

## VEINES DE QUARTZ RICHES EN AZOTE DANS L'AIRE METAMORPHIQUE DE GIVONNE, BELGIQUE<sup>1</sup>

par

Anne DARIMONT<sup>2</sup>

(2 figures et 1 tableau)

**RESUME.-** L'étude des inclusions fluides est entreprise dans des quartz filoniens de l'aire anticlinale de Givonne, de façon à déterminer la composition des fluides minéralisateurs et de comparer leur nature à celle rencontrée dans l'aire anticlinale de l'Ardenne (Darimont, 1986).

Le métamorphisme affecte des roches essentiellement arénopélitiques, tant cambriennes que dévoniennes. Se superpose au métamorphisme à chloritoïde généralisé à toute l'aire anticlinale, un métamorphisme plus local, dont la température peut culminer à 415°C pour une pression lithostatique de 2kbar (Beugnies, 1976).

A côté des fluides carbonno-aqueux et aqueux, on retrouve, tout comme dans l'aire anticlinale de l'Ardenne (Bastogne) un fluide riche en azote (Darimont *et al.*, 1988). Il est caractérisé par des températures d'homogénéisation comprises entre -161,5 et -148°C. Le CO<sub>2</sub> est parfois présent, comme l'indiquent des températures de fusion entre -72,7 et -70,6°C.

La présence de ce fluide azoté dans un contexte métamorphique HT-BP suggère que ces deux conditions sont essentielles à la formation et la mobilisation du fluide.

**ABSTRACT.-** Fluid inclusions are studied in quartz veins from the Givonne anticlinal area in order to determine the chemical composition of the fluids and to compare it with the one encountered in the Ardenne anticlinal area (Darimont, 1986).

The Cambrian and Devonian rocks, mainly arenaceous and pelitic sediments, are affected by regional metamorphism. A local superimposed metamorphism is characterized by temperature as high as 415°C for a 2 kbar lithostatic pressure (Beugnies, 1976).

Beside CO<sub>2</sub> and aqueous rich fluids, a Nitrogen rich fluid, similar to the one encountered in Bastogne (Darimont *et al.*, 1988) is identified. The monophase gaseous inclusions are characterized by homogenization temperatures between -161.5 and -148°C. Melting temperatures between -72.7 and -70.6°C attests the presence of CO<sub>2</sub>.

The occurrence of a Nitrogen rich fluid in a HT-LP metamorphic context, suggests that both parameters T and P are essential in the formation and mobilization of the fluid.

### INTRODUCTION

#### GEOLOGIE

L'aire anticlinale de Givonne se situe dans le sud de la Belgique, de part et d'autre de la frontière franco-belge (fig. 1).

La partie centrale de l'anticlinal est faite de phyllades et quartzites du Revinien (Vanguetaine, 1974) pratiquement dépourvus de calcium, sauf

au sommet de la série (Beugnies, 1987). En discordance sur le Revinien, le Gedinnien débute par un conglomérat (40-80 m) surmonté par des grès schisteux (180 m) contenant deux niveaux calcopélitiques fossilifères. Le Gedinnien supérieur est formé par quelques 1000 mètres de grès et schistes verts (Beugnies, 1976).

