vierre, j'étendis la prospection radiométrique pédestre à tout le flanc méridional du bassin de Neufchâteau afin de rechercher l'existence de nouvelles anomalies en relation stratigraphique ou non avec celle de la Vierre.

3.2. LA PROSPECTION SCINTILLOMETRIQUE PEDESTRE

3.2.1. Appareillage et technique de prospection

Afin de resserrer la maille de prospection autoportée, j'ai entrepris une prospection radiométrique pédestre, à l'aide d'un scintillomètre portatif Géométrics Modèle GR-101 A (fig. 24).

Périodiquement j'ai procédé au calibrage du scintillomètre sur la station d'étalonnage construite à cet effet par la Faculté Polytechnique de Mons. Cette station est composée de quatre dalles de béton de deux mètres de diamètre ét de 0,65 m d'épaisseur. Trois d'entre elles sont respectivement "dopées" en U (36 ppm), Th (102 ppm) et K (8,19 % K₂O); tandis que la dernière correspondant au béton sert de référence au bruit de fond (voir fig. 25).



Fig. 24 : Schéma du scintillomètre portatif employé de type Géométrics Modèle GR-101 A .

| | ETALONNAGE D | OU SCINTILLOMET | RE GEOMETRICS | GR 101 A |
|----------|--------------|---------------------|---------------------|--------------------|
| DATES | DALLE BETON | DALLE U | DALLE TH | DALLE K |
| 25/06;81 | 10 c/s | 130 c/s | 200 c/s | 60 c/s |
| 21/09/81 | 22 c/s | 140 c _{/s} | 200 c/s | 60 c/s |
| 28/03/82 | 19 c/s | 140 c/s | 190 c/s | 58 c/s |
| 29/08/82 | 20 c/s | 125 c/s | 180 c _{/s} | 55 c/ _s |

Fig. 25 : Calibrage du scintillomètre

sur la station d'étalonnage de la F.P.Ms.

La prospection pédestre a porté à la fois sur les itinéraires de l'autoportée afin de vérifier et de compléter les observations (il faut tenir compte du fait que l'appareillage de la prospection autoportée a un rayon d'action de 5 mètres) et sur les secteurs inaccessibles à un véhicule tous terrains.

3.2.2. Conversion de la radioactivité totale "TC" en unité de radioactivité

Afin de standardiser les résultats du comptage global ou "total count", nous avons adopté l'unité de radioactivité Ur recommandée par l'Agence Internationale de l'Energie Atomique (I.A.E.A.).Un Ur est le taux de comptage qu'on obtiendrait sur une formation homogène qui contiendrait l ppm d'uranium en équilibre radioactif.

La conversion de la radioactivité de coups/seconde en Ur répond à la formule suivante :

$$Ur = \frac{N - n}{a_u}$$

où N = le total count en c/sec

- n = le bruit de fond correspondant à environ 10c/sec, selon les essais effectués par le Laboratoire de Minéralogie de la Faculté Polytechnique de Mons (CHARLET et al., 1982)
- a = coefficient de calibrage du scintillomètre, calculé à partir de la dalle dopée en uranium.

La détermination du facteur a se fait de la façon suivante :

TC_b = total count enregistré sur la dalle de béton

La dalle étant dopée à raison de 36 ppm et à partir des moyennes des valeurs notées dans la figure 25 du paragraphe précédent, on obtient :

$$a = \frac{133,75 - 18,75}{36} = 3,2$$

soit finalement :

$$U_r = \frac{N-10}{3,2}$$

3.2.3. Présentation générale des résultats de la prospection pédestre

La propection scintillométrique a porté à la fois sur le compartiment méridional de la faille d'Herbeumont, exclusivement dans le Siegénien inférieur et sur le compartiment septentrional jusqu'au coeur du synclinorium. Le Siegénien inférieur du flanc Nord du synclinal a fait en outre l'objet d'une extension de la prospection.

3.2.3.1. La prospection du Siegénien inférieur

Le Siegénien inférieur est la seule assise qui ait livré de véritables anomalies.

La radioactivité totale enregistrée varie de 10 Ur à 150 Ur. Ces zones anormales se localisent essentiellement dans les vallées de la Vierre et de la Semois, lieux privilégiés d'affleurements.

On peut différencier des séries anomales et des pointements anomaux. Trois séries anomales, correspondant en réalité à une succession de couches radioactives, ont été mises en évidence dans la partie Est du secteur étudié. Celles-ci sont (fig. 26) :

- la série anomale du lac du barrage de la Vierre,
- la série anomale de Chiny dans la vallée de la Semois, 1,5 km à l'Est de Chiny,
- la série anomale des Croisettes, dans la vallée de la Vierre, 1,5 km au Sud-Est du barrage de la Vierre.

Les séries s'étendent à l'affleurement sur 200 à 300 mètres. Elles adoptent une allure stratiforme dans l'ensemble schisto-gréseux du Siegénien inférieur. Le plus souvent, la nature lithologique des horizons porteurs est de type schiste noir. Cependant des anomalies dans des bancs gréseux ont été découvertes.

Plus à l'Est, aux étangs des Epioux, et plus précisément dans la vallée de la Semois, je n'ai pas retrouvé de telles séries. Uniquement des pointements à radioactivité anormale de faibles intensités ont été mis en évidence. Ce sont (fig. 26) :

- l'anomalie des Epioux qui apparaît à la faveur d'une carrière;

- l'anomalie de l'Abbaye de Conques, sur la rive gauche de la Semois, 2 km au Sud-Est d'Herbeumont; - l'anomalie d'Herbeumont, sur la rive droite de la Semois, 1km à l'Est-Sud Est d'Herbeumont,

- l'anomalie du Rocher du Chat, 1,5 Km à l'Ouest des Epioux dans la vallée de la Semois.

L'anomalie d'Herbeumont, à l'opposé des autres de type stratiforme, serait liée à une faille.

Conscient des tendances anomales du Siegénien inférieur sur le flanc méridional du synclinorium de Neufchâteau-Eifel, j'ai étendu la prospection sur le flanc septentrional. La radioactivité totale y varie entre 9,4 Ur et 21,9 Ur; les valeurs les plus faibles correspondant aux strates de nature gréseuse. Je n'ai pas retrouvé d'anomalie semblable aux types précédents. Parfois le bruit de fond sur schistes noirs est assez élevé, presque 22 Ur.

Notons que cette partie du flanc Nord montre peu d'affleurements, les vallées encaissées faisant défaut. Il faut tenir compte de la rareté des affleurements avant de parler d'absence d'anomalie.

3.2.3.2. La prospection du Siegénien moyen

Le changement de faciès du Siegénien moyen (faciès plus ou moins carbonaté de couleur grise, voir paragraphe 2.2.2.2), se traduit au niveau du bruit de fond radiométrique. La radioactivité totale varie entre 7,8 Ur et 15,6 Ur : les valeurs plus faibles concernent les grès, les valeurs les plus fortes, les schistes.

Le milieu étant moins réducteur, la concentration en métaux, notamment en uranium, s'affaiblit.

3.2.3.3. La prospection du Siegénien supérieur

La radioactivité totale enregistrée sur le Siegénien supérieur, varie de 15,6 Ur à 21,9 Ur. Ce bruit de fond plus élevé souligne le retour à des faciès plus favorables à la concentration d'uranium. Cependant, aucune anomalie n'a été découverte. La limite inférieure, relativement élevée du bruit de fond, traduit la nature essentiellement schistes noirs du Siegénien supérieur.

Mon attention a porté plus particulièrement sur les affleurements bordant les ruisseaux au Sud de la route d'Herbeumont à Straitmont. Le Laboratoire de Géochimie de Louvain-la Neuve (rapport final de la



Fig. 26 : Localisation des anomalies découvertes selon les couches géologiques du bassin de Neufchâteau.

prospection uranifère du PaléozoTque belge sus-cité) a décelé dans ce secteur des anomalies en uranium sur alluvions supérieures à 3 ppm. Or la prospection scintillométrique sur la roche mère n'a pas révélé d'anomalie. Ceci peut s'expliquer par le biais d'une concentration de l'uranium dans le temps et non dans l'espace. L'anomalie sur alluvions en U se superposant parfaitement à une anomalie en fer, les oxydes de fer présents dans les alluvions absorberaient progressivement l'uranium des eaux de lessivage provenant des roches mères à contenu uranifère normal.

- 66 -

En conclusion à cette présentation générale des résultats de la prospection scintillométrique, mon idée première était l'établissement d'une carte de radioactivité de mon terrain d'étude. Or, compte-tenu de la rareté des affleurements se limitant aux vallées et de la relative rareté des anomalies découvertes, je n'ai pas jugé utile de dresser une telle carte. Toutefois, une carte des itinéraires parcourus a été faite afin de localiser les secteurs étudiés qui pourraient intéresser des travaux ultérieurs (planche hors texte).

• 0 •

CHAPITRE IV Présentation et étude stratigraphique anomalies du Siegénien inférieur : des les séries anomales les pointements anomaux



- 69 -

CHAPITRE IV

PRESENTATION ET ETUDE STRATIGRAPHIQUE DES DIFFERENTES ANOMALIES DU SIEGENIEN INFERIEUR

4.1. LES SERIES ANOMALES DU SIEGENIEN INFERIEUR

4.1.1. L'anomalie du lac de la Vierre

Elle se situe principalement sur la rive Ouest du lac du barrage de la Vierre où les affleurements sont les mieux dégagés. Elle s'intègre dans une coupe de style souple, à grands plis cylindriques de direction Est-Ouest, présentant parfois des petits plis de faible amplitude (de deux à trois mètres) déjetés à déversés vers le Nord (fig. 27). Les séries sont découpées par des failles de direction sensiblement Est-Ouest à pendage très fort vers le Sud.





Les roches à l'affleurement sont constituées de schistes noirs fins, de schistes noirs gréseux à débit plus grossier, de quartzites sombres pouvant présenter des laminations ou des stratifications entrecroisées. La dominance gréseuse est davantage marquée au Sud de la coupe où affleurent les niveaux inférieurs. C'est dans cette partie sud, que se localise la série anomale sur près de 250 mètres.

4.1.1.1. Etude stratigraphique

Cette zone anomale est scindée en deux compartiments par l'intermédiaire d'une faille F₁ (associée à une faille satellite).

- le compartiment méridional (fig. 28)

Celui-ci comprend de bas en haut :

- 5 mètres de schistes noirs fins,
- un niveau gréseux constitué de 2 bancs onduleux, épais chacun d'une quarantaine de centimètres,
- 1,5 m de schistes noirs fins,
- 8 à 10 m de quartzites oxydés en bancs de 80 centimètres, présentant deux niveaux lenticulaires de 50 cm d'épaisseur maximum, de nature noire schisteuse. Certains bancs gréseux présentent des laminations.



Fig. 28 : Colonne stratigraphique du compartiment méridional, localisation et intensité des niveaux anomaux.


Le passage des schistes noirs aux quartzites supérieurs est souligné par un niveau bréchique synsédimentaire (fig. 29).

Fig. 29 : Niveau bréchique synsédimentaire soulignant le passage des schistes noirs aux grès à faciès oxydé.

Le changement de faciès est souligné par l'apparition de laminations gréseuses, de plus en plus importantes jusqu'à la manifestation de la brèche sédimentaire. Celle-ci, d'une épaisseur de 5 à 10 cm, renferme des éléments anguleux ainsi que des galets mous de nature schisteuse. Leur taille peut atteindre 7 à 8 cm. Remaniés à partir des niveaux schisteux sous-jacents, ils sont noyés dans une matrice gréseuse présentant des phénomènes de convolutes. J'ai remarqué la conservation de tissus végétaux dans certains replis des laminations gréseuses.

Ces observations soulignent donc le passage vers un milieu beaucoup plus agité, à sédimentation plus grossière. - Le compartiment septentrional (fig. 30)

Celui-ci comprend de bas en haut :

- 1,5 m de schistes noirs fins,
- un niveau de quartzites de 3 m d'épaisseur, constitué de 3 bancs gréseux de 80 cm, avec deux intercalations schisteuses, stratiformes ou lenticulaires d'une vingtaine de centimètres d'épaisseur,
- 7 m de schistes noirs parfois gréseux,
- 1,5 m de quartzites sombres en bancs décimétriques.



Fig. 30 : Colonne stratigraphique du compartiment septentrional, localisation et intensité des niveaux anomaux

L'ensemble de quartzites inférieur présente des structures très particulières. Les 3 bancs qui le composent montrent de très belles figures de stratifications entrecroisées. Celles-ci sont soulignées par des petites laminations de couleur sombre. La figure 31b réalisée à partir d'une surface polie de section de carotte de forage nous montre ces structures.



Fig. 31a: Laminations onduleuses S_0' recoupant la stratification S_0



Fig. 31b: Stratifications entrecroisées

Le banc gréseux inférieur met en évidence des laminations (fig.31b) onduleuses So' transversales au banc So. Celles-ci, inclinées vers le Sud, font penser à des structures de chenaux (REINECK-SINGH, 1980) dont la position serait plus méridionale.

Afin de replacer les compartiments l'un par rapport à l'autre, dans l'échelle stratigraphique, deux hypothèses peuvent être émises :

premièrement, le niveau bréchique à la base du paquet de quartzites du compartiment méridional correspondrait à l'installation d'un chenal. Du fait de l'énergie accrue du milieu, des galets de pélites noires seraient arrachés des niveaux sous-jacents. Ceux-ci seraient recouverts par des apports détritiques importants plus grossiers d'au moins une dizaine de mètres d'épaisseur. Ce niveau correspondrait au banc à structures en chenaux du compartiment septentrional.

Ces deux ensembles gréseux sont distants, à l'affleurement, d'une quarantaine de mètres. Les épaisseurs seraient multipliées par quatre (fig. 32).

Lors des poussées tectoniques à vergence Nord, la partie centrale du chenal présentant une série nettement plus compétente plisserait les niveaux plus septentrionaux moins compétents, et viendrait chevaucher par l'intermédiaire d'une faille le compartiment septentrional.

Dans le cadre de cette hypothèse, la série anomale du lac du barrage de la Vierre, atteindrait à l'affleurement une épaisseur maximale de 27 m pour une extension latérale de 250 m. L'ampleur du chevauchement de la faille inverse serait de l'ordre de 8 à 10 mètres.



Fig. 32 : Chevauchement du compartiment méridional sur le compartiment septentrional.

> - la seconde hypothèse réfuterait l'argument de correspondance entre les niveaux quartzitiques, en raison de l'impossibilité d'une telle variation d'épaisseur sur une si faible distance. Le compartiment Sud serait donc plus ancien ou plus récent que le compartiment Nord.

Dans ce cas, seul un compartiment méridional plus ancien paraît envisageable, et ceci pour deux raisons :

. dans le contexte de faille inverse où apparaît cette série anomale, le compartiment chevauchant présente, par définition, des séries lithologiques plus anciennes;

: la deuxième raison fait intervenir l'absence de cette barre gréseuse, plus au Nord. Si ce compartiment était plus récent, l'épaisse série gréseuse devrait se retrouver plus au Nord dans le synclinal de la pointe du lac.

Pour conclure l'étude stratigraphique de cette anomalie, la série anormalement radioactive disparaît plus au Nord sous des couches plus récentes. Des deux hypothèses évoquées, la première semble fortement envisageable au vu des résultats de la prospection scintillométrique.

4.1.1.2. Localisation et allure des anomalies

Dans le but d'une localisation précise des anomalies facilitant des observations ultérieures, j'ai tenu à les représenter sur des panoramas. Ainsi la figure 33 résume les observations. Seuls les 150 premiers mètres de l'anomalie sont reproduits.



Fig. 33 : Panorama de l'anomalie du lac du barrage de la Vierre, localisation et répartition des niveaux anomaux .

Cette anomalie correspond en fait à un cortège de niveaux anomaux, qui sont au nombre de vingt environ.

Deux faits essentiels dans la présentation de ces anomalies sont à remarquer :

- d'une part, elles se situent non seulement dans les schistes noirs,
 mais également dans certains bancs gréseux;
- d'autre part, elles apparaissent, soit de manière lenticulaire dans le plan de stratigraphie, soit de manière stratiforme, en couches pouvant atteindre un mètre d'épaisseur. Elles ont pu être suivies à l'affleurement sur 150 mètres.

a. Les anomalies sur quartzites

Alors que le bruit de fond radiométrique sur grès est classiquement de 6 Ur, certains niveaux atteignent ici 59 Ur, ce qui correspond à dix fois le bruit de fond.

- Un plan compteur (fig. 34) a été réalisé dans les niveaux gréseux du compartiment Nord (au point A sur la coupe de la figure 27). Son but était de cerner avec précision l'allure des anomalies.



Fig. 34 : Plan compteur radiométrique sur affleurement gréseux, maille de 30 à 40 cm de côté, coupe de la Vierre. Celui-ci a été effectué selon une maille carrée d'une trentaine de centimètres de côté. L'un des côtés de la maille est dans le plan de stratification So. Celle-ci n'est pas évidente sur le schéma mais elle est soulignée sur le terrain par des laminations. La largeur de la maille a été choisie en fonction du rayon d'action du scintillateur. Cette figure nous livre la radioactivité en coups par seconde (c/s).

L'allure lenticulaire des anomalies s'observe nettement.Celles-ci se relaient selon la stratification et peuvent atteindre 50 cm d'épaisseur.

L'horizon porteur correspond à des quartzites sombres à laminations entrecroisées. Aucune phase minéralogique susceptible d'être responsable d'une radioactivité anormale lenticulaire n'a été décelée. Cependant quelques rares cristaux de pyrite ont été observés; ceux-ci peuvent atteindre une taille de 1/2 cm.

En dehors de ces horizons anomaux, les quartzites apparaissent moins sombres. L'examen microscopique du chapitre suivant (paragraphe 6.1.)nous permettra d'approfondir la question.

- Le compartiment méridional présente aussi des anomalies sur quartzites (fig. 33) : une anomalie stratiforme à 1 m de la base du paquet de quartzites et une anomalie lenticulaire à 4 m.

. La première présente une radioactivité totale variant latéralement de 21 à 28 Ur. Elle peut se suivre sur une dizaine de mètres, dimensions de l'affleurement. Rappelons que le bruit de fond normal pour des grès est de 6 Ur.Là également les quartzites sont sombres et présentent des laminations.

. La seconde se localise dans un banc de quartzites bien particulier. Ce banc épais de 50 cm, présente une forte concentration de cristaux de pyrite. L'anomalie se suit latéralement sur un mètre et présente une radioactivité totale maximale de 34,3 Ur. Celle-ci s'intègre dans une tendance des faciès gréseux à l'oxydation. En effet, la partie supérieure de cet ensemble quartzitique montre à l'affleurement une teinte rouge plus ou moins généralisée.

Ce banc particulier présentant un potentiel réducteur plus important (abondance de pyrite) dans l'ensemble gréseux général montre une anomalie radioactive apparemment liée à un front d'oxydo-réduction (paragraphe sur les roll-fronts). Elle correspond à une zone de transition faciès rouge - faciès sombre (fig. 35) où le faciès rouge est plus intense et plus développé sur les bords du banc. Les pyrites de ce niveau sont au moins toutes oxydées sur leurs contours. Cependant dans la zone à faciès rouge, elles apparaissent oxydées à coeur, sauf pour les cristaux de plus grande taille.



Fig. 35 : Anomalie radioactive liée à un front d'oxydo-réduction, sur des quartzites à faciès plus ou moins oxydé.

D'un point de vue général interprétatif, les pyrites seraient dans un premier temps légèrement oxydées par un flux très faiblement oxydant ou même simplement par les solutions interstitielles. Ultérieurement, un flux fortement oxydant chargé en uranium U⁶⁺ migrerait dans ce banc, fossilisant une anomalie uranifère (U⁴⁺) au front d'oxydo-réduction (à la limite faciès rouge - faciès sombre). Le centre de ce banc serait moins poreux, ce qui freinerait l'avancée du flux.

Dans le chapitre des études par autoradiographie, nous localiserons de manière précise les phases radioactives.

b. Les anomalies sur schistes noirs

Les anomalies sur schistes noirs constituent la plupart des niveaux radiogéniques de la série du barrage de la Vierre (fig. 28). Elles sont au nombre de 17.

Celles-ci sont nettement plus intenses que dans le cas des grès. Le bruit de fond sur schistes noirs est classiquement de l'ordre de 17 à 18 Ur. Les niveaux les plus anomaux ont livré une radioactivité totale de 150 Ur (fig. 28 et 30). Leur épaisseur dépasse rarement la quarantaine de centimètres.

Elles se rencontrent au sein de séries schisteuses importantes mais aussi en interlits schisteux de 20 à 30 cm entre des bancs gréseux. Elles se présentent sous forme lenticulaire ou stratiforme.

. Les anomalies stratiformes

Celles-ci sont les plus intenses et peuvent se suivre à l'affleurement sur plus de 150 mètres. L'observation montre qu'elles se situent généralement non loin d'un changement de lithofaciès, sans qu'il y ait une polarisation du changement lithologique. En effet, les grès anomaux du compartiment septentrional sont encadrés par deux niveaux radioactifs sur schistes noirs qui sont parmi les plus intenses.

L'intensité de la radioactivité des niveaux anomaux varie latéralement, tout en restant supérieure au bruit de fond.

L'une de ces anomalies se distingue des autres par son épaisseur. Elle est située dans les schistes immédiatement inférieurs aux grès anomaux septentrionaux. Il s'agit d'un niveau de radioactivité maximale de 90 Ur épais d'un mètre. Dans l'hypothèse d'une correspondance des ensembles gréseux des deux compartiments, son épaisseur varierait latéralement (30 cm).

Les cristaux de pyrite sont fréquents et montrent toujours une auréole d'oxydation autour d'un coeur intact. Ceux-ci sont couramment de la taille du 1/2 cm.

. Les anomalies lenticulaires

Elles sont généralement d'intensité plus faible que les précédentes. Elles se disposent selon la stratification et sont d'extension variable. Certaines sont des lentilles anomales de 50 cm de longueur, alors que d'autres font plusieurs mètres.

Elles se rencontrent au sein de la masse schisteuse et peuvent ou non se relayer selon la strate.

En conclusion à ce paragraphe, soulignons que les horizons de schistes noirs porteurs de radioéléments ne montrent pas de différence de faciès par rapport à la masse de schistes noirs encaissante. Certains de ces niveaux offrent cependant des grains de pyrite plus abondants.

4.1.2. L'anomalie de Chiny

Celle-ci est située dans le méandre de la Semois, rive droite, à 1,5 km à l'Est de Chiny et concerne les affleurements N-S arrivant au pied de la centrale électrique.

C'est une série anomale de 25 m d'épaisseur, à pendage Sud (azimut du pendage 172°N45°).Elle s'intègre dans une série plus importante à plis E-W déversés vers le Nord (fig. 36).



Fig. 36 : Coupe de la série anomale de Chiny.

4.1.2.1. Etude stratigraphique

C'est une série schisto-gréseuse, où la composante gréseuse est peu abondante. Elle comprend de bas en haut : (fig. 37)

- 5 m de schistes noirs présentant des nodules calcareux de 1 à 2 cm de diamètre, et un banc gréseux intercalaire épais de 20 cm;

un niveau gréseux épais de 20 cm;
5 m de schistes noirs plus ou moins gréseux comportant un banc gréseux de 20 cm d'épaisseur;

-80 -

- un banc de l m de quartzite gris à laminations;
 3 m de schistes noirs fins;
- un banc de quartzites grises épais de 50 cm;
- 4,5 m de schistes noirs fins;

- un niveau d'1 m de quartzite sombre à laminations distribué en deux bancs équivalents;

- 4,5 m de schistes noirs plus ou moins gréseux.



Fig. 37 : Colonne stratigraphique de la série anomale de Chiny, localisation et intensité des niveaux anomaux.

4.1.2.2. Localisation et allure des anomalies

Celles-ci sont représentées de manière précise sur les panoramas de la figure 38. La série anomale de Chiny correspond à un cortège de dix niveaux anomaux d'une épaisseur de 30 à 40 centimètres. Leur intensité radioactive est nettement plus faible que dans le cas précédent; elle varie entre 10 Ur et 40 Ur.

A la différence de l'anomalie du barrage de la Vierre, les horizons porteurs sont uniquement constitués de schistes noirs, présentant des

- 81 -

niveaux anomaux lenticulaires ou stratiformes.

. Les anomalies stratiformes

Elles se localisent soit dans les zones de changement de faciès, soit au sein de la série schisteuse.

Les premières intéressent à la fois les schistes noirs du passage schistes-quartzites et ceux du passage quartzites- schistes: tel est le cas du niveau de quartzite gris à 11 m de la base de la série anomale. Celui-ci est encadré par deux anomalies qui ont été suivies latéralement sur plus de 100 mètres. Le niveau anomal immédiatement inférieur au banc montre parfois de fortes concentrations de cristaux de pyrite. C'est précisément à ces endroits que sont enregistrées les plus fortes intensités radioactives de ce niveau. Ces pyrites apparaissent toujours oxydées, mais gardant un coeur sain.

Ces anomalies stratiformes se rencontrent aussi au sein de la masse schisteuse. Les horizons porteurs, une fois de plus, ne présentent aucune différence de faciès par rapport aux schistes encaissants. Une de ces anomalies a pu être suivie selon les conditions d'affleurement sur une quinzaine de mètres.

. Les anomalies lenticulaires

Elles se situent au sein des schistes et se disposent selon la stratification. Elles sont d'extension variable de 0,5 à 5 mètres. Comme les autres anomalies, elles ne présentent pas de faciès différents de l'encaissant.

J'ai trouvé en dehors de la zone principale d'affleurement, où a été décrite la série ci-dessus, un autre niveau anormal. Celui-ci apparaît à la faveur d'un pointement de 2 x 2 m. Il est situé à 400 m au Sud de la Centrale, en remontant de 30 mètres le chemin parallèle à la Semois.

Celui-ci présente des intensités de l'ordre de celles du barrage de la Vierre. Il atteint une radioactivité totale de 90 Ur (voir sa localisation dans la coupe de la figure 36). Il s'intègre dans le même pli synclinal que la série anomale elle-même. Le pendage est également Sud.

- 82 -



Fig. 38 : Panorama de l'anomalie de Chiny, localisation et répartition des niveaux anomaux.

Il laisserait supposer, sous la couverture végétale, le prolongement de la série anomale vers le Sud. Ce dernier peut être soit un prolongement latéral des anomalies plus septentrionales, soit un prolongement vertical de la série anomale. Dans ce dernier cas, un cortège anomal plus important serait envisageable. Quoiqu'il en soit, la série anomale disparaît au Nord sous des couches plus récentes.

4.1.3. L'anomalie des Croisettes

Cette zone anomale qui s'étend sur 500 m, se situe dans la vallée de la Vierre à 2,5 km en aval du barrage, et concerne les affleurements du flanc Est de cette vallée.

Malheureusement, la pente relativement douce des versants de la vallée dans la zone anomale conduit à de mauvaises conditions d'affleurement. L'observation a porté la plupart du temps sur des pointements rocheux de 3 x 3 m. En raison de ces conditions, il fut très difficile d'établir une coupe continue, et c'est pourquoi la coupe proposée ciaprès est interprétative (fig. 39).



Fig. 39 : Coupe de la série anomale des Croisettes.

- 84 -

Cette diminution de l'abrupt de la vallée est en rapport avec la nature schisteuse dominante. Au Nord et au Sud de ce secteur, le relief s'accentue grâce à la réapparition de strates gréseuses importantes.

La série schisteuse s'intègrerait dans un style (plus resserré que dans la coupe du lac) que je considère comme étant lié à un déversement de plis vers le Nord, ceci en raison d'un pendage Sud - Sud-Est constant sur toute la coupe, et de l'existence d'une charnière de plis (110°N) à déversement vers le Nord et ennoyage à l'Est (fig. 39). Elle apparaitrait au Sud après un paquet gréseux plus ancien et disparaitrait au Nord sous des niveaux plus récents. Une répétition des anomalies est sans doute envisageable grâce à ces plissements. Les schistes étant totalement anonymes et dépourvus de niveaux repères, il n'a pas été possible de replacer les niveaux anomaux les uns par rapport aux autres.

. Description des anomalies

L'anomalie des Croisettes est identique aux précédentes. 11 niveaux anomaux y ont été repérés, sans toutefois tenir compte des répétitions possibles.



Fig. 40 : Panorama de l'affleurement le plus septentrional de la zone anomale des Croisettes, localisation et répartition de quelques niveaux anomaux .

Juger de l'extension des anomalies n'a pas été chose facile. Un seul affleurement, de par sa taille, nous a permis de préciser la position des niveaux radioactifs dans la série schisto-gréseuse (fig. 40).

Cet affleurement est le plus septentrional de la zone anomale. Comme dans lescas précédents, on y distingue des anomalies à caractère stratiforme et des anomalies à caractère lenticulaire. Le caractère concordant avec la stratification est démontré par la présence d'un banc gréseux de 20 cm. Une anomalie stratiforme constitue un niveau stratigraphique a 50 cm du grès .

Les horizons porteurs sont uniquement de nature schisteuse. La coupe de la figure 39 les situe les uns par rapport aux autres. Leur épaisseur est variable (entre 40 cm et 2,5 m).

Les intensités de radioactivité totale varient de 20 à 122 Ur. Au Nord de la coupe, les niveaux anomaux présentent des intensités et des épaisseurs plus faibles. Les niveaux méridionaux plus épais (2m) montrent des variations verticales d'intensité, avec des niveaux stratiformes très radioactifs.

4.2. LES POINTEMENTS ANOMAUX OCCIDENTAUX

4.2.1. Les anomalies stratoïdes

Ces anomalies sédimentaires sont des concentrations radioactives très locales dans le plan de stratification. Elles sont lenticulaires et de faible extension (deux mètres de long sur 30 cm d'épaisseur). Les horizons porteurs correspondent à des schistes noirs. Les intensités de radioactivité sont faibles, 1,5 à 2 fois le bruit de fond (12,5 Ur < < 28,15 Ur).

Telles se présentent les anomalies de l'Abbaye des Conques (fig.41) et du Rocher du Chat (fig. 42). Leur localisation est reportée sur la carte de prospection (fig. 26).

Des schistes noirs à radioactivité supérieure à la normale, 1,5 à 2 fois le bruit de fond, ont été localisés dans la carrière à l'entrée des étangs des Epioux. Ils constituent un niveau épais de 3 m (fig. 43).



Fig. 41 : Pointement anomal de l'Abbaye des Conques, localisation de l'anomalie.

Fig. 43 : Pointement anomal des Etangs des Epioux, localisation de l'anomalie.



Fig. 42 : Pointement anomal de La Roche du Chat, localisation del'anomalie.



4.2.2. L'anomalie d'Herbeumont

Elle est située à 1 km au Sud-Est d'Herbeumont, 200 m à l'Est d'une importante carrière.

La figure 44 nous montre la présence de failles à pendage Sud, parallèles au plan de schistosité. Elles sont soulignées par des zones broyées et par des filons de quartz de 20 cm. Le glissement des compartiments les uns par rapport aux autres a provoqué la naissance de plis d'entrainement à plans axiaux inclinés vers le Nord. Ces plis de direction Est-Ouest ont une amplitude de 50 cm.

