

ÉVOLUTION DE LA STRUCTURE CRISTALLOGRAPHIQUE DES MINÉRAUX ARGILEUX DANS LE RÉSERVOIR GRÉSEUX ROTLIEGENDE DES PAYS-BAS

EVOLUTION OF CLAY MINERALS CRYSTALLOGRAPHIC STRUCTURE IN THE DUTCH ROTLIEGENDE SANDSTONE RESERVOIR

Bruno LANSON, Daniel BEAUFORT, Gilles BERGER,
Sabine PETIT et Jean-Claude LACHARPAGNE



LANSON, B., BEAUFORT, D., BERGER, G., PETIT, S. & LACHARPAGNE, J.-C. (1995).
– Évolution de la structure cristallographique des minéraux argileux dans le
réservoir gréseux rotliegende des Pays-Bas. [*Evolution of clay minerals crystal-
lographic structure in the Dutch Rotliegende sandstone reservoir*]. – *Bull. Centres
Rech. Explor.-Prod. Elf Aquitaine*, 19, 1, 243-265, 16 fig., 1 tab., Pau, June 29,
1995. – ISSN : 0396-2687. CODEN : BCREDP.

This paper gives a thorough characterization of the structural evolution of clay minerals that are present in the Rotliegende sandstone reservoir, Lower Slochteren, of the Broad Fourteens Basin, the Netherlands (Southern North Sea), resulting from contrasting burial histories which have affected several blocks.

The early kaolinite crystallization is followed by a steady kaolinite-dickite diagenetic transformation affecting both the structure and the morphology of kaolin-group minerals. Kaolinite "books" are first replaced by dickite pseudomorphs which are subsequently replaced by dickite blocky crystals with increasing burial depth. Intermediate structures between both end-members are difficult to characterize with X-ray diffraction. However, both differential thermal analysis (DTA) and infrared spectroscopy allow an accurate and fast characterization of this kaolinite-dickite evolution. The structural characteristics of kaolin-group minerals are related to the burial history experienced by the sediments prior to the Cimmerian orogeny.

During the Cimmerian orogeny, kaolin-group minerals are suddenly illitized. With the increase of temperature conditions prevailing during this hydrothermal-like event, the morphology of illitic minerals steadily evolves from hairy illite to lath-shaped particles and ultimately to isometric plates. The size of illitic crystals also increases with increasing temperature conditions. At the same time, structural characteristics of illitic minerals also evolve; this evolution is followed by the decomposition of experimental X-ray diffraction profiles. The decomposition method allows us to determine simultaneously the illite over I-S ratio, the illite content in I-S, and illite crystallinity. The evolution of the three-dimensional structure of illitic minerals, from 1M with trans vacant sites towards 1M with cis vacant sites with increasing temperature, is determined by X-ray diffraction on randomly oriented preparations. The morphological and structural characteristics of illitic minerals do not represent the progress of a smectite-illite transformation but these characteristics clearly reflect the temperature conditions prevailing during the illitization of kaolin (~ 155 My).

Morphological and structural characteristics of both kaolin-group and illitic minerals may be characterized efficiently with X-ray diffraction, DTA, and infrared spectroscopy. Once the diagenetic sequence of clay mineral neof ormation has been determined, these characteristics can be used to constrain estimations of palaeo-burial depths.

Bruno Lanson, *Laboratoire de Géophysique Interne et Tectonophysique et URA 733 CNRS, BP 53X, F-38041 Grenoble CEDEX*; Daniel Beaufort et Sabine Petit, *Laboratoire de Pétrologie des altérations hydrothermales et URA 721 CNRS, Université de Poitiers, 40, Avenue du Recteur Pineau, F-86022 Poitiers CEDEX*; Gilles Berger, *Laboratoire de Géochimie et URA 067 CNRS, Université Paul-Sabatier, 38, rue des Trente-Six-Ponts, F-31054 Toulouse CEDEX*; Jean-Claude Lacharpagne, *Elf Aquitaine Production, CSTJF, F-64018 Pau CEDEX*. – November 14, 1994.

Key words : Crystal form, Crystal structure, Sheet silicates, Clay minerals, Kaolinite, Illite, Diagenesis, Sandstone, Rotliegende, Infrared spectra, DTA data, Illitization, Netherlands, North Sea (Broad Fourteens Basin).

RÉSUMÉ

Cet article décrit les différences de morphologie et de structure cristallographique des minéraux argileux du réservoir gréseux rotliedende, Slochteren inférieur, du Broad Fourteens Basin (Pays-Bas) en relation avec les paléoenfouissements contrastés de divers blocs ayant subi une histoire tectonique complexe.

La cristallisation précoce de la kaolinite est suivie par une évolution diagénétique continue kaolinite-dickite. Cette évolution concerne la structure cristallographique mais également la morphologie des minéraux du groupe kaolin. Avec l'augmentation des paléoprotondeurs d'enfouissement, les accordéons vermiculaires de kaolinite sont tout d'abord pseudomorphosés par la dickite, les pseudomorphoses étant ensuite remplacées par des cristaux isométriques (« blocky ») de dickite. Les structures cristallines intermédiaires entre kaolinite et dickite sont difficiles à caractériser à l'aide de la diffraction des rayons X. En revanche, l'analyse thermique différentielle (ATD) et la spectroscopie infrarouge permettent un suivi efficace de cette transformation kaolinite-dickite. Les caractéristiques structurales des minéraux du groupe kaolin sont fonction des paléoprotondeurs d'enfouissement antérieures à l'orogénèse cimmérienne.

Lors de cette orogénèse, les minéraux du groupe kaolin sont brutalement illitisés. Avec l'augmentation des conditions de température régnant dans le réservoir gréseux rotliedende lors de cet événement de type hydrothermal, la forme des minéraux illitiques évolue depuis des particules unidimensionnelles (cheveux) vers des particules en forme de lattes pour aboutir à des cristaux isométriques. La taille des minéraux illitiques augmente simultanément, de même qu'évoluent les caractéristiques structurales des minéraux illitiques. La décomposition des diffractogrammes de rayons X expérimentaux permet de suivre cette dernière évolution. La méthode de décomposition permet en effet de déterminer simultanément les proportions relatives des interstratifiés illite-smectite (I-S) et d'illite, la teneur en illite des I-S et la cristallinité de l'illite. L'évolution de la structure cristallographique tridimensionnelle des minéraux illitiques, du polytype 1M avec les sites trans vacants vers le polytype 1M avec les sites cis vacants, a été mise en évidence par diffraction des rayons X sur préparations non-orientées. Les caractéristiques morphologiques et structurales des minéraux illitiques présents dans le réservoir gréseux rotliedende du Broad Fourteens basin ne représentent pas l'avancement d'une transformation diagénétique smectite-illite mais traduisent les conditions de température régnant dans ce réservoir durant l'illitisation brutale des kaolins (- 155 Ma).

Les caractéristiques morphologiques et structurales des minéraux argileux, les minéraux illitiques comme ceux du groupe kaolin, peuvent être définies rapidement et précisément à l'aide de la diffraction des rayons X, de l'ATD et de la spectroscopie infrarouge. Une fois déterminée la séquence diagénétique de cristallisation des minéraux argileux, il est possible d'utiliser ces caractéristiques pour estimer les paléoprotondeurs d'enfouissement des formations où ces minéraux se sont développés.

Mots-clefs : Forme cristalline, Structure cristalline, Groupe argilic minéral, Kaolinite, Dickite, Illite, Diagenèse, Grès, Rotliedende, Spectre IR, Donnée ATD, Illitisation, Pays-Bas, Mer du Nord (Bassin Broad Fourteens).

TABLE DES MATIÈRES — CONTENTS

INTRODUCTION.....	245
1. – CONTEXTE SCIENTIFIQUE – <i>SCIENTIFIC SETTING</i>	245
2. – CONTEXTE GÉOLOGIQUE – <i>GEOLOGICAL SETTING</i>	246

2.1. Contexte géologique régional – <i>Regional geological setting</i>	246
2.2. Séquence diagénétique des minéraux argileux – <i>Clay minerals diagenetic sequence</i>	247
2.2.1. Origine des minéraux du groupe kaolin – <i>Origin of kaolin-group minerals</i>	247
2.2.2. Illitisation brutale des minéraux du groupe kaolin – <i>Sudden illitization of kaolin-group minerals</i>	248
2.2.3. Origine des fluides induisant l'illitisation des minéraux du groupe kaolin – <i>Origin of the fluids responsible for kaolin-group minerals illitization</i>	249
3. – ÉVOLUTION DE LA STRUCTURE CRISTALLOGRAPHIQUE DES MINÉRAUX ARGILEUX EN RÉPONSE AUX CONDITIONS DE TEMPÉRATURE – <i>EVOLUTION OF CLAY MINERALS CRYSTALLOGRAPHIC STRUCTURE AS A FUNCTION OF TEMPERATURE CONDITIONS</i>	249
3.1. Minéraux du groupe kaolin – <i>Kaolin-group minerals</i>	249
3.1.1. Pétrographie et morphologie – <i>Petrography and morphology</i>	249
3.1.2. Diffraction des rayons X – <i>X-ray diffraction</i>	249
3.1.3. Analyse thermique différentielle – <i>Differential thermal analysis</i>	250
3.1.3. Spectroscopie infrarouge – <i>Infrared spectroscopy</i>	250
3.2. Minéraux illitiques – <i>Illitic minerals</i>	250
3.2.1. Pétrographie et morphologie – <i>Petrography and morphology</i>	250
3.2.2. Diffraction des rayons X – <i>X-ray diffraction</i>	252
4. – DISCUSSION ET CONCLUSION – <i>DISCUSSION AND CONCLUDING REMARKS</i>	257
4.1. Schéma général de la transformation diagénétique des minéraux argileux – <i>General scheme for the diagenetic evolution of clay minerals</i>	257
4.2. Implications sur les circulations de fluides – <i>Consequences on fluid flows</i>	258
4.3. Transformation diagénétique des minéraux du groupe kaolin – <i>Diagenetic evolution of kaolin-group minerals</i>	259
4.4. Structure des minéraux illitiques en fonction de la température – <i>Structure of illitic minerals as a function of temperature</i>	260
4.5. Conclusion : perspectives pour la caractérisation des modifications de la structure cristallographique des minéraux argileux – <i>Conclusion : prospects for the characterization of the evolution of the clay minerals crystallochemical structure</i>	261
5. – RÉFÉRENCES.....	262
6. – ANNEXES.....	264
6.1. Structure cristallographique tridimensionnelle des minéraux dioctaédriques – <i>Three-dimensional crystallographic structure of dioctahedral minerals</i>	265
6.1.1. Minéraux 1 : 1 dioctaédriques - Minéraux du groupe kaolin – <i>Dioctahedral 1 : 1 minerals - Kaolin-group minerals</i>	265
6.1.2. Minéraux 2 : 1 dioctaédriques - Minéraux illitiques – <i>Dioctahedral 2 : 1 minerals - Illitic minerals</i>	265
6.2. Cristallinité de l'illite – <i>Illite crystallinity</i>	265