1. Manuscrit révisé reçu le 24.3.1989.

2. Laboratoire de Géologie Appliquée, Université de Liège, 45 avenue des Tilleuls, B-4000 Liège, Belgique.

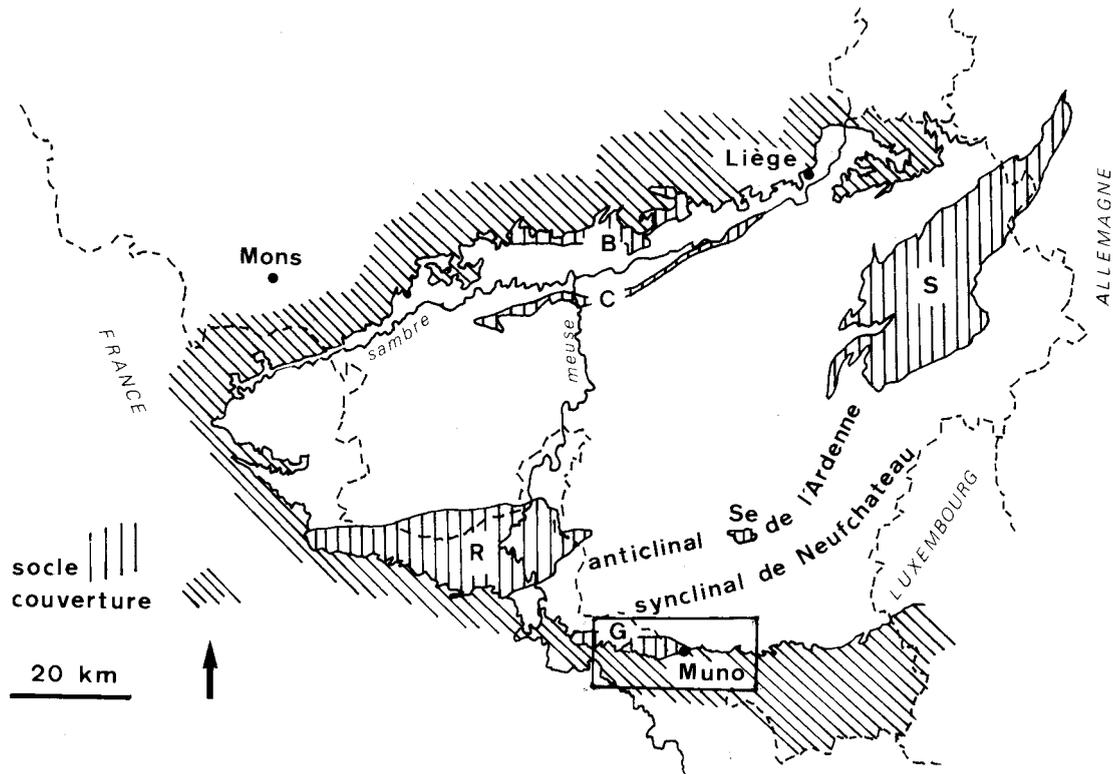


Fig. 1.- Localisation géographique des ensembles géologiques majeurs du sud de la Belgique. Le socle est constitué des massifs de Brabant (B), Stavelot (S), Serpont (Se), Rocroi (R), Givonne (G) et de la ride condrusienne (C).

La tectonique hercynienne est responsable des plus longitudinaux orientés est-ouest, contemporains de la schistosité de flux; et des plis transversaux plus tardifs N30°O, parfois révélés par une crénulation.

Le métamorphisme est défini par la présence de porphyroblastes de chloritoïde, chiastolite, clinozoïsite, biotite, ilménite et margarite. Il est circonscrit dans une zone de forme elliptique dont le grand axe atteint 12 km et le petit 3 km (fig. 2). Si la phase à chloritoïde semble concerner la totalité du massif de Givonne (Beugnies, 1988), les paragenèses à muscovite, oxychlorite et biotite sont observées dans les zones plus restreintes. Les paragenèses à pyrophyllite et chiastolite, typiques des roches plus alumineuses permettent de tracer (fig. 2) l'isograde qui sépare la zone métamorphique interne de la zone métamorphique externe. Dans la zone métamorphique interne, les roches calcopélitiques montrent une décarbonatation de la calcite, ou une anorthitisation de l'albite (Beugnies, 1988). Enfin, la paragenèse à biotite et clinozoïsite reconnue dans les cornéites associées au dyke de kersantite, pourrait être due au métamorphisme de contact (Beugnies, 1976).

Le métamorphisme des aires anticlinales de Givonne et de l'Ardenne, parallèles entre elles et séparées par le synclinorium de Neufchâteau (fig. 1), présente les mêmes particularités :

- il est situé aux flancs sud des anticlinaux de premier ordre, parallèlement à l'axe anticlinal;
- il est polyphasé;
- il est caractérisé par la présence d'une zone interne, marquée par la déstabilisation complète de la pyrophyllite, la décarbonatation de la calcite et l'anorthitisation de l'albite;
- le passage de la zone externe à la zone interne se fait aux environs de 380°C (Beugnies, 1976), pour une pression lithostatique de 2,5 kbar (8000 à 8700 mètres de couverture);
- dans la zone interne le gradient géothermique est élevé; il atteint 60°C/km dans la région de Bastogne, là où la zone interne englobe les niveaux stratigraphiquement plus récents (5600 à 6000 mètres de couverture); la température (Beugnies, 1986) vaut 365°C pour une pression lithostatique de 1,7 kbar.