J'ai remarqué la présence d'une radioactivité anormale dans la zone broyée inférieure. Ce niveau, épais de 30 cm, montre de faibles intensités de 1,5 à 2 fois le bruit de fond. Ce léger enrichissement en radioéléments serait dû à des solutions faiblement minéralisées qui auraient été canalisées par cette zone broyée et précipitées à la faveur d'un milieu réducteur. On y observe des cubes de pyrite de 2 à 3 mm de taille, oxydés, assez abondants. Ceux-ci pourraient constituer un micromilieu réducteur.



Fig. 44 : Panorama de l'anomalie d'Herbeumont, localisation et intensité de l'anomalie.

Notons que ce type d'anomalie pourrait avoir une plus grande extension. En effet, en poursuivant la route venant d'Herbeumont, nous retrouvons ces mêmes anomalies (voir carte hors-texte) 200 m plus loin.

L'anomalie d'Herbeumont présente donc des caractères tectonosédimentaires.

4.3. CONCLUSIONS : ORIENTATIONS DANS LA SUITE DU TRAVAIL

Devant l'observation des faits, plusieurs orientations dans la suite du travail se dégagent.

La prospection scintillométrique a permis la découverte de nouvelles anomalies, principalement les anomalies de Chiny et des Croisettes.

Un fait surprenant apparaît dans la disposition des trois séries anomales. Celles-ci apparaissent sensiblement alignées selon une direction (N100°). Cet alignement semble correspondre à la direction générale des couches de ce secteur : direction des couches Est-Ouest avec un ennoyage à l'Est. Les observations de terrain n'ont pas permis de dégager une correspondance entre les séries anomales (absence de niveau repère). Afin d'essayer de préciser ceci, une étude palynologique fut entreprise. Dans le cas d'une telle correspondance, un prolongement de la série sous la couverture jurassique serait en effet envisageable.

Mis à part les grès radioactifs de l'anomalie du barrage de la Vierre, les faciès radiogéniques sont des schistes noirs. L'hétérogénéité de la distribution de la radioactivité ne se traduit pas au niveau des faciès. A l'échelle macroscopique, il est pratiquement impossible de distinguer un échantillon de schistes radioactifs d'un échantillon de schistes non radioactifs. Pour tenter d'apporter quelques éléments de réponse à cette répartition préférentielle de la radioactivité une étude fine en laboratoire a été entreprise.

Les grès anormalement radioactifs du Lac de la Vierre, originaux parmi toutes les anomalies décelées, ont fait l'objet d'une étude en laboratoire. Le but essentiel était de localiser précisément la ou les phases porteuses.

Certains niveaux radiogéniques présentent très localement une radioactivité intense. Il a donc fallu juger de l'hétérogénéité de la radioactivité au sein des niveaux anomaux. Une étude par autoradiographie a été effectuée dans ce cadre.

• ~ •

PLANCHE I

- Photo 1 : série schisto-gréseuse anomale du compartiment septentrional de l'anomalie du barrage de la Vierre; ensemble gréseux subhorizontal à faciès oxydé. Les grès anomaux présentent une matrice phylliteuse à pigment ferrugineux.
- Photo 2 : intense anomalie sur schiste noir à la base de l'ensemble gréseux de la photo l (niveau livrant les minéraux d'uranium décrits au Chapitre VI)
- Photo 3 : intercalation de fins lits schisteux anomaux entre les bancs gréseux de l'ensemble décrit à la photo l.

Photo 4 : figure de courant (ripple-mark) en contre-empreinte.



PLANCHE II

- Photo 1 : charnière de pli synclinal s'intégrant dans un style de déversement vers le Nord. Le scintillateur donne l'échelle (barrage de la Vierre).
- Photo 2 : plis d'entraînement appartenant à la zone broyée d'Herbeumont.
- Photo 3 : laminations onduleuses dans un banc gréseux (50 cm d'épaisseur) appartenant aux grès à faciès de paléochenal du barrage de la Vierre.
- Photo 4 : stratifications entrecroisées dans les grès à faciès de paléochenal du barrage de la Vierre.



-----τ

- 95 -CHAPITRE V Etude par spectrométrie gamma



CHAPITRE V

- 97 -

L'ETUDE PAR SPECTROMETRIE GAMMA DE LABORATOIRE

Après les levés géologiques et radiométriques in situ, l'étude en spectrométrie gamma fut la première étape du travail de laboratoire. L'identification des radioéléments responsables des anomalies et la mesure de leurs concentrations respectives étaient un point essentiel dans l'orientation des travaux ultérieurs.

5.1. PREPARATION DES ECHANTILLONS

L'échantillonnage des coupes anomales s'est effectué de deux façons : - perpendiculairement à la stratification. J'ai resserré l'échantillonnage à l'approche et au sein des niveaux anomaux à 30 cm. Pour les anomalies de 30 à 40 cm d'épaisseur, un échantillon fut pris dans l'anomalie, deux autres dans les schistes normaux immédiatement inférieurs et supérieurs;

 latéralement dans les niveaux radiométriques, en raison des variations d'intensité.

Les échantillons ont été prélevés en évitant la partie altérée superficielle, ceci dans le but de minimiser les phénomènes de lessivage liés à l'altération qui perturberaient le contenu réel des roches en radioéléments. Ils ont parfois été extraits à l'aide d'une foreuse à main, équipée d'une couronne diamantée (diamètre des carottes de 10 cm).

Les échantillons destinés à l'analyse par spectrométrie gamma ont été broyés, d'abord avec un broyeur à mâchoire puis avec un pulvérisateur, de telle manière que la granulométrie soit inférieure à 297 µm. Entre chaque échantillon, le matériel fut nettoyé à l'air comprimé puis à l'alcool, pour éviter les pollutions possibles. Après homogénéisation, une quantité de 200 grammes fut prélevée pour l'étude en spectrométrie gamma.

Les échantillons retenus pour cette analyse furent sélectionnés ou non selon les coupes :

- pour la coupe du barrage de la Vierre, l'étude a porté sur toute la gamme de radioactivité en privilégiant les échantillons anomaux;

- dans le cas de la coupe de Chiny, tous les échantillons prélevés ont fait l'objet d'une étude en spectrométrie gamma afin d'avoir une vue d'ensemble de la coupe. - pour la coupe des Croisettes, seuls certains niveaux radiogéniques ont été étudiés;

Pour les anomalies ponctuelles, notre attention s'est portée sur l'anomalie et les échantillons normaux encaissants.

L'étude dans son ensemble a porté sur 93 analyses (82 sur schistes noirs et 11 sur grès).

5.2. PRESENTATION GENERALE DE LA METHODE

Les principaux radioéléments responsables de la radioactivité des roches sont l'uranium (235 U, 238 U), le thorium (232 Th), le potassium (40 K). Le rapport $\frac{^{238}}{^{235}}$ est considéré comme constant dans la nature et égal à 137,7.

Dans les roches sédimentaires, l'uranium, élément facilement soluble, précipite préférentiellement en milieu réducteur. Le thorium, élément peu oxydable se localise dans les minéraux lourds et dans les minéraux argileux des roches détritiques (MERCIER et al, 1982; BASHAM et al, 1982). Le potassium est quant à lui, abondant dans les feldspaths alcalins, dans certains minéraux argileux (illite), dans des évaporites (sylvite) (MEYS H., 1975; CIZA, 1976).

La spectrométrie gamma est une méthode qui utilise la radioactivité naturelle des roches. Elle est basée sur l'émission de rayonnement gamma lors de la désintégration des atomes. L'énergie des rayons gamma émis par un radioélément est caractéristique de celui-ci. Le nombre de particules gamma émises par un radioélément donné est par contre une mesure de sa concentration dans la roche considérée.

Par l'analyse spectrale du rayonnement émis, on peut ainsi identifier et doser simultanément les radioéléments 238 U, 232 Th, 40 K.

Pour l'uranium, en vue d'une vérification permanente, trois raies ont été choisies : la raie à 295 Kev, la raie à 610 Kev et la raie à 1120 Kev. La raie à 184 Kev, dépendant à la fois de 1^{235} U et du ²²⁶Ra est utilisée pour le calcul de l'équilibre radioactif (voir paragraphe 5.4).

Le thorium et le potassium se déterminent à l'aide d'un seul pic : (K ; 1,460 Mev) et (Th; 0,930 Mev).

Les analyses en spectrométrie gamma ont été réalisées sur une chaine de mesure développée à la Faculté Polytechnique de Mons (F.P.Ms) en utilisant une méthode mise au point par Y. QUINIF, Chercheur F.P.Ms. Cette méthode est décrite dans le chapitre 1 des annexes.

- 98 -

Notons que chaque échantillon analysé est soumis à trois comptages successifs de 8 heures s'étalant sur 24 heures. Les dosages sont établis en fonction de la moyenne de ceux-ci.

En conclusion à cette présentation volontairement succinte, je rappellerai que la spectrométrie gamma présente par rapport aux méthodes chimiques le grand avantage d'être non destructive. L'échantillon dosé peut être récupéré et utilisé pour des analyses ultérieures. Celles-ci seront donc vraiment représentatives de l'échantillon analysé en spectrométrie gamma.

5.3. RESULTATS DES ANALYSES ET INTERPRETATIONS

Les résultats des analyses sont regroupés dans les six tableaux suivants. Les figures 45,46 et 49 reproduisent les études entreprises sur les schistes noirs des trois séries anomales. Les figures 52 et 53 correspondent aux quartzites de coupes de Chiny et du barrage de la Vierre. La figure 51 regroupe les petites anomalies occidentales.

Les teneurs en uranium et en thorium sont exprimées en ppm, le potassium en % K₂0. La première colonne donne les valeurs de radioactivité totale enregistrées sur le terrain. Le rapport Ra/U fixe le taux d'équilibre radioactif dans la famille de l'uranium.

Les échantillons, classés en ordre croissant, n'indiquent pas obligatoirement un positionnement continu au sein de la série stratigraphique considérée. Leurs localisations dans les logs stratigraphiques respectifs sont précisées dans les figures 47,48 et50.

L'examen de ces données permet de dégager plusieurs observations et conclusions:

- les schistes anomaux des trois principales coupes apparaissent enrichis en uranium avec des valeurs pouvant atteindre 250 ppm en uranium métal. Si nous superposons la courbe de radioactivité totale en Ur à la courbe des teneurs respectives en uranium métal en ppm (fig. 47, 48 et 50), nous observons une bonne correspondance.Les anomalies enregistrées sont donc des anomalies en uranium.

- certains niveaux ont des teneurs en thorium et potassium supérieures aux concentrations normales reconnnues pour de telles roches (fig. 4). Pour des sédiments argileux, les moyennes sont de 2,7 % de K₂O et de 16 ppm en Th.

- 99 -

| N° des échantillons | Ur | eU (ppm) | Th (ppm) | к (% к ₂ 0) | Um | Ra/U |
|------------------------|-------|-------------|-------------|---------------------------|---------------|------|
| S-001 | 153.1 | 138.0 | 10.4 | 2.96 | 146.0 | 6 |
| S-003 | 121.1 | 148.0 | 14.8 | 2.37 | 158.0 | 7 |
| s-004 | 27.9 | 14.7 | 16.7 | 3.83 | 14.4 | - 2 |
| s-005 | 90.0 | 116.0 | 8.3 | 3.54 | 105. ට | - 10 |
| S-007 | 83.8 | 103.0 | 15.8 | 4.32 | 103.0 | 0 |
| S-008 | 40.3 | 30.4 | 21.7 | 5.71 | 33.4 | 10 |
| s-009 | 31.2 | 4.6 | 12.3 | 2.70 | 4.4 | - 5 |
| S-014 | 65.2 | 38.6 | 13.5 | 3.71 | 39.2 | 2 |
| S-015 | 90.0 | 67.8 | 12.2 | 3.19 | 67.4 | - 1 |
| S-016 | 90.0 | 272.0 | 1.5 | 2.31 | 245.0 | - 9 |
| S-01 7 | 46.5 | 223.0 | 10.3 | 4.09 | 203.0 | - 9 |
| S-022 | 83.8 | 30.1 | 8.6 | 1.74 | 30.0 | 0 |
| S-024 | 71.4 | 44.9 | 10.8 | 2.99 | 45.4 | 1 |
| S-025 | 40.3 | 38.8 | 13.1 | 3.36 | 40.2 | 3 |
| S-026 | 65.2 | 34.5 | 12.9 | 3.71 | 27.3 | - 21 |
| S-027 | 31.0 | 13.7 | 15.7 | 4.52 | 14.1 | 2.8 |
| S-032 | 62.1 | 43.2 | 10.5 | 1.91 | 43.4 | 0.5 |
| S-033 | 15.5 | 5.8 | 11.5 | 2.5 | 5.9 | 2 |
| S-036 | 14.2 | 4.4 | 13.4 | 2.93 | 4.1 | - 5 |
| S-040 | 12.4 | 3.6 | 13.3 | 2.75 | 3.7 | 4 |
| S-134 | 26.3 | 28.5 | 21.8 | 5.42 | 27.2 | - 5 |
| S-136 | 59.0 | 74.2 | 14.0 | 3.13 | 71.0 | - 4 |
| S-139 | 78.1 | 222.0 | 12.5 | 2.24 | 218.0 | - 2 |
| S-159 | 83.8 | 246.4 | 5.7 | 2.87 | 250.0 | 1 |
| S-161 | 28.1 | 21.7 | 15.0 | 3.88 | 21.9 | 1 |
| S- 305 | 22.1 | 10.3 | 12.4 | 3.54 | 9.7 | - 6 |
| S-306 | 24.8 | 9.9 | 12.6 | 3.48 | 9.7 | - 2 |

Fig. 45.- Analyse par spectrométrie gamma des schistes noirs de l'anomalie du barrage de la Vierre. Ces teneurs anormales en thorium et potassium principalement localisées dans la coupe du barrage de la Vierre correspondent à des concentrations maximales de 21,8 ppm de Th et 5,71 % de K₂0 dans des niveaux qui ne coïncident pas avec les intensités maximales en uranium.

- l'analyse des gres révèle pour certains d'entre eux des teneurs supérieures au clarke de tels sédiments qui est de 2 à 3 ppm en uranium et de 2 à 6 ppm en Th (fig. 4). Certains grès de l'anomalie de Chiny montrent des teneurs en Um assez fortes (de 4 à 5 ppm) . En ce qui concerne les grès radioactifs du barrage de la Vierre, ils montrent une importante anomalie en uranium métal (S-310, avec 87,5 ppm en eU).

- l'analyse en spectrométrie gamma des pointements occidentaux de nature schisteuse révèle là aussi un faible enrichissement en Uranium (cas de l'Abbaye des Conques et de la Roche au Chat).

Pour l'anomalie d'Herbeumont, sa faible amplitude enregistrée sur le terrain se traduit lors de l'analyse en laboratoire, par la combinaison de teneurs normales mais fortes en thorium et en uranium.

| N° des échantillons | Ur | eU (ppm) | Th (ppm) | K (% K ₂ 0) | Um | Ra/U |
|------------------------|-------|-------------|-------------|---------------------------|-------|------|
| S-200 | 34.3 | 69.9 | 11.0 | 3.36 | 58.3 | - 17 |
| S-202 | 39.0 | 40.0 | 12.7 | 2.89 | 41.7 | 4 |
| s-204 | 31.2 | 36.8 | 12.0 | 2.76 | 38.4 | 4 |
| S-206 | 121.8 | 158.8 | 6.7 | 2.37 | 169.7 | 7 |
| S-207 | 40.6 | 10.7 | 10.7 | 2.49 | 10.4 | - 2 |
| S-208 | 53.1 | 47.8 | 13.5 | 3.97 | 46.6 | - 3 |

Fig. 46.- Analyse par spectrométrie gamma des schistes noirs de l'anomalie des Croisettes.

- 101 -



- 102 -



| N° des échantillons | Ur | eU (ppm) | Th (ppm) | к (% к ₂ 0) | Um | Ra/U |
|------------------------|------|-------------|-------------|---------------------------|-------|-------|
| S-041 | 10.0 | 3.8 | 3.8 11.5 | | 3.9 | 3 |
| S-042 | 90.0 | 140.0 | 3.4 | 1.60 | 131.0 | - 7 |
| S-043 | 18.7 | 14.9 | 13.4 | 3.45 | 17.6 | 18 |
| S-100 | 31.0 | 5.6 | 13.9 | 3.30 | 5.5 | - 2 |
| S-101 | 21.7 | 5.8 | 13.9 | 3.25 | 6.0 | 3 |
| S-102 | 24.8 | 7.5 | 13.6 | 2.99 | 7.9 | 5 |
| S-103 | 20.1 | 4.7 | 12.4 | 2.90 | 4.6 | - 0.5 |
| S-104 | 14.2 | 4.8 | 10.8 | 1.97 | 5.1 | 6 |
| S-105 | 19.2 | 11.6 | 13.5 | 3.19 | 11.6 | 0 |
| S-106 | 24.3 | 11.5 | 12.7 | 2.63 | 11.7 | 2 |
| S-107 | 15.5 | 3.8 | 13.6 | 3.39 | 4.0 | 4 |
| S-108 | 26.3 | 9.6 | 13.3 | 3.30 | 9.9 | 3.6 |
| S-109 | 24.8 | 9.7 | 12.1 | 2.79 | 9.6 | - 1 |
| S-110 | 14.2 | 4.4 | 11.9 | 2.39 | 4.3 | - 4 |
| S-111 | 21.7 | 7.7 | 13.3 | 3.28 | 8.1 | 4 |
| S-112 | 34.1 | 17.3 | 13.1 | 2.86 | 18.8 | 8 |
| S-113 | 17.0 | 6.9 | 11.6 | 2.24 | 6.7 | - 3 |
| S-115 | 27.9 | 19.7 | 12.9 | 3.01 | 20.4 | 3.5 |
| S-116 | 18.6 | 5.2 | 12.5 | 2.59 | 5.7 | 10 |
| S-117 | 31.2 | 19.4 | 12.9 | 3.10 | 21.0 | 8 |
| S-118 | 17.5 | 5.5 | 10.7 | 2.27 | 5.7 | 3.6 |
| S-119 | 46.5 | 35.4 | 12.2 | 3.07 | 32.7 | - 8 |
| S-120 | 18.0 | 8.3 | 14.9 | 3.25 | 8.1 | - 3 |
| S-121 | 14.9 | 4.1 | 13.1 | 2.36 | 3.7 | - 10 |
| S-122 | 21.7 | 11.5 | 15.0 | 2.85 | 13.1 | 14 |
| S-124 | 23.2 | 7.3 | 13.5 | 2.81 | 7.6 | 5 |
| S-125 | 14.9 | 5.5 | 13.9 | 3.19 | 5.5 | - 1 |
| S-128 | 13.9 | 3.5 | 13.7 | 3.36 | 3.8 | 9.8 |
| S-130 | 37.2 | 33.0 | 13.7 | 3.01 | 31.4 | - 5 |
| S-131 | 21.7 | 7.1 | 14.8 | 2.83 | 8.1 | 14.7 |
| S-132 | 13.6 | 6.0 | 14.8 | 3.74 | 6.4 | 6 |
| S-133 | 21.7 | 9.5 | 13.0 | 2.15 | 9.7 | 3 |

Fig. 49.- Analyse par spectrométrie gamma des schistes noirs de l'anomalie de Chiny.



| printed as a state of the state | the second se | | and the second se | | | | |
|--|---|------|---|-------------|----------------------|-----|-------|
| | N° des échantillons | Ur | eU (ppm) | Th (ppm) | (% K ₂ 0) | Um | Ra/U |
| L'Abbave | S-071 | 15.0 | 2.7 | 14.0 | 3.36 | 2.9 | 6 |
| des | S-072 | 28.1 | 6.5 | 13.7 | 2.88 | 7.1 | 9 |
| Conques | S-073 | 21.8 | 4.5 | 13.1 | 3.07 | 4.4 | - 3 |
| Jonqueo | S-074 | 12.5 | 3.3 | 13.2 | 2.99 | 3.5 | 5 |
| | S-142 | 26.3 | 4.1 | 15.7 | 3.86 | 3.9 | - 5 |
| | S-143 | 22.9 | 4.2 | 9.9 | 2.10 | 3.5 | - 17 |
| Herbeumont | S-144 | 20.4 | 3.3 | 15.1 | 3.80 | 3.3 | - 1 |
| | S-145 | 17.3 | 3.5 | 11.2 | 2.12 | 3.4 | - 3 |
| | S-146 | 15.5 | 3.3 | 10.8 | 2.32 | 3.4 | 3 |
| | S-147 | 15.5 | 2.9 | 12.5 | 2.62 | 2.9 | - 0.4 |
| | S-077 | 18.1 | 3.7 | 15.4 | 3.45 | 3.5 | - 7 |
| La Roche | S-078 | 16.8 | 3.1 | 12.7 | 2.90 | 3.3 | 7 |
| au Chat | S-083 | 28.1 | 4.9 | 11.1 | 3.36 | 2.9 | 6 |
| | S-084 | 21.8 | 4.1 | 9.8 | 1.84 | 4.4 | 7 |
| Siegénien | S-307 | 15.6 | 2.8 | 13.6 | 3.45 | 2.0 | 1 |
| supérieur | S-308 | 20.3 | 3.6 | 13.3 | 3.33 | 3.5 | - 1 |

Fig. 51 .- Analyse par spectrométrie gamma des schistes noirs des pointements anomaliques occidentaux.

| N° des échantillons | Ur | eU (ppm) | Th (ppm) | к (% к ₂ 0) | Um | Ra/U |
|------------------------|------|-------------|-------------|---------------------------|-----|------|
| S-094 | 11.8 | 2.9 | 9.3 | 1.51 | 3.1 | 7 |
| S-096 | 10.8 | 3.6 | 7.4 | 1.15 | 3.7 | 2 |
| S-114 | 13.9 | 4.6 | 2.7 | 0.27 | 4.5 | - 2 |
| S-123 | 9.3 | 4.7 | 7.5 | 0.92 | 4.8 | 3 |
| S-126 | 9.3 | 3.6 | 6.4 | 1.12 | 4.4 | 21 |
| S-129 | 9.3 | 2.2 | 3.3 | 0.40 | 2.1 | - 2 |

Fig. 52 - Analyse par spectrométrie gamma des grès des anomalies de Chiny
| N° des échantillons | Ur | eU (ppm) | Th (ppm) | к (% к ₂ 0) | Um | Ra/U |
|------------------------|------|-------------|-------------|---------------------------|------|------|
| S-163 | 9.3 | 1.2 | 2.3 | 0.30 | 1.6 | 38 |
| S-164 | 18.6 | 6.9 | 7.6 | 1.13 | 7.4 | 7 |
| s-309 | 24.8 | 17.9 | 5.7 | 0.74 | 17.2 | - 4 |
| S-310 | 59.3 | 87.5 | 3.2 | 1.07 | 81.0 | - 8 |
| S-311 | 18.7 | 4.3 | 6.9 | 1.10 | 5.2 | 21 |

Fig. 53.- Analyse par spectrométrie gamma des grès des anomalies du barrage de la Vierre.

5.4. ETUDE DE L'EQUILIBRE RADIOACTIF

Les principaux radioéléments naturels (²³⁸U, ²³⁵U, ²³²Th) forment trois familles radioactives constituées de radio-isotopes qui descendent les uns des autres, jusqu'à l'obtention d'un élément stable final : le plomb.

La figure 54 représente la famille radioactive de l'²³⁸U. Le nombre at mique des divers descendants est donné en fonction de son nombre de masse. Chacun des descendants est caractérisé par sa période ou demi -vie.

L'étude des lois de décroissance radioactive montre que, pour les radioéléments naturels (période de l'élément de tête grande vis à vis de ses descendants), un équilibre s'établit au bout d'un temps égal à dix fois environ la période des descendants successifs. Cet équilibre est atteint dans la famille radioactive considérée, lorsque le nombre de désintégration par unité de temps est le même pour tous les descendants successifs.

Dans le cas du ²³²Th, l'équilibre est réalisé en 70 ans. Dans le cas de l'²³⁸U, l'équilibre n'est atteint qu'au bout d'un million d'années du fait de la présence de deux descendants à longue période: $1'^{234}$ U (2,52.10⁵ans) et le ²³⁰Th (8.10⁴ans).

Si l'équilibre est toujours atteint dans la famille du Thorium, permettant ainsi le dosage de l'élément de tête par un quelconque de ses descendants, il n'en est pas de même pour l'uranium. Les descendants de l'²³⁸U appartiennent à des classes très variées du tableau périodique. Leurs comportements chimiques sont très différents (le ²¹⁸Rn est un gaz le ²²⁶Ra est un alcalino-terreux...) (BALEINE *et al*, 1976).



L'étude de l'équilibre radioactif est un élément important dans la prospection des gîtes uranifères. Celle-ci est basée le plus souvent sur le rayonnement lié aux descendants à courte vie (214 Bi par exemple), une erreur par excès ou par défaut peut être commise dans l'estimation des teneurs en uranium. Pour juger de cet équilibre, nous avons établi le rapport liant l'uranium calculé à partir de ses descendants (eU, ou équivalent Uranium), notamment le radium (352 Kev) et l'uranium métal (184 Kev) effectivement contenu dans la roche. Un déséquilibre, c'est-à-dire un rapport \neq l peut se traduire soit par un enrichissement en radium (départ préférentiel de l'uranium dont la mise en solution est aisée), soit par un enrichissement en uranium métal (famille radioactive non encore à l'équilibre, départ de descendant, pechblende de cementation).

Dans le cas de nos échantillons, ce rapport figurant sous la forme Ra/U représente l'écart en % entre les teneurs en Um et en eU. De manière générale, nous considérons que l'équilibre est réalisé pour des valeurs comprises entre 0 et 10 %.

L'examen des valeurs des tableaux montre que l'uranium est en équilibre avec ses descendants dans l'ensemble des échantillons. Seuls 9 sur 93 montrent un déséquilibre.Celui- ci peut être soit négatif, quand l'uranium métal est en défaut, soit positif quand il est en excès par rapport à ses descendants. Les valeurs négatives traduisent un certain lessivage de l'uranium, dû sans doute au prélèvement d'échantillons plus ou moins altérés. Quant aux déséquilibres positifs (3 échantillons), ils sont sans doute en relation avec un départ d'éléments fils.

Notons que les quelques échantillons en déséquilibre n'ont généralement pas été retenus dans les études ultérieures ayant pour but de déterminer la phase porteuse de l'uranium.

5.5. RELATION RADIOACTIVITE TOTALE - TENEUR EN URANIUM

Nous avons vu dans le paragraphe 5.3. que la radioactivité totale mesurée sur le terrain et exprimée en Ur variait dans le même sens que la teneur en uranium.

Les échantillons dosés en spectrométrie gamma sont représentés dans les figures 55a et b, où la teneur en uranium métal est portée en fonction de la radioactivité totale. La relation linéaire liant ces deux facteurs n'apparaît pas de manière évidente (R = 0,629). Si nous éliminons les valeurs d'Um supérieures à 200 ppm, la relation linéaire apparaît nettement plus significative avec un coefficient de corrélation entre les couples de valeurs de 0,85.

Cette corrélation positive montre que les mesures de radioactivité totale enregistrées sur le terrain sont dans une certaine mesure représentatives des teneurs en uranium. Cependant, les niveaux fortement radioactifs s'écartent de cette droite de corrélation. Ceux-ci sont probablement des niveaux peu épais qui, noyés dans le rayon d'efficacité (30 cm) du scintillateur, traduiraient une radioactivité d'intensité plus faible qu'elle ne devrait être.

Ces échantillons qui sortent de la relation générale sont entourés sur la figure 55a.

- 109 -



Fig. 55a : Diagramme de relation (Ur-Um) de l'ensemble des échantillons.
Fig. 55b : Diagramme de relation (Ur-Um) sans les échantillons où Um est supérieur à 200 ppm.

Nous avons comparé nos résultats à ceux obtenus par NDZIBA (1982) sur les couches de passage du Viséen-Namurien dans le bassin de Dinant (Ardenne belge). Dans le Viséen-Namurien, la corrélation Ur-Um(R = 0,94) est excellente. Cette différence avec mes séries, tient du fait que dans le Siégénien inférieur la part liée au thorium est plus importante. Les couches de passage Viséen-Namurien sont des pélites à faciès chimique tandis que les sédiments du Siegénien inférieur sont typiquement détritiques et donc caractérisés par des teneurs en Th-K₂O plus importantes.

La droite d'équation (Um = 1,19 Ur + 15,75) peut donc servir d'abaque, en tant que première approche de la teneur en uranium du Siegénien inférieur sur le terrain, pour les échantillons qui n'ont pas été soumis à l'analyse en spectrométrie gamma.

Cette droite ne passe pas par l'origine(Um = 0 ppm, Ur=15). Il existe donc une contribution d'autres radioéléments, notamment le thorium et le potassium. Ceux-ci relativement abondants dans nos échantillons, sont sans doute également responsables de la dispersion des résultats de part et d'autre de la droite de corrélation.

Un fait de terrain, qu'il ne faut pas négliger pour traiter de cette dispersion, est l'effet géométrique. Si la mesure s'effectue dans une géométrie à l'allure plus ou moins en cavité, l'interaction des gammas n'est pas la même qu'en milieu plan. La radioactivité se trouve amplifiée.

ຸິ

CHAPITRE VI

Etude minéralogique :

- Analyses pétrographiques

- Etude des minéraux lourds

- Analyses par autoradiographie

- Analyses à la microsonde .



-115 -

CHAPITRE VI

ETUDE MINERALOGIQUE DES SEDIMENTS DU SIEGENIEN INFERIEUR

6.1. ANALYSES PETROGRAPHIQUES

L'étude pétrographique avait pour but de mettre en évidence les différences éventuelles des horizons porteurs d'anomalies par rapport aux lithologies typiques du Siegénien inférieur.

Cette analyse s'est effectuée à la fois en microscopie optique et en diffractométrie X.

6.1.1. Analyse pétrographique des grès.

ASSELBERGHS(1946) décrit la très grande majorité des roches gréseuses du Dévonien inférieur de l'Ardenne comme des quartzites, plus souvent arkosiques et psammitiques. "Toutes ces roches ont comme caractères communs de renfermer principalement des grains de quartz et des phyllites (séricite ou chlorite), et comme éléments accessoires : la calcédoine, le kaolin, la muscovite, du feldspath acide, le zircon, la tourmaline, le rutile, l'apatite, l'ilménite, la pyrite, l'hématite, la limonite et les minéraux spéciaux à la région métamorphique".

6.1.1.1. L'étude en microscopie optique

a). Les grès à ciment siliceux

Les grès du Siegénien inférieur correspondent généralement à des quartzites (ou grès à ciment siliceux) de teinte grise. Mis à part le quartz, élément le plus abondant, nous observons (fig. 55) : micas, feldspaths, calcite, zircon, tourmaline, minéraux opaques, pyrite, hématite, goethite .

Les phyllosilicates sont le plus souvent des micas blancs mais aussi de la chlorite. Les feldspaths sont rares et généralement peu altérés (inférieur a 1%). Ce sont principalement des plagioclases et parfois de la perthite (MICHOT, 1963).

Certaines lames montrent de la calcite en proportion minime. Celleci se présente soit en grandes plages entre les grains, soit à l'état de ciment. Les minéraux accesoires les plus fréquents sont le zircon et les opaques. La tourmaline présente des teintes variables en lumière analysée, elle peut être verte, brune ou bleue.



b). Les grès à laminations

Une grande part des niveaux gréseux des séries anomales présentent des laminations, parfois des stratifications entrecroisées. Celles-ci se traduisent au microscope optique par la présence et la disposition de lits phylliteux. Certaines lames minces montrent (tel l'échantillon



S-123) dans ces laminations micacées des accumulations de minéraux lourds principalement des zircons et des opaques (fig. 56).