INTRODUCTION

Une évolution de la morphologie des cristaux résultant de l'augmentation des conditions de température a été décrite aussi bien pour les minéraux illitiques que pour ceux du groupe kaolin à l'aide de la microscopie électronique à balayage (MEB) (GUVEN *et al.*, 1980; KANTOROWICZ, 1984; POLLASTRO, 1985; KELLER *et al.*, 1986; INOUE, 1986; EHRENBURG *et al.*, 1993; THOMAS, 1986) et en transmission (INOUE, 1986; INOUE *et al.*, 1987, 1988; GLASMANN *et al.*, 1989; LANSON & CHAMPION, 1991). Quels que soient les facteurs d'augmentation de la température (hydrothermalisme, géothermalisme, enfouissement diagénétique), les minéraux illitiques présentent un aspect floconneux lorsque les interstratifiés illite-smectite (I-S) à empilement aléatoire ($S=0$), smectitiques, sont prédominants, des formes allongées en cheveux ou en lattes quand les I-S ordonnés, illitiques, sont majoritaires et enfin apparaissent en particules plus isométriques, dans le plan cristallographique *ab*, lorsque le pôle illite devient la phase prépondérante. Au cours de la diagenèse, la morphologie des kaolins évolue également à partir d'accordéons vermiculaires de kaolinite vers des cristaux plus isométriques (« blocky ») de dickite (EHRENBURG *et al.*, 1993). Cette évolution morphologique des minéraux du groupe kaolin avait été observée préalablement dans divers réservoirs de mer du Nord (KANTOROWICZ, 1984; THOMAS, 1986), sans être cependant mise en relation avec une modification de leur structure cristallochimique.

Le but de cet article est de décrire les modifications de la structure cristallochimique des minéraux argileux qui accompagnent, voire qui induisent, ces évolutions morphologiques. La structure cristallographique des minéraux argileux est généralement déterminée par diffraction des rayons X sur des préparations orientées de fractions argileuses. Par conséquent, l'information structurale disponible est réduite à la seule dimension selon l'axe cristallographique c^* , c'est-à-dire soit à la « cristallinité » (cf. § 6) pour l'illite ou les kaolins, soit aux proportions relatives des feuillets d'illite et de smectite dans le cas des interstratifiés illite-smectite. Cependant, la morphologie des particules ne dépend pas des séquences d'empilement de feuillets élémentaires, mais de la structure tridimensionnelle de ces feuillets (cf. § 6). Il est donc indispensable de compléter l'approche classique par l'étude de poudres non-orientées sur des fractions argileuses pour mettre en évidence une évolution de ces structures tridimensionnelles, comme celle que décrivent DRITS *et al.* (1993) dans un environnement hydrothermal. L'utilisation de techniques complémentaires, telles que la spectroscopie infrarouge ou l'analyse thermique différentielle, permet également de suivre, au moins indirectement, ces évolutions structurales.

L'ensemble de ces techniques a été mis en œuvre pour caractériser les minéraux argileux présents dans le réservoir gréseux rotliedende, Slochteren inférieur (Permien inférieur) du Broad Fourteens Basin, Pays-Bas¹. En dépit d'une relative homogénéité des réactions diagénétiques non-argileuses observées, les contrastes de paléoenfouissement supposés entre les différents blocs constituant ce fossé

d'effondrement ont en effet engendré des modifications importantes de la morphologie des minéraux argileux, comparables à celles décrites dans la littérature.

1. — CONTEXTE SCIENTIFIQUE

L'évolution de la structure des minéraux argileux en réponse aux variations des conditions de pression et de température a été mise en évidence depuis le début des années 60 grâce, en particulier, à la diffraction des rayons X. Plusieurs critères de « cristallinité » ont ainsi été développés précocement pour l'illite (WEAVER, 1960; KUBLER, 1964, 1968) afin de différencier, sur la base de la largeur des pics de diffraction, les divers stades de la diagenèse tardive et du métamorphisme précoce. HOWER & MOWATT (1966) ont ensuite introduit le concept de l'illite représentant le terme ultime d'une série de minéraux interstratifiés illite-smectite, destiné à décrire des stades moins avancés de la diagenèse. Une méthode de simulation accessible, prenant en compte la modification des proportions relatives des deux pôles (illite et smectite) ainsi que des séquences d'empilement, a été développée (REYNOLDS & HOWER, 1970) pour permettre de décrire cette transformation minéralogique.

La conversion diagénétique smectite-illite a été abondamment décrite par la suite, essentiellement dans les bassins de type Gulf Coast où les argilites constituent l'essentiel de la série stratigraphique (BURST, 1969; PERRY & HOWER, 1972; HOWER *et al.*, 1976; SRDON, 1979, 1984; VELDE *et al.*, 1986; GLASMANN *et al.*, 1989, parmi beaucoup d'autres). En plus de leur homogénéité lithologique, les argilites étudiées présentent l'avantage de constituer un système chimique qu'il est possible de considérer comme fermé (HOWER *et al.*, 1976). La composition chimique globale des séries argileuses ne présente en effet pas de variation systématique significative en fonction de la profondeur d'enfouissement (DUNOYER de SEGONZAC, 1970; PERRY & HOWER, 1970; WEAVER & BECK, 1971; HOWER *et al.*, 1976).

Après avoir été réalisées essentiellement dans les formations de couverture, ces études de l'évolution des minéraux argileux, illitiques mais aussi kaolinitiques, ont été entreprises dans les réservoirs. L'évolution diagénétique des minéraux argileux a en effet été étudiée récemment dans diverses formations gréseuses, en particulier celles de la mer du Nord, en raison des influences conjuguées de leur minéralogie et de leur morphologie sur les propriétés pétrophysiques des réservoirs (SEEMANN, 1982; ROSSEL, 1982; MCHARDY *et al.*, 1982; MORRIS & SHEPPERD, 1982; PYE & KRINSLEY, 1986; THOMAS, 1986; HOWARD, 1992). Dans le cadre de l'exploration pétrolière, les minéraux argileux ont également été utilisés pour établir des corrélations stratigraphiques (FISCHER & JEANS, 1982) ou encore pour déterminer l'enchaînement des réactions minérales induites soit par l'enfouissement soit par les variations de la composition chimique des fluides interstitiels (BURLEY, 1984; KANTOROWICZ, 1984; GOODCHILD & WHITAKER, 1986; BURLEY & FLISCH, 1989). La migration de fluides aux compositions contrastées implique en effet des paragenèses plus variées que celles observées dans les argilites (HOFFMAN & HOWER, 1979), et des séquences généralement complexes de néoformation de

¹ Dans cet article, ce réservoir sera identifié comme le « réservoir gréseux rotliedende ».

minéraux (non-)argileux (BJÖRLYKKE & AAGAARD, 1992). Les diverses morphologies des minéraux du groupe kaolin², sont, par exemple, généralement considérées comme résultant de plusieurs épisodes distincts de cristallisation (BJÖRLYKKE & AAGAARD, 1992) avec des implications importantes sur la géochimie des fluides interstitiels (lessivage du réservoir).

2. — CONTEXTE GÉOLOGIQUE

2.1. CONTEXTE GÉOLOGIQUE RÉGIONAL

Le réservoir gréseux rotliegende est le plus important réservoir permien de gaz situé dans le sud de la mer du Nord et s'étend depuis les secteurs britanniques jusqu'en Pologne (GAUPE *et al.*, 1993). La sédimentation durant le rotliegende s'est essentiellement déployée dans un environnement continental aride, avec des alternances de dunes éoliennes, et d'interdunes humides (GLENNIE, 1972). Afin de minimiser les variations minéralogiques et texturales initiales (SEEMANN, 1982), les échantillons étudiés ont tous été prélevés dans des faciès de grès éoliens majoritairement dunaire.

La zone d'intérêt, le Broad Fourteens Basin (BFB), se situe dans le secteur hollandais de la mer du Nord (Fig. 1). Il s'agit d'un fossé d'effondrement orienté N 130-N 140W dont la subsidence a débuté au Permien. Dans le BFB, les grès rotliengés du Slochteren inférieur reposent en discordance sur les roches mères carbonifères (Coal Measures du Westphalien B). Ce réservoir gréseux est délimité verticalement et latéralement (localement) par les évaporites du Zechstein (Permien supérieur). Après une subsidence générale et continue du Permien au Jurassique moyen, l'essentiel du BFB a été fracturé, puis considérablement relevé par une surrection régionale (phase orogénique cimmérienne, ~ 155 Ma).

Suite à une histoire structurale complexe durant le Crétacé et le Tertiaire, le réservoir gréseux rotliegende se trouve actuellement à des profondeurs très contrastées (entre 2 500 et 4 500 m) au sein même du BFB. D'après les données de pouvoir réflecteur de la vitrinite et de vitesse sonique, les différences entre les profondeurs actuelles et celles atteintes avant la surrection cimmérienne pourraient atteindre 2 000 m dans le centre du bassin (Petroland, rapport interne). Cinq des six puits étudiés définissent une coupe transversale du BFB (Fig. 1) sur laquelle les paléo-profondeurs d'enfouissement supposées (Tab. I), et par conséquent les températures atteintes avant la surrection cimmérienne, diminuent d'ouest (puits 5 ~ 5 000 m) en est (puits 1 ~ 3 000 m) en raison, d'une part, d'un taux de sédimentation plus faible et, d'autre part, de cycles répétés de dépôt et d'érosion (VAN WIJHE, 1987).

² Dans cet article, le terme « kaolin » est utilisé pour décrire les minéraux du groupe kaolin sans spécification du polytype (kaolinite ou dickite), alors que le mot « kaolinite » est utilisé spécifiquement pour ce polytype particulier.