Parmi les causes responsables d'une élévation de la température, deux sont souvent invoquées (Beugnies, 1976) : la dissipation de l'énergie de compression tectonique sous forme de chaleur, et la montée magmatique. La phase à chloritoïde omniprésente sur l'aire anticlinale de Givonne serait due à la dissipation de l'énergie; tandis que la phase à muscovite, oxychlorite et biotite, plus localisée, serait due à la montée magmatique dont la kersantite de Muno est le témoin (Beugnies, 1976).

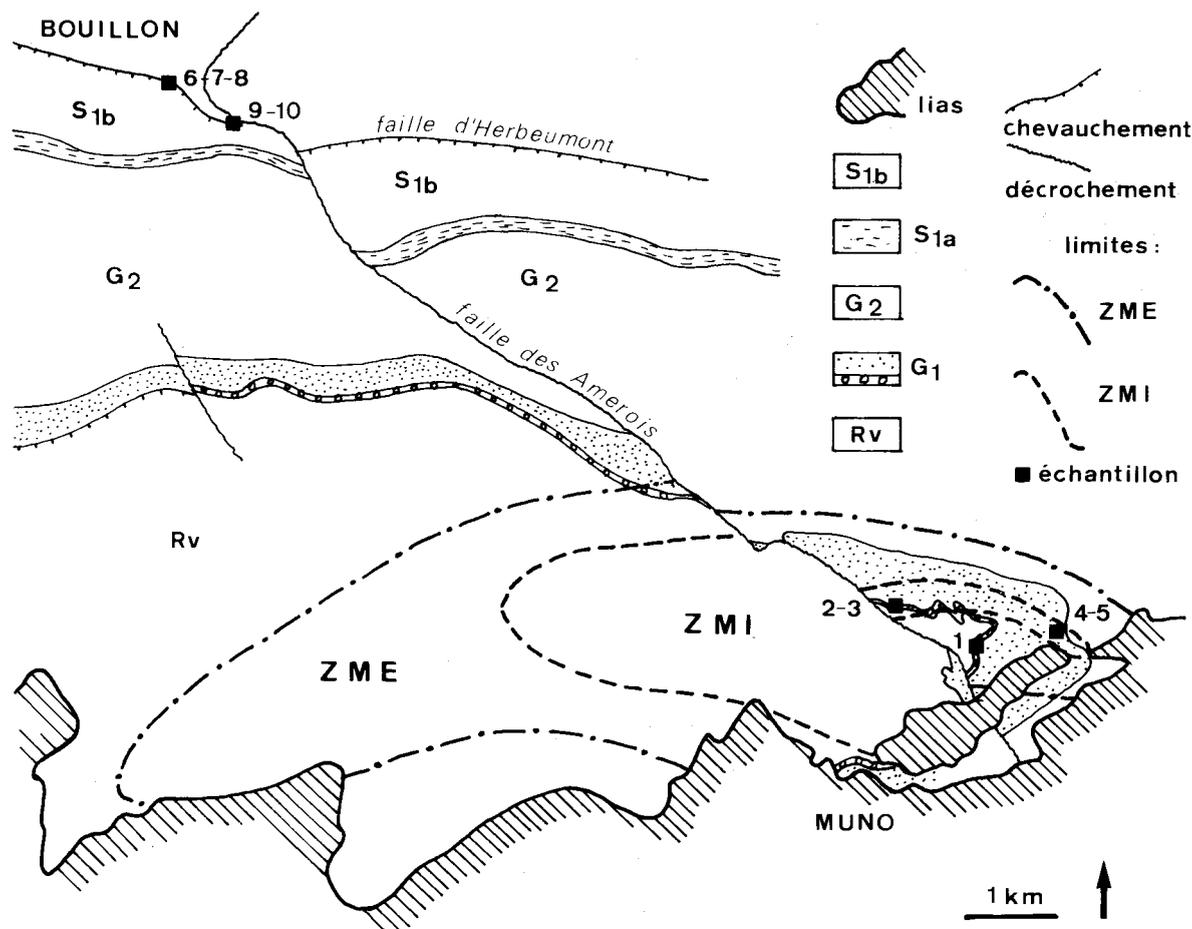


Fig. 2.- Zones métamorphiques interne (ZMI) et externe (ZME) dans l'aire anticlinale de Givonne, d'après Beugnies, 1988. Rv = Revinien, G = Gedinnien, S = Siegenien. 4 et 5 = kersantite.