Ces accumulations de minéraux lourds ont également été identifiées dans des échantillons (S-114), où les lits micacés étaient très réduits, voire même absents.

c). Les grès à matrice phylliteuse

Certains niveaux anomaux du barrage de la Vierre sont représentés par des grès à matrice phylliteuse montrant un alignement préférentiel certainement dû à l'action de paléocourants (paléochenal décrit au § 4.1.).



J'ai également remarqué, outre les constituants principaux (quartz, micas, feldspaths), la présence d'assez nombreux grains de zircons et de minéraux opaques. Des aiguilles de rutile ont été observées.

La matrice phylliteuse présente une couleur brune qui n'est pas due à des minéraux tels que la biotite; peut-être faut-il envisager la présence d'hydroxyde de fer !

Pour conclure ces observations, la relative abondance en phyllites des grès peut se refléter au niveau des teneurs en thorium et en potassium.

d). <u>Conséquence de ces observations en microscopie optique sur les</u> analyses en spectrométrie gamma.

Comme nous l'avons dit précédemment, le thorium dans ces roches sédimentaires est lié à la présence de minéraux lourds et à la fraction argileuse qu'elles renferment. Le potassium se rencontre dans les feldspaths et dans les minéraux argileux.

Si nous nous reportons aux tableaux des figures 52 et 53 résumant les analyses en spectrométrie gamma sur les grès, les teneurs en Th et en K varient du simple au quadruple selon les échantillons.

Pour les échantillons analysés, correspondant à des quartzites dépourvus de matrice phylliteuse (S-114, S-163, S-129), les teneurs en Th et en K sont respectivement de l'ordre de 2,5 ppm et de 0,3 %. Les faibles teneurs en potassium sont dues à l'unique présence des feldspaths; le thorium quant à lui est lié aux minéraux lourds. Si nous considérons les teneurs en uranium de ces échantillons, S-163 et S-129 sont normaux alors que S-114 est anomal en uranium (ceci pour des grès purs dont les teneurs en Th et K sont très faibles, (fig. 4 sur les clarkes).

Les autres grès analysés $(S_{094}, S_{096}, S_{123}, S_{126}, S_{164}, S_{309}, S_{310}$ S_{311}) montrent des teneurs en Th et en K plus élevées traduisant ainsi une proportion phylliteuse plus ou moins importante observée au microscope. Seuls les échantillons $(S_{309}, S_{310}, S_{164})$ sont ici anomaux en uranium, leurs teneurs étant supérieures au clarke des sédiments argileux (voir fig. 4).

Donc en première conclusion, la comparaison des teneurs en uranium par rapport à celles en thorium et potassium des grès permet de déceler les vraies anomalies.

6.1.1.2. L'étude en diffractométrie des rayons X

La reconnaissance en diffractométrie des rayons X des phases minérales effectuée sur poudre finement broyée, n'a pas permis d'élargir l'évantail des phases minéralogiques reconnues au microscope, sauf au niveau des minéraux argileux. Ceux-ci correspondent à de l'illite et de la chlorite.



Fig. 58. : Diagramme d'analyse des grès en diffraction des rayons X.

Les feldspaths sont parfois présents, mais toujours en très faible proportion (fig.58).

6.1.2. Analyse pétrographique des schistes

Les schistes du Siegénien inférieur sont généralement fins et de teinte foncée (noire à bleu foncé). Ceux-ci prennent à l'affleurement des teintes grisâtres dues à l'altération de la matière organique.

6.1.2.1. L'étude en microscopie optique

Les schistes montrent une faible proportion de matériel grossier qui correspond le plus souvent à du quartz, parfois à des minéraux lourds tels que des zircons. Ce matériel plus grossier se répartit soit de manière aléatoire, soit en fines laminations gréseuses.

Un trait commun à tous ces niveaux de schistes noirs est de présenter des pyrites, plus ou moins abondantes. Celles-ci peuvent atteindre des tailles assez importantes (7 millimètres).

Les plages minéralisées ne sont pas massives mais plutôt constituées d'un ensemble de petits cubes de pyrite plus ou moins soudés entre eux. La figure 59 montre que ces pyrites sont des minéraux diagénétiques épigénétiques. En effet, la pyrite représentée ici à partir d'un agrandissement de lame mince, se surimpose aux structures sédimentaires préexistantes. Nous observons, en son coeur, des fantômes de fines laminations phylliteuses antérieures. De même la photo 5 de la planche VII fait apparaître une pyrite qui se surimpose à une lamination gréseuse.

schiste 0 22 structures antérieures conservées 1 mm

Fig. 59 : Dessin fait à partir d'une lame mince de schiste montrant que la pyrite est authigène et postérieure au dépôt des sédiments.

Les pyrites se présentent rarement saines comme dans le cas de la figure 59 où le minéral se trouve dans un milieu extrêmement confiné. Le plus souvent, elles sont oxydées sur leurs pourtours, laissant apparaître des auréoles d'hématite puis de goethite. Ceci peut s'observer sur la photo 8 (Pl. VII) réalisée en réflexion à partir de surface polie. Elles sont ici couramment associées à de fines laminations gréseuses qui seraient le lieu privilégié de circulation de fluide oxydant.

Ces schistes présentent de fines laminations organiques. Certains niveaux, uniquement constitués de matériaux très fins (phylliteux, argileux), sont le lieu d'une forte concentration apparente en matière organique. Ils peuvent être le siège d'intense anomalie radioactive. C'est le cas du niveau anomal épais, inférieur au grès du compartiment nord de la coupe du barrage de la Vierre. Dans certains schistes organiques, des tissus de végétaux sont conservés, mais non identifiables (COQUEL, communication personnelle)⁺. Ainsi des cellules assez longues dont le coeur est rempli, soit par un matériel phylliteux, soit par de la calcite

Laboratoire de Palynologie, Université des Sciences et Techniques de Lille. Je le remercie des renseignements scientifiques qu'il m'a apportés. ont été observées (photos 3 et 4, Pl. VII).Notons que des tissus végétaux conservés ont été trouvés dans le niveau bréchique de l'anomalie du barrage de la Vierre(photo 2, planche VII). Ceux-ci ont été piégés à la faveur d'un galet mou de pélites noires (photo 1 planche VII). Cette fossilisation est le témoin d'une répartition dans le bassin sédimentaire de végétaux flottés.

6.1.2.2. L'étude en diffractométrie des rayons X

L'étude sur roche totale montre l'importante proportion des minéraux argileux dans ces sédiments. Ils sont constitués d'illite et de chlorite bien cristallisées. La chlorite correspond à une chlorite ferrifère déterminée à partir des intensités relatives de ces différentes raies de diffraction.



Fig. 60 : Diagramme d'analyse des schistes en diffraction des rayons X.

Le quartz et les feldspaths interviennent dans des proportions minimes. Les niveaux anomaux n'ont pas livré de minéral nouveau (fig.60). L'analyse sur roche totale a été poursuivie par l'analyse des minéraux argileux sur pâtes orientées(HOLTZAPFEL, 1981). Celle-ci avait pour but: - d'étudier les variations des teneurs en illite et en chlorite au sein de la matrice argileuse,

- de voir si les teneurs en tel ou tel radioélément n'étaient pas corrélatives avec une phase minéralogique argileuse préférentielle. L'estimation des proportions en illite et en chlorite a été faite à partir des hauteurs des pics de l'illite(001) et de la chlorite (001)(002) de l'échantillon glycolé, selon les équations suivantes :

> A = hauteur du pic (001) de l'illite à 10 A hauteur du pic Chl (001)(14 Å) + hauteur du pic Chl(002)(7 Å) B = $\frac{2}{2}$

> > I/C

A + B= 100 %

Parallèlement, sur les conseils du Professeur CHAMLEY⁺, j'ai représenté les teneurs des différents radioéléments en fonction du rapport

hauteur du pic (001) de l'illite à 10 A

hauteur du pic (001) de la chlorite à 14A

La raison de cet artifice est que la teneur en fer, plus ou moins importante de la présente chlorite joue sur l'intensité du pic (002) à 7 Å. Celle-ci pourrait fausser les proportions réelles des minéraux argileux. Chaque échantillon est donc caractérisé par un rapport I/C déterminé.

L'analyse a donc porté sur 51 échantillons (fig. 61,62,63) regroupant principalement les anomalies de Chiny et du barrage de la Vierre, choisis dans une gamme de radioactivité la plus large possible. Elle montre une majorité de minéraux de type chlorite au sein du matériel argileux; l'illite voisine souvent autour de 45 % mais peut atteindre 60 %.

Il faut remarquer que l'illite apparaît bien cristallisée, présentant des degrés de cristallinité compris en 1,75 et 2 mm (largeur du pic (001) à mi-hauteur). Selon les travaux de DUNOYER de SEGONZAC (1969), les échantillons analysés se trouvent dans le domaine métamorphique et plus précisément dans l'épizone.

Des modifications et des recristallisations des minéraux argileux sont donc envisageables. Elles perturberaient l'information initiale. Ainsi, des faciès argileux contenant en partie de la kaolinite (sensible à la moindre élévation de température) qui classiquement montre une capacité à adsorber l'uranium, seraient transformés en faciès à illite bien cristallisée.

- 122 -

⁺ Laboratoire de Sédimentologie, Université des Sciences et Techniques de Lille. Je le remercie de ses conseils scientifiques.

| 23 | |
|----|----|
| | 23 |

| Numéro de l'échantillon | Illite (%) | Chlorite (%) | I/C |
|----------------------------|---------------|-----------------|------|
| S-042 | 38 | 62 | 1.42 |
| s-100 | 40 | 60 | 1.54 |
| S-102 | 39 | 61 | 1.41 |
| S-104 | 43 | 57 | 1.67 |
| S-105 | 40 | 60 | 1.50 |
| S-106 | 36 | 64 | 1.23 |
| S-107 | 43 | 57 | 1.73 |
| S-108 | 44 | 56 | 1.68 |
| S-109 | 43 | 57 | 1.78 |
| S-110 | 36 | 64 | 1.23 |
| s-111 | 44 | 56 | 1.67 |
| S-112 | 39 | 61 | 1.44 |
| S-115 | 41 | 59 | 1.56 |
| S-116 | 36 | 64 | 1.22 |
| S-117 | 38 | 62 | 1.40 |
| S-118 | 34 | 66 | 1.19 |
| S-119 | 45 | 55 | 1.73 |
| S-122 | 52 | 48 | 2.28 |
| s-130 | 47 | 53 | 1.85 |
| S-131 | 36 | 64 | 1.25 |
| S-132 | 39 | 61 | 1.35 |

Fig. 61 -- Analyse en diffraction X des minéraux argileux des schistes de l'anomalie de Chiny.

| Numéro de l'échantillon | Illite (%) | Chlorite (%) | I/C |
|----------------------------|---------------|-----------------|------|
| S-142 | 58 | 42 | 2.98 |
| S-143 | 55 | 45 | 3.54 |
| S-144 | 58 | 42 | 4.23 |
| S-145 | 48 | 52 | 2.54 |
| s -146 | 43 | 57 | 1.52 |
| S-147 | 47 | 53 | 3.33 |

| Numéro de l'échantillon | Illite (%) | Chlorite (%) | I/C |
|----------------------------|---------------|-----------------|------|
| s-001 | 46 | 54 | 1.94 |
| S-003 | 44 | 56 | 2.19 |
| s-004 | 56 | 44 | 3.09 |
| s-005 | 42 | 58 | 2.77 |
| s-007 | 45 | 55 | 2.00 |
| S008 | 52 | 48 | 2.31 |
| s-009 | 45 | 55 | 1.78 |
| s-015 | 43 | 57 | 1.91 |
| S-016 | 58 | 42 | 2.22 |
| S-017 | 55 | 45 | 2.87 |
| S-022 | 46 | 54 | 1.83 |
| S-025 | 43 | 57 | 1.76 |
| S-027 | 48 | 52 | 2.17 |
| S-032 | 39 | 61 | 1.53 |
| S-033 | 49 | 51 | 2.04 |
| S-036 | 45 | 55 | 1.34 |
| S-134 | 62 | 38 | 5.77 |
| S-136 | 56 | 44 | 3.54 |
| S-139 | 40 | 60 | 2.08 |
| S-161 | 40 | 60 | 2.32 |
| S-164 | 49 | 51 | 2.79 |
| s-309 | 45 | 55 | 2.38 |
| S-310 | 47 | 53 | 2.76 |
| S-311 | 42 | 58 | 2.19 |

| Fig. | 62 | - Analy | se en | ı di | ffra | iction | X des | 3 |
|------|-----|---------|-------|------|------|--------|-------|---|
| | miı | néraux | argil | eux | de | l'anor | nalie | |
| | đu | barrag | e de | la | Vier | re. | | |

| Partie | supérieure | : | les | schistes. |
|--------|------------|---|-----|-----------|
| Partie | inférieure | : | les | grès. |

Fig. 63 -- Analyse en diffraction X des minéraux argileux des schistes de l'anomalie d'Herbeumont.

Il faut donc être prudent dans l'analyse des corrélations entre le matériel argileux (notamment l'illite) et les radioéléments (notamment l'uranium) et tenir compte de relations possibles anté-métamorphiques.

La corrélation simple Umétal - matériel argileux ne montre pas d'affinité de l'uranium avec l'illite (Um = 1,97 Ill - 46,27 et R = 0,051), la chlorite (Um = -2,74 Ill + 190,68 et R = 0,097), ou le rapport I/C (Um = 6,11 I/C + 28,20 et R = 0,007) (fig. 64).



Fig. 64 : Diagramme de la corrélation simple Um-illite.

Nous envisagerons au paragraphe 6.4 le problème en le traitant en corrélations multivariables afin de mieux tenir compte des différents facteurs susceptibles d'agir sur la distribution de l'uranium.

6.2. ETUDE DES MINERAUX LOURDS

6.2.1. Nécessité d'une telle étude

L'observation microscopique associée aux analyses en spectrométriegamma a conduit à l'identification de niveaux susceptibles d'être enrichis en minéraux lourds.

D'une part, ont pu être observées, une relative abondance de grains de zircons et de minéraux opaques dans les grès, de même que leurs accumulations dans certaines laminations plus ou moins phylliteuses

D'autre part, la spectrométrie gamma a révélé certains niveaux de schistes noirs enrichis en thorium, élément principalement lié aux argiles et aux minéraux lourds. Ces derniers sont susceptibles d'être radiogéniques.Selon leur stade de cristallisation au sein de leur magma d'origine, ils peuvent concentrer l'uranium et le thorium (PAGEL, 1982).

Le but de l'étude des minéraux lourds était de savoir s'ils contribuaient totalement ou en partie à la radioactivité des roches du Siegénien inférieur, principalement des grès.

6.2.2. Les minéraux lourds et la radioactivité dans les granites

Les minéraux lourds que l'on rencontre à l'état détritique dans les roches sédimentaires sont essentiellement issus de magma granitique originel.

La distribution de l'uranium dans les granites est complexe. PAGEL (1982) décrit sept modes différents de distribution de l'uranium qu'il a rassemblé en deux groupes :

- a) le premier groupe présente trois modes différents :
- état diffus associé aux minéraux essentiels,
- substitutions dans les minéraux accessoires (en remplacement du calcium, des terres rares, etc...)
- oxyde ou silicate de thorium et d'uranium.

b) le second groupe comprend quatre modes de distribution liés à l'intervention de phases fluides :

- minéraux d'altération ou de néoformation,

- microfractures,
- adsorption sur les bordures de grains,
- inclusions fluides.

Il remarque que les minéraux essentiels ne contiennent qu'une faible proportion d'uranium. Il donne en exemple le monzogranite des Ballons (Vosges Méridionales) où la teneur moyenne en uranium est de 13 ppm. La contribution maximale des minéraux essentiels est de 20 % (biotite 3,5 %; amphibole 5,4 %; feldspath K 5,8 %; plagioclase 3,2 %).

En considérant uniquement les minéraux accessoires (où la substitution en uranium est inférieure à 1 %) tels que l'apatite, oxyde de titane, sphène, zircon, allanite, monazite, il observe que ceux-ci participent environ à 30 % de l'uranium du granite.

La majeure partie de l'uranium du granite est à rattacher aux oxydes et silicates de thorium et d'uranium tels que la thorite et l'uraninite.

Les minéraux accessoires justifient donc rarement les teneurs supérieures au clarke des granites. Cependant, certains possèdent des gammes de substitutions en uranium très larges; certains zircons contiennent plus de 3% d'uranium (BASHAM et al, 1982). La figure 65, établi par BASHAM et al montre les concentrations en uranium des différents minéraux accessoires.

| Minéraux | Intervalle de concentration en uranium |
|-----------|---|
| Rutile | • < 100 ppm |
| Apatite | 10 < . < 250 ppm (parfois 500 ppm) |
| Sphène | 10 < . < 1 400 ppm (généralement < 500 ppm) |
| Epidote | . < 200 ppm |
| Allanite | 30 < . < 3 000 ppm |
| Zircon | 100 < . < 3 000 ppm (parfois 6 000 ppm, même 3 %) |
| Xénotine | 300 < . < 4 000 ppm |
| Monazite | 500 < . < 5 000 ppm |
| Thorite | 1 % < . < 25 % |
| Uraninite | 80 % |
| | |

Fig. 65 .- Intervalle de concentration en uranium des minéraux accessoires des granites

PAGEL (1982) différencie au sein de ceux-ci deux classes selon le rapport Th/U.

| . Classe | 1 | | | | | ſ | uraninite | Th/U | = | 1,3 |
|------------|----|--------|-----|-------|--------|---|-----------|------|---|-----|
| Th/U < à | la | valeur | sur | roche | totale | | zircon | Th/U | = | 0,4 |
| | | | | | | | sphène | Th/U | = | 1,7 |
| | | | | | | | apatite | Th/U | = | 1 |
| | | | | | | | | | | |
| . Classe | 2 | | | | | - | allanite | Th/U | = | 50 |
| Th/U $>$ à | la | valeur | sur | roche | totale | | épidote | Th/U | = | 4,8 |
| | | | | | | | monazite | Th/U | = | 25 |

L'évolution du rapport Th/U d'un magma granitique dépend principalement du rapport Th/U des minéraux accessoires qui précipitent.

Dans un magma granitique commun (Th/U = 4) et en considérant les données de ROGERS et ADAMS (1969), on peut distinguer les minéraux accessoires qui entraineront du fait de leur cristallisation une baisse du rapport Th/U (classe 2) et ceux qui provoqueront une hausse du rapport Th/U (classe 1). A titre d'exemple, dans les leucogranites, la cristallisation de monazite à rapport Th/U élevé entraine un enrichissement relatif en uranium du magma et aboutit à la formation d'uraninite.

Ainsi ces granites repris dans un évènement superficiel ou profond postérieur à la mise en place, dans un autre orogène par exemple, seront capables de fournir un stock d'uranium appréciable, si toutefois celui-ci est mobilisable (granite fertile). PACEL propose la définition suivante : "un granite fertil est un granite dans lequel l'uranium ne peut se substituer dans les minéraux habituels et forme des phases minéralogiques solubles au cours des processus d'altération endogènes ou exogènes".

6.2.3. Méthode d'extraction et de séparation des minéraux lourds

6.2.3.1. Préparation de l'échantillon

200 g de roche cohérente ont été broyés progressivement au broyeur à mâchoire. Entre chaque broyage successif, l'échantillon a été tamisé à sec selon deux classes granulométriques entre 150 et 50 µm et inférieur à 50 µm. Le broyage a été poursuivi jusqu'à ce que la presque totalité de l'échantillon soit à une granulométrie inférieure à 150 µm.

L'intervalle 150-50 µm correspond à la classe granulométrique préférentielle des zircons (PUPIN, 1981) et sera à la base de la présente étude. Cette classe correspond aux tailles observées en microscopie optique.

6.2.3.2. Séparation par liqueurs denses

La fraction granulométrique ainsi extraite a été soumise à une séparation des minéraux lourds par liqueurs denses dans un premier temps au bromophorme (d = 2,9), puis à l'iodure de méthylène (d = 3,32).

| Précipité au Flottant à l'iodu 2.90 < c | bromorphorme are de méthylène 1 < 3.32 | Précipité au bromorphorme Précipité à l'iodure de méthylène d > 3.32 | | | | |
|---|--|--|-----------|--|--|--|
| | | Magnétite | 4.90-5.20 | | | |
| Chlorite | 2.60-3.30 | Hématite | 4.20-5.00 | | | |
| Tourmaline | 3.03-3.25 | Goethite | 4.30 | | | |
| Apatite | 3.10-3.35 | Rutile | 4.23-5.50 | | | |
| Biotite | 2.70-3.30 | Xénotime | 4.50-5.10 | | | |
| (Quartz à in | clusion) | Zircon | 4.60-4.70 | | | |
| | | Pyrite | 4.95-5.03 | | | |

Fig. 66 .- Répartition des minéraux lourds selon les densités employées

Ces deux séparations furent entreprises afin d'établir une discrimination au sein des minéraux lourds, notamment entre l'apatite et le zircon, minéraux susceptibles d'être radioactifs. Les différents minéraux accessoires déterminés par l'observation microscopique (zircon, apatite, pyrite, goethite, hématite, rutile, tourmaline) se répartissent du point de vue de leur densité selon la figure 66 (PARFENOFF, 1970).

Afin d'isoler l'apatite et le zircon des autres minéraux, une séparation magnétique à un ampère (1 A) au séparateur Frantz fut effectuée sur les flottants et les plongeants (fig. 67).



Fig. 67 .- Principe et méthode de séparation des minéraux lourds.

Les précipités et flottants furent préalablement passés à l'aimant manuel, afin d'éliminer les limailles de fer éventuelles dues au broyage. Ce traitement mit en évidence la présence de magnétite, essentiellement dans les grès. Cette magnétite appartient au cortège des minéraux détritiques, sans affinité métamorphique.

L'identification des minéraux lourds a été effectuée sous loupe binoculaire avec l'aide des ouvrages du B.R.G.M. (N° 95 de 1978, et le N° 71 de 1969).

6.2.4. Principe de la méthode d'analyse en anticoïncidence

Cet appareil est destiné à la mesure de faibles radioactivités. Il permet de travailler sur de très petites quantités de matières. Il est donc particulièrement adapté à l'étude des minéraux lourds. En effet, les présentes analyses ont porté sur des quantités comprises entre le gramme et le 1/100 gramme. Le seuil de sensibilité donné par les constructeurs est de quelques dizièmes de désintégration par minute.

Les mesures sont d'une extrême précision; l'élimination du bruit de fond dû au rayonnement cosmique est obtenue par le montage en anticoïncidence entre un compteur de mesure et un compteur de garde et par l'emploi d'un blindage de vieux plomb doublé de cuivre (10 cm d'épaisseur).

Les compteurs de mesure et de garde sont du type à circulation. Ils sont alimentés en série par un mélange hélium-isobutane et sont utilisés en régime Geiger-Müller. La stabilité de fonctionnement des compteurs exige de l'ensemble du circuit d'alimentation en gaz des qualités bien définies : débit constant, et surpression à l'intérieur des chambres de mesure dans le but de permettre un réglage et un contrôle du débit.

Le rayonnement béta ionise l'hélium. Les électrons émis sont attirés par une anode et comptabilisés sur une imprimante en coups/minute.

6.2.5. Les résultats d'analyse en anticoïncidence

6.2.5.1. Les schistes

Le contenu en minéraux lourds des schistes apparaît très faible, il ne dépasse pas 0,80 % de la roche totale (fig.68,69). Il est principalement représenté par les fractions P. at. (pyrites altérées, hématite, goethite) et F. at. (tourmaline, chlorite, rarement de la limonite). Les fractions P.n. at (zircon, quelques pyrites) et F.n.at (apatite, chlorite) sont parfois présentes.

- 129 -

Les figures 68 et 69 comparent les taux de radioactivité exprimés en coups par gramme et par minute (c/g/mn) de la roche totale et des différentes fractions minéralogiques. Les taux cumulés de ces dernières représentent au maximum 70 fois celui de la roche totale.

| | | Fraction non attirable (F. n. at.) apatite, chlorite Fraction attirable 1 A (F tourmaline, chlorite, lim | | | | f. at.) monite | |
|---|--|---|------------------------------------|------------|--------------------------------------|------------------------------------|------------|
| Numéro de l'échantillon teneurs en U et Th) | Taux de radioactivité de la roche totale (c/g/mn) | Taux de radioactivité (c/g/mn) | % de la radioactivité totale | % en poids | Taux de radioactivité (c/g/mn) | % de la radioactivité totale | % en poids |
| S-144 (3,3;15,1) | 31.97 | - | - | - | 273.62 | 0.77 | 0.09 |
| S-142 (3,9;15,7) | 36.85 | - | - | - | 410.00 | 0.44 | 0.04 |
| 5-134 (27,2;21,8) | 59.34 | 257 | 0.73 | 0.17 | 185.16 | 1.59 | 0.51 |
| S-CO8 (33,4;21,7) | 46.66 | - | - | - | 102.98 | 0.92 | 0.42 |
| S-007 (103;15,8) | 88,55 | - | - | - | 121.70 | 1.03 | 0.75 |
| S-004 (14,4;16,7) | 42.69 | - | - | - | 127.81 | 0.80 | 0.27 |

Fig. 68: Analyse en anticoïncidence des minéraux lourds des flottants à l'iodure de méthylène des schistes noirs

| | | Fraction non attirable (P. n. at.) zircon, pyrite | | | Fraction attirable 1 A (P. at.) pyrite altérée, H, g | | | |
|---|--|--|------------------------------------|------------|---|------------------------------------|------------|--|
| Numéro de l'échantillon (teneurs en U et Th) | Taux de radioactivité de la roche totale (c/g/mn) | Taux de radioactivité (c/g/mn) | % de la radioactivité totale | % en poids | Taux de radioactivité (c/g/mn) | % de la radioactivité totale | % en poids | |
| S-144 (3,3;15,1) | 31.97 | - | - | - | 1 960.40 | 12.26 | 0.20 | |
| S-142 (3,9;15,7) | 36.85 | - | - | - | 2 074.50 | 11.25 | 0.20 | |
| 5-134 (27,2;21,8 | 59.34 | 924.70 | 0.16 | 0.01 | 1 594.65 | 0.54 | 0.02 | |
| S-008 (33,4;21,7 | 46.66 | - | - | | 1 124.85 | 0.96 | 0.04 | |
| S-007 (103;15,8) | 88.55 | - | - | - | 984.70 | 0.33 | 0.03 | |
| S-004 (14,4;16,7 | 42.69 | 587,90 | 0.27 | 0.02 | 1 014.20 | 0.47 | 0.02 | |

Fig. 69: Analyse en anticoIncidence des minéraux lourds des précipités à l'iodure de méthylène des schistes noirs

Bien que chaque classe minérale ait un taux de radioactivité plus intense que la roche totale, l'une d'entre elles se détache : la fraction P. at. (fig. 69). Ces intensités importantes sont dues à une radioactivité anormale de pyrites altérées, des hématites et goethites associées.

Par un simple calcul, j'ai évalué la contribution de chaque classe à la radioactivité générale de la roche :

taux de radioactivité de la classe (c/g/mn) . % en poids de la roche totale contribution en % = -taux de radioactivité de la roche totale (c/g/mn)

Les données montrent que, mis à part les échantillons S₁₄₂ et S₁₄₄ la contribution des minéraux lourds à la radioactivité totale est de quelques pour cent maximum.

En ce qui concerne S_{142} et S_{144} , la contribution de la classe P.at. est assez importante (11,25 et 12,26 %). Ils appartiennent à la zone broyée de l'anomalie d'Herbeumont où les intensités radioactives anormales sont faibles (voir paragraphes 4.2.2. et 5.3), 1,5 à 2 fois le bruit de fond. Les pyrites altérées et les oxydes de fer associés, plus abondants dans ce niveau, sont des agents fixateurs de l'uranium et sont responsables pour une bonne part de la faible radioactivité anormale de cette zone broyée.

Les fortes teneurs en thorium enregistrées par l'analyse en spectrométrie gamma sur ces six échantillons ne se traduisent pas, par l'accumulation de minéraux lourds (zircon, apatite). Présents dans S_{134} et S_{004} , les zircons sont assez fortement radiogéniques (les études ultérieures nous montreront que les pyrites saines, qui peuvent être associées aux zircons ne sont pas radioactives, § 6.3.3.1.) . Leur contribution à la radioactivité totale est très faible (inférieure au l %). La présence de thorium est donc sans doute en liaison avec le matériel argileux (paragraphe 8.1.).

La fraction F. at.est presque exclusivement composée de phyllosilicates tels que la chlorite (la tourmaline est souvent absente). L'analyse en anticoïncidence montre pour la faible proportion de micas de densité supérieure à 2,9, un taux de radioactivité jusqu'à dix fois celui de la roche totale.

En conclusion de cette étude sur les minéraux lourds des schistes, chaque classe minéralogique est anormalement radiogénique. Cependant, l'une d'entre elles présente un taux de radioactivité très élevé (P. att). Toutefois, vue leur faible concentration dans la roche, la contribution des minéraux lourds ne permet pas d'expliquer les anomalies en thorium et en uranium. La fraction F. at. laisserait supposer, étant donné le matériel phylliteux abondant dans les schistes, que les phyllosilicates jouent un rôle prépondérant dans la radioactivité de la roche.

6.2.5.2. Les grès

Mis à part la magnétite extraite avant l'analyse, les grès apparaissent peu chargés en minéraux lourds. Le pourcentage en poids ne dépasse pas 0,5 % (voir fig. 70 et 71) .

| | | Fraction 5 à 10 % a | non attirable (F. patite, 5 à 10 % 80 à 90 % quartz | n. at.) chlorite | Fraction attirable 1 A (F. at.) tourmaline, quartz, chlorite | | |
|---|--|--------------------------------------|---|---------------------|---|------------------------------------|------------|
| Numéro de l'échantillon (teneurs en U et Th) | Taux de radiosctivité de la roche totale (c/g/mn) | Taux de radioactivité (c/g/wn) | % de la radioactivité totale | % en poids | Taux de radioactivité (c/g/mn) | % de la radioactivité totale | % en poids |
| S-311 (5,2;6,9) | 16.95 | 464.83 | 2.47 | 0.09 | 164.27 | 0.65 | 0.07 |
| S-310 (81;3,2) | 84.66 | 494.78 | 1.17 | 0.20 | 366.08 | 0.68 | 0.15 |
| S+309 (17,2;5,7) | 23.00 | 268.46 | 0.47 | 0.04 | 398.00 | 0.69 | 0.04 |
| 5-123 (4,8;7,5) | 15.44 | 193.87 | 0.63 | 0.05 | 201.60 | 1.04 | 0.08 |
| S-114 (4,5;2,7) | 18.63 | 117.33 | 0.81 | 0.12 | 167.46 | 0.97 | 0.10 |
| S-094 (3,1;9,3) | 19.48 | 293.50 | 0.30 | 0.02 | 507.62 | 0.26 | 0.01 |

Fig. 70: Analyse en anticoIncidence des Winéraux lourds des flottants à l'iodure de méthylène des grès

| | | Fraction non attirable (P. n. at.) 75 % zircon, 20 % pyrite, 5 % à 10 % rutile | | | Fraction attirable l A (P. at.) pyrite altérée, goethite | | |
|---|--|---|------------------------------------|------------|---|------------------------------------|------------|
| Numéro de l'échantilion (teneurs en U et Th) | Taux de radioactivité de la roche totale (c/g/mn) | Taux de radioactivité (c/g/mn) | % de la radioactivité totale | % en poids | Taux de radioactivité (c/g/mn) | % de la radioactivité totale | % en poids |
| 5-311 (5,2;6,9) | 16.95 | 518.68 | 1.68 | 0.06 | 505.54 | 0.60 | 0.02 |
| 5-310 (81;3,2) | 84.66 | 1 334.50 | 0.95 | 0.06 | 527.90 | 0.31 | 0.05 |
| 5-309 (17,2;5,7) | 23.00 | 1 063.30 | 0.92 | 0.02 | 356.40 | 1.24 | 0.08 |
| 5-123 (4,8;7,5) | 15.44 | 395.37 | 0.51 | 0.02 | 824.07 | 0.53 | 0.01 |
| S-114 (4,5;2.7) | 18.63 | 456 | 5,28 | 0.21 | 277.41 | 2.25 | 0.15 |
| 5-094 (3,1;9,3) | 19.48 | - | - | - | - | - | - |

Fig. 71 : Analyse en anticoIncidence des minéraux lourds des précipités à l'iodure de méthylène des grès

Les quatre classes minéralogiques sont représentées. La classe P.n. at. est essentiellement constituée de zircons. Une estimation sous loupe binoculaire des pourcentages relatifs, nous donne environ les proportions suivantes : 20 % de pyrites saines, 5 à 10 % de rutile, 75 % de zircon.