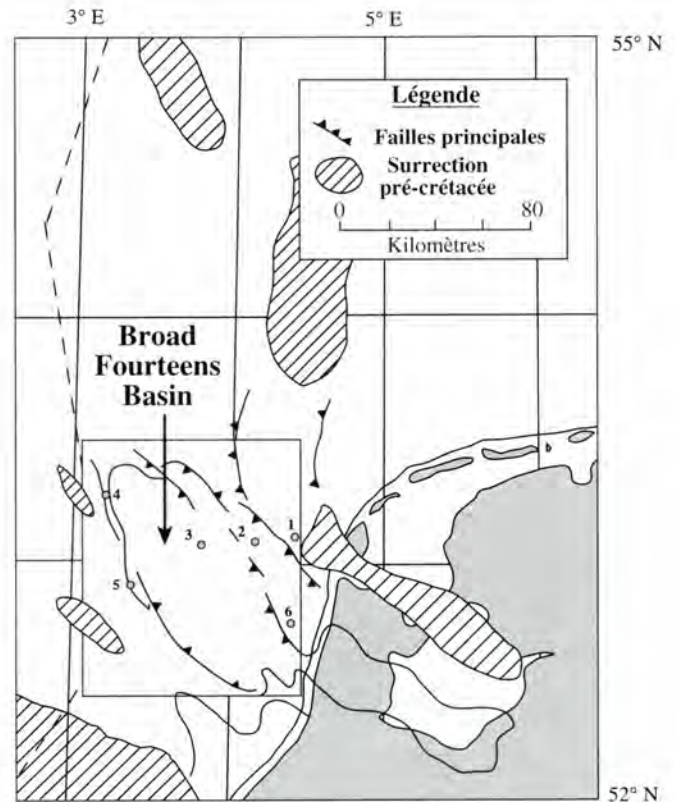


FIGURE 1

Plan de localisation du Broad Fourteens Basin (sud de la mer du Nord).

La position des six puits étudiés est reportée par rapport à la structure du graben (modifié d'après LANSON *et al.*, soumis).

Location map of the Broad Fourteens Basin structure in the Southern North Sea.

*The location of the six wells studied is shown relative to the graben structure (modified from LANSON *et al.*, submitted).*

TABLEAU I

Le réservoir gréseux rotliegende (Slochteren inférieur) : profondeurs actuelles et estimations des profondeurs maximales atteintes dans les six puits étudiés.

Rotliegende (Lower Slochteren) sandstone reservoir : present burial depth and estimated maximum burial depth for the six wells studied.

Puits	Echantillons analysés	Profondeur actuelle (m)	Profondeur maximale estimée (m)
1	13	2 975-2 990	3 000
2	12	3 320-3 495	3 300-3 500
3	19	4 230-4 503	4 200-4 500
4	14	2 480-2 546	4 500
5	13	2 880-2 970	5 000
6	14	2 893-2 932	3 500

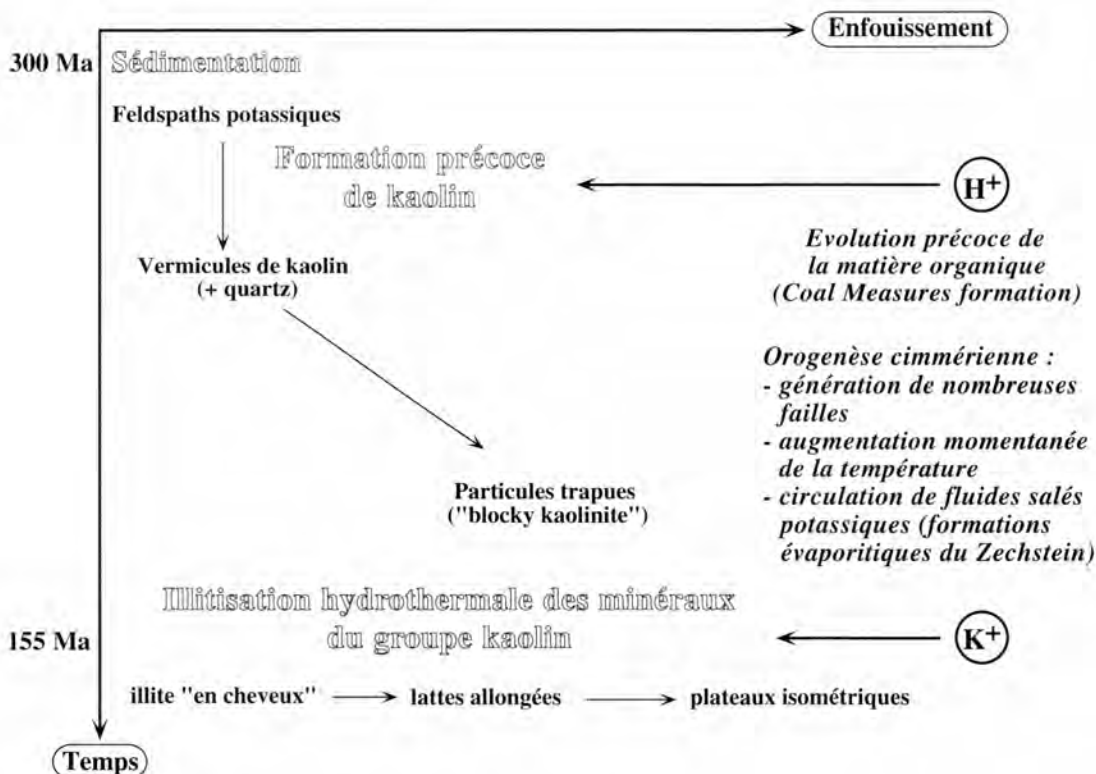


FIGURE 2

Schéma synthétique de la diagenèse des minéraux argileux au cours de l'enfouissement du réservoir gréseux rotliégende (Slochteren inférieur; Broad Fourteens Basin, sud de la mer du Nord).

Les facteurs contrôlant les réactions des minéraux argileux, ainsi que l'origine des fluides, sont indiqués en italique; l'évolution de la morphologie des minéraux argileux en fonction de la profondeur maximale d'enfouissement estimée est décrite en petits caractères.

Schematic diagram of the reactions affecting clay minerals during the burial diagenesis of the Rotliégende sandstone reservoir (Lower Slochteren; Broad Fourteens Basin, Southern North Sea).

The factors controlling the clay mineral reactions, as well as the origin of the fluids, are indicated in italics; the morphological evolution of clay minerals as a function of the estimated maximum burial depth are detailed in smaller characters.

2.2. SÉQUENCE DIAGÉNÉTIQUE DES MINÉRAUX ARGILEUX (Fig. 2)

Les observations pétrographiques au MEB montrent que les syncristallisations des kaolins et du quartz sont concomitantes de la dissolution des feldspaths potassiques et des plagioclases. Ces syncristallisations des surcroissances de quartz et des kaolins dans la porosité primaire se remarquent par l'imbrication (arrêts mutuels des faces de croissance) de ces phases (Fig. 3a et b). L'illitisation se produit aux dépens des minéraux du groupe kaolin postérieurement à leur évolution morphologique (Fig. 3c et d). Avec l'accroissement supposé de la profondeur d'enfouissement, la morphologie des minéraux du groupe kaolin évolue progressivement à partir de cristaux en accordéons vers des cristaux isométriques (« blocky ») plus massifs; les minéraux illitiques, quant à eux, sont essentiellement unidimensionnels dans les échantillons les plus superficiels, et évoluent vers des formes plus isométriques (dans le plan *ab*). Ainsi, la morphologie et la structure cristallographique des deux familles de minéraux argileux peuvent être corrélées avec la profondeur maximale estimée atteinte par les grès rotliégendes. Avant d'aborder les modifications de structure

cristallographique associées à ces changements de morphologie, il est nécessaire de connaître les réactions minérales qui ont induit la précipitation des minéraux du groupe kaolin et des minéraux illitiques.

2.2.1. Origine des minéraux du groupe kaolin

Les observations pétrographiques indiquent clairement que les minéraux du groupe kaolin présents dans les grès rotliégendes du BFB ne proviennent pas d'un épisode tardif de cristallisation, comme le suggèrent GOODCHILD & WHITAKER (1986) pour les grès rotliégendes du secteur britannique (champ de Rough), mais bien de réactions diagénétiques précoces (LANSON *et al.*, soumis). Ces minéraux se sont formés précocement aux dépens des feldspaths potassiques (ROSSEL, 1982; PYE & KRINSLEY, 1986) et ont été illitisés par la suite. L'hydrolyse des feldspaths potassiques, ainsi que la précipitation de kaolinite qui en résulte, nécessitent un apport de protons (LANSON *et al.*, soumis; BERGER *et al.*, soumis). Cet apport peut être envisagé soit par un lessivage du réservoir par de grandes quantités d'eau météorique, soit par une migration de protons provenant de l'évolution précoce de la matière organique. Malgré l'environnement

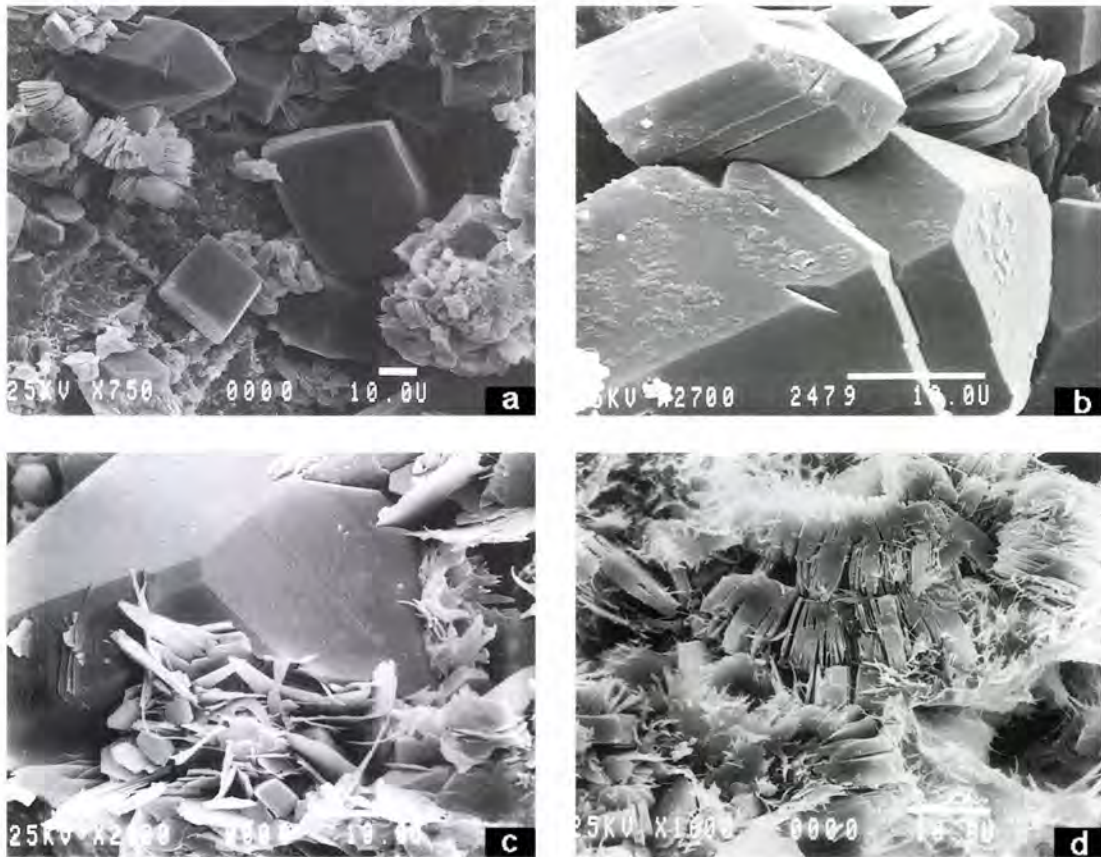


FIGURE 3

Exemples de différents types de minéraux argileux dans le réservoir gréseux rotliengende du Broad Fourteens Basin (d'après LANSON *et al.*, soumis).