L'étude des inclusions fluides, réalisée dans les quartz filoniens transverses au Paléozoïque dans l'aire anticlinale de l'Ardenne (Darimont, 1986 a et b) a montré la présence d'un fluide carbono-aqueux dans l'aire métamorphique, et d'un fluide azoté associé à la biotite de Bastogne (Darimont *et al.*, 1988). L'étude des fluides minéralisateurs confirme les températures et pressions obtenues par l'étude des paragenèses, et met en évidence la variation du gradient géothermique d'ouest en est (30 à 60°C/km).

## BUT DE L'ETUDE

Il a paru intéressant d'étudier les fluides minéralisateurs des filons de quartz dans l'aire anticlinale de Givonne, de façon à comparer leur composition avec celles observées dans l'aire anticlinale de l'Ardenne, en raison des similitudes observées entre les deux aires.

## ECHANTILLONNAGE

L'échantillonnage est réalisé dans le but d'observer les fluides minéralisateurs et leur

évolution par rapport au degré de métamorphisme. Sur la dizaine de quartz récoltée en zone non métamorphique (ZNM), en zone métamorphique externe (ZME) et en zone métamorphique interne (ZMI), quatre seulement ont donné des résultats. La taille des inclusions ( $< 7 \mu$ ) et l'opacité des quartz ont empêché la collecte de plus de données.

## METHODE

Les inclusions fluides sont observées au travers de sections polies sur les deux faces, dont l'épaisseur dépend essentiellement de la transparence du quartz. Elles sont soumises aux variations de températures (-200 à +600°C) permises grâce à la platine chauffante programmable LINKAM (Shepherd, 1981), montée sur microscope Leitz Ortholux à lumière transmise. L'objectif utilisé en microthermométrie est un L32. Le calibrage est vérifié au moyen des produits Merk pour les températures positives et des produits Janssen (-142°C) ou naturels (-56,6°C et 0°C) pour les températures négatives.

## RESULTATS

### DESCRIPTION

Dans les quartz 2 et 3 (ZMI), 1 (ZME) et 6 (ZNM), cinq populations d'inclusions sont observées :

- les inclusions SLG (Solide-Liquide-Gaz), très rares, irrégulières de forme, de grande taille ( $< 25 \mu$ ) contiennent plusieurs solides. Elles sont décelées seulement dans le quartz 6;

- les inclusions LG<sub>1</sub> (Liquide-Gaz) sont généralement biphasées, petites ( $< 10 \mu$ ), à contour subarrondi et à taux de remplissage gazeux variable. Elles sont présentes dans les quartz 2, 3 et 6;

- les inclusions LG<sub>2</sub> (Liquide-Gaz) présentes dans le quartz 1, sont très petites ( $< 7 \mu$ ), et à taux de remplissage constant;

- les inclusions LG<sub>3</sub> (Liquide-Gaz), biphasées à remplissage gazeux faible, sont généralement groupées et de petite taille ( $< 10 \mu$ ). Elles sont omniprésentes dans les quartz étudiés;

- les inclusions G (Gaz) sont monophasées, sombres, toujours groupées en cicatrisation de fractures, en forme de cristal négatif, dont la plus grande dimension peut atteindre 15 microns. Ces inclusions sont uniquement détectées dans le quartz 3.

### MICROTHERMOMETRIE

Les solides des inclusions SLG fondent à des températures supérieures ou égales à 350°C.

Les inclusions LG<sub>1</sub> caractérisées par leur taux de remplissage gazeux variable, montrent plusieurs comportements pendant la cryométrie. Quelques températures de fusion du CO<sub>2</sub>, voisines de -56°C, attestent de l'appartenance de certaines inclusions au système H<sub>2</sub>O-NaCl-CO<sub>2</sub>; les inclusions sont trop petites pour distinguer convenablement les températures d'homogénéisation des phases carboniques en une seule phase; les températures d'homogénéisation finale varient de 240 à 329°C. D'autres inclusions sont caractérisées par la fusion du clathrate vers +14°C et des températures de fin de fusion de la glace proches de -1°C. Enfin, dans une grande partie des inclusions de ce type, seules les températures d'homogénéisation finale sont enregistrées; elles varient de 236 à 497°C pour des homogénéisations en phase liquide ou en phase gazeuse. Ces dernières inclusions semblent appartenir au système de composition H<sub>2</sub>O-NaCl-CO<sub>2</sub>.