La proportion d'apatite au sein de la fraction F. n. at. est faible : apatite 5 à 10 %, micas 5 à 10 %, quartz 80 à 90%.

Chaque classe minéralogique présente des taux de radioactivité anormaux; le plus intense étant celui de la fraction P. n. at.

Il est possible de traduire, par l'intermédiaire de calculs, ces taux en concentration approximative d'uranium dans les zircons. Pour cela, il faut tenir compte de la faible teneur en rutile du précipité et de la faible capacité de ce minéral à concentrer l'uranium (fig. 65). Ces faits permettent de négliger sa contribution radioactive devant celle du zircon.

$$((U)_{RT} + (Th)_{RT})$$
. taux de radioactivité $\cdot \frac{1}{0,75}$
de la classe = $x(U)_{Z} + y(Th)_{Z}$

taux de radioactivité de la roche totale

= $x(U)_{Z}$ + $x.0, 4.(U)_{Z}$

= $x.1,4.(U)_Z$ x = % en U des zircons, y = % en Th des zircons, Th/U = 0,4 (§ 6.2.2.), $(U)_{PT}$ - (Th)_{PT} sont les teneurs données par la spectrométrie gamma.

Ce qui donne l'intervalle de concentration U suivant :

297,5 < . < 1264 ppmU.

Il est à remarquer :

- que ces chiffres sont cohérents avec ceux donnés dans la littérature,
- que la variabilité des taux de radioactivité est sans doute en liaison avec un mélange de populations différentes.

En effet, la fraction P. n. at. présente deux types morphologiques de zircons. Les uns sont très arrondis, alors que d'autres montrent des cristaux bipyramidaux bien développés où toutes les facettes du minéral apparaissent conservées. Ils sont le plus souvent rosés. Certains sont de couleur marron et correspondraient au malacon (zircon métamicte). Sachant que le zircon est un minéral très résistant, le précipité présenterait plusieurs générations de zircon, au moins deux. Chacune aurait une histoire antérieure propre. Ceux bien cristallisés auraient eu une histoire sédimentaire courte ou plus exactement un transport relativement bref à partir de leur magma d'origine. Les autres, bien arrondis, auraient subi un transport plus long, les impliquant dans d'autres dépôts sédimentaires antérieurs dont les zircons auraient été hérités. Ces populations peuvent présenter des concentrations en uranium différentes qui conduit à la variabilité des taux enregistrés.

Comme dans le cas des schistes, la fraction P. at. est constituée de pyrites altérées, d'hématite et de goethite présentant un taux de radioactivité anormal (au maximum 50 fois celui enregistré sur roche totale). La classe (F. at.), à majorité de chlorite, laisse supposer qu'une certaine part de radioactivité est à rattacher aux micas. La magnétite extraite avant l'analyse a été soumise au comptage par anticoïncidence. Sa participation en poids à la roche totale est très minime : 0,03 % < . < 0,15 % (fig. 72). L'analyse montre que la magnétite peut être légèrement radiogénique; les taux de radioactivité sont compris entre 17,23 < . < 196,6 c/g/mm.

| | Numéro des échantillons | | | | | |
|-----------------------------------|-------------------------|-------|-------|-------|-------|--------|
| | S-094 | S-114 | S-123 | S-309 | S-310 | S-311 |
| Taux de radioactivité (c/g/mn) | 105.48 | 57.92 | 64.39 | 17.23 | 19.70 | 196.60 |
| % de la radioactivité totale | 0.16 | 0.50 | 0.16 | 0.03 | 0.02 | 0.92 |
| % en poids | 0.03 | 0.15 | 0.04 | 0.04 | 0.09 | 0.08 |

Fig. 72.- Analyse en anticoïncidence de la magnétite contenue dans les grès

Celle-ci adsorberait l'uranium lors de son transport jusqu'au lieu de dépôt.

La contribution de l'ensemble des minéraux lourds à la radioactivité de la roche s'étend de 0,72 % à 10,31 %. L'échantillon S-114 montre une contribution plus forte des minéraux lourds à la radioactivité globale. En effet :

- ce niveau est presque totalement dépourvu de matériel micacé (observation microscopique du paragraphe 6.1) qui semble avoir des affinités radiogéniques;

- ce niveau est sensiblement enrichi en zircons qui apparaissent radiogéniques pour tous les grès étudiés (0,1 % de la roche totale, fig.71).

En conclusion, les minéraux lourds contenus dans les grès participent davantage à la radioactivité totale que dans le cas des schistes, surtout si le grès est dépourvu de matériel phylliteux. Cependant, ils ne justifient pas les anomalies en uranium et thorium des quartzites mises en évidence par spectrométrie gamma. Afin de cerner la phase porteuse de l'uranium, j'ai procédé à la séparation magnétique (à 1 A) du matériel phylliteux contenu dans certains grès fortement micacés, et débarassés des minéraux lourds (flottant au bromophorme). La muscovite n'étant pas attirable au séparateur Frantz (PARFENOFF, 1970), ce matériel est essentiellement formé de chlorite. Les résultats en anticoïncidence furent les suivants (fig. 73) :

| | Numéro des échantillons | | | |
|---|-------------------------|--------|-------|--|
| | s-309 | S-310 | S-311 | |
| Taux de radioactivité de la roche totale (c/g/mn) | 23.00 | 84.66 | 16.95 | |
| Taux de radioactivité de la chlorite séparée (c/g/mn) | 147.96 | 229.13 | 57.85 | |
| % de matériel phylliteux dans les grès évalué au compteur de point | 12 % | 30 % | 15 % | |
| % de la radioactivité totale | 77 % | 81 % | 52 % | |

Fig. 73.- Résultats en anticoïncidence de la fraction phylliteuse des grès

On remarque que le matériel phylliteux attirable (S-310, S-311) passe du point de vue de la radioactivité de 1 à 4.

Si l'on considère le taux de radioactivité de la chlorite valable pour l'ensemble de la masse des phyllosilicates, on constate que les phyllites seraient responsables pour majeure partie de la radioactivité de la roche totale; tel l'échantillon S-310 où ce matériel fournit 81 % de la radioactivité d'ensemble.

$$229,13 \text{ c/g/mn} \cdot 0,30 = 68,74 \text{ c/g/mn}$$

$$\frac{68,74}{84,66} = 0,81$$
 soit 81%.

6.2.6. Conclusions

L'étude en anticoïncidence des minéraux lourds nous a révélé plusieurs points essentiels:

- les minéraux lourds que l'on auraient pu considérer comme responsables pour une bonne part de la radioactivité des grès, contribuent très peu ou faiblement à la radioactivité totale de la roche;

- au sein de la masse des minéraux lourds, la contribution radioactive possible des sulfures plus ou moins altérés peut être assez importante;

- dans le cas des grès, la possibilité de piégeage de l'uranium sur le matériel argileux est évident. Cette fixation est , soit active (adsorption sur les phyllites), soit passive, les phyllosilicates servant alors de support à une autre phase fixant l'uranium.

Du fait de l'enregistrement de taux de radioactivité forts sur certaines classes minéralogiques (zircon et pyrite altérée), bien qu'elles contribuent peu ou pas du tout à la radioactivité totale de la roche, l'analyse fut poursuivie par des études en autoradiographie.

6.3. ANALYSE EN AUTORADIOGRAPHIE

6.3.1. But de l'analyse

Cette analyse avait pour but de localiser et de déterminer les sources possibles de haute radioactivité porteuses d'uranium.Une série d'analyses autoradiographiques, portant à la fois sur les grès et schistes anomaux, fut entreprise au moyen de détecteurs solides de traces nucléaires. Les détecteurs employés furent les suivants :

- le film Kodak CN-85 d'une épaisseur de 100 µm. C'est un film de nitrate de cellulose incolore;

- le film LR.115 type 2 constitué d'une pellicule de 12 um de nitrate de cellulose sur un support en polyester de 100 µm; la couche de nitrate est fortement colorée en rouge. Ses avantages sont qu'il est facile à l'observation et que la couche de nitrate une fois détachée de son support peut faire l'objet de comptage par étincellage;

- un polymère CR-39 en plaque de 1 mm d'épaisseur, transparent. Les avantages de ce dernier sont qu'il est facile à manipuler du fait de sa rigidité et qu'il est plus sensible au rayonnement que les deux autres.

-136 -

Nous nous sommes surtout servis des films CN-85 et LR-115, ayant des difficultés à nous procurer le CR-39.

Ils sont tout sensibles au rayonnement alpha et insensibles à la lumière.

Pour de plus amples renseignements sur cette méthode d'analyse et ses condititons d'emploi consulter BASHAM et al (1977), BASHAM (1981) et DUANE (1980).

Le seuil de détection en concentration de radioéléments de ces films est estimé à la centaine de ppm. Ils furent appliqués pendant trois semaines.

Les traces enregistrées par ces films n'étant pas directement observables, leur révélation s'effectue à l'aide d'un traitement chimique dans une colution alcaline. La technique interne au Laboratoire de la F.P.Ms est la suivante : le film est attaqué durant 1/2 heure dans une solution de soude caustique à 10 % (2,5 N). La température d'attaque est de 60°C (réalisée à l'étuve). En fin de traitement, le film est lavé à l'eau pendant au moins 1/2 heure.

6.3.2. Technique analytique

Afin de réaliser l'analyse dans les meilleures conditions, en tenant compte des faibles dispersion et pénétration du rayonnement alpha, un contact uniforme et strict entre le film et la roche est nécessaire. Pour cela, nous avons procédé à un polissage des surfaces à étudier. Celui-ci a été effectué sur deux types de préparation :

- surfaces polies sur échantillon de roche massive permettant une observation ultérieure en microscopie à réflexion;
- surfaces polies sur lames minces non couvertes, permettant une observation ultérieure en microscopie de transmission. Celle-ci permet une localisation plus précise des phases radiogéniques.

Une analyse autoradiographique a été effectuée sur la fraction P.n.at (paragraphe 6.2.5.2) des minéraux lourds des grès et principalement sur les zircons. Pour cela, j'ai réalisé des "frottis" selon le mode opératoire suivant :



polissage mettant à nu les minéraux

Le xylène, étant déposé avant le baume (il est un dissolvant du baume), évite le piégeage de bulle d'air.

6.3.3. Les résultats

Les échantillons ont été choisis de telle façon qu'ils présentent la plus grande hétérogénéité de faciès possible, ce qui permit par la suite une distinction plus aisée des phases porteuses.

6.3.3.1. Les schistes

D'une manière générale, dans les échantillons présentant une alternance de laminations schisteuses et gréseuses, les traces de particules apparaissent davantage au droit du matériel schisteux, tout en restant très dispersées. Ceci traduit une répartition préférentielle de l'uranium diffus dans les pélites.

Sept niveaux schisteux anomaux ont fait l'objet d'une telle étude. Certains(S₀₀₁, S₀₀₃, S₁₃₉, (fig. 47 et 48)) montrent des traces de rayonnement alpha liées aux pyrites (quand elles sont présentes). Ces traces s'organisent en tâche intense selon les contours des cristaux constituant un halo de radioactivité (fig.74,voir photo 1 de la planche 3). Notons que ces trois échantillons proviennent des deux anomalies sur schistes noirs constituant l'encaissant immédiat (supérieur et inférieur) de l'ensemble gréseux à faciès plus ou moins oxydés de la coupe du barrage de la Vierre.

Toutes les pyrites ainsi observées montrent des contours plus ou moins intensément oxydés. Cette auréole d'oxydation est généralement constituée dans sa partie interne d'hématite et dans sa partie externe de goethite. La distinction entre ces deux phases s'est effectuée au microscope à réflexion, l'hématite ayant une teinte gris-bleuté alors que la goethite apparaît de teinte rouille. Elles marquent un gradient dans l'oxydation des pyrites, la phase la plus oxydée étant la plus externe.



Fig. 74 : Radioactivité intense enregistrée sur les contours des grains de pyrite par analyse en autoradiographie.

Il n'a pas été possible de voir si la radioactivité était préférentiellement concentrée dans l'une des deux phases. Rappelons selon l'étude du paragraphe 6.1.2,que les pyrites ne se présentent jamais sous forme massive et que ce sont des cristaux à caractère diagénétique épigénétique. Il est à noter que les pyrites saines non oxydées ne sont pas radiogéniques.

En plus de ces observations, un niveau (S₀₀₁) (fig. 48) a livré des tâches de radioactivité associées à des oxydes ou hydroxydes de fer Celles-ci se présentent de plusieurs manières :

- de façon assez massive associées à une matrice plus grossière, celles-ci pouvant se trouver non loin des pyrites précédentes (photos 3 et 4, planche III);

- de façon massive, isolées dans la masse pélitique (photos 5 et 6, planche III);

- sous forme de petits grains d'une dizaine de microns, assez concentrés, dans de fines laminations gréseuses (photos 7 et 8, planche III).

Bien sûr, il faut tenir compte du fait que ces oxydes peuvent provenir d'anciennes pyrites totalement oxydées ou que les lames minces n'ont pas coupé le coeur frais des pyrites. En conclusion, pyrites altérées et oxy-hydroxydes de fer apparaissent toujours plus ou moins en relation avec une matrice plus grossière qui se présente généralement sous forme de lamination. Celles-ci ont pu jouer un rôle dans la migration d'un flux oxydant corrodant les structures préexistantes. De plus , les niveaux intéressés encadrent des grès oxydés témoignant de l'avancée d'un front d'oxydo-réduction.

6.3.3.2. Les grès

L'analyse autoradiographique sur surfaces polies des grès anomaux a révélé deux modalités de distribution de la radioactivité :

- une dispersion au sein de la roche sans phase porteuse préférentielle. C'est le cas du niveau gréseux fortement uranifère (S₃₁₀) de l'anomalie du barrage de la Vierre. Les impacts d'alpha sont très rares, cela est probablement dû à une concentration diffuse en radioélément inférieur au seuil de sensibilité des détecteurs solides.

L'étude a été poursuivie sur des "frottis" de zircons isolés de ce niveau. Les films montrent quelques rares impacts traduisant certainement un faible contenu en radioéléments de ces phases minérales (voir paragraphe 6.2.5.2);

 une concentration sur des phases porteuses bien déterminées : les minéraux sulfurés. Celles-ci se localisent dans le "roll front" décrit dans les grès à faciès rouge du compartiment méridional de la zone anomale du barrage de la Vierre. Les tâches d'impacts des particules alpha organisées en halos se superposent :

- soit à des pyrites plus ou moins oxydées sur leurs pourtours,

- soit à des anciennes pyrites totalement oxydées en hématite, le fantôme cubique subsistant,

- soit à des pyrites "saines", non associées à des auréoles d'hématite et de goethite. Ces pyrites ne sont pas massives et sont accompagnées dans les espaces intergranulaires de plages noires. Celles-ci apparaissent hors des faciès rouges.

Il y a donc deux types de pyrite radiogénique :

- l'un à rapprocher du cas des schistes : pyrites plus ou moins oxydées en hématite et goethite,

- l'autre, uniquement observé dans le "roll front" : pyrites non altérées en oxy-hydroxyde de fer mais associées à des plages intergranulaires noires.

- 140 -

6.3.4. Bilan de l'analyse

Les anomalies à haute concentration d'uranium (jusqu'à 250 ppm) (fig. 47 et 48) du barrage de la Vierre gréseuses ou schisteuses montrent en analyse autoradiographique deux types d'association de la radioactivité:

- une radioactivité diffuse au sein de la roche,
- une radioactivité concentrée sur certaines phases minérales déterminées. Une remobilisation possible de l'uranium est donc à envisager.

Du fait de la forte concentration des impacts du rayonnement alpha, une analyse à la microsonde s'avère nécessaire. Le problème posé est de savoir comment l'uranium peut être exprimé dans ces interfaces milieu oxydant - milieu réducteur.

Comme la pyrite semble jouer un rôle relativement important dans la concentration des radioéléments, une étude bibliographique sur sa formation et son comportement en milieu sédimentaire s'avère nécessaire. Elle permettra de replacer les pyrites "radiogéniques" du Siegénien inférieur dans leur cycle chimico-sédimentaire général.

6.3.5. Données bibliographiques sur la pyrite en milieu sédimentaire

Ce chapitre porte sur deux points, la formation de pyrite en milieu sédimentaire et son comportement dans les fronts d'oxydo-réduction, lié à des gites d'uranium.

6.3.5.1. La formation de pyrite sédimentaire

Ce paragraphe est essentiellement inspiré de BERNER (1970) et LUCAS (1976).

La pyrite est un constituant commun des roches sédimentaires contenant de la matière organique. C'est un minéral authigène (il existe à l'état détritique dans les conglomérats précambriens à l'époque d'une atmosphère réductrice (RAMDOHR, 1955). Il est stable seulement en l'absence d'air et en présence de sulfure dissous (GARRELS et CHRIST, 1965). Il est donc indicateur d'une diagenèse anaérobie.

Irois grands procédés interviennent dans sa formation, à savoir : la réduction bactérienne des sulfates, la réaction de H₂S avec le fer des minéraux et la transformation de monosulfure de fer en pyrite. Les grandes étapes de son histoire sédimentaire sont les suivantes :

- a) la première correspond au dépôt en milieu relativement tranquille de matières organiques provenant d'organismes marins et de matériel détritique fin chargé en fer (soit adsorbé, soit contenu dans les réseaux cristallins des minéraux);
- b) les processus métaboliques de désagrégation de la matière organique se mettent en place :

. un métabolisme aérobie dans les eaux de fond ayant pour moteur l'oxygène dissous,

. un métabolisme anaérobie à l'intérieur du sédiment ayant pour moteur l'activité bactérienne qui réduit les sulfates et forme de l'H₂S;

- c) l'H₂S dissous réagit immédiatement avec les formes les plus réactives du fer présent dans les sédiments (goethite, limonite, hématite, chlorite, le fer en enduit) pour donner un monosulfure de fer noir non cristallisé : FeS (greigite, mackinawite, pyrrhotite).
- d) Si la réduction des sulfates se poursuit conjointement avec un contenu en fer encore disponible, le phénomène se poursuit. Une partie de l'H₂S est oxydée soit inorganiquement, soit par des bactéries, en soufre élémentaire;
- e) le soufre réagit lentement avec FeS dans le sédiment pour former de la pyrite qui cristallise en minuscules sphères framboïdales. La transformation complète de FeS en FeS₂ en présence d'H₂S et du S est de l'ordre de plusieurs années.

Notons que la formation de pyrite augmente fortement jusqu'à une profondeur de 10 cm pour ensuite se stabiliser. Celle-ci se fait donc sous une très faible épaisseur de sédiment.

En conclusion à ce phénomène de pyritisation, il est important de noter qu'il peut être bloqué soit par manque de matière organique disponible, soit par manque de fer dans le milieu, soit par manque de soufre élémentaire.

Ainsi, les "black shales" de la Mer Noire montrent une alternance de petits lits noirs et gris où la couleur grise est due à une accumulation de pyrite (FeS₂) et la couleur noire est due à la présence de monosulfures de fer. Dans ces derniers, le processus de pyritisation fut bloqué par manque de matière organique (le contenu de ces black shales est de 2% en matière organique).
J'ai remarqué dans le contexte géologique où apparaissent les anomalies du Siegénien inférieur du bassin de Neufchâteau, notamment dans la zone anomale de Chiny, que certains niveaux anomaux correspondaient à des lits d'accumulation de pyrites.

Ce phénomène est expliqué par la formation très rapide de pyrite à partir d'un niveau riche en matière organique (DEBRABANT, communication personnelle). Les étapes seraient les suivantes : (fig. 75)



Fig. 75 : Schéma expliquant la formation de lits pyriteux d'après Debrabant(communication orale).

Secondairement, les lits de pyrite, appartenant à l'anomalie de Chiny, ont été oxydés et sont devenues radiogéniques. Il faut donc leur associer un flux oxydant générateur de concentration de radioéléments.

6.3.5.2. <u>Comportement de la pyrite associée au déplacement d'un front</u>

d'oxydo-réduction

Ce paragraphe est essentiellement tiré de SAMAMA (1982). La pyrite primaire, une fois formée, peut être impliquée dans le déplacement d'un front d'oxydo-réduction. Nous allons étudier son comportement en liaison avec celui-ci.

Le processus d'oxydo-réduction joue un rôle fondamental dans la genèse de nombreux gisements d'uranium en milieu sédimentaire. Les fluides oxydants diffusant à travers un niveau sédimentaire réducteur (ex.: grès organiques pyriteux) impliquent le déplacement d'un front d'oxydo-réduction privilégiant la précipitation d'uranium (réduction d'U⁶⁺ en U⁴⁺).Classiquement, on considère que les éléments mis en solution dans le milieu oxydant vont être réduits et précipités à leur entrée dans le milieu réducteur (voir paragraphe 1.2.2. sur le "roll-front").

SAMAMA distingue deux types d'oxydation :

- une très forte oxydation engendrée par un milieu aqueux très oxydant;celle- ci n'est pas favorable à la précipitation minérale secondaire de métaux en traces à proximité du front;
- un flux oxydant inférieur à la capacité de réduction du volume de la roche (BOULEGUE, 1981) entrainant une oxydation ménagée du milieu.
 Dans ce cas, les oxydations sont incomplètes. C'est ce phénomène qui est à la base de concentration de l'uranium et des éléments associés.

Le comportement de la pyrite dans ces deux types de processus révèle un phénomène de pyritisation secondaire. La pyrite est oxydée en goethite (Fe(OH)) donnant des ions bisulfites (HSO_3^-) et thiosulfates ($S_2O_3^-$) peu stables en milieu acide. Ceux-ci se transforment en soufre, en sulfate et en H_2S . Ces composés réducteurs du soufre sont susceptibles de "resulfurer" le fer à partir des ions ou des composés ferreux ou ferriques, pour donner des monosulfures puis de la pyrite secondaire (fig. 76).



Fig. 76 : Schéma expliquant la formation de pyrite secondaire associée à des gisements de type "roll-front", d'après SAMAMA, 1982.

SAMAMA met en évidence, par des analyses à la microsonde d'échantillons pyriteux appartenant à ces fronts, un phénomène de pyritisation superposé à des structures primaires (soit pyrite primaire, soit minéraux oxydés). Ces phénomènes de sulfuration sont soit près , soit loin du front suivant la vitesse de flux et la nature des ions instables formés.

Ces travaux montrent que la présence d'accroissement pyriteux (secondaire) en milieu sédimentaire est un bon témoin de reconstitution d'un "paléo-milieu hydrochimique" favorable à la concentration de l'uranium.

6.3.6. Interprétation de nos observations.

Les pyrites radiogéniques, mises en évidence par l'analyse en autoradiographie dans le Siegénien inférieur de la coupe du barrage de la Vierre, correspondent, selon les travaux sus-cités, probablement à des pyrites primaires situées non loin d'un front d'oxydo-réduction.

Celles-ci appartiennent à des faciès plus ou moins oxydés de deux natures :

- de nature gréseuse. L'ensemble concerné, présentant des structures sédimentaires de type "paléochenal", est le siège d'une oxydation de flux intense développant une teinte rouge à l'affleurement. Un banc gréseux montrant une capacité réductrice plus forte(haute concentration en pyrites), a précipiter l'uranium en un petit "roll front" (lieu d'observation de pyrites radiogéniques);

- de nature schisteuse. Les pyrites radiogéniques ont été observées dans les niveaux anomaux de schistes noirs, constituant l'encaissant immédiat des grès oxydés. L'oxydation de ces pyrites (ainsi que la précipitation d'uranium associée), est sans doute à mettre en relation avec des flux oxydants provenant des grès à faciès rouge.

D'un point de vue interprétatif, une première esquisse (qui devra être précisée dans la suite du travail) du phénomène de concentration de l'uranium autour des pyrites peut être émise selon les phases successives suivantes :

- dépôt des sédiments à faciès réducteur, avec possibilité d'une fixation diffuse de l'uranium: uranium syngénétique;

> - formation de pyrites diagénétiques : pyrites primaires;

- 145 -

- precipitation de l'uranium à l'interface milieu oxy-dant- milieu réducteur, la pyrite formant un micro-milieu réducteur favorable: uranium épigénétique.

Une analyse à la microsonde a été entreprise, afin de savoir comment l'uranium pouvait être exprimé dans ces interfaces milieu oxydant-milieu réducteur.

6.4. ANALYSE A LA MICROSONDE

L'analyse à la microsonde a porté sur les deux types de pyrite radiogénique décrits au paragraphe 6.3.3.2. et sur les oxy-hydroxydes de fer radioactifs associés.

Les observations et mesures ont été réalisées au Centre d'Analyse par microsonde de l'Université de Louvain-la Neuve (Professeur LADURON, Analyste J. WAUTIER).

6.4.1. Les plages radioactives repérées dans les schistes

Nos observations font l'objet d'une publication sous-presse à la Société Géologique de Belgique (CHARLET, DORCHIES, QUINIF, 1984). Les plages radioactives préalablement repérées par autoradiographie (fig. 2.6.8., planche III, échantillon S-001) ont fait l'objet d'une étude comprenant :

- la recherche systématique des éléments présents dans les zones radioactives;
- le balayage sur les principales raies d'éléments sélectionnés par la lère phase d'investigation (U, P, As, S, Cu, Fe, Ti);
- l'analyse quantitative sur les plages qui sont apparues comme étant les plus homogènes.

6.4.1.1. Détermination des éléments

L'analyse révèle que l'uranium s'organise en minéraux radioactifs.

 a) Un premier exemple concerne des minéraux radioactifs
 associés à une auréole hématifère bordant un cristal de pyrite (photo 1, planche III). Ils se présentent en cristaux lamellaires (photo 2, planche IV) de quelques dizaines de microns noyés dans l'hématite (photos 2 et 7, planche IV). Les images de l'uranium, du phosphore, de l'arsenic et du cuivre qui se correspondent parfaitement, montrent que le minéral lamellaire est un phosphoarséniate d'uranium et de cuivre.

L'image du titane montre par contre que l'uranium ne peut être considéré comme associé à des minéraux titanifères, association qui ne pouvait, a priori, être exclue et qui a précédemment été mise en évidence à Daverdisse (DEJONGHE L., CHARLET, DUPUIS, 1982).

b) un deuxième exemple concerne des minéraux radioactifs associés à des bandes à hématite-quartz. Ceux-ci apparaissent sous un habitus quelque peu différent du cas présenté ci-dessus. La structure lamellaire des minéraux uranifères est moins nette (fig. 2.3, planche V); par contre, l'uranium semble plus volontiers constituer des franges de quelques microns ou dizaines de microns localisées en bordure de certains grains de quartz (fig. 3, pl. V). Ces différentes images montrent que l'uranium s'y présente sous forme d'un phosphoarséniate d'uranium et accessoirement de fer qui passe localement à un phosphoarséniate de fer faiblement ou non uranifère (photos 3, 4,5,6, pl. V). Le cuivre n'a pas été identifié dans cette zone.

c) Un troisième exemple (pl.VI) concerne les plages radioactives non lamellaires d'une dizaine de microns localisées dans des laminations quartzeuses. Les différentes images réalisées par balayage montrent que ces plages contiennent U-P-As-Fe-Ti. L'uranium y apparaît préférentiellement concentré en bordure et associé à l'arsenic et au fer sous forme d'un arséniophosphate d'uranium et de fer. Le titane est par contre préférentiellement distribué au coeur des plages. L'analyse spectrale a permis en outre d'identifier la présence d'un nombre plus important d'éléments (Ca-P-Cl-Zr-Si) suggérant la présence de minéraux accessoires (apatite, zircon) en inclusions dans les plages examinées.

6.4.1.2. Analyses quantitatives

Une analyse quantitative a d'abord été effectuée sur des phases lamellaires appartenant à l'habitus décrit planche IV. Afin de prendre en compte les hétérogénéités locales, les analyses ont été répétées sur une dizaine de pointés. Les résultats de la figure 77 montrent que l'on a bien un arséniophosphate d'uranium et de cuivre à 60 % environ d'UO₃ et dont l'analyse se rapproche de la composition théorique (fig. 78) de la série torbernite-zeunérite (HEINRICH, 1958).

- 147 -

| | Provenue | production for the second s | and the second secon | | A STORY OF A DECK OF A |
|---|----------|---|---|-------|--|
| | CuO | As 2 ⁰ 5 | P205 | UO3 | Total |
| 1 | 4.06 | 6.60 | 4.87 | 57.38 | 72.91 |
| 2 | 1.45 | 7.92 | 5.04 | 65.67 | 80.09 |
| 3 | 3.26 | 7.29 | 4.57 | 57.71 | 72.83 |
| 4 | 3.48 | 6.36 | 5.09 | 60.12 | 75.05 |
| 5 | 3.85 | 6.72 | 4.57 | 55.50 | 70.64 |
| 6 | 3.31 | 6.49 | 4.65 | 52.07 | 66.53 |
| 7 | 3.43 | 8.11 | 4.93 | 60.18 | 76.65 |
| 8 | 2.27 | 7.43 | 4.60 | 64.98 | 79.29 |
| 9 | 2.93 | 7.51 | 4.74 | 57.76 | 72.94 |
| x | 3.11 | 7.16 | 4.78 | 59.04 | 74.10 |
| σ | 0.80 | 0.64 | 0.20 | 4.31 | 4.24 |
| | | | 1 | | |

Fig. 77 .- Analyses à la microsonde

| | | CuO | As 205 | ^P 2 ^O 5 | UO3 | Total | $\frac{\text{UO}_{3}}{\text{P}_{2}\text{O}_{5} + \text{As}_{2}\text{O}_{5}}$ | $\frac{Cu0}{P_{2}O_{5} + As_{2}O_{5}}$ |
|---|---|------|--------|-------------------------------|-------|-------|--|--|
| 1 | | 3.11 | 7.16 | 4.78 | 59.04 | 74.10 | 4.94 | 0.26 |
| 2 | | 8.48 | - | 15.14 | 61.01 | 84.63 | 4.03 | 0.56 |
| 3 | | 7.76 | 22.41 | - | 55.78 | 85.95 | 2.49 | 0.34 |
| 4 | 2 | 8.00 | 11.30 | 7.50 | 57.91 | 85.43 | 3.04 | 0.43 |

Fig.78 .- Comparaison avec les compositions théoriques de la série torbernitezeunérite.

l : minéral étudié ; 2 : torbernite ; 3 : zeunérite ; 4 : terme de la série torbernite-zeunérite dont le rapport As_20_5/P_20_5 est le même que celui du minéral étudié

Remarque : Les calculs ont été effectués en adoptant les compositions chimiques théoriques suivantes : torbernite - Cu (UO₂) (PO₄) 2 8H₂O. zeunérite - Cu(UO₂) 8H₂O.