a) Échantillon du puits 1 (2 988 m) : syncristallisation de vermicules de kaolinite et de quartz induisant l'imbrication des cristaux; présence annexe d'ankérite authigène. — b) Échantillon du puits 4 (2 479 m) : syncristallisation de cristaux isométriques (« blocky ») de dickite et de quartz induisant l'arrêt mutuel des faces de croissance. — c) Échantillon du puits 3 (4 285 m) : cristallisation d'illite sur un site de croissance des minéraux du groupe kaolin localisé à la surface d'un grain de quartz authigène. — d) Échantillon du puits 2 (3 320 m) : précipitation d'illite authigène aux dépens de vermicules de kaolinite en cours de dissolution.

*Clay minerals occurrences in the Rotliengende sandstone reservoir, Broad Fourteens Basin (from LANSON *et al.*, submitted).*
 a) Sample from well 1 (2 988 m) : simultaneous growth of kaolinite "books" and quartz inducing intergrowth features; additional presence of authigenic ankerite. — b) Sample from well 4 (2 479 m) : simultaneous crystallization of dickite and quartz characterized by the mutual stopping of growth faces. — c) Sample from well 3 (4 285 m) : illite crystallization on kaolin growth sites on the surface of a quartz crystal. — d) Sample from well 2 (3 320 m) : precipitation of authigenic illite at the expense of dissolving kaolinite "books".

continental des dépôts, il semble cependant que cette dernière hypothèse soit à privilégier (LANSON *et al.*, soumis).

2.2.2. Illitisation brutale des minéraux du groupe kaolin

Les âges apparents K/Ar obtenus sur les minéraux illitiques du réservoir gréseux rotliengende du BFB sont en accord avec les résultats obtenus dans les réservoirs gréseux environnants (LEE *et al.*, 1989; ROBINSON *et al.* 1993; TURNER *et al.* 1993). Ces âges, environ 155 Ma, coïncident avec la première période d'activité tectonique régionale (orogénèse cimmérienne) et indiquent que l'illitisation est un processus brutal favorisé par une augmentation momentanée de la température et par la présence de nombreuses failles permettant d'importantes circulations de fluides (LEE *et al.*, 1989; ROBINSON *et al.*, 1993; LANSON *et al.*, soumis). La nature des facteurs induisant cette réaction (circulation

de fluides salés potassiques et élévation de la température), ainsi que l'absence de corrélation directe avec l'enfouissement maximal supposé, font de l'illitisation des kaolins un événement de type hydrothermal plutôt qu'une transformation diagénétique (LANSON *et al.*, soumis)³. Par conséquent, la structure cristallographique des minéraux illitiques exprime les conditions de température régnant dans le réservoir

³ L'utilisation du terme « hydrothermal » n'implique pas obligatoirement la circulation de fluides chauds provenant d'autres formations. Dans cet article ce terme est simplement associé à une augmentation momentanée de la température, d'une part, et à une modification brutale de la composition chimique des fluides interstitiels, d'autre part. Pour ce qui concerne les causes de cette modification, aucune hypothèse n'est cependant privilégiée entre la circulation de fluides provenant de formations voisines et un contact latéral du Slochteren inférieur avec d'autres formations.

gréseux rotliegende lors de cette illitisation brutale, et non la progression d'une évolution smectite-illite, qui n'est pas observée.

2.2.3. Origine des fluides induisant l'illitisation des minéraux du groupe kaolin

Des contraintes géochimiques, comme la nécessaire sur-saturation vis-à-vis des feldspaths potassiques (LANSON *et al.*, soumis; BERGER *et al.*, soumis), nécessitent une source externe pour le potassium, essentiel pour l'illitisation des kaolins. Il semble clairement établi (ROSSEL, 1982; GOODCHILD & WHITAKER, 1986; PYE & KRINSLEY, 1986; LANSON *et al.*, soumis) que la source principale du potassium ayant entraîné l'illitisation des kaolins soit localisée dans les niveaux évaporitiques sus-jacents du Zechstein et non pas dans les Coal Measures (Westphalien B) comme cela a été proposé par GAUPP *et al.* (1993) et PLATT (1993), bien que ces auteurs aient observé une illitisation moins intense à proximité immédiate de cette formation.

3. — ÉVOLUTION DE LA STRUCTURE CRISTALLOGRAPHIQUE DES MINÉRAUX ARGILEUX EN RÉPONSE AUX CONDITIONS DE TEMPÉRATURE

Après avoir établi la séquence diagénétique des minéraux argileux, les auteurs ont pu s'intéresser aux différences de structure cristallographique qui accompagnent ou induisent les différences morphologiques observées. De plus, il a été possible de corrélérer ces modifications morphologiques ou structurales avec les profondeurs maximales d'enfouissement supposées. L'intérêt de telles corrélations pour affiner les estimations de ces paléop profondeurs d'enfouissement est immédiat.

3.1. MINÉRAUX DU GROUPE KAOLIN

3.1.1. Pétrographie et morphologie

Les minéraux du groupe kaolin ont été observés dans les cinq puits de la section transversale du BFB dans des proportions variant de 1 à 15 %. Cette variabilité importante n'a pu être corrélée ni à la localisation structurale des puits ni à la profondeur maximale d'enfouissement supposée. Les minéraux du groupe kaolin sont essentiellement développés en agrégats de cristaux de grandes tailles remplissant la porosité. La morphologie de ces minéraux évolue progressivement avec la profondeur maximale d'enfouissement supposée. Dans les puits où l'enfouissement présumé a été le plus faible (puits 1 – environ 3 000 m), les kaolins présentent une morphologie en accordéons vermiculaires (Fig. 4a), typique de la kaolinite selon EHRENBERG *et al.* (1993), le diamètre moyen de ces accordéons étant < 10 µm. De plus gros cristaux, > 10 µm, isométriques (« blocky » dickite) (EHRENBERG *et al.*, 1993) sont occasionnellement présents dans les accordéons de kaolinite (Fig. 4b). Le diamètre de ces accordéons augmente régulièrement avec la profondeur pour atteindre 20 µm vers 3 500 m (Fig. 4c). De plus, des

cristaux possédant la morphologie « blocky » de la dickite deviennent plus fréquents dans les empilements de fins plateaux automorphes (Fig. 4d). A partir d'un enfouissement supposé de 4 000 m environ, le nombre de cristaux de kaolin constituant les empilements décroît fortement. Des empilements de quelques cristaux « blocky » de dickite remplacent totalement les accordéons de kaolinite (Fig. 4e). Dans les formations les plus profondément enfouies (4 500 m), ces pseudomorphoses de la kaolinite par de la dickite sont absentes : tous les kaolins se présentent en agrégats de cristaux isométriques « blocky » dont le diamètre peut atteindre 25 µm (Fig. 4f). De toute évidence, cette évolution morphologique est à mettre en parallèle avec la modification de la structure cristallographique tridimensionnelle des minéraux du groupe kaolin. Il est à noter que, dans le puits 2, cette conversion se produit sur un intervalle de profondeur de seulement 300 m entre le haut et le bas du réservoir gréseux rotliegende. Il faut remarquer également que l'ensemble des minéraux du groupe kaolin, toutes morphologies confondues, est affecté par l'épisode d'illitisation et présente des figures de dissolution (Fig. 4g et h).

3.1.2. Diffraction des rayons X

Dans le BFB, les minéraux du groupe kaolin présents dans le réservoir gréseux rotliegende sont bien cristallisés et présentent des raies de diffraction très fines sur les diffractogrammes obtenus sur les poudres orientées (Fig. 5). Le profil de raies aussi fines étant très influencé par les facteurs instrumentaux, l'exploitation de ces données est rendue très délicate. Pour éviter de définir un hypothétique critère de cristallinité (taille de domaine cohérent de diffraction) sur ces mélanges kaolinite-dickite (interstratifiés ?), la structure cristallographique tridimensionnelle de ces minéraux a été étudiée en diffraction des rayons X sur des poudres non-orientées. Une évolution progressive de kaolinite en dickite a ainsi été clairement mise en évidence (Fig. 6). Les échantillons les plus superficiels contiennent essentiellement une phase kaolinite mal cristallisée (pics 11-1 et 02-1 de la kaolinite très peu intenses). Puis, dans un intervalle restreint de profondeur (puits 2 – 3 350-3 450 m) l'amélioration de la cristallinité de la kaolinite se manifeste par l'intensité croissante des raies 11-1 et 02-1 de la kaolinite. Au fond du puits 2 (~3 500 m) la transition entre cette kaolinite bien cristallisée et la dickite est terminée, et seule la dickite est identifiée en diffraction des rayons X dans les échantillons les plus profonds. Ce changement de polytype intervient préalablement à la modification majeure de morphologie, c'est-à-dire à l'évolution des accordéons épais vers les cristaux isométriques. L'évolution morphologique très progressive des minéraux du groupe kaolin en fonction de la profondeur d'enfouissement présumée indique une série continue de conversion kaolinite-dickite et non une altération brusque du polytype. En effet, les minéraux du groupe kaolin ont été très altérés au cours de l'épisode d'illitisation postérieur, et la dissolution a probablement affecté préférentiellement les accordéons de kaolinite, plutôt que les cristaux isométriques de dickite en raison de la surface spécifique plus faible de ces derniers. Par conséquent, la coexistence actuelle de kaolinite et de dickite est vraisemblablement réduite aux échantillons dans lesquels la kaolinite était abondante avant le processus d'illitisation. Ceci confirme une coexistence prolongée entre les deux polytypes, et le caractère très progressif de cette transition kao-

linite-dickite. Cette évolution ne pouvant pas être mise en évidence par une étude de routine sur préparations orientées, il est vraisemblable que sa fréquence soit beaucoup plus élevée que les rares cas décrits dans la littérature, et qui sont tous localisés dans des réservoirs situés à proximité immédiate de niveaux de roches mères.