Les inclusions LG<sub>2</sub> sont au contraire des LG<sub>1</sub> à remplissage gazeux constant. Les températures eutecticales sont inférieures à -35°C et les

températures de fin de fusion sont proches de -3°C. Les températures d'homogénéisation sont très groupées et comprises entre 396 et 417°C, le fluide est du type H<sub>2</sub>O-NaCl-MgCl<sub>2</sub>...

Les inclusions LG<sub>3</sub> appartiennent également au système aqueux; elles sont caractérisées par des températures d'homogénéisation faibles qui peuvent être groupées dans des domaines différents : 150-170°C et 110-120°C.

Enfin, les inclusions du type G contiennent de l'azote : les températures de transition de phases sont de deux ordres : -161,5 à -148°C et -72,7 à -70,6°C (tableau 1). Ces températures correspondent à l'homogénéisation des phases liquide et gazeuse azotées en une seule phase gazeuse ou liquide; et à la fusion du CO<sub>2</sub> solide en gaz.

En l'absence de mesures à la microsonde à effet Raman, la fraction molaire en azote estimée (Touret, 1982; Darimont & Heyen, 1988; van den Kerkhof, 1988) peut être supérieure à 75 % et voisiner les 100 % si le CO<sub>2</sub> est absent. Le CH<sub>4</sub> n'a pu être décelé et aucun film d'eau n'est visible. Toute la prudence s'impose dans l'estimation de la composition de pareilles inclusions (Darimont, 1989) puisqu'un film d'eau très mince à la périphérie de la cavité peut changer la composition et la densité de façon importante.

En l'absence d'eau, la densité du fluide G va dépendre de la teneur en CO<sub>2</sub>. En l'absence de celui-ci la densité est proche de la densité critique de l'azote, c'est-à-dire proche de 0,31. Si la teneur

Tableau 1  
Données microthermométriques des inclusions du type G

Th N <sub>2</sub>	Phase	Tf CO <sub>2</sub>
- 151,5	L	
- 149,5	G	
- 148	G	
- 161,5		- 72,1
- 161		
- 158		- 70,6
- 159,5		- 72,7
- 149	L	

en CO<sub>2</sub> augmente, la densité du fluide augmente; elle approche 0,6 quand il y a 25 mole% de CO<sub>2</sub> (Darimont & Heyen, 1988).

## CONCLUSIONS

Les fluides rencontrés dans les quartz filoniens de l'aire anticlinale de Givonne présentent des similitudes avec ceux observés dans l'aire anticlinale de l'Ardenne (Darimont, 1986). Le fluide carbonno-aqueux caractérisé par l'hétérogénéité de la composition et de la densité au sein des inclusions, représente le fluide précoce, sans doute contemporain du métamorphisme régional. Le fluide azoté piégé plus tardivement dans des fractures apparaît seulement dans la zone métamorphique interne.

Tant à Muno qu'à Bastogne (Darimont *et al.*, 1988), le fluide azoté est présent quand :

- l'encaissant est pélitique;
- la structure est anticlinale;
- la biotite est présente;
- le gradient géothermique est élevé.

Ce type de fluide est d'ailleurs de plus en plus souvent décrit dans ce genre de contexte métamorphique (Kreulen & Schuiling, 1982; Bottrell *et al.*, 1988). Il est maintenant admis que l'azote de la matière organique, piégé sous forme de NH<sub>4</sub> dans les sédiments (Stevenson, 1962; Milovsky & Volynets, 1966; Müller, 1977; Honma & Hitihara, 1981...) durant la diagenèse, se retrouve dans la phase fluide pendant le métamorphisme (Dubessy & Ramboz, 1986).

Le fait de rencontrer systématiquement ce fluide dans une zone où le métamorphisme est exagéré, c'est-à-dire où la température est élevée pour une pression faible, indique que ces deux paramètres doivent jouer un rôle important dans la mobilisation de l'azote.