La comparaison des formules théoriques de la série torbernitezeunérite avec les analyses effectuées (fig. 78) fait apparaître un excès en uranium par rapport à la somme $P_2O_5 + As_2O_5$. Il indique éventuellement la présence d'une phase à l'état réduit correspondant à des oxydes d'uranium tétravalent. Le déficit en cuivre par rapport à la somme $P_2O_5 + As_2O_5$ traduirait une déficience de ce métal dans le milieu, le phosphore en excès s'exprimant sous forme d'hydrogène-autunite. Différentes analyses (fig. 79) ont également été effectuées sur d'autres plages appartenant aux habitus décrits planches V et VI, certaines plages (11 et 12) étant trop hétérogènes pour que l'on puisse utiliser les résultats à des fins de diagnose. Par contre, l'analyse 10 correspond à un phosphoarséniate d'uranium (accessoirement de cuivre) mais qui une fois encore fait apparaître un excès en uranium par rapport aux formules théoriques (plus de 70 % en UO₃ pour un minéral secondaire classique est anormal, HEINRICH, 1958).

| | CuO | As 2 ⁰ 5 | P2 ⁰ 5 | UO3 | Total |
|----------|--------------|---------------------|-------------------|----------------|----------------|
| 10 11 | 1.44 1.21 | 3.06 8.53 | 12.07 | 70.74 57.98 | 87.31 69.81 |
| 12 | 0.04 | 3.12 | 9.86 | 37.59 | 45.62 |

Fig. 79 .- Analyses à la microsonde

6.4.2. Les plages radioactives associées au "roll front"

Les pyrites radiogéniques découvertes dans le mini "roll-front" de la zone anomale du barrage de la Vierre, montrent un caractère différent. En effet, elles n'apparaissent pas ici sous forme oxydée en hématite et goethite (cas des pyrites radiogéniques des schistes), mais associées à des plages intergranulaires noires.

Ces observations microscopiques viennent renforcer de prime abord, l'hypothèse d'une phase minéralogique tétravalente (U^{4+}) , antérieure à la phase minéralogique hexavalente (U^{6+}) mise en évidence par la première analyse en microsonde. Nous pensions que ces plages noires intergranulaires radiogéniques pouvaient correspondre à de l'uraninite.

Malheureusement, une première tentative d'analyse à la microsonde de ces zones n'a révélé aucune phase minérale uranifère; seuls des phosphates de terres rares (DY-ER-GD-Y) ont été identifiés.

L'analyse a été réalisée sur une surface polie de roche massive, qui après polissage, a vu l'arrachage des plages noires intergranulaires radiogéniques. Un manque de temps ne m'a pas permis de prolonger ces analyses qui mériteraient d'être poursuivies hors du cadre de ma thèse.

6.4.3. Interprétation

La continuité de certains niveaux de schistes noirs ou bleu foncé radioactifs concordant avec la stratification suggère l'existence d'un dépôt synsédimentaire d'uranium dans le Siegénien inférieur du Synclinal de Neufchâteau.

La présence d'uranium minéralogiquement exprimé sous forme d'espèces nouvelles pour le Paléozoïque de l'Ardenne nous a conduit à nous pencher en priorité sur les mécanismes de reconcentration de l'uranium dans les bancs schistogréseux ou gréseux de la série radioactive. Les niveaux pyriteux ont joué un rôle certain dans la fixation d'uranium mobilisé. Outre la présence de pyrite automorphe, l'arsenic constitue le témoin d'un environnement chalcophile favorable à la précipitation de l'uranium. Nous proposons pour expliquer cette reconcentration d'uranium les étapes suivantes :

- mobilisation de l'uranium sous forme d'un complexe à U⁶⁺ à partir d'horizons porteurs (ceux-ci forment un ensemble de bancs radioactifs reconnus d'Est en Ouest sur plus de 3 kilomètres, voir Chapitre 7);
- fixation de l'uranium sur le milieu réducteur que constituent les grains de pyrite. L'uranium y a probablement précipité sous forme de composés à U⁴⁺ dont les seuls témoins sont constitués par un excès stoechiométrique dans les phases minérales examinées;
- déplacement du front d'oxydo-réduction qui transforme les pyrites en hématite puis en goethite et les oxydes d'uranium en arséniophosphates secondaires.

La nature des phases fixant l'uranium est susceptible d'affecter ce schéma de remobilisation. La planche V montre une reconcentration d'uranium en bordure d'un grain de quartz, tandis que la planche VI illustre un cas plus complexe qui peut être interprété à la lumière des études effectuées sur les gisements de type "roll"(ADAMS et al, 1974; REYNOLDS et al, 1978) et sur les mécanismes de remobilisation dans les conglomérats aurifères et uranifères du Protérozoïque inférieur (CLEMMEY, 1981). Les mécanismes d'altération et de sulfuration des phases ferrotitamifères détritiques ont été décrits par ces différents auteurs. La sulfurisation secondaire entraîne une destruction des phases Fe-Ti (principalement la série titanomagnétique) qui passe à un assemblage pyrite + anastase, l'oxyde de titane se fixant sur le squelette du minéral préexistant. Cela expliquerait le mode d'habitus de l'uranium qui a été observé à la planche VI et qui résulte, dans notre schéma, de l'enchainement des phases suivantes : assemblage de minéraux lourds détritiques (Fe-Ti, apatite, zircon ...)-sulfurisation (FeS₂ + TiO₂) précipitation d'uranium sous forme d'UO₂ sur FeS₂ - oxydation secondaire entraînant le développement de phosphates et d'arséniophosphates sur un nucleus encore enrichi en titane.

Cette découverte de minéraux d'uranium dans le Dévonien inférieur de l'Ardenne est la seconde du genre. DEJONGHE *et al*(1982), JEDWAB (1982,1983) ont décrit une aire fortement anomale dans le secteur de Daverdisse, où de nombreux minéraux uranifères primaires et secondaires ont été mis en évidence. Cependant, ils apparaissent dans un contexte quelque peu différent des minéraux uranifères de la Vierre.

En effet, la précipitation de l'uranium à Daverdisse résulte de la conjonction, à la faveur d'une faille transversale, d'une zone à perméabilité de fracture et d'un écran imperméable ménagé par le décalage le long de la faille d'un niveau plus schisteux : c'est une anomalie à caractère tectono-sédimentaire (fig. 5). Les couches géologiques intéressées appartiennent à la série de passage Gédinnien supérieur - Siegénien inférieur.

Dans le cas des minéraux d'uranium de la Vierre, ceux-ci s'intègrent dans un gisement de type "*noll*" où la précipitation de l'uranium s'effectue à la faveur de micro-milieux réducteurs intrasédimentaires (et non tectoniques), tels que des sulfures de fer.

Toutefois ces deux secteurs développant des fortes concentrations en uranium, peuvent se regrouper sous un même phénomène de "roll-front". L'anomalie de Daverdisse a montré une abondance en séléniures. Or le Sélénium est reconnu comme accompagnateur classique de l'uranium dans les "roll-fronts" (HARSHMAN, 1974).

JEDWAB (1982) émet l'hypothèse d'une origine hydrothermale des minéralisations de Daverdisse.

Ne faudrait-il pas envisager une origine supergène de l'uranium? Des anomalies uranifères à caractère sédimentaire (notamment les anomalies du Siegénien inférieur) auraient alimenté, lors d'une phase de continentalisation due à la tectonique hercynienne, des remobilisations de l'uranium conduisant à la formation locale d'intenses anomalies.

6.5. CONCLUSIONS GENERALES DE L'ETUDE MINERALOGIQUE

La description des zones anomales (Chap. IV) a mis en évidence des anomalies sur schistes noirs concordantes avec la stratification, ainsi que des anomalies à caractère de remobilisation (grès oxydés du barrage de la Vierre, zone broyée associée à la faille d'Herbeumont, lits pyriteux radiogéniques de Chiny).

L'étude minéralogique a précisé les points suivants :

- les anomalies uranifères concordantes avec la stratification montrent de manière générale une répartition diffuse de l'uranium au sein des schistes (mise en évidence par les analyses en autoradiographie).Les analyses en diffraction des rayons X n'ont montré aucune phase minérale d'uranium. Aucune distinction pétrographique n'est observée entre les niveaux de schistes anomaux et les schistes encaissants. Le matériel argileux ne semble pas avoir joué un rôle prédominant dans la fixation de l'uranium diffus. Il y a cependant lieu d'être prudent pour deux raisons:

. le matériel argileux initial pourrait avoir subi des transformations ou recristallisations (à mettre en relation avec des phénomènes accompagnant le métamorphisme) qui effaceraient l'information originelle. Mais rien ne nous permet de préciser ceci;

. la corrélation simple uranium métal-matériel argileux inexistante ne tient compte que de deux variables prises séparément. Celle-ci est moins significative qu'un traitement par analyse factorielle qui tient compte de l'ensemble des variables recueillies pour tous les échantillons; ensemble des variables qui représentent davantage les conditions sédimentaires et géochimiques contribuant à la concentration de l'uranium;

- L'étude des minéraux lourds en anticoïncidence, dont leur accumulation fut reconnue dans les grès en microscopie optique, montre qu'ils participent généralement pour une faible part à la radioactivité totale de la roche. Cependant, elle révèle que les sulfures ont pu jouer un rôle dans la fixation d'uranium mobilisé dans des flux oxydants,
- Les anomalies liées au grès font appel à deux phénomènes :
 - . le premier révèle que les minéraux lourds (zircons) peuvent conduire à une faible anomalie en uranium (4 à 5 ppm) (coupe de Chiny);
 - le second fait intervenir des fluides oxydants (coupe du barrage de la Vierre) qui conduisent à l'individualisation de fortes concentrations (81 ppm U). L'uranium ainsi mobilisé précipite à la faveur de "roll" où

les pyrites ont joué un rôle important (analyse autoradiographique). Il peut aussi se fixer sur des oxydes - hydroxydes de fer contenu dans la matrice phylliteuse des grès.

 Ces fluides oxydants ont induit une remobilisation de l'uranium dans les schistes noirs anomaux immédiatement encaissants. Cette remobilisation de petite échelle (lm) a vu la précipitation secondaire de l'uranium sous forme minéralogique, dans les interfaces milieux oxydants - milieux réducteurs que constituent les cristaux de pyrites.

L'étude géochimique du chapitre VIII aura pour buts :

- de préciser les agents fixateurs de l'uranium diffus,
- d'étudier le comportement des radioéléments entre eux et de comprendre le ou les phénomènes qui ont conduit à leur concentration,
- d'étudier le comportement des autres métaux vis à vis de l'uranium.



PLANCHE III

Essais de localisation des phases radioactives :

Etude par autoradiographie

Photos 1, 3, 5, 7 : Lames minces en microscopie optique

Photos 2, 4, 6, 8 : localisation des phases radioactives par films sensibles au rayonnement alpha

Photos 1, 2 : localisation des radioéléments aux pourtours des pyrites

Photos 3, 4 : localisation des radioéléments dans des niveaux d'oxydes de fer plus ou moins en relation avec les pyrites

Photos 5, 6 : localisation des radioéléments sur des oxydes de fer, isolés dans la roche

Photos 7, 8 : localisation des radioéléments sur des oxydes de fer, contenus dans des lits gréseux de la taille du mm.

PLANCHE III



0.5 mm

PLANCHE IV

Analyses à la microsonde :

- Photo I : localisations éléments lourds éléments légers en électrons rétrodiffusés, sur les pourtours d'un cristal de pyrite (en gris foncé : pyrite - hématite, en gris clair : minéraux radioactifs,lc : lacume ou trou). Photo à mettre en relation avec les photos I et 2 de la planche I I I
- Photo 2 : localisation et agrandissement en électrons rétrodiffusés des minéraux lamellaires d'uranium

Photo 3 : image de l'uranium

Photo 4 : image du phosphore

Photo 5 : image de l'arsenic

Photo 6 : image du cuivre

Photo 7 : image du fer, qui est la même pour le soufre

Photo 8 : image du titane

Le trait horizontal représente 100 microns. Les photos 7 et 8 sont à la même échelle que les photos 3, 4, 5, 6.

PLANCHE IV



PLANCHE V

Analyses à la microsonde :

- Photo 1 : localisations éléments lourds-éléments légers en électrons retrodiffusés dans les niveaux d'oxydes de fer. Photo à mettre en relation avec les photos 3 et 4 de la planche III
- Photo 2 : agrandissement en électrons rétrodiffusés d'une plage à minéraux d'uranium

Photo 3 : image de l'uranium

Photo 4 : image du phosphore

Photo 5 : image de l'arsenic

Photo 6 : image du fer

Le trait horizontal représente 100 microns. La photo 6 est à la même échelle que les photos 3, 4 et 5.

PLANCHE V



Qz









PLANCHE VI

Analyses à la microsonde :

Photo 1 : localisations éléments lourds - éléments légers en électrons rétrodiffusés dans les laminations millimétriques gréseuses (Qz : grains de quartz). Photo à mettre en relation avec les photos 7 et 8 de la planche III.

Photo 2 : image de l'uranium

Photo 3 : image du phosphore

Photo 4 : image de l'arsenic

Photo 5 : image du fer

Photo 6 : image du titane

Le trait horizontal représente 10 microns.







3







PLANCHE VII

- Photo 1 : Niveau bréchique soulignant la base des grès à faciès de paléochenal de l'anomalie du barrage de la Vierre.
- Photo 2 : tissus végétal conservé à la faveur d'un galet de pélite dans le niveau bréchique décrit à la photo l.
- Photos 3 et 4 : tissus végétaux conservés dans les schistes.
- Photos 5 et 6 : pyrites non massives à caractère diagénétique authigène.

Photo 7 : nodule ferrugineux intraschisteux.

Photo 8 : auréole d'oxydation en hématite puis en goethite des pyrites radiogéniques (en microscopie à réflexion).



1 cm



2 mm



2 mm



0,4 cm



2 mm



2 mm











CHAPITRE VII

ETUDES PALYNOLOGIQUES

Les observations de terrain ne m'ont pas permis de positionner les différentes séries anomales découvertes les unes par rapport aux autres dans la colonne stratigraphique du Siegénien inférieur du bassin de Neuf-Château. Aucun niveau repère ne fut observé. De ce fait, une étude paléontologique fut entamée.

Dans un premier temps, en dépit de la réputation presque azoïque du Siegénien inférieur (ASSELBERGHS, 1946), une recherche de microfaune notamment d'ostracodes et de conodontes fut effectuée, mais elle s'est avérée vaine.

Ayant observé des débris de végétaux fossilisés, soit sur le terrain (en schistes à végétaux), soit en lame mince (traces de végétaux conservés photos 3 et 4, Pl. VII), une recherche palynologique pouvait être fructueuse et fut réalisée.

7.1. TECHNIQUE ANALYTIQUE

Les échantillons analysés furent broyés grossièrement en grains de 5 à 6 mm et subirent le traitement suivant :

- 5 à 10 grammes de matière de base,
- attaque à l'acide chlorydrique afin d'éliminer le calcaire parfois présent,
- attaque à l'acide fluoridrique 40 % pendant quatre à cinq jours en mélangeant assez souvent pour éviter la formation d'une croûte génante pour l'attaque,
- élimination de l'excès d'acide en centrifugeant à l'eau chaude pendant deux à trois minutes à 2000 t/mn.Recommencer la centrifugation deux à trois fois;
- les spores étant trop sombres pour l'identification, l'échantillon fut traité par un mélange d'acide nitrique (50 cc) et d'une pincée de chlorate de potassium, afin de les éclaircir,
- l'observation s'est faite entre lame et lamelle au microscope.

- 167 -

L'identification des spores a été effectuée par Monsieur STEEMANS⁺ Chercheur du Laboratoire de Paléobotanique et de Paléopalynologie de l'Université de Liège.

7.2. CONNAISSANCES PALYNOLOGIQUES ACQUISES SUR L'EODEVONIEN DE L'ARDENNE

Depuis une quinzaine d'années, de nombreuses recherches sur les spores du Dévonien inférieur de Belgique ont été entreprises.

STEEMANS (1981 et 1982), STREEL et al (1981) ont établi différentes biozonations des spores dans le Dévonien inférieur du bassin de Dinant (fig. 8).

STEEMANS (1982) décrit quatre biozones qui sont :

- biozone MN à Emphanisporites micrornatus et Aneurospora memportensis
- biozone BZ à Breconisporites breconensis et Emphanisporites zavallatus
- biozone PW à Verrucosisporites polygonalis
 et Dibolisporites wetteldorfensis
 et Dibolisporites gibberosus
- biozone AE à Emphanisporites annulatus et Emphanisporites erraticus

Celles-ci couvrent le Gédinnien, le Siegénien et l'Emsien comme le montre la figure ci-contre (fig. 80).

Elles ont été établies à la fois sur la bordure méridionale et sur la bordure orientale du bassin de Dinant. L'auteur décrit un diachronisme de la zone BZ entre ces deux régions, ce qui pourrait rentrer dans le cadre de la révision des limites à l'intérieur du Dévonien inférieur de l'Ardenne, soulevé par plusieurs géologues ardennais.

+ Je remercie vivement M. STEEMANS pour sa collaboration scientifique.



Leur domaine d'étude n'ayant pas été étendu au Dévonien inférieur du bassin de Neufchâteau, nous ne connaissons pas le comportement de ces biozones vis à vis de la succession lithostratigraphique classiquement décrite dans ce synclinorium.

Les formations du Bois d'Ausse, des Solières, d'Acooz sont les équivalents septentrionaux respectifs dans le bassin de Dinant des formations d'Anlier, de Bouillon, de Neufchâteau intéressant notre secteur d'étude (ASSELBERGHS, 1946).

7.3. LES RESULTATS

L'étude a porté sur les séries anomales de Chiny, du barrage de la Vierre et des Croisettes. Une vingtaine d'échantillons a été analysée dont seulement onze se sont montrés fertiles.

L'analyse révèle que les trois séries stratigraphiques appartiennent à la même biozone BZ. Pour la série de Chiny, certains niveaux ont montré des remaniements d'espèces.

7.4. CONCLUSIONS ET INTERPRETATION

Les biozones déterminées par STEEMANS (1982) dans le Dévonien inférieur du bassin de Dinant (MN, BZ, PW, AE) semblent se prolonger dans le bassin de Neufchâteau (identification de la zone BZ). A priori, on aurait pu douter de cette extension vu que l'on avait affaire à deux bassins différents. Mais il ne faut pas oublier que ce sont deux bassins tectoniques différents (voir paragraphe 2.4.) formés à partir d'un bassin sédimentaire unique.

Compte-tenu des études faites par STEEMANS sur la bordure orientale du bassin de Dinant, la biozone BZ semble coïncider dans le bassin de Neufchâteau avec la base du Siegénien. Bien sûr, ce ne sont que de premières observations qui méritent d'être précisées par des analyses plus abondantes et à plus grandes échelles.

Quoiqu'il en soit, ces trois séries appartiennent à la même biozone BZ. Il faut toutefois remarquer que la biozonation des spores du Siegénien est relativement large : STEEMANS a établi trois biozones pour cet étage qui correspondent à 2000 mètres d'épaisseur de sédiment dans le bassin de Neufchâteau. Les séries anomales de Chiny, du barrage de la Vierre, des Croisettes appartiendraient à un même "membre" stratigraphique orienté sensiblement Est-Ouest dans les deux premiers cas, orienté N°70° dans le troisième cas. Ce changement de direction ainsi que la position plus méridionale de l'anomalie des Croisettes ne peuvent s'envisager que par un repli périsynclinal-périanticlinal des couches, comme le montre la figure ci-dessous. Celui-ci entre tout à fait en accord avec la tectonique du bassin de Neufchâteau et ce, selon deux faits :(fig. 81)

- la bordure méridionale du bassin, dans la limite Gédinnien-Siegénien dressée par ASSELBERGHS (1946) montre de tels replis, sensiblement Est-Ouest (3 km au sud d'Herbeumont). Ceux-ci peuvent se répercuter dans les niveaux susjacents;

- le repli des couches suit la tendance générale du bassin caractérisé par un approfondissement et un élargissement à l'Est. Malheureusement, il ne m'a été possible de préciser cette hypothèse de part et d'autre de la Vierre, les affleurements se cantonnant uniquement aux vallées. De plus, la Vierre entre le barrage et les Croisettes livre très peu d'affleurements.



Fig. 81 : Schéma interprétatif d'un repli périsynclinal-périanticlinal du "membre" de Chiny.

Siegénien

Jurassique du Bassin

de Paris.

Ce "membre" stratigraphique présentant des caractères anomaux en uranium disparaitrait à l'Est sous la couverture transgressive jurassique du Bassin Parisien. En ce qui concerne son prolongement à l'Ouest, plusieurs hypothèses peuvent être émises :

- le secteur de l'anomalie de Chiny correspondrait à la limite occidentale d'un paléobassin sédimentaire individualisé dans le Siegénien inférieur. Le paléobassin correspondrait soit à un phénomène local dans le bassin de Neufchâteau, soit à un stade d'évolution du bassin entier. Il paraît envisageable d'étendre ce stade de concentration d'uranium au bassin de Neufchâteau lui-même car la prospection autoportée a décelé dans le Siegénien inférieur de sa bordure septentrionale des tendances anomales certaines. Dans ce cas, les faibles teneurs générales et anomales dosées par la spectrométrie gamma sur la série de Chiny, traduiraient un phénomène de concentration moins intense en bordure de bassin.

Les pointements anomaux des Epioux, de la Roche du Chat et de l'Abbaye des Conques pourraient alors être interprétés comme des témoins occidentaux d'un phénomène plus marqué à l'Est. Notons que ceux-ci sont sensiblement en direction avec les séries anomales identifiées à l'Ouest.

- Dans le même cadre d'un stade d'évolution de concentration en uranium du bassin de Neufchâteau, ce membre stratigraphique ne serait conservé que dans la partie orientale du secteur étudié. Le bassin s'ennoyant à l'Est, il serait érodé à l'Ouest de Chiny, le Siegénien inférieur de cette région livrant des niveaux stratigraphiques plus anciens. Les pointements anomaux occidentaux seraient, par conséquent, plus anciens.



- 172 -

CHAPITRE VIII

Etude géochimique :

- Dosage des matières réductrices

- Dosage des métaux

- Distribution des radioéléments

- Analyses factorielles



CHAPITRE VIII

- 175 -

ETUDE GEOCHIMIQUE

Dans le but de déterminer les agents fixateurs de l'uranium dans les faciès anomaux du Siegénien inférieur, un dosage des matières réductrices a été réalisé. De plus, nous avons voulu comparer le comportement des en traces vis à vis du phénomène de concentration de l'uraélèments nium. Afin d'interpréter ces données ainsi que celles recueillies lors des analyses en spectrométrie gamma et en diffraction des rayons X, nous avons fait appel à deux types de traitement :

- l'analyse en diagramme Th-U-K, mis au point par Y. QUINIF de la F.P. Ms. Son application permet de discuter des relations entre les différents radioéléments;

- l'analyse factorielle en composantes principales qui permet d'étudier les différentes relations entre toutes les variables analysées.

8.1. LE DOSAGE DES MATIERES REDUCTRICES (M.R.)

Les matières réductrices (principalement la matière organique) jouant un rôle bien connu dans le piégeage de l'uranium en mílieu sédimentaire (LANDAIS, 1980, LANDAIS et al , 1980), ont été dosées dans les échantillons ayant fait l'objet d'une étude des minéraux argileux, en vue d'avoir le maximum de données par échantillon pour l'analyse factorielle. Nous avons étendu l'analyse à la coupe des Croisettes, pour laquelle des variations significatives en uranium métal ont également été observées (fig. 82).

Un premier examen des résultats montre que :

- les grès ont un caractère réducteur nettement plus faible que les schistes :

- . les grès :1,39M.R.3,20 %. les schistes :2,92M.R.8,66 %

- les relations simples Um - M.R. ne traduisent pas un phénomène significatif de fixation de l'uranium sur les matières réductrices :

. les grès : Um = 17,75 M.R. - 27,08; R = 0,233 . les schistes : Um = 17,18 M.R. - 57,57; R = 0,129

| Provide the second s | | | | | |
|---|---|--|--|--|--|
| Numéro de l'échantillon | Matières réductrices (mill. équiv. K ₂ Cr ₂ 0 ₇) | | | | |
| Coupe du ba | arrage de la Vierre | | | | |
| S-001 | 5.38 | | | | |
| S-003 | 5.83 | | | | |
| S-004 | 5.47 | | | | |
| S-005 | 8.49 | | | | |
| S-007 | 7.98 | | | | |
| S-008 | 8.45 | | | | |
| S-009 | 6.79 | | | | |
| S-014 | 5.62 | | | | |
| S-015 | 6.03 | | | | |
| S-016 | 6.69 | | | | |
| S-017 | 7.01 | | | | |
| S-024 | 8.01 | | | | |
| S-025 | 6.51 | | | | |
| S-026 | 6.51 | | | | |
| S-027 | 5.93 | | | | |
| S-032 | 4.79 | | | | |
| S-033 | 4.75 | | | | |
| S-036 | 3.61 | | | | |
| S-040 | 5.23 | | | | |
| S-134 | 7.30 | | | | |
| S-136 | 5.81 | | | | |
| S-139 | 7.76 | | | | |
| S-159 | 8.13 | | | | |
| S-161 | 7.05 | | | | |
| S-163 | 1.39 | | | | |
| S-164 | 2.90 | | | | |
| S-309 | 2.47 | | | | |
| S-310 | 3.20 | | | | |
| S-311 | 3.06 | | | | |
| Pointements anomaux | | | | | |
| S-072 | 6.40 | | | | |
| S-142 | 5.46 | | | | |
| S-143 | 4.17 | | | | |
| S-144 | 5.50 | | | | |
| S-145 | 5.21 | | | | |
| S-146 | 2.92 | | | | |
| S-147 | 5.78 | | | | |

| Coupe de Chiny | | | | | | |
|----------------|--------------|--|--|--|--|--|
| S-041 | 3.47 | | | | | |
| S-042 | 5.97 | | | | | |
| S-043 | 8.61 | | | | | |
| S-100 | 6.48 | | | | | |
| S-102 | 5.78 | | | | | |
| S-104 | 3.47 | | | | | |
| S-105 | 5.97 | | | | | |
| S-106 | 5.89 | | | | | |
| S-107 | 4.91 | | | | | |
| S-108 | 5.71 | | | | | |
| S-109 | 5.15 | | | | | |
| S-110 | 5.12 | | | | | |
| S-111 | 5.63 | | | | | |
| S-112 | 6.48 | | | | | |
| S-114 | 1.91 | | | | | |
| S-115 | 5.21 | | | | | |
| S-116 | 6.42 | | | | | |
| S-117 | 7.65 | | | | | |
| S-118 | 6.77 | | | | | |
| S-119 | 5.07 | | | | | |
| S-122 | 3.24 | | | | | |
| S-123 | 2.91 | | | | | |
| S-126 | 1.47 | | | | | |
| S-130 | 5.42 | | | | | |
| S-131 | 6.04 | | | | | |
| S-132 | 5.01 | | | | | |
| Coupe de | s Croisettes | | | | | |
| S-200 | 8,66 | | | | | |
| S-202 | 5.84 | | | | | |
| S-204 | 4.92 | | | | | |
| S-206 | 5.21 | | | | | |
| S-207 | 6.95 | | | | | |
| S-208 | 5.30 | | | | | |
| | | | | | | |

Fig. 82 .- Dosage des matières réductrices

| N° Echentillons | P (ppm) | V (ppma) | (<u>mn</u>) | Fe (%) | (<u>Ppm</u>) | Cu (ppm) | Zn (ppm) | (Pb (ppm) |
|-----------------|------------|-------------|---------------|-----------|----------------|-------------|-------------|--------------|
| s-001 | 168 | 80 | 850 | 4.5 | 32 | 25 | 81 | 66 |
| s-004 | 677 | 79 | 480 | 3.8 | 32 | 9 | 53 | 42 |
| s-005 | 212 | 103 | 710 | 4.6 | 49 | 31 | 81 | 41 |
| S-006 | 425 | 82 | 750 | 4.9 | 36 | 28 | 79 | 91 |
| S-007 | 280 | 91 | 97 0 | 6.5 | 49 | 64 | 115 | 78 |
| S-008 | 302 | 94 | 890 | 5.7 | 50 | 28 | 102 | 27 |
| S-009 | 633 | 87 | 740 | 4.4 | 36 | 18 | 82 | 16 |
| S-010 | 422 | 112 | 530 | 4.4 | 23 | 27 | 76 | 23 |
| S-011 | 555 | 95 | 730 | 5.3 | 42 | 90 | 85 | 26 |
| S-012 | 860 | 93 | 970 | 5.3 | 51 | 51 | 93 | 98 |
| S-013 | 1 657 | 93 | 950 | 4.8 | 45 | 15 | 83 | 36 |
| S-014 | 153 | 80 | 940 | 4.9 | 32 | 3 0 | 79 | 27 |
| S-015 | 877 | 89 | 1 090 | 5.9 | 45 | 31 | 96 | 45 |
| S-016 | 436 | 84 | 1 000 | 5.5 | 45 | 38 | 89 | 63 |
| S-017 | 456 | 93 | 430 | 4.1 | 33 | 14 | 61 | 60 |
| S-018 | 509 | 77 | 59 0 | 4.3 | 24 | 30 | 73 | 44 |
| s-020 | 458 | 77 | 570 | 3.9 | 39 | 12 | 68 | 18 |
| S-021 | 383 | 79 | 630 | 4.5 | 27 | 21 | 75 | 12 |
| S-024 | 472 | 79 | 1 000 | 5.2 | 40 | 28 | 94 | 74 |
| s-025 | 389 | 77 | 98 0 | 5.4 | 38 | 21 | 94 | 46 |
| S-026 | 280 | 93 | 810 | 4.9 | 47 | 18 | 101 | 23 |
| s-027 | 118 | 80 | 700 | 4.1 | 29 | 11 | 71 | 15 |
| S-028 | 204 | 80 | 760 | 4.6 | 44 | 32 | 78 | 41 |
| S-029 | 595 | 75 | 9 80 | 4.6 | 35 | 33 | 70 | 40 |
| 8-030 | 746 | 72 | 1 01 0 | 4.4 | 41 | 26 | 74 | 87 |
| S-031 | 685 | 77 | 1 650 | 7.7 | 52 | 40 | 130 | 111 |
| s-032 | 634 | 70 | 1 350 | 4.3 | 36 | 26 | 91 | 38 |
| s-033 | 388 | 61 | 500 | 3.3 | 29 | 18 | 58 | 8 |
| S-035 | 180 | 37 | 1 630 | 2.5 | 24 | 11 | 39 | 10 |
| s-036 | 344 | 68 | 1 050 | 4.3 | 33 | 30 | 74 | 28 |
| S-037 | 138 | 75 | 410 | 2.8 | 27 | 22 | 41 | 16 |
| S-038 | 260 | 77 | 760 | 4.3 | 29 | 50 | 78 | 100 |
| s-039 | 171 | 65 | 770 | 3.9 | 39 | 21 | 51 | 32 |
| s-040 | 1 443 | 73 | 860 | 4.8 | 31 | 25 | 82 | 9 |
| S-041 | 149 | 73 | 410 | 2.8 | 18 | 21 | 49 | 8 |
| S-042 | 769 | 77 | 1 120 | 5.1 | 55 | 106 | 98 | 17 |
| 5-043 | 374 | 78 | 810 | 4.3 | 24 | 7 | 78 | 17 |

Fig. 83 - Dosage de certains élèments en traces dans les échantillons de la série anomale du barrage de la Vierre.