3.1.3. Analyse thermique différentielle

L'évolution progressive kaolinite-dickite peut également être mise en évidence grâce à l'analyse thermique différentielle (ATD) (Fig. 7). La fraction 0,5-1,0 μm de l'échantillon prélevé à 2 976 m dans le puits 1 montre un profil de température de déshydroxylation caractéristique de la kaolinite (MACKENZIE, 1970). Par contre, le pic de température de déshydroxylation correspondant à la kaolinite bien cristallisée, présente dans les échantillons enfouis plus profondément (puits 2 - 3 350 m), est fortement déplacé vers des températures plus élevées, c'est-à-dire vers les températures de déshydroxylation de la dickite. Cette température de déshydroxylation intermédiaire, entre celles de la kaolinite et de la dickite, peut être induite par un effet de taille de grain plus important, qui n'a pas été observé au MEB, ou plus vraisemblablement par une structure intermédiaire (interstratifiée ?) entre les deux polytypes. Parallèlement au pic caractéristique de la dickite, un tel pic, large et déplacé par rapport à ceux que l'on définit classiquement pour les deux polytypes, est également présent sur le profil ATD obtenu pour l'échantillon prélevé à 4 285 m (puits 3), bien que cet échantillon contienne exclusivement de la dickite (cf. ci-dessus).

3.1.3. Spectroscopie infrarouge

L'évolution des spectres de vibration de valence des groupements hydroxyles (Fig. 8) illustre également cette transition kaolinite-dickite en fonction de la profondeur d'enfouissement supposée. Les spectres des échantillons les plus superficiels présentent quatre bandes (3 695, 3 670, 3 650 et 3 620 cm^{-1}) caractéristiques d'une kaolinite bien

cristallisée, les deux bandes extrêmes étant plus intenses que les deux bandes intermédiaires. Le caractère mal cristallisé d'une kaolinite se traduirait par une fusion des deux bandes intermédiaires vers 3 650 cm^{-1} ainsi que par une diminution de l'intensité de la bande à 3 695 cm^{-1} , la bande à 3 620 cm^{-1} , attribuée aux hydroxyles internes (LEDOUX & WHITE, 1964a, 1964b), pouvant être considérée comme invariante (KIMPE & COLMET DAAGE, 1966; PARKER, 1969; BRINDLEY *et al.*, 1986). Le spectre infrarouge de la dickite, quant à lui, comporte trois bandes caractéristiques (3 710, 3 655 et 3 620 cm^{-1}). Le déplacement progressif des bandes ν_1 et ν_3 (3 695-3 710 et 3 650-3 655 cm^{-1}), ainsi que la diminution d'intensité de la bande ν_2 (3 670 cm^{-1}) permettent de suivre sans ambiguïté cette transition kaolinite-dickite avec la profondeur (BRINDLEY *et al.*, 1986).

3.2. MINÉRAUX ILLITIQUES

3.2.1. Pétrographie et morphologie

La pétrographie des minéraux illitiques présents dans le BFB est très semblable à celle décrite précédemment dans les réservoirs rotliendens situés dans d'autres secteurs (ROSSEL, 1982; GOODCHILD & WHITAKER, 1986; PYE & KRINSLEY, 1986; LEE *et al.*, 1989; PLATT, 1993; GAUPP *et al.*, 1993). Les minéraux illitiques forment soit des agrégats de cristaux automorphes en remplacement des kaolins (Fig. 3c et d), soit des films épais de 5 à 15 μm recouvrant la surface des grains de quartz (Fig. 9a). Dans les puits où les grès rotliendens sont très fortement illitisés, ces films présentent généralement un niveau interne très compact et un niveau externe composé de lattes allongées se développant radialement dans la porosité intergranulaire (Fig. 9a et b). Les minéraux illitiques se développent également à la surface de grains de quartz secondaires, ou de carbonates, en remplacement des kaolins (Fig. 3c).

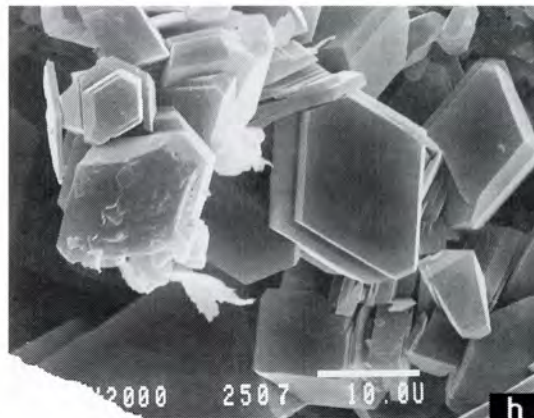
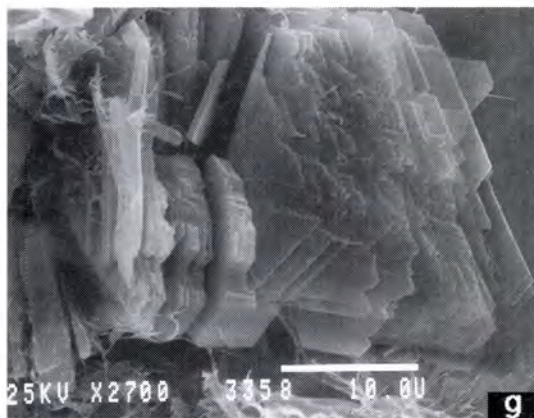
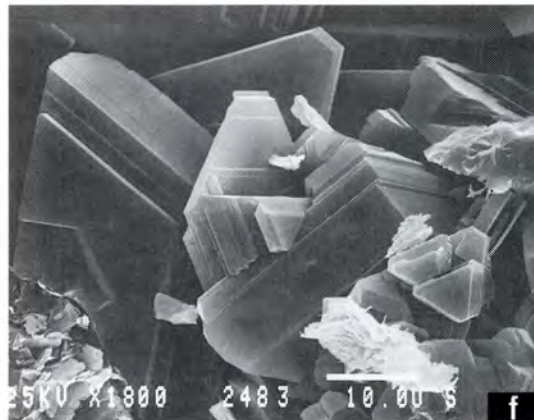
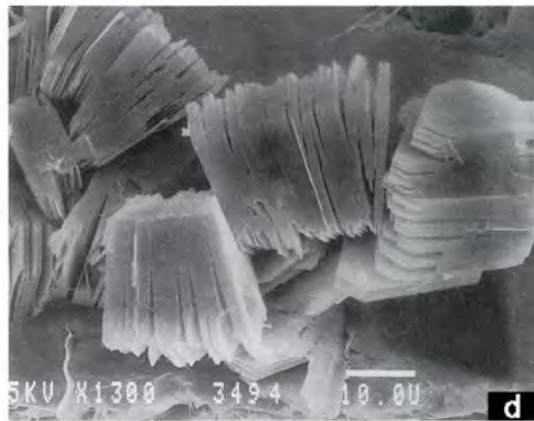
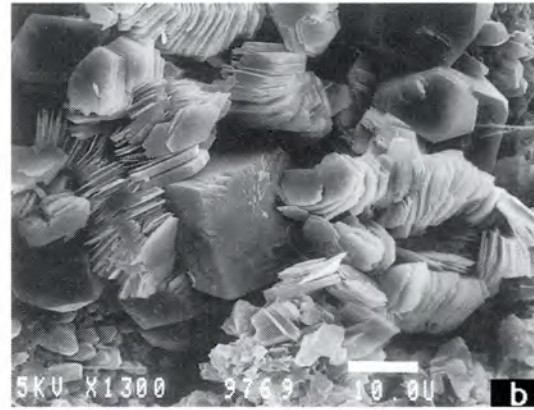
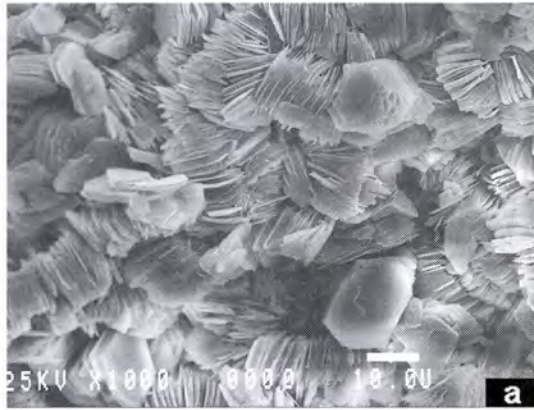
La forme et la taille des minéraux illitiques automorphes évoluent considérablement avec la profondeur maximale d'enfouissement supposée. Dans les puits les plus superfi-

FIGURE 4

Morphologie des minéraux du groupe kaolin dans le réservoir gréseux rotliendens, Broad Fourteens Basin (d'après LANSON *et al.*, soumis).

a) Échantillon du puits 1 (2 976 m) : les minéraux du groupe kaolin se présentent sous forme d'accordéons vermiculaires caractéristiques de la kaolinite. — b) Échantillon du puits 1 (2 978 m) : présence de quelques cristaux isométriques (« blocky ») de dickite croissant à l'intérieur des accordéons de kaolinite. — c) Échantillon du puits 2 (3 447 m) : présence de cristaux possédant la morphologie « blocky » caractéristique de la dickite dans un empilement de fins plateaux de kaolinite. — d) Échantillon du puits 2 (3 494 m) : des empilements de quelques cristaux épais de dickite remplacent les accordéons vermiculaires de kaolinite. — e) Échantillon du puits 3 (4 285 m) : des empilements de quelques cristaux épais de dickite remplacent les accordéons vermiculaires de kaolinite; on remarque la dissolution préférentielle des fins feuillets de kaolinite. — f) Échantillon du puits 4 (2 484 m) : cristaux isométriques de grande taille (dickite); on remarque la modification radicale de la forme des cristaux de dickite. — g) Échantillon du puits 2 (3 358 m) : bordures crénelées des accordéons de kaolinite en cours de dissolution. — h) Échantillon du puits 4 (2 507 m) : les cristaux isométriques (« blocky ») de dickite partiellement dissous ne présentent pas de direction préférentielle de dissolution.