Quelle que soit la cause de la faible pression (érosion, bombement etc.), la température peut être difficilement maintenue au-delà de 340°C (biotite et clinzoisite) sans un apport thermique extérieur. A Muno, la présence d'un dyke de kersantite favorise l'hypothèse d'une montée magmatique (Beugnies, 1976). En raison des similitudes qui existent entre les aires métamorphiques de la région de Bastogne et de la région de Muno, on est en droit de se demander si l'anomalie thermique enregistrée à Bastogne ne peut pas être due aussi à une montée magmatique locale.

## REMERCIEMENTS

Une pensée très émue va à Monsieur A. Beugnies qui m'a guidée lors de l'échantillonnage dans le massif de Givonne. Je remercie E. Pirard, assistant au service de Géologie Appliquée, pour la critique du manuscrit, et J. Touret, professeur à la Vrije Universiteit d'Amsterdam pour ses bons conseils.

## BIBLIOGRAPHIE

- BEUGNIES, A., 1976. Structure et métamorphisme du Paléozoïque de la région de Muno, un secteur-clef du domaine hercynien de l'Ardenne. *Ann. des Mines de Belgique* : 481-509.
- BEUGNIES, A., 1988. Le métamorphisme de l'aire anticlinale de Givonne. *Ann. Soc. Géol. Nord*, 57 : 117-125.
- BEUGNIES, A., 1986. Le métamorphisme de l'aire anticlinale de l'Ardenne. *Hercynica*, 1 : 17-33.
- BOTTRELL, S.H., CARR, L.P. & DUBESSY, J., 1988. A nitrogen-rich metamorphic fluid and coexisting minerals in slates from North Wales. *Min. magazine*, 52 : 451-457.
- DARIMONT, A., 1986. Les inclusions fluides de quartz filoniens d'Ardenne. *Ann. Soc. géol. Belg.*, 109 : 587-601.
- DARIMONT, A., 1989. Importance du volume d'un fluide à peine visible dans une cavité intracrystalline. *Ann. Soc. géol. Belg.*, 112 (1) : ce volume.
- DARIMONT, A. & HEYEN, G., 1988. Simulation des équilibres de phases dans le système CO<sub>2</sub>-N<sub>2</sub>. Application aux inclusions fluides. *Bull. Min.*, 111 : 179-182.
- DARIMONT, A., BURKE, E. & TOURET, J., 1988. Nitrogen-rich metamorphic fluids in Devonian metasediments from Bastogne, Belgium. *Bull. Min.*, 111 : 321-330.
- DUBESSY, J. & RAMBOZ, C., 1986. The history of organic nitrogen from early diagenesis to amphibolite facies : mineralogical, chemical, mechanical and isotopic implications. *Water Rock Interaction*, Reykjavik, extended abstracts : 171-174.
- HONMA, H. & HITIHARA, Y., 1981. Distribution of ammonium in minerals of metamorphic and granitic rocks. *Geoch. Cosmoch. Acta*, 45 : 938-988.
- KREULEN, R. & SCHUILING, R.D., 1982. N<sub>2</sub>-CH<sub>4</sub>-CO<sub>2</sub> fluids during formation of the Dôme de l'Agoût, France. *Geoch. Cosmoch. Acta*, 46 : 193-203.
- MILOVSKY, A.V. & VOLYNETS, V.F., 1966. Nitrogen in metamorphic rocks. *Geoch. Intern.*, 3 : 752-758.
- MULLER, P.J., 1977. C/N ratios in Pacific deep sea sediments : effect of inorganic ammonium and organic nitrogen compounds sorbed by clays. *Geoch. Cosmoch. Acta*, 41 : 765-776.
- SHEPHERD, T.J., 1981. Temperature programmable, heating-freezing stage for microthermometric analysis of fluid inclusions. *Econ. Geol.*, 75 : 1244-1247.
- STEVENSON, F.J., 1962. Chemical state of the nitrogen in rocks. *Geoch. Cosmoch. Acta*, 26 : 797-809.
- TOURET, J., 1982. An empirical phase diagram for a part of the system at low temperature. *Chem. Geol.*, 37 : 1-27.
- VAN DEN KERKHOFF, A.M., 1988. The system CO<sub>2</sub>-CH<sub>4</sub>-N<sub>2</sub> in fluid inclusions : theoretical modeling and geological applications. Free University Press, Amsterdam, 206 p.
- VANGUESTAINE, M., 1974. Espèces zonales d'acritarches du Cambro-Trémadocien de Belgique et de l'Ardenne française. *Rev. Paleobot. Palynol.*, 18 : 63-82.