Les mauvais coefficients de corrélation (Um-M.R) joints aux mauvais coefficients (Um-matériel argileux) ne semblent pas être en accord avec ce que l'on est en droit d'attendre de tels faciès. En effet, pour des sédiments détritiques à uranium principalement diffus, ne présentant pas d'accumulation de minéraux lourds, tels que ceux étudiés dans ces coupes, l'uranium est classiquement associé aux minéraux argileux et à la matière réductrice. Peut-être faut-il envisager une participation globale de chacume de ces phases qui prises séparément, ne donnent qu'une mauvaise corrélation. C'est dans ce but que l'étude en corrélation simple a été approfondie par une analyse en corrélation multivariable plus significative (voir paragraphe 8.4. sur l'analyse factorielle).

8.2. LE DOSAGE DES ELEMENTS TRACES.

Afin de juger du comportement des autres métaux vis à vis de l'uranium, nous avons procédé à l'analyse des éléments suivants : Mn, Fe, Co, Cu, Zn, Pb. Elle a été réalisée par Bernard MASSON⁺du Laboratoire de Géochimie de Louvain-la-Neuve (Belgique) en utilisant l'absorption atomique. L' analyse a été étendue au vanadium.

Conjointement à cette analyse, le dosage du phosphore a été réalisé au plasma (appareil de type SMI II). Les résultats sont regroupés dans la figure 83. Nous traiterons de leurs comportements géochimiques en comparaison avec la concentration en uranium dans le paragraphe 8.4.4 de l'analyse factorielle.

8.3. ANALYSE DE LA DISTRIBUTION DES RADIOELEMENTS DANS LES FACIES DU SIEGENIEN INFERIEUR

8.3.1. Généralités

Avant d'examiner les relations éventuelles entre les teneurs en uranium thorium, potassium et les différents faciès pétrographiques et minéralogiques, il est nécessaire de rappeler les grands traits du comportement géochimique de chacun de ces radioéléments. En ce qui concerne l'uranium, nous nous reporterons au chapitre II de ce mémoire.

+ Je le remercie sincèrement de sa contribution au présent travail.
Le thorium étant extrêmement peu soluble et la plupart des minéraux thorifères étant très stables, la quasi-totalité du thorium transite soit fixé dans le réseau de certains minéraux lourds, soit adsorbé sur des argiles (LANGMUIR et HERMAN, 1980; PLILER et al, 1961). De ce fait, le thorium caractérise la fraction détritique des sédiments (SERRA, 1979).

Le potassium se trouve à l'origine dans des évaporites et des silicates (feldspaths alcalins, micas). Il est très soluble sous forme de sels (KCl, K_2SO_4 , ...) et lors de son passage en solution il est facilement adsorbé par les particules fines des sédiments, notamment certains minéraux argileux (HASSAN et HOSSIN, 1975). De telles différences dans les comportements géochimiques permettent d'utiliser ces radioéléments comme marqueurs de divers types de phénomènes sédimentaires (QUINIF et al, 1982).

8.3.2. Principe de l'analyse des faciès par les diagrammes U-Th-K

En 1982, QUINIF, CHARLET, DUPUIS proposent de nouvelles méthodes de caractérisation des faciès sédimentaires se basant sur le comportement géochimique U-Th-K. Leurs observations ont porté sur les sédiments paléozoïques, tertiaires et quaternaires de Belgique, d'origine détritique. De manière générale, les roches clastiques présentent toujours des teneurs en Th-U et K non négligeables, alors que les roches d'origine chimique ou biochimique ne contiennent que de l'uranium.

8.3.2.1. Diagrammes $Th/U = U/K_2O$

Ils montrent que les roches détritiques dans leur ensemble (caractérisées par la présence des trois radioéléments) obéissent à la loi (1) suivante :

$$U_{/K_20} = a (Th_U)^{D}$$
 (1)



Fig. 84 : Diverses courbes porteuses en diagramme Th/U - U/K₂O d'après QUINIF et al. (1982).

| Litho-faciès | U/ | $U/K20 = a(Th/U)^{b}$ | | | Th = c(K20) + d | | |
|-------------------------|------|-----------------------|------|------|-----------------|------|--|
| - ² 01 | а | b | R | с | d | R | |
| Schistes réviniens | 3,47 | -0,93 | 0,90 | 2,16 | 6,11 | 0,03 | |
| Grès siegé- niens | 9,54 | -1,63 | 0,90 | 3,49 | 2,94 | 0,91 | |
| Schistes franiens | 2,32 | -0,85 | 0,96 | 2,36 | 2,02 | 0,86 | |
| Tertiaire picard | 28,5 | -1,90 | 0,94 | 2,65 | 5,56 | 0,69 | |
| Sédiments karstiques | 11,4 | -1,65 | 0,87 | 1,36 | 8,18 | 0,12 | |

Fig. 85 .: Valeurs des coefficients a,b,c, et d des courbes porteuses de la figure 84 (d'après QUINIF et al,1982).

C'est un hyperboloïde de la forme $y = a x^b$, assymptotique à l'infini pour x = o.

Cette relation est caractérisée par les valeurs des coefficients "a et b spécifiques de chacum des faciès considérés .

La signification physique du coefficient a peut être dégagée en remarquant que:

 $U/_{K_0}$ = a si Th/_U = 1 (QUINIF et al, 1982)

Ce coefficient exprime la manière dont varie l'uranium et le thorium par rapport au potassium. Plus ^{"a"}est grand, moins le potassium aura de poids par rapport à l'uranium.

La signification physique du coefficient b prend son sens lorsque l'on considère d'abord la valeur particulière b = -1. Dans ce cas l'équation devient :

Th = a. (K_2^0) (QUINIF et al, 1982)

L'uranium se comporte alors comme une variable indépendante des deux autres éléments et le thorium et le potassium sont correlés linéairement. Ces auteurs montrent de façon générale, que les roches pélitiques marines obéissent à ces conditions. Le rapport Th/K_20 apparait comme une caractéristique du milieu à la fois par sa valeur mais aussi par ses variations au sein d'un ensemble ou d'une séquence détritique. Le coefficient b juge donc de l'indépendance de l'uranium par rapport au thorium et au potassium.

8.3.2.2. Diagramme Th/K20

QUINIF et al, (1982) montrent de plus que les faciès détritiques obéissent aussi à une seconde loi (2) d'application moins générale que la précédente :

$$Th = c K_2 0 + d$$
 (2)

Cette relation exprime une propriété géochimique de certaines argiles. MERCIER *et al* (1982) montrent sur des argiles et silts du Landénien, de l'Yprésien et du Rupélien de Belgique que les argiles vérifiant le mieux cette relation sont celles où l'illite et la smectite sont abondantes. Le thorium, insoluble, transite adsorbé sur les particules argileuses, alors que le potassium est bloqué dans le réseau cristallin de ces silicates. Cette relation reste vérifiée dans le cas de lessivage ménagé des bases alcalines au cours d'une pédogenèse peu intense mais se détruit lors d'une pédogenèse plus intense. L'ordonnée à l'origine de la relation (2) traduit la part du thorium qui n'est pas liée au potassium.

L'analyse de ces deux équations conduit à classer les roches détritiques selon leur nature, l'origine de leurs minéraux, le mode de dépôt, les conditions physico-chimiques de sédimentation. Les faciès sont définis par leurs courbes porteuses d'équation $(U/K_2^0 = a (Th/U)^b)$. Les auteurs présentent quatre grands types de faciès géochimiques en fonction de Th/K_{2^0} et Th/U provenant d'une simple transformation de cette équation (fig. 86).

Fig. 86 : Allure des courbes porteuses dans le diagramme Th/U - Th/K₂O. I, II, IIIa et IIIb constituent les types explicités dans le texte, d'après QUINIF et al. (1982).



- le faciès I (rapport Th/ $_{K_00}$ constant) de type pélite, argile (b = -1)
- le faciès II correspondant au grès et sédiments détritiques fluviatiles ou estuariens
- le faciès IIIa (0 < b < -1) rencontré dans les schistes "normaux" ou faiblement anomaux en uranium de la période pré-Carbonifère du Bassin de Dinant.
- le faciès IIIb (b < 0,5) rencontré dans les schistes anomaux du passage
 Viséen-Namurien du Bassin de Dinant caractérisé par une sédimentation à composante chimique dominante (NDZIBA, 1982).

En s'appuyant sur ces modes de représentation, nous allons maintenant analyser et discuter l'ensemble des données radiométriques recueillies par spectrométrie gamma sur le Siegénien, principalement le Siegénien inférieur.

8.3.3. Applications des diagrammes Th-U-K aux sédiments du Siegénien inférieur

Cette application aux sédiments présents a été effectuée en deux stades :

- un premier stade portant sur tous les échantillons analysés en spectrométrie gamma,
- un deuxième stade concernant uniquement les échantillons de la coupe de Chiny. En effet, celle-ci a été l'objet d'une analyse en spectrométrie gamma plus complète sans sélection préalable des échantillons. Elle sera donc plus représentative de la distribution générale des radioéléments dans le Siegénien de la région étudiée.

8.3.3.1. Analyses des échantillons du Siegénien inférieur dans leur ensemble

a) <u>le diagramme</u> $U/_{K_20}$ - Th/_U

La représentation des échantillons du Siegénien inférieur dans le diagramme $U/_{K_20}$ -Th/ $_U$ montre qu'ils obéissent bien à la loi (1) précédemment citée (fig. 87). Les échantillons anomaux se situent vers les fortes ordonnées (valeur maximale de $U/_{K_20}$ = 120),(fig. 87, 88, 89).



L'hyperbole représentative des échantillons sans distinction de faciès livre les coefficients a et b suivants :

Litho-faciès
$$U/K2O = a(Th/U)$$
abRanalyse d'en-
semble4,52-0,9130,961schistes4,17-0,8760,971grès6,76-0,8400,943grès sans
S-3107,42-1,1380,958

$$U/K_20 = 4,52$$
 Th/U $-0,913$

Fig. 90 .: Valeurs des coéfficients a,b et R de l'analyse d' ensemble du Siegénien inférieur en diagramme Th - U - K .

Le tableau de la figure 90 montre :

- un excellent coefficient de corrélation R
- une valeur b voisine de -1 traduisant l'indépendance de l'uranium par rapport au thorium et au potassium,
- une valeur a plus faible pour les schistes que pour les grès. Il souligne le fait que le potassium a davantage de poids par rapport à l'uranium dans les faciès schisteux, ce qui est en accord avec les teneurs en potassium plus élevées dans les schistes.

Les faciès pris séparément se caractérisent par deux hyperboloïdes distincts (fig. 88, 89).

L'excellent coefficient de corrélation pour les schistes montre de façon évidente que les concentrations anomales en uranium ne perturbent pas la loi exponentielle qui caractérise les faciès détritiques. Si l'on se reporte à la droite porteuse (Ln (Th/Um), Ln(Um/K₂O)) à partir de laquelle sont calculés les coefficients de corrélation (fig. 91), nous observons que les schistes s'organisent selon deux ensembles :

- un ensemble A déterminé par une très faible dispersion autour de la droite porteuse et qui passe progressivement de faciès normaux à des faciès anomaux en uranium. Cette droite, définissant le caractère détritique des sédiments, montre que pour cet ensemble, la concentration en uranium ne perturbe pas la lignée détritique. En d'autres termes, la concentration en uranium ne fait appel à aucun phénomène, autre que ceux rentrant dans le cadre de processus sédimentaire détritique qui caractérisent ces séries. L'uranium des schistes anomaux résulte donc probablement d'une fixation primaire dans les sédiments;
- un ensemble B déterminé par une grande dispersion autour de la droite porteuse. Il fait appel à des processus de concentration en uranium autres que détritiques. Il renferme les niveaux schisteux anomaux qui ont montré des phénomènes de remobilisation (S-139, S-001, S-003; pyrites radiogéniques et minéraux d'uranium). Cet ensemble serait donc caractérisé par de l'uranium secondaire remobilisé.



Fig. 91 : Représentation des schistes du Siegénien inférieur en diagramme Ln(Th/Um)-Ln(Um/K₂O).

La courbe II (fig. 87, 89) permet de distinguer plusieurs tendances au sein des grès :

- la partie inférieure se confondant avec la courbe porteuse des schistes regroupe l'ensemble des grès phylliteux <u>normaux</u> décrits au paragraphe 6.1,
- la partie médiane se détachant de la courbe porteuse des schistes concerne l'ensemble des grès où la phase schisteuse est faible, voire absente (S-164, S-114);
- les grès fortement anomaux (S-310) de l'anomalie du barrage de la Vierre se détachent fortement du fond général des grès. Cependant, on observe une tendance de ceux-ci au rapprochement de la courbe porteuse des schistes. Ces grès présentant une phase phylliteuse abondante (voir paragraphe 6.1.1.1.c), leur caractère anomal semble lié à leur matrice argileuse.

Dans le but de minimiser l'influence de ce niveau gréseux anomal présentant un caractère particulier au sein des anomalies décrites au Chapitre IV, nous avons refait l'analyse en supprimant l'échantillon S-310. La courbe porteuse II devient alors encore plus caractéristique des grès (coefficient a plus élevé, corrélation meilleure, figure 90 : grès sans S-310).



Fig. 92 : Représentation de l'ensemble schistes et grès du Siegénien inférieur en diagramme Ln(Th/Um)- Ln(Um/K₂0) Si l'on se reporte à nouveau à la droite porteuse (Ln $(Th_{/Um})$, Ln (Um_{K_0})) de l'ensemble des faciès schistes et grès, nous observons que (fig. 92) :

- la droite porteuse des grès se détache de celle des schistes en prenant une position supérieure,

- l'échantillon S-310 entre dans l'ensemble B caractérisé par un uranium secondaire. Ceci est à mettre en relation avec les observations en microscopie optique faites sur ce niveau. En effet, elles ont montré une matrice phylliteuse abondante à pigment rouge interprété comme des oxydes de fer. Ceux-ci auraient sans doute joué un rôle de rétention de l'uranium lors de la percolation de fluide oxydant chargé en U⁶⁺ dans ce niveau.

b) Le diagramme $Th-K_2^0$

Comme nous l'avons vu ci-dessus, le coefficient b est très proche de la valeur -1. Pour b = -1, la loi exponentielle $U/_{K_2O}$ -Th/_U devient :

$$Th = a K_2 0$$

Dans ce cas, l'analyse de la seconde loi, souvent vérifiée par les sédiments détritiques (Th = c K_2^0 + d) devrait livrer de bon coefficient de corrélation.

Les valeurs respectives des coefficients sont regroupées dans la figure ci-dessous (fig. 93).

| | | and the second | | |
|-------------------------|------------------|--|-------|--|
| Litho-faciès | Th = c (K20) + d | | | |
| - | с | d | R | |
| analyse d'en- semble | 3,022 | 3,345 | 0,680 | |
| schistes | 2,705 | 4,453 | 0,471 | |
| grès | 5,008 | 1,242 | 0,716 | |
| grès sans S-310 | 5,447 | 1,203 | 0,937 | |

Fig. 93 .: Valeurs des coéfficients c,d et R de l'analyse d'ensemble du Siegénien inférieur en diagramme Th - U - K .

- 187 -



L'analyse d'ensemble (fig. 94) montre que la relation (2) semble être vérifiée. Le coefficient de corrélation est significatif : R = 0,68. Cependant, il faut distinguer deux cas selon que les faciès sont schisteux ou gréseux.

Les schistes seuls montrent un faible coefficient de corrélation (0,471). Il semble que ceux-ci ne vérifient pas de manière probante cette relation couramment reconnue pour des sédiments argileux de type illitique (MERCIER et al ,1982). Ceci pourrait s'expliquer par plusieurs raisons :

- les intervalles de variation des valeurs en K₂0 et en Th sont assez étroits dans les sédiments considérés; ce qui implique une faible répartition des échantillons le long de la droite de corrélation et,par conséquent un plus faible coefficient de corrélation;
- dans la figure 95, on constate que la mauvaise corrélation Th-K₂0 est en majeure partie due à un ensemble de six schistes éloignés de la droite de corrélation. Cet ensemble est appauvri en thorium par rapport à l'ensemble des échantillons schisteux. Il est intéressant de constater que ces quelques échantillons sont tous très enrichis en uranium (de 105 à 250ppm) et appartiennent à l'ensemble des schistes à uranium secondaire précédemment décrit. Il faudrait donc envisager une remobilisation possible du thorium par les fluides oxydants qui ont redéposé l'uranium secondairement. Ceci modifirait un peu les idées que l'on se fait actuellement sur le comportement du thorium.

Il est important de noter que ce phénomène qui reste à vérifier n'est pas à relier systématiquement à toute concentration intense en uranium (les échantillons S-001, S-003, S-007 et S-139 ayant des concentrations en uranium métal 103 <· < 218 ppm rentrent dans le fond à caractère détritique).

Pour ce qui est du comportement du potassium dans les schistes, on observe que celui-ci ne semble pas être corrélé avec l'illite, minéral argileux dont les interfeuillets renferment des ions K⁺.

Il y a donc une part de potassium non lié aux minéraux illitiques. Celle ci ne peut être attribuée aux feldspaths K, seuls quelques plagioclases ont été observés. Cette corrélation, que l'on était en droit d'attendre pour des schistes argileux à illite-chlorite, pourrait être détruite par des phénomènes diagénétiques ou métamorphiques. En effet, les sédiments décrits par MERCIER *et al* (1982) montrant une bonne corrélation Th - K_2^0 sont des argiles tertiaires, alors que les sédiments présents ont été impliqués dans le cycle orogénique hercynien et font partie d'une zone épimétamorphique. Le degré de cristallinité de l'illite (DUNOYER DE SEGONZAC, 1969) de ces échantillons du Siegénien inférieur les font appartenir à l'épizone (0,2 mm). On pourrait envisager des restructurations et recristallisations au sein de la matrice argileuse qui perturberaient l'équilibre Th-K initial . HASSAN *et al* (1975) signalent une diminution du rapport Th/K dans les sédiments conjointement à une augmentation de la cristallinité de l'illite. Ceci semble en accord avec nos faciès. Les minéraux argileux initiaux s'agraderaient en illite bien cristallisée en absorbant du potassium au milieu (le potassium pouvant provenir de fluides liés au métamorphisme). Ainsi la corrélation initiale Th-K serait détruite.

Les échantillons S-008 et S-134 sont caractérisés par de fortes teneurs en thorium et en potassium qui les distinguent assez nettement des autres schistes.

Les grès montrent une corrélation significative $Th-K_2^0$ (R = 0,716). Si l'on procède à l'élimination du grès S-310, qui montre une matrice phylliteuse importante (30%) lui conférant une particularité au sein de la masse gréseuse, la relation (2) se trouve encore mieux vérifiée (R =0,937). Cette droite d'équation :

Th= 5,44 K_2^0 + 1,20 (fig. 93) caractérise bien le faciès grès.

Cette corrélation supérieure à celle observée dans les schistes peut s'expliquer par une meilleure conservation de "l'information" détritique. Les phénomènes diagénétiques auraient moins perturbé le contenu en minéraux argileux des grès.

La comparaison des coefficients d des faciès schistes et grès du Siégénien inférieur va à l'encontre des observations faites par QUINIF *et al* (1982) sur les mêmes couches. Ceci peut s'expliquer par le fait que leurs analyses portent seulement sur 12 échantillons au total répartis sur tout le Siegénien. Quoiqu'il en soit, nous observons que la part de thorium non liée au potassium est plus importante dans le cas des schistes (d-schistes = 4,453 et d-grès = 1,203). Dans le cas des grès la part de thorium non liée au potassium est sans doute à rattacher aux minéraux lourds, pour les schistes il faut probablement envisager l'intervention d'autres mécanismes pour expliquer la forte valeur du coefficient d.

8.3.3.2. Analyses de la coupe de Chiny

La coupe de Chiny fut étudiée dans son ensemble en spectrométrie gamma (échantillons anomaux et non anomaux) afin de permettre dans la suite du travail une analyse géochimique synthétique des faciès.

a) Le diagramme $U/_{K_20} - Th/_U$

Les anomalies de Chiny présentent des intensités plus faibles que celles du barrage de la Vierre et du Château des Croisettes. Ceci se traduit par des ordonnées Um/K_20 nettement plus faibles que dans le cas du traitement de l'ensemble des données $(Um/K_20 maximale = 17)$.

La figure ci-dessous (fig. 97) regroupe les valeurs des coefficients a et b des différents "hyperboloïdes porteurs" établis selon les trois distinctions faites dans le paragraphe 8.3.3.1a.

| Litho-faciès | $U/K20 = a(Th/U)^{b}$ | | | |
|-------------------------|-----------------------|--------|-------|--|
| | а | Ь | R | |
| analyse d'en- semble | 4,99 | -1,020 | 0,877 | |
| schistes | 4,52 | -0,976 | 0,964 | |
| grès | 8,31 | -1,302 | 0,958 | |

Fig. 97.: Valeurs des coéfficients a, b et R de l'analyse du Siegénien inférieur de la coupe de Chiny en diagramme Th - U - K.

La nécessité de la distinction des faciès, dans la représentation hyperbolique $Um/_{K_20}$ - Th/ $_U$ caractérisant les faciès détritiques (fig. 98, 99, 100) apparaît ici se justifier grandement. En effet, le coefficient de corrélation de l'ensemble des échantillons R = 0,877 est moins bon que ceux calculés pour les deux groupes pris séparément (0,958 et 0,964). Ces forts coefficients montrent une bonne homogénéité des



- 192 -

échantillons dans chaque classe considérée. Elle traduit le fait que le phénomène de concentration en uranium est indépendant des conditions générales de sédimentation du Siegénien inférieur. Les échantillons de la coupe de Chiny entrent dans l'ensemble A décrit figure 91. Les échantillons concernant le pointement anomal se situant au Sud de la coupe de Chiny (S-041, S-042, S-043, paragraphe 4.1.2) n'ont pas été retenus dans cette seconde analyse car nous voulions nous limiter à l'étude précise d'une coupe continue. Notons que l'échantillon S-042 entre dans l'ensemble B associé à une remobilisation de l'uranium.



Afin de bien saisir cette notion de comportement de l'uranium dans les faciès considérés, un contre-exemple est fourni par les travaux de NDZIBA (1982). Cet auteur montre que des argiles des niveaux V_3 b et V_3 c du Viséen du Bassin de Dinant (Ardenne belge) sortent de la distribution qui caractérise les faciès détritiques des sédiments paléozoïques de L'Ardenne. Les échantillons provenant du Viséen supérieur (fig. 101) s'écartent de l'hyperbole générale caractérisant l'ensemble des faciès détritiques paléozoïques. M. NDZIBA démontre que ces niveaux argileux du Viséen sont le résultat d'une précipitation chimique qui se traduit au niveau du diagramme U/K₂O - Th/U par une dérive des points correspondants.

Les coefficients a et b, regroupés dans la figure 97, vérifient les observations faites lors de l'analyse générale :

- une valeur de b très proche de -1. Cependant, le faciès grès présente un coefficient b nettement plus faible. Il peut s'expliquer par la faible proportion de matrice argileuse, mais aussi par la contribution des minéraux lourds à rapports Th/U déterminé, qui perturbe l'indépendance de l'uranium par rapport au thorium et au potassium;

- une valeur de a plus forte pour les grès. La courbe porteuse des grès (fig. 100) s'écarte vers les hautes valeurs de Um/_{K_20} , de celle des faciès argileux et caractérise ainsi la branche de l'hyperboloïde lié aux grès purs. L'échantillon S-114 qui rentre dans ce faciès , en se situant vers les hautes valeurs de Um/K₂0, montre :

- que le potassium a très peu de poids vis à vis de l'uranium (absence de phase argileuse);
- que cette forte ordonnée est à rattacher à sa caractéristique de concentrer davantage les minéraux lourds par rapport aux autres grès de la même coupe (voir le paragraphe 6.2.5.2 sur l'étude des minéraux lourds). Notons que l'observation microscopique du paragraphe 6.1.1.1b lui conférant la nature de grès purs se confirme ici.

b) Le diagramme Th-K₂0

Les diagrammes Th- K_2^0 correspondant aux trois cas envisagés en diagrammes Th/ $_{Um}$ - Um/ $_{K_2^0}$ dans la coupe de Chiny sont repris fig. 102, 103, 104.



Les valeurs des coefficients c et d regroupés dans la figure 105, vérifient les observations faites lors de l'analyse générale :

- une faible corrélation Th-K dans les schistes,
- une forte composante d à thorium non lié au potassium dans les faciès schisteux. Cette part de thorium pourrait être rattachée aux minéraux argileux non illitiques (chlorite) ou à des complexes organiques thorifères.

| Litho-faciès | Th = c (K20) + d | | | |
|--------------------------|------------------|-------|----------------|--|
| | С | d | R ₂ | |
| analyse d'en - semble | 3,246 | 3,643 | 0,880 | |
| schistes | 1,761 | 8,042 | 0,473 | |
| grès | 5,232 | 1,417 | 0,926 | |

Fig.105.: Valeurs des coéfficients c,d et R_2 de l'analyse du Siegénien inférieur de la coupe de Chiny en diagramme Th - U - K.

Dans le cas de la première hypothèse, la contribution de la chlorite à la fixation du thorium ne semble pas importante si l'on compare le matériel argileux des schistes à celui des grès. En effet, les argiles contenues dans les grès, en quantité nettement moindre, présentent sensiblement les mêmes proportions en illite et en chlorite que celles des faciès schisteux (45 % illite, 55 % chlorite). Or, dans les grès, la relation Th-K semble bien vérifiée (R = 0,926). La part de thorium fixée sur les chlorites semblent donc négligeable. Si l'on transpose cette observation aux schistes dont "l'information" argileuse a davantage été altérée par des phénomènes diagénétiques ou métamorphiques, il faut considérer un autre mode de fixation du thorium.

LANGMUIR et al (1980) en étudiant la mobilité du thorium dans les eaux naturelles à basse température montrent que les complexes organiques du thorium prédominent nettement sur les complexes inorganiques thorifères dans les eaux riches en matières organiques et ceci, entre des pH de 7 à 8. Selon les travaux de KRUMBEIN et al (1952), sur les associations minéralogiques en fonction du Eh et du pH dans les sédiments (fig. 106), les schistes noirs pyriteux à matières organiques et à uranium primaire entrent dans une gamme de pH comprise en 7 et 8 et ceci en milieu réducteur. La fixation du thorium par des complexes organiques semble donc envisageable pour les schistes noirs du Siegénien inférieur.



Fig. 106 : Association minéralogique en fonction du pH et du Eh (d'après KRUMBEIN et GARRELS, 1952).

8.3.3.3. Analyses en diagramme $Th_{K_2O} - Th_U$

La représentation des faciès gréseux et schisteux selon les diagrammes $\text{Th}/_{\text{K}_20}$ montre que les sédiments du Siegénien inférieur du bassin de Neufchâteau appartiennent aux deux faciès suivants (paragraphe 8.3.2.2.):

- les schistes s'organisent, préférentiellement selon la courbe porteuse IIIa. Ils appartiennent donc bien à la famille décrite par QUINIF *et al*(1982) des schistes pré-carbonifères de l'Ardenne. Ceux-ci sont caractérisés par des faciès typiquement détritiques. Afin de saisir l'importance de cette observation, les auteurs ont remarqué que les schistes du Viséen-Namurien résultant de précipitation chimique(NDZIBA, 1982), appartiennent à une autre courbe porteuse de type IIIb. Cette distinction en faciès $Th/_{K_20}$ - $Th/_U$ (IIIa-IIIb) traduit l'histoire des sédiments (fig. 107).



Fig. 107 : Diagramme Th/K₂0 - Th/U des schistes du Siegénien inférieur.

- les grès appartiennent d'une manière générale à la courbe porteuse de type II. Cependant, il faut noter que les grès à matrice schisteuse et notamment le grès anomal S-310, ont tendance à se reporter sur une courbe du type précédant IIIa. (fig. 108).



Fig. 108 : Diagramme Th/K₂0 - Th/U des grès du Siegénien inférieur.

8.3.4. <u>Conclusions</u> : apports géochimiques de l'analyse en diagrammes Th-U-K. L'analyse des diagrammes Th-U-K a permis de préciser plusieurs points essentiels dans l'étude géochimique des sédiments du Siégénien inférieur du Bassin de Neufchâteau.

a) le phénomène de concentration de l'uranium est indépendant des teneurs en thorium et potassium (b \pm -1) principalement dans les schistes;

b) deux comportements s'observent quant à la distribution de l'uranium :

- un ensemble où l'uranium appartient à la lignée détritique et où sa concentration est probablement primaire (syngénétique),

- un ensemble, se dispersant autour de la droite porteuse, aux plus fortes concentrations enregistrées. Celui-ci ferait appel à des phénomènes de remobilisation secondaire d'uranium, à la fois dans les grès et dans les schistes

c) la corrélation Th-K₂⁰ caractérisant la matrice argileuse spécialement illitique n'est que très faiblement vérifiée dans les faciès argileux. Plusieurs interprétations sont possibles :

- le traitement des données d'ensemble des schistes du Siegénien inférieur révèle que certains niveaux très enrichis en uranium montrent un déficit en thorium par rapport à l'ensemble du faciès schisteux. Il faudrait envisager une remobilisation partielle du thorium à mettre en liaison avec la forte concentration en uranium secondaire liée à des fluides oxydants;

- la relation Th-K caractérisant les minéraux argileux illitiques pourrait être détruite lors des phénomènes diagénétiques et épimétamorphiques;

- la part de thorium non liée au potassium est plus forte dans les faciès schisteux et pourrait faire intervenir une fixation du thorium sur les matières organiques abondantes dans les schistes.

d) Les grès anomaux montrent deux types d'anomalie en uranium :

- les grès (S-309, S-310) de la coupe de la Vierre, traduisent leur caractère anomal par un rapprochement vers la "courbe porteuse" des schistes. S-310 s'intègre à l'ensemble des schistes anomaux où l'uranium est secondaire;

- les grès de la coupe de Chiny se scindent en deux groupes, les grès schisteux normaux et les "grès purs" pouvant présenter un caractère faiblement anomal, à relier au contenu en minéraux lourds.