Morphology of kaolin-group minerals in the Rotliendens sandstone reservoir, Broad Fourteens Basin (from LANSON *et al.*, submitted).
a) Sample from well 1 (2 976 m) : kaolin-group minerals exhibit vermicular habits typical of kaolinite "books". — b) Sample from well 1 (2 978 m) : a few blocky crystals of dickite growing within the pore-filling "books" of kaolinite. — c) Sample from well 2 (3 447 m) : crystallites with a blocky morphology characteristic of dickite may be clearly seen in the stacking sequence of thin euhedral plates of kaolinite. — d) Sample from well 2 (3 494 m) : stacks of a few thick dickite crystallites replace the kaolinite books. — e) Sample from well 3 (4 285 m) : stacks of a few thick dickite crystallites replace the kaolinite "books"; note the preferential dissolution of the thin kaolinite layers. — f) Sample from well 4 (2 484 m) : coarse isometric dickite crystals; note the dramatic change in the morphology of dickite. — g) Sample from well 2 (3 358 m) : partly dissolved "books" of kaolinite show ragged edges. — h) Sample from well 4 (2 507 m) : partly dissolved blocky crystals of dickite exhibit smoothed shapes without preferential direction of etching.



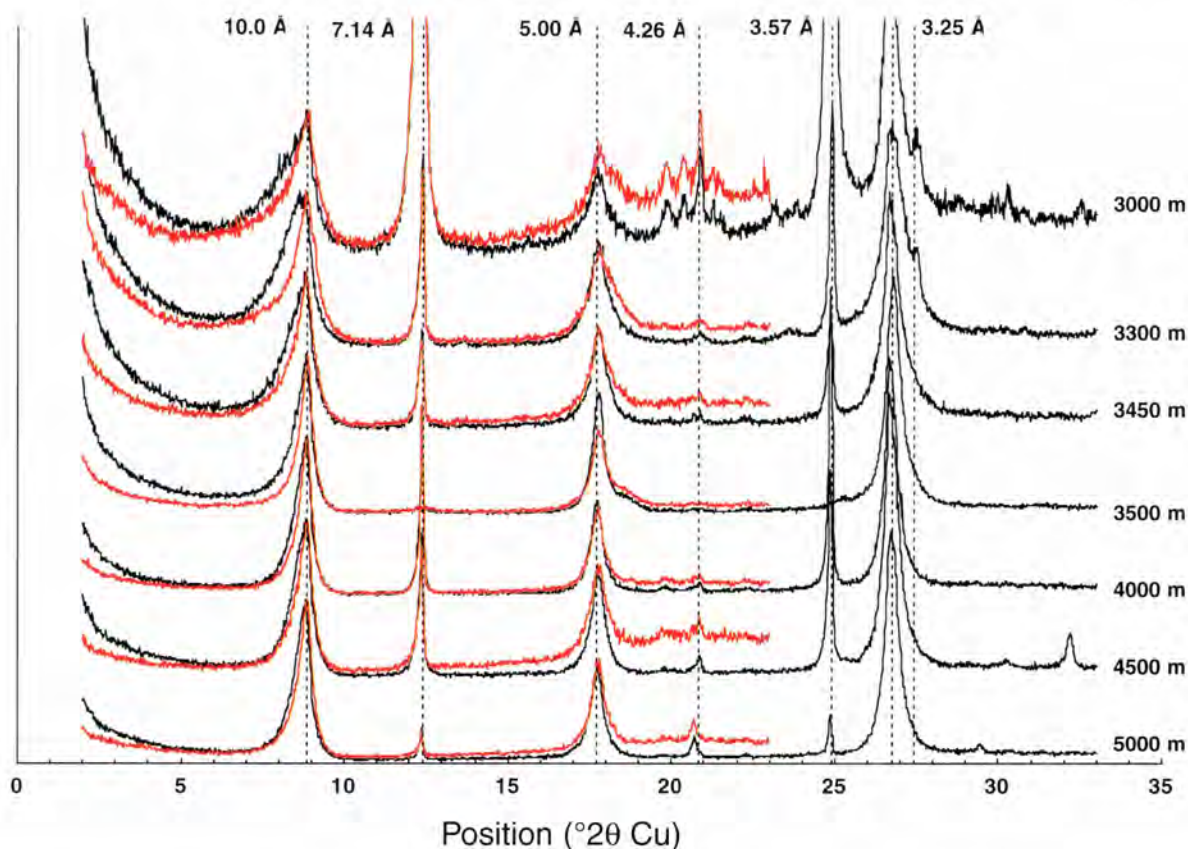


FIGURE 5

Évolution des minéraux argileux (fraction granulométrique < 5 μm) en fonction de la profondeur maximale d'enfouissement estimée (modifié d'après LANSON *et al.*, soumis).

En noir : diffractogrammes obtenus sur les préparations séchées à l'air; en rouge : diffractogrammes obtenus sur les préparations après saturation au glycérol; les profondeurs portées sur la figure sont les profondeurs maximales d'enfouissement estimées. Les intensités sont normalisées sur le pic situé vers 10,0 Å.

Du haut vers le bas : échantillons provenant des puits 1 (2 976 m), 2 (3 321 m et 3 445 m), 6 (2 893 m), 3 (4 248 m), 4 (2 545 m) et 5 (2 968 m).

*Characteristic evolution of clay minerals (< 5 μm fraction) as a function of the estimated maximum burial depth (modified from LANSON *et al.*, submitted).*

Black trace : X-ray diffraction profile collected on air-dried preparations; red trace : X-ray diffraction profile collected on glycerol-saturated preparations; depths shown on the figure are estimated maximum burial depths. Intensities are normalized on the 10.0 Å peak.

From top to bottom : samples from wells 1 (2 976 m), 2 (3 321 m, and 3 445 m), 6 (2 893 m), 3 (4 248 m), 4 (2 545 m) and 5 (2 968 m).

ciels (puits 1 – 3000 m), les cristaux illitiques sont très allongés, filamenteux, essentiellement unidimensionnels ("whiskers") (Fig. 9b et c). La largeur maximale de ces minéraux illitiques en cheveux peut atteindre 0,3 à 0,5 μm . Avec l'accroissement de la profondeur d'enfouissement présumée, les minéraux illitiques évoluent tout d'abord vers des lattes plus rigides (Fig. 9d et e). La largeur de ces lattes atteint 2 μm vers 3 500 m (Fig. 9f), et 3 à 5 μm à partir de 4 000 m. Parallèlement à l'accroissement de leur taille, la morphologie des particules illitiques se modifie. Bien que les particules allongées forment l'essentiel des cristaux illitiques dans tous les puits étudiés, à partir de 4 000 m apparaissent des plateaux pseudo-hexagonaux (Fig. 9g), la proportion de ces plateaux isométriques augmentant avec la profondeur, de même que leur taille qui peut atteindre 3 à 5 μm vers 4 500 m (Fig. 9h).

Enfin, il faut noter que si la taille et la forme des cristaux évoluent avec la profondeur maximale d'enfouissement supposée dans tous les puits, par contre l'intensité de l'illitisa-

tion (abondance relative des minéraux illitiques) varie d'un puits à l'autre indépendamment du paramètre profondeur. Par exemple, les intensités relatives des pics représentatifs des minéraux illitiques et des kaolins sur les diagrammes de diffraction des rayons X (Fig. 5), et les observations au MEB, montrent que la dissolution des kaolins et l'illitisation sont intenses dans le puits 5, alors que ces deux phénomènes sont très peu développés dans le puits 4 en dépit d'une histoire d'enfouissement très comparable.

3.2.2. Diffraction des rayons X

Les diffractogrammes obtenus sur les préparations orientées de la fraction < 5 μm (Fig. 5) montrent clairement l'amélioration de la « cristallinité » de l'illite. Cette cristallinité est classiquement estimée par l'indice de cristallinité de KUBLER (1964, 1968), c'est-à-dire par la mesure de la largeur à mi-hauteur de la bande de diffraction située vers 10 Å