8.4. TRAITEMENT DES DONNEES PAR ANALYSE FACTORIELLE

8.4.1. Introduction

Afin d'étudier et de préciser le comportement géochimique les uns par rapport aux autres des différents éléments dosés dans les études précédentes, nous avons procédé à un traitement des données par analyse factorielle en mode R. Celle-ci permet une vision synthétique et globale, dans un espace multidimensionnel plus significatif qu'une simple corrélation linéaire entre deux variables.

"Le principal but de l'analyse factorielle est d'expliquer les relations observées entre un grand nombre de variables en termes de relations plus simples et surtout plus fondamentales : les facteurs. Par l'interprétation de ceux-ci, on peut tenter d'obtenir une explication des phénomènes: dans un domaine inconnu, l'analyse factorielle apparait donc comme une méthode d'exploration créatrice d'hypothèse" (HERBOSCH, 1974).

Si nous transposons cette définition au niveau de la géochimie des sédiments du Siegénien inférieur : la distribution des éléments peut définir la présence de groupes géochimiquement cohérents qui, sous des conditions données, se comportent de la même manière. Cette distribution peut être influencée par des facteurs fondamentaux comme par exemple, la vitesse de sédimentation, le pH, la matière organique, les processus diagénétiques...

8.4.2. Généralités sur l'analyse factorielle (A.F.)

Le point de départ de toute analyse factorielle est une matrice de données de dimensions n x N, où n correspond au nombre de variables mesurées sur N échantillons. L'objectif de cette analyse est d'extraire sous une forme condensée, la plus grande part possible de l'information contenue dans la matrice de données.

Elle détermine les relations entre les variables et entre les échantillons. Pour cela, elle effectue des classifications ou des regroupements au niveau des variables et des échantillons sur base de leurs coefficients de corrélation mutuels. Il est alors possible de définir pour chacun des groupes de la classification ainsi formée, une variable théorique plus générale appelée facteur ou "super-variable" (LECOMPTE (1975). Les facteurs sont fonction linéaire des variables initiales, en nombre très inférieur à cellesci et suffisent à expliquer un pourcentage élevé de l'information initiale. ILs sont interprétés en termes de processus géologiques ou géochimiques, mettant ainsi en évidence des phénomènes plus ou moins fondamentaux ayant influencé le comportement des variables.

En outre, l'analyse factorielle permet une représentation spatiale des classifications ou des regroupements élaborés. Le lecteur soucieux de plus de précision pourra consulter HERBOSCH (1974), LECOMPTE, 1975).

8.4.3. Application de l'analyse factorielle aux sédiments du Siegénien inférieur

La présente A.F. a porté sur le traitement d'environ 800 données réparties en 17 variables maximales (n = 17) pour 76 échantillons maximum (N = 76).

La méthode d'analyse factorielle utilisée pour notre étude a été élaborée et programmée par le Laboratoire d'analyse numérique et statisitique de la Faculté Polytechnique de Mons⁺. Les étapes essentielles du processus mathématique sont les suivantes :

- à partir de la matrice de données, établissement de la matrice de corrélation entre variables;

- détermination du nombre de facteurs, ainsi que leur représentativité en % au sein de l'ensemble;

- calcul des contributions de chaque échantillon et de chaque variable aux différents facteurs;

- représentation graphique des échantillons et des variables par rapport aux facteurs dans un espace multidimensionnel.

Le traitement de mes échantillons en A.F. s'est effectué selon plusieurs étapes successives, correspondant à l'optimalisation du nombre d'échantillon. Nous avons donc assemblé les variables de telle façon que nous ayons le maximum de données.

 + La réalisation de ce traitement informatique a été effectuée grâce à la collaboration directe de M. LIBERT appartenant à ce Laboratoire, Je tiens à lui adresser mes vifs remerciements.



Fig. 109 : Représentation dans le plan F-1, F-2 des variables de l'A.F. I.

| Facteurs | F-1 | | F-2 | |
|--------------------------|-------------------------------------|----|-------------------------------|--------|
| % de variance exprime | 48,05 | | 31,14 | |
| λ | 2,882 | | 1,868 | |
| %cumulé | Q 20 | 40 | 60 | 80 100 |
| s variables | ∙ Ra/U • Th | | • K • Th Ur eU• • Um | |
| Poids des | • K • Ur Um [•] • eU | | • Ra/U | |

Fig. 110 : Poids des variables selon F-1 et F-2 dans L'A.F. I. - Traitement II de l'ensemble des variables radio. en relation avec la matière réductrice (M.R.)

n = 7 et N = 61

- Traitement III de l'ensemble des variables radio., M.R. et minéralogiques (Ill, I/_c)

n = 9 et N = 44

- Traitement IV de l'ensemble des variables radio., M.R., minéralogiques et éléments traces (P, Cu, Co, Mn, Fe, Zn, Pb, V)

n = 15 et N = 21

8.4.3.1. Traitement I des variables radiométriques

L'ensemble de ces variables conduit à l'individualisation de 6 facteurs dont les deux premiers F-1 et F-2 sont bien représentatifs des données (79,18 % de l'information pour F-1, F-2). La figurellOtraduit la représentativité des deux facteurs F-1, F-2 et le poids des variables selon ces deux facteurs. La représentation des échantillons et des variables dans le plan F-1, F-2 est donnée par la figure 109.

Ce traitement mathématique fait apparaître plusieurs choses :

- Il vérifie les acquis des chapitres précédents, bonnes corrélations (Um-Ur),(eU-Um) et corrélations (Th-K)
- Les deux facteurs principaux sont caractérisés par deux pôles bien distincts. Le facteur F-1 correspond au pôle "uranium" et le facteur F-2 correspond à un pôle détritique caractérisé par le doublet Th-K. La position de ces deux ensembles selon deux axes orthogonaux montrent qu'ils sont totalement indépendants l'un de l'autre. Ceci vient confirmer l'observation faite lors de l'analyse en diagramme Th-U-K₂O, où la relation Th/U U/K₂O livrait un coefficient b^m très proche de -1.
- Les grès se localisent à l'opposé du pôle K-Th; ce qui apparait normal vu leur faible contenu en minéraux argileux et très faible contenu en feldspath. Les grès anomaux se rapprochent du pôle uranium.

8.4.3.2. Traitement II des variables radio. et minéralogiques.

Il a conduit à l'identification de sept facteurs dont les deux premiers ont été retenus exprimant 78,79 % de la variance totale des



Fig. 111 : Représentation dans le plan F-1, F-2 des variables de l'A.F. II.

| Facteurs | F-1 | | F-2 | |
|--------------------|--|----|---------------------|--------------|
| % de Variance | 45,55 | | 33,24 | |
| λ | 3,188 | | 2,326 | |
| %cumulé | 2 20 | 40 | 60 | <u>80 10</u> |
| des variables 0 | Um • • eU Ur • • MR K • • Th | | Um ● ●U Ra/U | |
| Poids - 1 - | • Ra/U | | • MR • K • Th | |

Fig. 112 : Poids des variables selon F-1 et F-2 dans l'A.F. II. données initiales. Les résultats de cette analyse sont repris par les figures 111 et 112.

Cette seconde étape du traitement mathématique traduit plusieurs tendances :

- selon le facteur principal F-1 caractérisé par le pôle uranium, on observe une liaison uranium-matière réductrice bien marquée (fig.112);
- la matière réductrice apparait également liée au pôle potassiumthorium, liaison très nette selon F-2 (fig.112). Cette liaison M.R.-Th-K détériorerait la corrélation générale entre M.R. et Um (position intermédiaire du pôle M.R. par rapport aux deux pôles uranium et Th-K dans le plan F-1- F-2).

L'étude en A.F. montre donc que si les matières réductrices ont joué un rôle dans la fixation de l'uranium, il existe également une liaison M.R. - (K, Th) qui semble évoquer un apport de matières organiques dans le milieu de sédimentation conjointement au matériel détritique.

Il est possible dans la représentation du plan F-1, F-2 de distinguer plusieurs groupes d'échantillons :

- un groupe A' de schistes marqué par la composante détritique (Th-K) montrant une attirance vers les pôles M.R. et uranium,
- 2) un groupe B' de schistes marqué par la composante uranium,
- un groupe C' constitué des grès dont le caractère anomal de certains d'entre eux les rapproche du pôle uranium

Le groupe A'marqué par des fortes teneurs en uranium, renferme les échentillons analysés en autoradiographie qui ont livré des pyrites radioactives (S-001, S-003, S-139) dont S-001 a fait l'objet de l'analyse à la microsonde. Il semblerait qu'il soit caractérisé par des concentrations en uranium épigénétique.

Le groupe B'rassemble les schistes marqués préférentiellement par le pôle détritique (Th-K). Il renferme à la fois les schistes normaux (opposés au pôle uranium) et des schistes à tendance anomale se rapprochant des pôles M.R. et Um. L'uranium serait syngénétique et fixé sur les matières réductrices.

Le groupe C'représentant les grès, est à l'opposé du pôle M.R., ce qui traduit leur caractère peu réducteur. L'échantillon S-310 anomal en uranium, possède un poids important selon le facteur F-1 (uranium) alors qu'il est à l'extrême opposé du pôle détritique (Th-K) selon le facteur

- 206 -



Fig. 113 : Représentation dans le plan F-1, F-2 des variables de l'A.F. III.

Fig. 114 : Poids des variables selon F-1 et F-2 dans l'A.F. III. F-2. Celui-ci semble se rapprocher du groupe A, ce qui conférerait un caractère épigénétique à sa concentration d'uranium, d'ailleurs vérifié au niveau des observations de terrain et en microscopie optique.

En effet, cet échantillon se rattache à un ensemble gréseux bien particulier de la coupe de la Vierre (voir fig.47,48),qui présente des laminations et stratifications entrecroisées. Il est le siège de formation de chenaux (épaississement brutal, microbrèche, stratifications ondulées; voir paragraphe 4.1). Ces grès montrent dans le compartiment méridional de la coupe des faciès oxydés accompagnés de "*noll front*". Les mêmes niveaux moins épais dans le compartiment septentrional montrent en lame mince une matrice phylliteuse plus ou moins abondante à pigment ferrifère. Une origine de l'uranium dans les grès paraît très vraisemblable.Certains bancs plus réducteurs auraient fossilisé le front d'oxydo-réduction et précipité localement l'uranium, alors que d'autres bancs chargés en oxyde de fer (S-310 par exemple) aurait fixé l'uranium à partir de flux oxydant chargé en U⁶⁺.

La distinction des schistes en deux groupes lors de l'A.F. semble être vérifiée par l'analyse de l'ensemble des schistes en diagramme Th-U-K. Comme nous l'avons vu, ceux-ci se répartissent selon une hyperbole dans le diagramme Th/_{Um} - Um/_{K2}0. L'examen de la droite de corrélation témoignant de l'homogénéité du faciès schiste " Ln (Th/_{Um}) - Ln (Um/_{K2}0) a conduit à la distinction de deux ensembles de schistes (pagraphe 8.3.1).

- un ensemble A inférieur, très homogène: R = 0,982

- un ensemble B supérieur, montrant une dispersion autour de la droite de corrélation: R = 0,460.

Si l'on replace les deux groupes identifiés précédemment par l'A.F. dans cette représentation (Th-U-K), ceux-ci se superposent à ces deux ensembles comme suit :

- le groupe B' correspond exactement à l'ensemble supérieur B,

- le groupe A' appartient à l'ensemble inférieur A montrant le passage de schistes normaux à des schistes anomaux en uranium.

8.4.3.3. <u>Traitement III des variables radio.</u>, M.R. et minéralogiques (Ill, I/C)

L'analyse a conduit à l'identification de 9 facteurs dont les deux premiers ont été retenus exprimant 67,34 % de la variance totale des données initiales. Les résultats de l'analyse sont donnés par les figures 113 et 114. Plusieurs tendances sont à dégager de cette analyse :

,- les variables Ill (% d'illite) et I/_C apparaissent liées à la matière réductrice. Cela vient renforcer l'hypothèse émise précédemment (paragraphe 8.4.3.2) d'une matière organique d'origine détritique. Celle-ci serait apportée dans le bassin de sédimentation en même temps que les minéraux argileux hérités du continent (débris végétaux).

Une première genèse contemporaine de la matière organique et des minéraux argileux dans des sols, sur le continent, avec remaniement postérieur peut être également envisagée. Les minéraux argileux, témoins d'une première évolution pédologique en milieu continental (kaolinite, etc...) ayant participé aux sédiments du Siegénien auraient été transformés par les phénomènes diagénétiques puis métamorphiques. Dans ce cas, la formation hypothétique de ces sols auraient pu être accompagnée d'une préconcentration de l'uranium (voir Chapitre IX, Les anomalies du Revinien de l'Ardenne).

- l'ensemble des variables Ill, I/C, M.R. occupe une position tout à fait intermédiaire entre le pôle uranium et le pôle détritique. Si l'on considère le poids des variables sur les deux facteurs, l'illite présente un poids important sur le facteur F-1, caractérisé par le pôle uranium. Les variables Ill et Um sont très proches. Une adsorption de l'uranium par le matériel argileux semble donc effective. La matière re ductrice montre à nouveau une corrélation avec l'uranium métal. Ainsi l'uranium aurait deux agents fixateurs conduisant à une représentation triangulaire des échantillons anomaux.



Cette fixation double explique sans doute les faibles coefficients de corrélation observés p.124 et p. 175 .De plus, la relation Um-Ill peut être atténuée par la liaison évidente de l'illite avec le pôle potassium. Les poids de Ill et I/C selon F-2 montrent bien leur attraction vers le pôle !étritique.

8.4.3.4. Traitement IV des variables radio. M.R., minéralogiques et éléments traces

L'analyse a conduit à l'identification de 10 facteurs dont les trois premiers ont été retenus exprimant 73,06 % de la variance totale des données initiales. Les résultats sont donnés par les figures 115 et 116 et décrivent plusieurs tendances :

- les métaux et le vanadium présentent selon le facteur F-1 (pôle uranium) une liaison assez évidente avec l'uranium et les matières réductrices (liaison V-M.R. nette). Ils accompagnent donc l'uranium dans son phénomène de concentration et plus particulièrement le cuivre (fig.115). Le phosphore ne montre pas de lien selon le facteur F-1 avec l'uranium métal: il n'a donc pas servi à ce dernier d'agent fixateur primordial;

- selon le facteur F-2 caractérisé par le pôle détritique (Th-K), les métaux et les éléments traces (V, P) montrent une forte dispersion. Certains (V, Co, Fe, Zn) semblent plus ou moins attirés vers le pôle détritique et la matière organique, traduisant leur apport probable par le matériel détritique dans le bassin de sédimentation. Le phosphore se situe à l'opposé du pôle détritique (Th-K). Cela semble normal car les phosphates résultent généralement d'une précipitation chimique (les minérauxlourds phosphatés sont en très faible quantité : apatite, paragraphe 6.2). Une part de l'uranium et du cuivre semble associée au P dans ce pôle "anti-détritique" qui est à rapprocher aux observations faites lors de l'analyse à la microsonde; c'est-à-dire la mise en évidence des minéraux secondaires d'uranium correspondant à des phosphoarseniates de cuivre et d'uranium (l'échantillon concerné S-001 est en position intermédiaire entre le P et U-Cu).

Les représentations graphiques intéressant le facteur F-3 n'ont pas été données ici car elles sont peu significatives.Danscette analyse factorielle, il faut cependant rester prudent dans l'interprétation. Elle ne porte que sur une vingtaine d'échantillons (des dosages plus importants sont prévus dans le cadre d'une collaboration entre la Faculté Polytechnique de Mons et l'Université de Louvain-la-Neuve).







Fig. 116 : Poids des variables selon F-1 et F-2 dans l'A.F. IV.

8.4.4. Conclusion d'ensemble et interprétation de l'A.F.

L'analyse factorielle portant sur les sédiments appartenant aux séries anomales du Siegénien inférieur a permis de confirmer des acquis et de comprendre les différents mécanismes qui ont contribué à la concentration en uranium.

Elle a permis de vérifier que :

- la radioactivité de terrain correspond effectivement à des anomalies en uranium (liaison Ur-Um);

- la famille radioactive de l'uranium est bien en équilibre (liaison eU-Um);

- les valeurs et la bonne corrélation entre le Th et le K traduisent le caractère détritique des faciès étudiés;

- le phénomène de concentration de l'uranium est indépendant des teneurs en thorium et potassium.

Elle a permis de préciser les mécanismes qui ont contribué à la concentration en uranium :

 - l'uranium apparait à la fois fixé sur les minéraux argileux et sur les matières réductrices (matière organique);

- les matières réductrices semblent avoir un lien étroit avec le matériel détritique, ce qui tend à prouver qu'elles ont été apportées en même temps que celui-ci dans le bassin de sédimentation. Mais rien ne me permet de dire si l'uranium a fait l'objet d'une préconcentration pédologique sur le continent. La matière organique a très probablement une origine continentale.

- les métaux en traces accompagnent l'uranium et montrent des affinités plus ou moins grandes avec les matières réductrices;

- le phosphore n'a pas de lien avec l'ensemble des métaux (selon le facteur principal F-1 à pôle uranium) et plus particulièrement avec l'uranium. Il n'a donc pas joué de rôle fixateur de l'uranium dans les faciès du Siegénien inférieur. Ceci semble tout à fait normal, car nous sommes en présence de faciès typiquement détritiques peu favorables au développement d'une phosphatogenèse;

- les relations de l'uranium avec les minéraux argileux et les matières réductrices sont altérées par des phénomènes de remobilisation de l'uranium, qui intéressent principalement les schistes mais aussi un ensemble gréseux particulier. Pour ce qui est des schistes, les phénomènes de remobilisation se localisent tous dans des zones de changement de faciès schisto-gréseux, uniquement observables dans la coupe de la Vierre grâce à une plus grande continuité dans les affleurements.

Ces échantillons proviennent de niveaux anomaux en contact avec une série gréseuse parfois anomale elle-même et caractérisée par des fronts d'oxydo-réduction. Les fluides oxydants qui ont percolé dans les niveaux poreux ont pénétré dans les schistes anomaux encaissants et déplacé l'uranium (u^{4+} en U^{6+}) qui a reprécipité non loin du lieu d'origine. Cette pénétration de fluide dans les faciès schisteux a pu se faire grâce aux laminations gréseuses synschisteuses plus abondantes dans ces zones de transition (voir les laminations gréseuses à minéraux d'uranium du paragraphe 6.3.).

Cette hypothèse est renforcée lorsque l'on s'intéresse au contenu en matière réductrice de ces zones de passage. Celle-ci augmente en s'éloignant des contacts schistes grès que l'on se trouve au mur ou au toit des bancs gréseux.

Il parait donc envisageable que les matières réduites aient été oxydées par des flux provenant des grès à faciès rouge. Cependant, sur le terrain, ces zones de passage schiste-grès ne montrent pas de variations significatives de teintes.

Ces flux ont très peu déplacé l'uranium (1 m à 1,50 m), probablement en raison de la moindre perméabilité et du caractère nettement réducteur de ces faciès schistes noirs.

• •
CHAPITRE IX Conclusions générales



CONCLUSIONS GENERALES

9.1. PRINCIPAUX RESULTATS

L'étude géologique, radiométrique et géochimique du Siegénien du Synclinorium de Neufchâteau a permis de mettre en évidence les résultats suivants :

<u>9.1.1.</u> Le Siegénien inférieur s'est révélé être la seule assise présentant des anomalies radiométriques. La prospection scintillométrique a mis en évidence dans le secteur Sud-Est du terrain étudié une zone anomale s'étendant sur plus de trois kilomètres (entre Chiny et le Château des Croisettes). A l'Ouest de celle-ci, uniquement des pointements anomaux ont été découverts.

9.1.2. La zone anomale est bien visible selon trois coupes naturelles :

- la coupe de Chiny
- la coupe du barrage de la Vierre
- la coupe des Croisettes

Elles sont constituées de séries stratigraphiques schisto-gréseuses appartenant à une même biozone palynologique (BZ). Elles constitueraient un "membre" stratigraphique unique et "repère", soit à une échelle locale (microbassin individualisé), soit à plus grande échelle (le Synclinorium de Neufchâteau).

La zone anomale disparait à l'Est sous la couverture transgressive du Bassin de Paris. A l'Ouest de Chiny, son prolongement n'a pas été retrouvé: les pointements anomaux occidentaux pouvant correspondre aux témoins d'un phénomène plus marqué dans le secteur oriental.

9.1.3. Les séries étudiées montrent un cortège d'anomalies radiométriques de deux générations :

- une première génération, bien représentée, à caractère sédimentaire dont les horizons porteurs sont essentiellement de faciès schistes noirs. Elles sont, à l'échelle de l'affleurement, généralement stratiformes, pouvant parfois prendre une allure lenticulaire (épaisseur moyenne de 40 cm). - une deuxième génération, observée principalement dans la série anomale du barrage de la Vierre, en liaison avec des fronts d'oxydoréduction.

Les horizons porteurs, de nature gréseuse, présentent des structures sédimentaires (stratifications entrecroisées, laminations onduleuses, épaississement brutal des séries, brèche de base) qui lui donnent une configuration de paléochenal. Ils sont le siège :

- d'anomalies lenticulaires à caractère de "roll front" à la limite entre un faciès oxydé (rouge) et un faciès sombre dans des bancs à potentiel réducteur important (forte concentration de pyrites);

- d'anomalies à tendance stratiforme dont les bancs gréseux porteurs montrent une matrice phylliteuse à pigment ferrifère, où les oxydes de fer auraient agit en tant qu'agent de rétention de l'uranium véhiculé par des fluides oxydants.

Ces phénomènes de remobilisation de l'uranium, observés aussi dans des lits pyriteux de la série de Chiny et dans des zones broyées associées à la faille d'Herbeumont permettraient d'envisager une plus grande ampleur du phénomène.

- <u>9.1.4.</u> Les analyses en spectrométrie gamma révèlent que l'uranium est le principal responsable de la radioactivité anomale enregistrée. Cependant des teneurs élevées en thorium ont été repérées sur certains échantillons.
- <u>9.1.5.</u> L'étude des minéraux lourds en anticoïncidence, montre que leur participation à la radioactivité de la roche totale est généralement faible. Cependant, une fraction minéralogique (pyrites altérées et oxy-hydroxydes de fer) s'est révélée fortement radioactive.

Une analyse par autoradiographie a confirmé cette observation. Des tâches intenses d'impacts de particules alpha se superposent aux contours oxydés des pyrites, ainsi qu'à des oxy-hydroxydes de fer isolés.

9. 1.6. Les observations de terrain, l'analyse en autoradiographie et l'analyse à la microsonde ont révélé que l'uranium pouvait se présenter sous deux états :

- un état diffus au sein des horizons porteurs qui est le plus représenté,

- une expression minéralogique locale, associée à des fronts d'oxydo-réduction (développement de phosphoarséniate de cuivre et d'uranium de la série torbernite-zeunérite).

- 218 -

9.1.7. L'analyse des échantillons en diagrammes Th-U-K a démontré les faits suivants :

- la concentration en uranium est indépendante de celles en thorium et potassium,

- l'uranium se présente selon deux occurrences:

.un état détritique où l'uranium serait contemporain des sédiments: uranium primaire syngénétique,

. un état chimique où l'uranium serait remobilisé : uranium secondaire épigénétique

- le thorium et le potassium apparaissent assez bien corrélés, caractérisant la phase détritique argileuse. Il faut toutefois observer que :

. les droites de corrélation (Th-K) montrent une ordonnée à l'origine en Th due aux minéraux lourds et peut-être à une complexation du thorium avec la matière organique;

. certains échantillons fortement anomaux à rattacher à l'ensemble "uranium secondaire", montrent un déficit en thorium qui traduirait son départ sous forme soluble liée aux solutions oxydantes du front d'oxydo-réduction.

<u>9.1.8.</u> L'analyse factorielle confirme et précise les conclusions tirées de l'analyse en diagramme Th-U-K. On peut distinguer deux ensembles :

- un ensemble caractérisé par le pôle détritique (Th-K) pouvant montrer une tendance uranifère. L'uranium est primaire, associé aux argiles et aux matières réductrices;

- un ensemble fortement uranifère écarté du pôle détritique, renfermant l'uranium exprimé minéralogiquement. Ce dernier est d'origine secondaire en relation avec des fronts d'oxydo-réduction.

En outre, l'analyse factorielle vérifie la corrélation générale Th-K et l'indépendance de l'uranium par rapport à ceux-ci.

Enfin, les matières réductrices (matière organique) montrent une étroite corrélation avec le matériel argileux. Celles-ci seraient apportées dans le bassin de sédimentation en même temps que les argiles en provenance des terres émergées environnantes. Ceci permettrait d'envisager une préconcentration de l'uranium dans des sols continentaux. Les métaux (Fe, Mn, Pb, Co, Cu, Zn) et le vanadium semblent se comporter de la même manière que l'uranium. Le phosphore, quant à lui, peu abondant dans de tels sédiments détritiques, ne montre pas de lien évident avec l'uranium.

Toutefois, Um-Cu-P se retrouvent rassemblés dans un pôle opposé au pôle détritique. Cette observation est à rapprocher de celles faites à la microsonde, montrant une expression minéralogique de l'uranium sous forme de phosphoarséniates de Cu et d'U.

9.2. RECONSTITUTION PALEOGEOGRAPHIQUE (fig.117)

Le géosynclinal ardennais est caractérisé au Dévonien inférieur par une abondante sédimentation terrigène. Les sédiments, reconnus comme étant des faciès peu profonds, se développent sur des épaisseurs importantes, sans cesse compensées par l'effet d'une subsidence très active. Ils présentent une distribution spatiale caractérisée par une dominante arépacée en bordure de bassin, tandis que les pélites constituent la majeure partie (voire la totalité) des sédiments dans la partie axiale, correspondant en Belgique au Synclinorim de Neufchâteau.

Le Siegénien inférieur marque un stade, dans l'évolution du géosynclinal, où des apports d'uranium s'effectuent en provenance des terres émergées. Le bassin ardennais isolé de l'"océan siegénien" par la ride allemande (voire bretonne), est alors le siège d'une sédimentation détritique fortement réductrice (schistes noirs pyriteux) favorable à la fixation de l'uranium dans des conditions que l'on peut assimiler à celles connues actuellement en Mer Noire.

L'origine de l'uranium reste hypothétique. Cependant deux sources probables peuvent être envisagées :

- la prospection de l'uranium en Ardenne (CHARLET *et al*, 1983) a mis en évidence des anomalies uranifères sédimentaires dans le Cambrien et spécialement le Revinien (J.N. BOLLE, 1981) au bord Sud du Massif de Stavelot. Ces couches géologiques, subissant l'orogenèse calédonienne, furent tectonisées puis érodées, pouvant alors alimenter la sédimentation détritique de l'Eodévonien et contribuer à nouveau au développement d'anomalies uranifères dans le Siegénien inférieur;

- l'uranium proviendrait des séries volcaniques et des intrusions magmatiques, par ailleurs connues dans les massifs calédoniens de l'Ardenne et du Brabant.





Fig. 117 : Schéma interprétatif des étapes dans la concentration en uranium du Siegénien inférieur du bassin ardennais. La présence d'horizons porteurs préalablement à la fixation d'uranium dans le bassin sédimentaire n'est toutefois pas indispensable à la formation de concentrations locales et cela à l'instar des observations faites dans le Wyoming ou au Gabon.

L'uranium, ainsi véhiculé jusqu'au bassin et plus spécialement dans les zones confinées et anaérobies, précipiterait syngénétiquement dans les sédiments; les minéraux argileux et la matière organique hérités du continent servant d'agent de fixation. L'ampleur du phénomène pourrait s'étendre au Synclinorium actuel de Neufchâteau, car son flanc Nord présente des zones anomales dans le Siegénien inférieur (CHARLET et al, 1983).

Les dépôts dévoniens ont été ultérieurement impliqués dans l'orogenèse hercynienne.

Postérieurement à celle-ci, lors d'une phase continentale qu'il est difficile de préciser, l'uranium primaire syngénétique fut partiellement remobilisé en de multiples fronts d'oxydo-réduction. Ce modèle est à rapprocher de celui décrit par J.C.SAMAMA (1982) à propos du gisement de Cerilly-Bourbon l'Archambault en bordure Nord du Massif Central.

A l'échelle du Dévonien inférieur de la Haute Ardenne, d'autres anomalies radiométriques ont été découvertes par la prospection uranifère du Paléozoïque belge (CHARLET *et al*, 1983) : notamment l'anomalie de Daverdisse. Celle-ci apparaît liée à la fracturation dans une zone située au contact entre le Gédinnien et le Siegénien inférieur. Elle a fait l'objet de plusieurs études minéralogiques (DEJONGHE L., CHARLET J.M. et DUPUIS C., 1982; JEDWAB J *et al*, 1982; JEDWAB J. , 1983). De nombreux minéraux uranifères primaires et secondaires ont été décrits et les séléniures y sont en outre fréquents : on sait que le sélénium accompagne fréquemment l'ura-

nium dans les roll-fronts (HARSHMAN, 1974).

Les concentrations localement très fortes dans le Dévonien inférieur de la Haute Ardenne (anomalies de Daverdisse, membre anomal de Chiny) ne devraient-elles pas s'interpréter suivant un modèle général de fronts d'oxydoréduction dans un domaine paléogéographique où le "climat" géochimique (notamment au Siegénien inférieur) a été favorable à une préconcentration syngénétique d'uranium. Les milieux ayant favorisé la précipitation d'uranium mobilisé peuvent être variés : failles, fractures minéralisées en sulfures, pyrite diagénétique, débris organiques ... On retrouverait ainsi un modèle bien connu dans la classification des gisements d'uranium (DAKLAMP, 1980; GANGLOFF, 1970) et qui est à l'origine de la mise en place de nombreux gisements dans des formations sédimentaires détritiques.

- 222 -

9.3. PROBLEMES ET PERSPECTIVES

La détermination d'un membre stratigraphique à teneur anomale en éléments radioactifs demeure cependant relativement incertaine. La biozonation des pollens dans le Dévonien inférieur ne donne pas une précision (ou finesse) suffisante pour être sûr de la correspondance entre les trois coupes anomales.

Afin d'éclaircir ce doute, il serait très intéressant d'effectuer dans les zones couvertes, des profils en émanométrie ou en détecteur radon au charbon actif (LAUGHLIN *et al.*,) selon des secteurs situés en direction avec les séries anomales observées. Ils permettraient de mieux cerner et de mieux comprendre la géométrie de la zone anomale. Des techniques, telles que la thermoluminescence des quartz associées à des migrations de fluide uranifère, pourraient aider dans la localisation de précipitation d'uranium remobilisé (CHARLET J.M. *et al.*, 1979, 1982; RENAULT, 1981).

Des analyses complémentaires à la microsonde sont dès à présent envisagées, afin d'approfondir les mécanismes et les étapes dans la précipitation sous forme minéralogique de l'uranium secondaire. Les analyses réalisées n'ont sans doute révélé qu'une part des expressions minéralogiques de l'uranium. De nouvelles investigations seraient probablement fructueuses.

Il faudrait étendre la prospection radiométrique pédestre au flanc Nord du Synclinorium de Neufchâteau , notamment dans les secteurs anomaux découverts par la prospection autoportée. Cela permettrait de juger de l'ampleur de la concentration synsédimentaire en uranium dans le bassin ardennais au Siegénien (notamment inférieur).

Bien sûr, l'indice de Chiny-La Vierre n'est pas économiquement exploitable. Mais cette concentration synsédimentaire associée à des phénomènes de remobilisation a toujours été de par le monde, le point de départ dans la découverte de gisements productifs. A ce titre, la faille d'Herbeumont serait l'endroit privilégié à prospecter par sondage.





BIBLIOGRAPHIE

* - * - -

- ADAMS S.S., CURTIS H.S. et HAFEN P.L. (1974).- Alteration of detrital magnetite-ilmenite in continental sandstones of the Morrison formation, New Mexico. In : "Formation of Uranium ore deposits". I. A. E. A., Vienna, p. 219-253.
- A. E. N. O. C. D. E. (1979).- Utilisation des matériaux argileux pour l'isolement des déchets radioactifs. Compte rendu d'une réunion de travail de l'A. E. N., Paris, 10-12 sept. 1979.
- ALDER H.H. (1974).- Concepts of uranium-ore formation in reducing environments in sandstones and other sediments. In : "Formation of Uranium ore deposits". I. A. E. A., Vienna, p. 141-168.
- ASSELBERGHS E. (1946).- L'Eodévonien de l'Ardenne et des régions voisines. Mém. Univ. Louvain(Belgique), XIV, 598 p.
- BACH A. (1980).- Evolution dans les conditions d'affleurement de shales uranifères à matière organique (Bassin permien de l'Aumance - France). Thèse 3e cycle, Institut National Polytechnique de Lorraine, 100 p.
- BALEINE O., CHARLET J.M., DUPUIS Ch. et MEYS H. (1976).- Dosage par spectrométrie gamma des radioéléments naturels. Application à l'étude de quelques formations du Bassin de Mons. Ann. Sci. Départ. Mines-Géologie, p. 9-29.
- BASHAM I.R. (1981).- Some applications of autoradiographs in Textural analysis of uranium bearing samples. A discussion. Economic Geology, 76, p. 974-982.
- BASHAM T.R., BALL T.K., BEDDOE B. et Mc MICHIE U. (1982).- Uranium-bearing accessory minerals and granite fertility. In : "Les méthodes de prospection de l'uranium" O. C. D. E., 979 p. : p. 385-413.
- BASHAM I.R. et EASTERBROOK G.D. (1977).- Alpha-particle autoradiography of geological specimens by use of cellulose nitrate detectors. Inst. Mining Metallurgy Trans., 86, B, p. 96-98.
- BATURIN G.N. (1973 a).- Uranium and sedimentation in the Black and Azoo Seas. Litologiya i Poleznye Iskopaemye, 5, p. 21-32.

- BATURIN G.N. (1973 b).- Uranium in the Modern marine sedimentary cycle. Geochemistry International, p. 1031-1038.
- BATURIN G.N. et KOCHEMOV A.V. (1974). Uranium content of oceanic phosphorites. Litologiya i Poleznye Iskopaemye, 1, p. 124-129.
- BATURIN G.N., KOCHEMOV A.V. et SENIN Y.M. (1971).- Uranium concentrations in recent ocean sediments in zones of rising currents. *Geokhimya*, 4, p. 456-462.
- BELL R.T. (1978). Uranium in black shales. A review. in Kimberley Editor. Vol. 3, pp. 307-322.
- BERNER A. (1970) .- Sedimentary pyrite formation. Amer. J. Sci., 268, p. 1-23.
- BJORLYKKE K. (1974).- Depositional history and geochemical composition of Lower Paleozoic epicontinental sediments from the Oslo region. Norg. Geol. Undersuch, 305, p. 1-81.
- BLESS M.J.M., BOUCKAERT J. et PAPROTH E. (1980).- Environmental aspects of some Pre-Permian deposits in NW Europe. Meded. Rijks Geol. Dienst, 32-1/14, p. 3-13.
- BOLLE J.N. (1981).- Etude géochimique et radiométrique d'un niveau de schistes noirs du Revinien supérieur au bord Sud du Massif de Stavelot. Mémoire de Licence en Sciences géologiques, Louvain-la-Neuve (Belgique), 50 p.
- BOULEGUE J. (1981).- Simultaneous determination of sulfide, polysulfides and thiosulfate as aid to ore exploration. J. Geoch. Explor., 15, p. 21-36.
- BREGER J.A. (1974).- The role of the organic Matter in the Accumulation of Uranium : the organic geochemistry of the coal-uranium association. In : "Formation of Uranium ore deposits. I. A. E. A., Vienna, p. 98-122.
- BREGER J.A. et DEUL M. (1955).- The organic geochemistry of Uranium. U. S. Geol. Surv. Prof. Paper 300, p. 505-510.
- BROOKINS D.G. (1982).- Geochemistry of clay minerals for uranium exploration in the Grants Minéral Belt, New Mexico. Mineralium Deposita, 17, p. 37-53.
- CAMERON E.M. (1980).- Geochimical exploration for uranium in Nothern Lakes. J. Geoch. Explor., 13, p. 221-250.
- CAPUS G. (1977).- Observation de bitumes uranifères à Cerilly (Allier) et à Lodève (Hérault) : implications métallogéniques. C. R. Acad. Sci. Paris, 285, p. 1375-1378.

- CHARLET J.M., DUPUIS Ch. et QUINIF Y. (1978).- Mise en évidence par la termoluminescence (TL) des sables landéniens d'anomalies radiométriques nouvelles dans la coupe du canal de Blaton. Ann. Soc. géol. Belg., 101, p. 337-349.
- CHARLET J.M., DRUMEL B., QUINIF Y. et YANS D. (1982).- Conversion des résultats d'une prospection radiométrique autoportée en unités de concentration de radioéléments. Ann. Soc. géol. Belg, 105, p. 195-203.
- CHARLET J.M., DUPUIS Ch., QUINIF Y., BOUKO Ph. et LAIR Ph. (1982).- Natural thermoluminescence of quartz and feldspars. Application of a new method in uranium exploration. Symp. Uranium exploration method O. C. D. E., p. 545-555.
- CHARLET J.M., DEJONGHE L., DE WITTE S.M., HENRY J., HERBOSCH A., LEFIN J.P. et MARTIN H. (1983).- Reconnaissance survey for uranium in the belgian Paleozoïc. Prof. Paper, 1983/1, 196.
- CHARLET J.M., DORCHIES L. et QUINIF Y. (1984).- Découverte de minéraux uranifères dans le Siegénien du Synclinal de Neufchâteau ; conséquences sur la signification des anomalies radiométriques du Dévonien inférieur de la Haute Ardenne. Ann. Soc. géol. Belg., sous presse.
- CHARLET J.M., DORCHIES L. et QUINIF Y. (1984).- Analyse des sédiments du Siégénien inférieur en diagrammes Th-U-K₂O. Ann. Soc. géol. Belg., en prép.
- CHERVET J. et COULOMB R. (1958).- Geochemical Behavior of Uranium in the Alteration cycle. C. E. A., Session E-7b, P/1250, p. 199-203.
- CIZA V. (1976).- Contribution à l'optimalisation de l'étude par spectrométrie gamma d'une anomalie radioactive. T. F. E., Faculté Polytechnique de Mons, 58 p.
- CLARK et al. (1966).- Tableau des clarkes, extrait de Gamma-ray surveys in uranium exploration. Atomic Energy Agency, Vienna (1979). Technical reports n° 186.
- CLEMMEY H. (1981).- Some aspects of the genesis of heavy mineral assemblages in Lower Proterozoic uranium-gold conglomerates. *Mineralogical Magazine*, 44, p. 339-408.
- COLBEAUX J.P.(1977).- Géométrie et cinématique de la fracturation dans le Nord de la France. Bull. B. R. G. M., Section IV, 4, p. 339-355.
- COULOMB R. et CHERVET J. (1955).- Dispersion des radioéléments de la famille uranium-radium dans les eaux naturelles. Bull. Soc. fr. Miner. Crist., LXXVII, p. 89-96.

DAHLKAMP F.J. (1980).- Typology and geographic/geotectonic distribution of uranium deposits. Rev. Inst. fr. Pétrole, 35, 3, p. 499-536.

- DAUSACKER BIDONE E. (1980).- Les indices d'Uranium du Pliocène continental de la région nord occidentale du Bassin Néogène du Roussillon dans leur cadre sédimentologique. Thèse 3e cycle, Institut National Polytechnique de Lorraine.
- DAVEY P.T. et SCOTT T.R. (1956).- Adsorption of uranium on clay minerals. Nature, 178, 4 543, p. 1195.
- DEGENS E.T., KHOO F. et MICHAELIS W. (1977).- Uranium anomaly in Black Sea sediments. Nature, 269, p. 566-569.
- DEGENS E.T. et ROSS D.A. (1974). The Black Sea Geology, chemistry and biology. Amer. Assoc. Petr. Geol. Mem., 20, 633 p.
- DEJONGHE L., CHARLET J.M. et DUPUIS Ch. (1982).- L'Anomalie radioactive de Daverdisse et les minéraux uranifères associés (Belgique). Ann. Soc. géol. Belg., 105, p. 177-193.
- DEVISMES P. (1978).- Atlas photographique des minéraux d'alluvions. Mém. B. R. G. M., 95, 203 p.
- DISNAR J.R. (1980).- Etude expérimentale de la fixation de métaux par un matériau sédimentaire actuel d'origine algaire. Isolement, purification et caractérisation de la matière organique. Geochimica et Cosmochimica Acta, 45, p. 353-362.
- DORCHIES L. (1981).- Etude de la thermoluminescence des grès faménniens de l'Ardenne et du Boulonnais. D. E. A., Univ. de Lille I, 55 p.
- DUANE M.J. et WILLIAMS C.T. (1980).- Some applications of autoradiographs in textural analysis of uranium-Bearing samples. Economic Geology, 75, p. 766-774.
- DUNOYER DE SEGONZAC G. (1969).- Les minéraux argileux dans la diagenèse, passage au métamorphisme. Mém. Serv. Carte géol. Als.-Lorr., 29, 320 p.
- FIX C.E. (1959).- Selected Annotated Bibliography of the Geology and Occurence of Uranium-Bearing Marine Black Shales in the United States. Geological Survey Bull., 1059-F, p. 263-325.
- FREDRICKSON A.G. (1948).- Some mechanisms for the fixiation of uranium in certain sediments. Science, 108, 2 799, p. 184-185.
- GANGLOFF A. (1970).- Notes sommaires sur la géologie des principaux districts uranifères étudiés par le C. E. A. In : "Uranium Exploration Geology". I. A. E. A., Vienna, p. 77-104.

- GARRELS R. et MAC KENZIE F.T. (1971). Evolution of sedimentary rocks. New York, W.W. Norton and Co. Inc., p. 397.
- GAUTHIER M. (1962).- Contribution à la géochimie de l'uranium des roches sédimentaires et en particulier des schistes carbonifères. Bull. Serv. Carte géol. Als.-Lorr., 14, 4, p. 179-208.
- GEFFROY J. et SARCIA J.A. (1958).- La notion de "gîte épithermal uranifère" et les problèmes qu'elle pose. Bull. Soc. géol. Fr., (6), VIII, 12, p. 173-188.
- GIBLIN, BATTS et SWAINE (1981).- Laboratory simulation studies of uranium mobility in natural waters. Geochimica et Cosmochimica Acta, 45, p. 699-709.
- GOLDSTAUB S. et WEY R. (1955).- Absorption des ions uranyles par les argiles. Bull. Soc. fr. Minér. Crist., 78, p. 242-248.
- GRANDSTAFF D.E. (1976).- A Kinetic study of the dissolution of uraninite. Economic Geology, 71, (8), p. 1493-1506.
- GRANGER H.C. et WARREN C.G. (1969).- "Unstable sulfur compounds and the origin of roll-type uranium deposits". Economic Geology, 64, (2), p. 160-171.
- GRANGER H.C. et WARREN C.G. (1974).- Zoning in the altered tongue associated with rool-type uranium deposits. In : "Formation of Uranium ore deposits". I. A. E. A., Vienna, p. 185-200.
- GUENIOT B., GUILLET B. et SOUCHIER B. (1982).- Fixation de l'uranium sur les surfaces d'oxyhydroxydes de fer (lepidocrocite) des horizons placiques des sols hydromorphes : exemple des stagnogleys des Vosges cristallines. C. R. Acad. Sci. Paris, 295, p. 31-36.
- GUIGUES J. et DEVISMES P. (1969).- La prospection minière à la batée dans le Massif Armoricain. Mém. B. R. G. M., 71, 171 p.
- HARSHMAN E.N. (1974).- Distribution of elements in some roll-type uranium deposits. In : "Formation of Uranium ore deposits". I. A. E. A., Vienna, p. 169-184.
- HASSAN M. et HOSSIN A. (1975).- Contribution à l'étude des comportements du thorium et potassium dans les roches sédimentaires. C. R. Acad. Sci. Paris, 280, p. 533-535.
- HEINRICH E.W. (1958).- Mineralogy and geology of radioactive raw materials. Mc Graw-Hill Book Company (Ed.). Inc., 674 p.

- HERBOSCH A. (1974).- Facteurs contrôlant la distribution des éléments dans les shales du bassin permien de Lodève. I. A. E. A.-S. M., 183/3, p. 359-380.
- HOLTZAPFFEL T. (1981).- Minéralogie des argiles dans les roches anté-Crétacé supérieur d'Othrys (Grèce). D. E. A., Univ. de Lille I, 52 p.
- HOSTETLER P.B. et GARRELS R.M. (1962).- Transportation and precipitation of uranium and vanadium at low temperatures, with special reference to sandstone-type uranium deposits. Economic Geology, 57, p. 137-167.
- JEDWAB J. (1983).- Les minéraux de métaux précieux de Daverdisse. (Communication présentée le 08.11.1983 à la séance spécialisée organisée par UMIBEL). Bull. Soc. géol. Belg., in press.
- JEDWAB J. et DEJONGHE L. (1982).- Contribution à l'étude minéralogique de l'indice radioactif de Daverdisse. Bull. Soc. géol. Belg., 91, 4, p. 217-233.
- KENT P.E. (1980).- The structural framework and history of subsidence of the North Sea Basin. Ann. Soc. geol. Nord, XCIX, p. 281-289.
- KRUMBEIN W.C. et GARRELS R.M. (1952).- Origin and classification of chemical sediments in terms of PH and oxidation-reduction potentials. J. Geol., 60, p. 1-33.
- LANDAIS P. (1980).- Relation uranium-matières organiques dans deux bassins permiens français : Lodève (Hérault) et Cerilly-Bourbon-l'Archambault (Allier). Thèse 3e cycle, Univ. d'Orléans.
- LANDAIS P. et CONNAN J. (1980).- Relation uranium-matière organique dans deux bassins permiens français : Lodève (Hérault) et Cerilly-Bourbonl'Archambault (Allier). Bull. Cent. Rech. Expl. Prod. Elf-Aquitaine , 4, 2, p. 709-757.
- LANGMUIR D. (1978).- Uranium solution-mineral equilibria at low températures with applications to sedimentary ore deposits. Geochémica et Cosmochémica Acta, 42, p. 547-569.
- LANGMUIR D. et HERMAN J.F. (1980).- The mobility of thorium in natural waters at low temperatures. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 44, p. 1763-1764.
- LAUGHLIN J.P., CHARLET J.M., DUPUIS Ch., QUINIF Y., BOUKO Ph. et RAMU J.P. (1982).- An intercomparison of several methods of detecting Radon-22 in overburden gases. Ann. Soc. géol. Belg., 105, p. 211-221.
- LECOMPTE P. (1975).- Géochimie de la surface du Cambrien et l'Eodevonien dans les bassins de la Lomme et de la Lesse supérieures. Doct. Univ. Catholique de Louvain, Belgique.

LUCAS G., GROS P. et LANG J. (1976).- Les Roches sédimentaires. Etude microscopique des roches meubles et consolidés. Doin (Ed.), 2, 501 p.

- MARTIN J. (1962).- Etats naturels de l'Uranium, ses rapports avec la matière organique du sol. Thèse Sciences de la Terre, Strasbourg.
- MENEGHEL L. (1980).- A Model of the progresses forming sedimentary-hosted uranium deposits. In : Scientific communications, p. 727-731.
- MERCIER M., QUINIF Y. et DUPUIS Ch. (1982).- Minéraux argileux et géochimie des radioéléments (U-Th-K) du Tertiaire belge (sondage de Mol.). R. A. S. T., 432, Paris.
- MEYS H. (1975).- Dosage par spectrométrie gamma des radioéléments U-Th-K. Intérêt en prospection géophysique. T. F. E., Faculté Polytechnique de Mons, 50 p.
- MICHOT J. (1963).- Les feldspaths dans les sédiments dévoniens et carbonifères de la Belgique. Acad. Roy. Belg., Classe des Sciences, Mémoires collection in 8e, XXXIV, l.
- MICHOT P. (1980).- Belgique. Introduction à la géologie générale. Livretguide. 26e Congrès géol. int.Paris, p. 487-576.
- MOIFFAK H. (1976).- La répartition de l'uranium dans les phosphates du Sénonien dans le Nord Ouest syrien. C. R. Acad. Sci. Paris, 282, p. 811-814.
- MOREAU M. (1974).- Part II. Vein-type uranium. In : "Formation of Uranium ore deposits". I. A. E. A., Vienna, p. 715-719.
- NDZIBA M. (1980).- Etude géologique et radiométrique de la région de Bioul (province de Namur, Belgique). D. E. A., Univ. de Lille I, 54 p.
- NDZIBA M. (1982).- Anomalies radiométriques des couches de passage du Viséen-Namurien dans le Bassin de Dinant (Ardennes belges). Etude géologique et géochimique. Thèse 3e cycle, Univ. de Lille I.
- PAGEL M. (1982).- Successions paragénétiques et teneurs en uranium des minéraux accessoires dans les roches granitiques. In : "Les méthodes de prospection de l'uranium". O. C. D. E., p. 445-456.
- PARFENOFF A., POMEROL C. et TOURENQ J. (1970).- Les minéraux en grains. Méthodes d'étude et détermination. Masson et Cie (Ed.), 550 p.
- PLILER R. et ADAMS J.A.S. (1962).- The distribution of thorium and uranium in a pennsylvanian weathering profile. Geochimica et Cosmochimica Acta, 26, p. 1137-1146.
- PUPIN J.P. et TURCO G. (1981).- Le zircon, minéral commun significatif des roches endogènes et exogènes. Bull. Minér., 104, p. 724-731.

- 233 -

QUINIF Y., CHARLET J.M. et DUPUIS Ch. (1982).- Géochimie des radioéléments : U-Th-K₂O dans les roches détritiques : une nouvelle méthode d'interprétation. Ann. Soc. géol. Belg., 105. p. 223-233.

- RAMDOHR P. (1955). New observations of the ores of the Witwatersrand in South Africa. Trans. Geol. Soc. South Africa, annex to vol. 61, 50 p.
- RANCHIN G. (1968).- Contribution à l'étude de la répartition de l'uranium à l'état de traces dans les roches granitiques saines. Sci. de la Terre, Nancy, XIII, 2, p. 159-205.
- RANCON D. et ROCHON J. (1979).- Rétention des radionucléides à vie longue par divers matériaux naturels. In : "La migration des radionucléides à vie longue dans la géosphère". O. C. D. E., p. 301-323.
- REINECK-SINGH (1980).- Depositional Sedimentaty Environments. Springer-Verlag (Ed.). Berlin, Heidelberg, New York, p. 62-63.
- RENAULT J. (1981).- Variations in the thermoluminescence properties of quartz associated with migrating uranium deposits migration. Bull. Miner., 104, 6, p. 715-723.
- REYNOLDS R.L. et GODHABER M.B. (1978).- Origin of the South Texas roll-type Uranium deposit : (1) alteration of iron and titanium oxide minerals. Economic Geology, 173, p. 1677-1689.
- ROGERS J.J.W. et ADAMS J.A.S. (1969). "Uranium", Ch. 92, Wedepohl, K.H. ed) Handbook of Geochemistry, Springer-Verlag, Berlin.
- SAMAMA J.C. (1982).- La pyritisation des fronts d'oxydo-réduction des gîtes d'uranium : signification géochimique et caractérisation texturale. Mineralium deposita, 17, 2, p. 295-306.
- SERRA O. (1979).- Mesure de la radioactivité gamma naturelle, diagraphies différées, base de l'interprétation. Bull. Cent. Rech. Expl. Prod. Elf-Aquitaine, 1, p. 123-143.

SLANSKY M. (1980).- Géologie des phosphates sédimentaires. Mém. B. R. G. M., 114.

- STEEMANS P. (1981).- Etude stratigraphique des spores dans les couches de transition "Géginnien-Siégénien" à Nonceveux et à Spa (Belgique). Ann. Soc. géol. Belg., 104, p. 41-59.
- STEEMANS P. (1982).- Gedinnian and Siegenian spore stratigraphy in Belgium. Cour. Forsch. Inst. Senckenberg, 55, p. 165-180.

- STREEL M., FAIRON-DEMARET M., OTAZO-BOZO N. et STEEMANS P. (1981).- Etudes stratigraphiques des spores du Dévonien inférieur au bord Sud du Synclinorium de Dinant (Belgique) et leurs applications. Ann. Soc. géol. Belg., 104, p. 173-191.
- THIEDE et van ANDEL (1977).- In BELL (1978) : Uranium in black shales . A rewiew . In Kimberley Editor. Vol. 3, pp. 307-322.
- VASSILIOU (1980).- The form of occurence of uranium in deposits associated with organic matter. Scientific communications, p. 609-617.
- WATERLOT G. (1945).- L'évolution de l'Ardenne au cours des diverses phases des plissements calédoniens et hercyniens. Bull. Soc. géol. Fr., (5), 15.

• ^ •



101.51.00

ANNEXES

1) LA SPECTROMETRIE GAMMA

La spectrométrie appliquée aux Sciences minérales s'est fortement développée au cours de ces dernières années et notamment dans le laboratoire de Minéralogie de la Faculté Polytechnique de Mons, en Belgique, où un appareillage très moderne a été mis au point. Celui-ci est exploité par une équipe de chercheurs sous la direction du Professeur J.M. CHARLET. C'est dans ce laboratoire et au sein de cette équipe que nous avons traité et analysé nos échantillons.

1.1. Appareillage de spectrométrie gamma

L'installation de spectrométrie gamma de la Faculté Polytechnique de Mons est une chaine de mesure composée de :

- un détecteur à cristal scintillant NaI (Tl) 4" x 2" couplé à un tube photomultiplicateur;
- un étage d'amplification,
- un analyseur multicanaux (400 canaux) qui classe les impulsions issues du photomultiplicateur selon les amplitudes ou encore les photons gamma en fonction de leur énergie.

La sortie de ces résultats se fait actuellement sur une imprimante donnant le listing des mesures (une sortie couplée par une interface à un micro-ordinateur a été développée et sera prochainement mise en routine)

Remarque : Le détecteur est placé dans un château de plomb (50 x 50 x 70cm, épaisseur du Pb = 5 cm revêtu intérieurement de 0,5 cm de Cu). L'enceinte de mesure est thermostatisée à 21°C de manière à assurer la reproductibilité des comptages.

1.2. Dosage des échantillons

1.2.1. Principe

Le but est de doser en une seule mesure le K, le Th et l'U d'un échantillon et d'étudier l'équilibre entre l'uranium et le radium. L'énergie des gammas (ou la position des raies dans le spectre) est fonction de la nature du radioélément. Le nombre des gammas d'énergie déterminée (ou la hauteur des raies) est fonction de la concentration en radioéléments. On utilise la partie moyenne énergie du spectre jusque l,6 MeV. De cette manière, non seulement la raie du K à 1,460 MeV s'y trouve, mais encore la discrimination reste suffisamment bonne pour individualiser les raies à basse énergie, jusque 100 keV (voir fig. , étalonnage en moyenne énergie).

1.2.2. Etalonnage en concentration

1.2.2.1. Choix des raies

Pour le dosage U-Th-K, les raies suivantes ont été choisies :

- pour le potassium, la raie à 1,460 MeV : c'est la seule raie photoélectrique du K₄₀ - largeur = canaux 351-380;
- pour le thorium, la raie à 930 keV largeur = 225-255;
- pour l'uranium, en vue de la vérification permanente, trois raies ont été choisies : la raie à 295 KeV (canaux 77-85), la raie à 610 keV (canaux 150-170) et celle à 1120 keV (270-300). La raie à 184 keV (47-58) dépendant à la fois de l'²³⁵U et du ²²⁶Ra est utilisée pour le calcul de l'équilibre radioactif.

1.2.2.2. Droites de corrélation

Dans le but d'établir les relations entre l'intensité des raies photoélectriques et les teneurs des roches en U-Th-K, des étalons ont été fabriqués par le laboratoire de la Faculté Polytechnique de Mons. Cette fabrication a été menée de manière à éliminer l'effet de matrice en se plaçant dansles conditions d'absorption analogues à celles rencontrées dans les roches. Le choix des étalons a été effectué de manière à couvrir le domaine de teneurs habituelles des roches les plus courantes:

- pour le potassium de O à 6 % exprimé en K₂O,
- pour l'uranium de O à 30 ppm exprimé en U métal,
- pour le thorium de O à 25 ppm.

Il faut ajouter encore que, dans un spectre gamma contenant simultanément les radioéléments U - Th - K, la raie photoélectrique d'un radioélément déterminé est influencée par le rayonnement Compton des émetteurs de plus haute énergie. C'est ainsi par exemple que la raie à 0,610 MeV de l'uranium est influencée par la raie à 930 keV du Th et la raie à 1,46 MeV du K. Des corrélations ont donc été systématiquement établies pour chaque étalon, entre sa teneur en radioéléments et les intensités des différentes raies choisies. Le dosage précis fait appel à la réalisation d'un système d'équations linéaires.



Représentation schématique de l'appareillage de spectrométrie gamma, d'après NDZIBA (1982).

En tenant compte du bruit de fond (régulièrement enregistré) et des corrections liées à l'effet Compton, les teneurs en U-Th-K sont données par les relations ci-dessous. Le potassium et le thorium se déterminent à l'aide d'un seul pic (K : 1,460 MeV; Th : 0,930 MeV). Par contre, les trois raies utilisables pour l'uranium nous donnent la possibilité d'élaborer trois systèmes d'équations, permettant ainsi un contrôle permanent des résultats.

610 = 24,724 Th + 79,225 U (Ra) + Н (610) - H' (36,682 K н (930) - H' (930 = 18,744 Th + 15,117 U (Ra) + 39,203 K H (1 460) - H' (1 460) = 2,216 Th + 10,240 U (Ra) +145,270 K н (1 120) – н' (1 120) = 4,290 Th + 17,888 U (Ra) +45,491 K H (930) - H' (930 = 18,744 Th + 15,117 U (Ra) + 39,203 K (1 460) = 2,214 Th + 10,240 U (Ra) + 145,270 KH (1 460) - H' H (295) - н' 295) = 50,316 Th +187,530 U (Ra) + (79,796 K H (930) - H' 930 = 18,744 Th + 15,117 U (Ra) + (39,203 K H (1 460) - H' (1 460) = 2,214 Th + 10,240 U (Ra) + 145,270 K

H (610), H (930), H (1460) ... = intensité des raies 610 - 930 - 1460 keV H'(610), H'(930), H'(1460) ... = bruit de fond pour les mêmes raies

Les facteurs numériques correspondent au coefficient angulaire des droites d'étalonnage regroupés dans les tableaux suivants n° 1 et n°2.

| | 0,930 | | 1,120 | | 1,460 | |
|----|--------|--------|--------|--------|---------|--------|
| | а | r | а | r | а | r |
| ប | 15,117 | 0,9995 | 17,888 | 0,9999 | 10,240 | 0,9994 |
| Th | 18,744 | 0,9997 | 4,2906 | 0,9996 | 2,2140 | 0,9995 |
| K | 39,203 | 0,9971 | 45,491 | 0,9974 | 145,270 | 0,9990 |

Tableau n°l

| | 0,184 | | 0, 295 | | 0,350 | | 0,610 | |
|----|---------|--------|---------------|--------|---------|--------|--------|--------|
| | а | r | а | r | а | r | a | r |
| U | 199,820 | 0,9998 | 187,530 | 0,9998 | 205,370 | 0,9999 | 79,225 | 0,9999 |
| Th | 82,979 | 0,9995 | 50,316 | 0,9996 | 42,582 | 0,9996 | 24,724 | 0,9995 |
| K | 119,650 | 0,9908 | 79,796 | 0,9818 | 42,784 | 0,7794 | 36,682 | 0,9937 |

a = coefficient angulaire des droites d'étalonnage

r = coefficient de correction

Tableau n° 2

1.2.3. Calcul des teneurs

Il peut être entièrement effectué à l'aide d'une calculatrice programmable HP-97. Une première étape consiste à calculer à partir du spectre enregistré sur un listing d'imprimante les sept moyennes correspondant aux raies chosies (H 610, H 930, H 1120, H 1460 ...). Dans une deuxième étape, les moyennes calculées sont introduites dans un programme qui résoud les systèmes d'équations (1, 2, 3) et fournit immédiatement les teneurs en équivalent uranium- thorium -potassium et le taux d'équilibre entre l'équivalent uranium (radium) et l'uranium métal⁺.

2. LE DOSAGE DES MATIERES REDUCTRICES

2.1. Principe de la méthode

Les matières réductrices (matières organiques, sulfures ...) sont oxydées à chaud par le dichromate de potassium ($K_2 Cr_2 O_7$) en excès, et ce, en milieu sulfurique. L'excès de $K_2 Cr_2 O_7$ est titré en retour par une solution de Fe⁺⁺ (sel de Mohr).

+ Des phénomènes de lessivage peuvent en effet entraîner préférentiellement l'uranium ou ses descendants radioactifs et créer un certain déséquilibre dans la famille de l'uranium.

2.1. Dosage des échantillons

L'échantillon finement broyé (tamis de 65 mesh), pesé exactement est introduit dans un ballon à col rodé de 500 ml. On ajoute successivement dans le réacteur 50 ml de $K_2 Cr_2 O_7 \frac{N}{5}$, 20 ml H_2SO_4 concentré très prudemment, on agite, puis on fait bouillir à reflux durant 30 minutes. On laisse refroidir quelques minutes, puis on ajoute au mélange 200 ml d'eau distillée, 10 ml H_3PO_4 concentré, puis 1 ml d'indicateur coloré (solution de Diphénylamine sulfonate de Na). On titre à froid par la solution de sel de Mohr. On détermine la quantité de $K_2 Cr_2 O_7$ réduite en % pondéral de l'échantillon.

3) L'analyse en anticoïncidence

3.1. Appareillage employé



Schéma de l'appareillage employé lors des analyses en anticoïncidence, d'après le catalogue Intertechnique. L'appareillage, employé par la Faculté Polytechnique de Mons est l'ensemble de comptage de faibles activités bêta du type RA 12 fabriqué par Intertechnique (à Plaisir en Seine-et-Oise). Il est représenté à la figure ci-dessus, tirée des catalogues de la maison-mère. La sortie sur enregistreur a été remplacée par une sortie sur imprimante avec sortie automatique des résultats (réalisation du Centre d'Instrumentation Electronique de la F.P.Ms.).

3.2. Fiabilité de l'appareillage

Afin de tester la fiabilité de l'appareil, nous avons procédé à l'enregistrement du taux de radioactivité, sur des poids croissant d'un même échantillon (S-310). Nous avons observé (figure ci-dessous) une augmentation linéaire de ceux-ci proportionnellement aux poids (R = 0,989).



Schéma vérifiant la proportionalité de la radioactivité vis à vis de la masse d'échantillon.