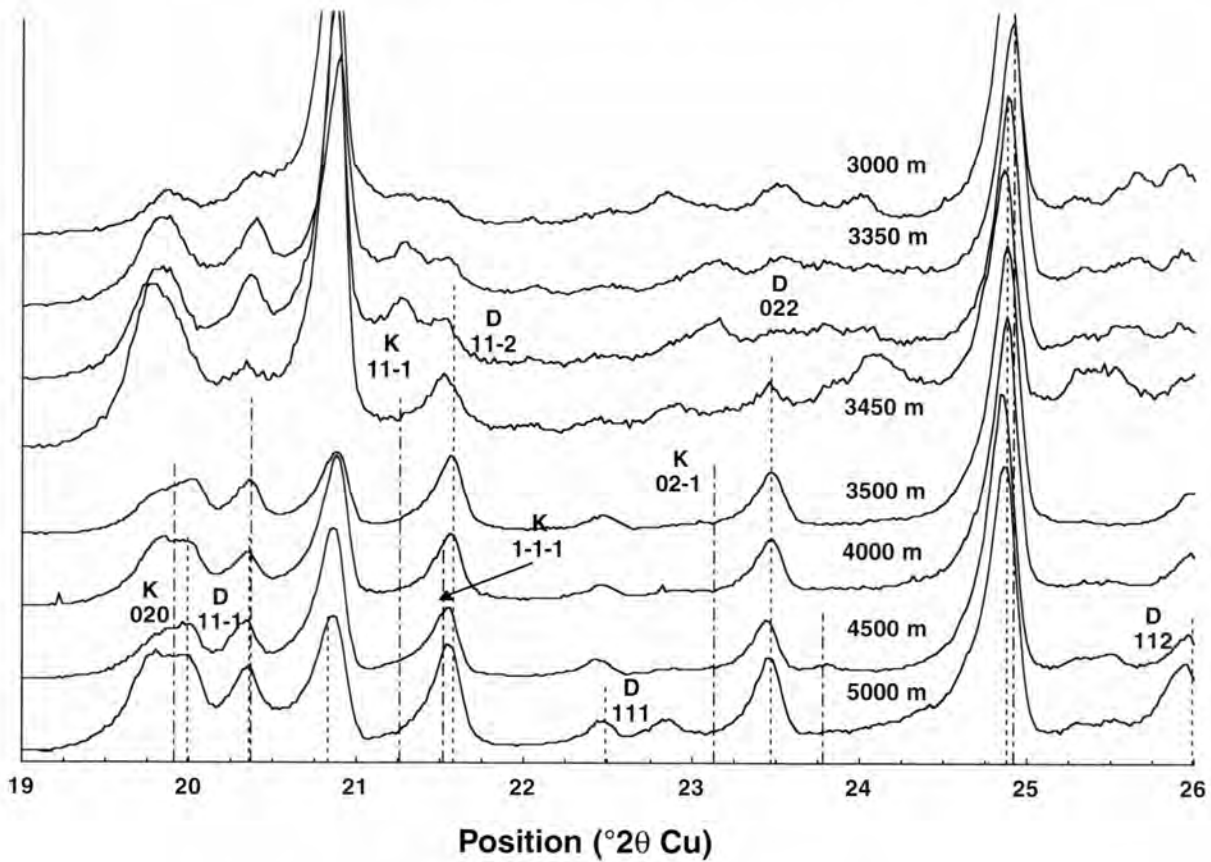


FIGURE 6

Évolution de la structure cristallographique tridimensionnelle des minéraux du groupe kaolin en fonction de la profondeur maximale d'enfouissement estimée (modifié d'après LANSON *et al.*, soumis). Les profondeurs portées sur la figure sont les profondeurs maximales d'enfouissement estimées. Intensités relatives et positions des raies caractéristiques de la kaolinite (K) et de la dickite (D) d'après BAILEY (1980). Pointillé régulier : dickite; pointillé irrégulier : kaolinite. Du haut vers le bas : fraction granulométrique 1-20 µm d'échantillons provenant des puits 1 (2 976 m), 2 (3 350 m, 3 358 m, 3 445 m, et 3 495 m), 3 (4 248 m), 4 (2 545 m) et 5 (2 968 m).

Evolution of the 3D crystallographic structure of kaolin-group minerals as a function of the estimated maximum burial depth (modified from LANSON *et al.*, submitted)

Depths shown on the figure are estimated maximum burial depths. d-values and relative intensities are from BAILEY (1980).

Regular dashed line : dickite, irregular dashed line : kaolinite.

From top to bottom : 1-20 µm fractions of samples from wells 1 (2 976 m), 2 (3 350 m, 3 358 m, 3 445 m, and 3 495 m), 3 (4 248 m), 4 (2 545 m) and 5 (2 968 m).

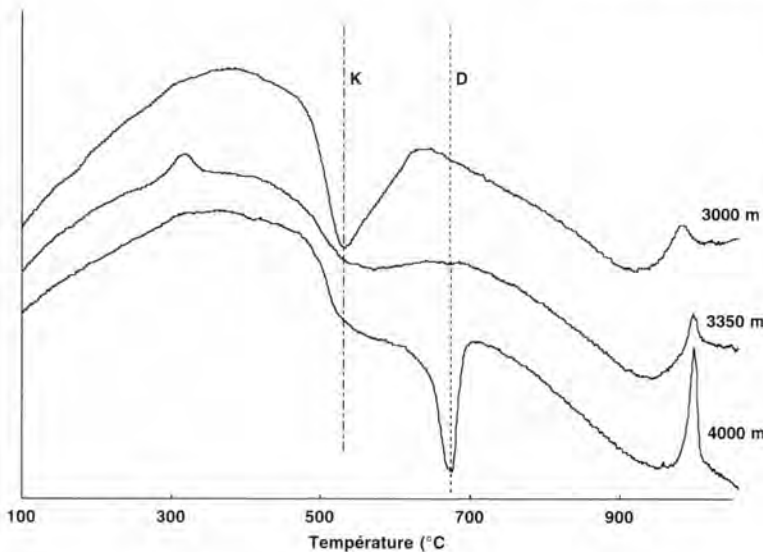


FIGURE 7

Evolution de la température de déshydroxylation en fonction de la profondeur maximale d'enfouissement estimée (modifié d'après LANSON *et al.*, soumis). Les profondeurs portées sur la figure sont les profondeurs maximales d'enfouissement estimées (K : kaolinite, D : dickite).

Du haut vers le bas : fraction granulométrique 0,5-1,0 µm de l'échantillon provenant du puits 1 (2 976 m), fraction granulométrique 1-20 µm de l'échantillon provenant des puits 2 (3 350 m) et 3 (4 285 m).

Evolution of the dehydroxylation temperature as a function of the estimated maximum burial depth (modified from LANSON *et al.*, submitted).

Depths shown on the figure are estimated maximum burial depths (K : kaolinite, D : dickite). From top to bottom : 0.5-1.0 µm fraction of the sample from well 1 (2 976 m), 1-20 µm fraction of samples from wells 2 (3 350 m) and 3 (4 285 m).

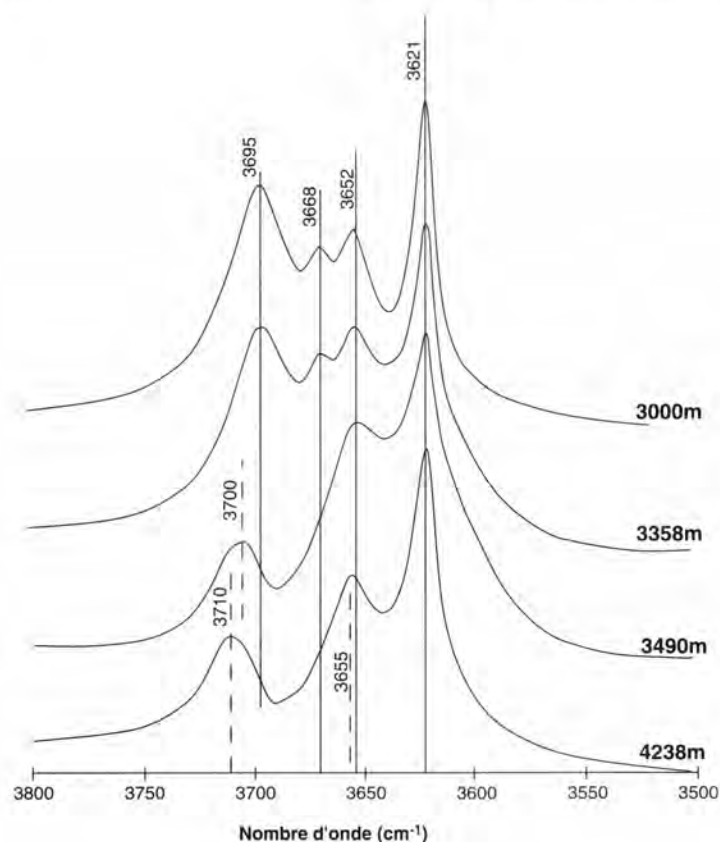


FIGURE 8

Evolution des spectres de vibration de valence des groupements hydroxyles en fonction de la profondeur maximale d'enfouissement estimée.

Les profondeurs portées sur la figure sont les profondeurs maximales d'enfouissement estimées.

Du haut vers le bas : fraction granulométrique 1-20 μm des échantillons provenant des puits 1 (2 976 m), 2 (3 358 m et 3 490 m) et 3 (4 238 m).

Evolution of the infrared reflectance spectra as a function of the estimated maximum burial depth. Depths shown on the figure are estimated maximum burial depths.

From top to bottom : 1-20 μm fraction of the sample from wells 1 (2 976 m), 2 (3 358 m and 3 490 m) and 3 (4 238 m).

(Fig. 10). LANSON & CHAMPION (1991), LANSON & VELDE (1992) et LANSON & BESSON (1992) ont montré que cette bande complexe pouvait être décomposée en ajustant sur le spectre expérimental des pics dits « élémentaires », permettant ainsi de décrire beaucoup plus précisément la population de particules illitiques génératrice de ce signal. Ces auteurs ont montré de ce fait qu'il était possible de distinguer deux à trois modes principaux (Fig. 11) : un mode I-S, un mode illite mal cristallisée (PCI) et un mode illite bien cristallisée

(WCI) (LANSON & MEUNIER, 1995). Il est alors possible de distinguer les contributions respectives de ces trois modes dont les évolutions concourent toutes à l'amélioration de la « cristallinité » apparente des minéraux illitiques. Les modifications affectant ces divers modes résultent toutes d'un processus global de croissance préférentielle du pôle illite par rapport aux interstratifiés illite-smectite lorsque les conditions de température augmentent. Ce processus engendre d'une part une diminution de l'intensité relative

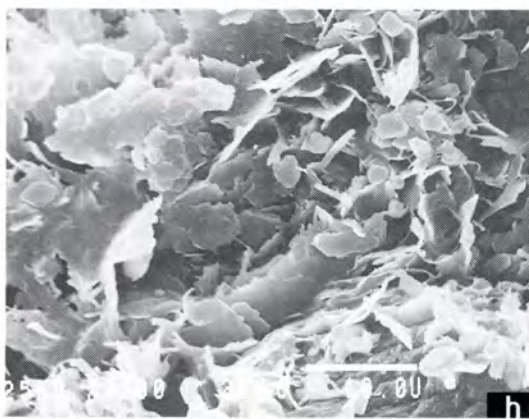
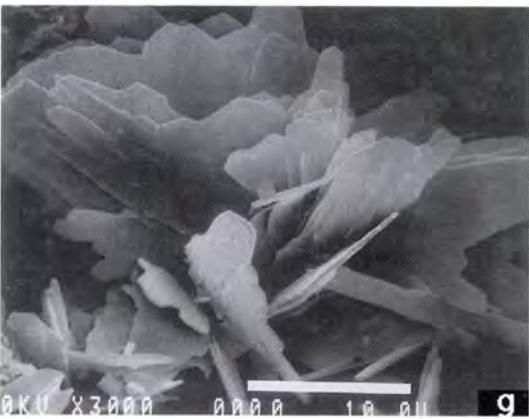
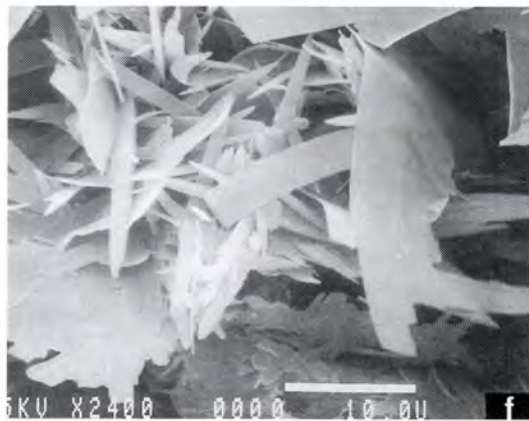
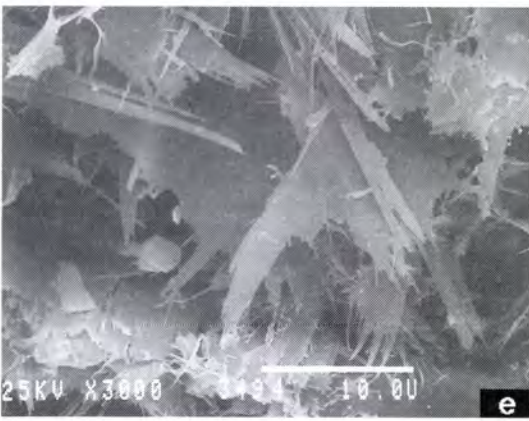
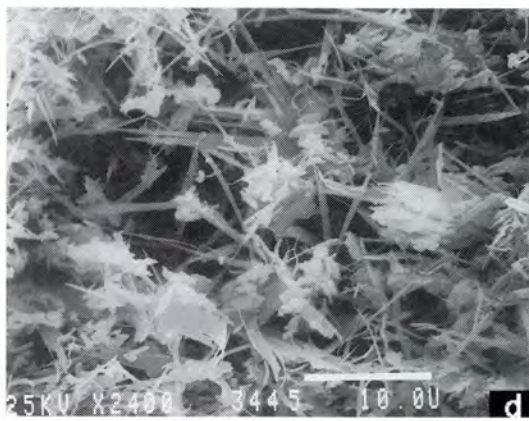
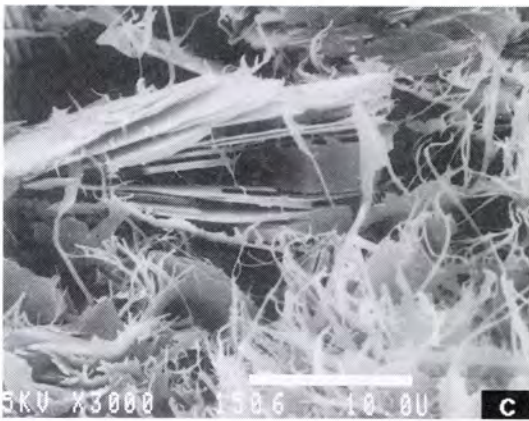
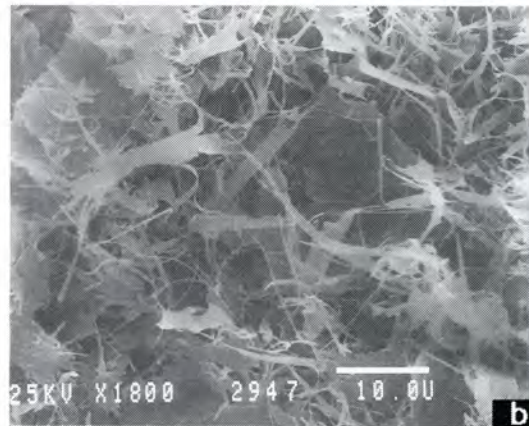
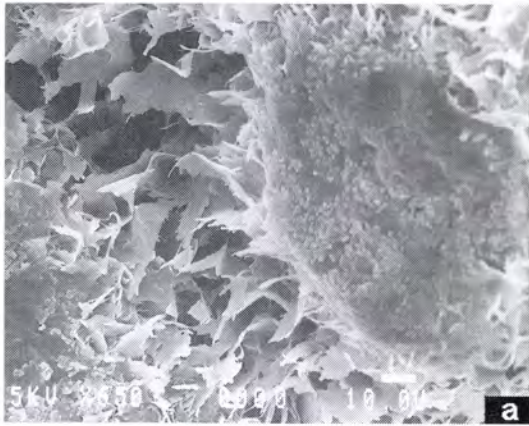
FIGURE 9

Morphologie des minéraux illitiques dans le réservoir gréseux rotliégende, Broad Fourteens Basin (d'après LANSON *et al.*, soumis).

- a) Échantillon du puits 3 (4 341 m) : développement d'une pellicule de minéraux illitiques sur un grain de quartz; cette pellicule présente un niveau interne compact et un niveau externe composé de particules en forme de lattes se développant radialement dans la porosité.
 — b) Échantillon du puits 6 (2 947 m) : filaments illitiques très allongés se développant radialement dans la porosité (« pore bridging »).
 — c) Échantillon du puits 2 (3 321 m) : cristaux illitiques unidimensionnels très allongés se développant au détriment de la kaolinite.
 — d) Échantillon du puits 2 (3 445 m) : particules illitiques en forme de lattes allongées. — e) Échantillon du puits 2 (3 494 m) : particules illitiques en forme de lattes allongées. — f) Échantillon du puits 6 (2 893 m) : particules illitiques en forme de lattes allongées; on remarque l'aspect beaucoup plus rigide de ces lattes ainsi que l'augmentation de leur largeur qui peut atteindre 2 μm .
 — g) Échantillon du puits 3 (4 238 m) : cristaux illitiques isométriques pseudo-hexagonaux. — h) Échantillon du puits 4 (2 546 m) : cristaux illitiques isométriques pseudo-hexagonaux (diamètre maximum de l'ordre de 5 μm).

Morphology of illitic minerals in the Rotliégende sandstone reservoir, Broad Fourteens Basin (from LANSON *et al.*, submitted).

- a) Sample from well 3 (4 341 m) : two-layered coating of illitic minerals growing on a quartz grain and showing a compact inner layer and an outer layer composed of laths growing radially into the pores and filling intergranular voids. — b) Sample from well 6 (2 947 m) : very elongated filamentous illitic crystals growing radially into the pores (pore bridging). — c) Sample from well 2 (3 321 m) : very elongated mono-dimensional illitic crystals growing at the expense of kaolinite. — d) Sample from well 2 (3 445 m) : lath-shaped particles of illitic minerals. — e) Sample from well 2 (3 494 m) : lath-shaped illitic crystals. — f) Sample from well 6 (2 893 m) : illitic minerals exhibit a more rigid lath morphology; the width of the lath-shaped crystals reaches up to 2 μm . — g) Sample from well 3 (4 238 m) : isometric pseudo-hexagonal crystals of illitic minerals. — h) Sample from well 4 (2 546 m) : isometric pseudo-hexagonal crystals of illitic minerals with a diameter of 3 to 5 μm .



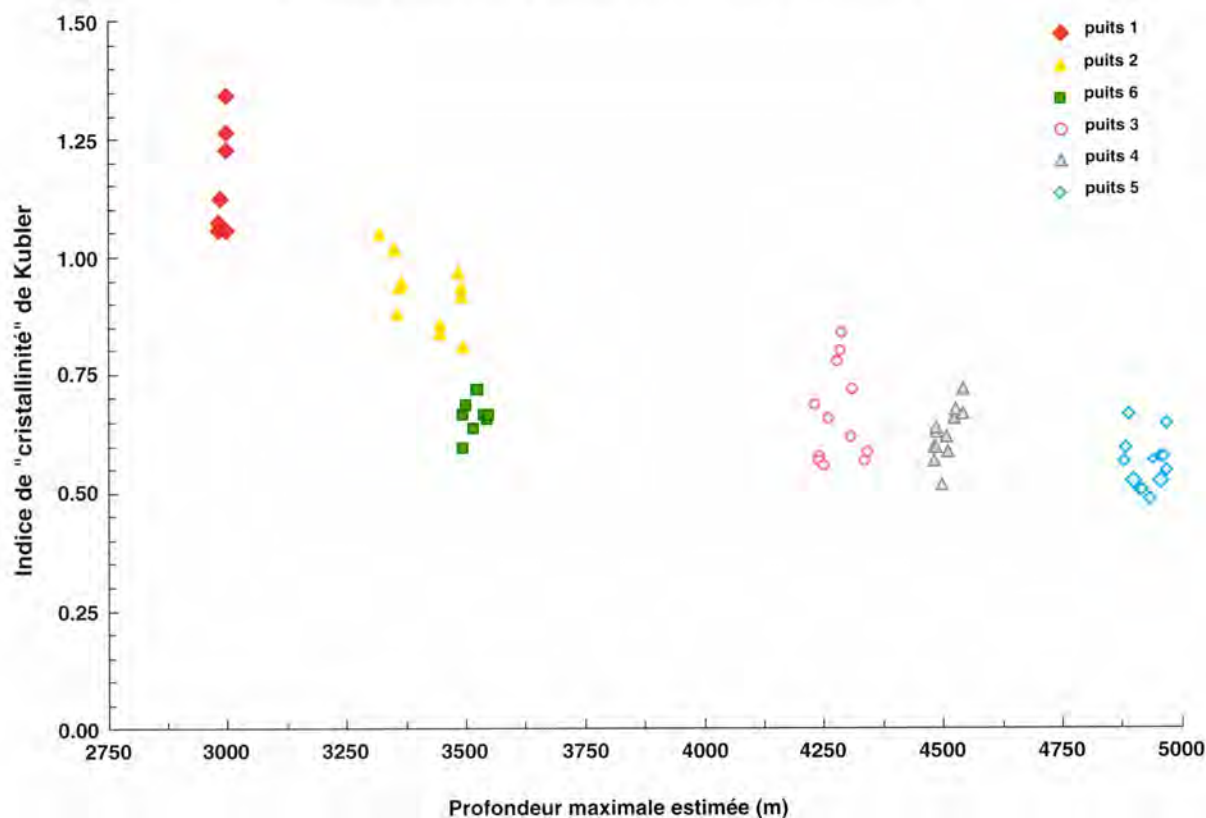


FIGURE 10

Évolution de la "crystallinité" de l'illite, mesurée par l'index de KUBLER (1964, 1968), en fonction de la profondeur maximale d'enfouissement estimée.

Evolution of illite "crystallinity" measured by the KUBLER (1964, 1968) index as a function of the estimated maximum burial depth.

du pic associé au mode I-S (Fig. 12), et d'autre part un déplacement de ce pic de diffraction (Fig. 13), qui traduisent respectivement l'augmentation de la proportion relative du pôle illite et l'augmentation de la teneur en illite des I-S. À l'exception des échantillons les plus superficiels (puits 1 – 2 976 m) dans lesquels elle a pu être séparée par tri magnétique (RIGHI & JADAULT, 1988), la phase micacée bien cristallisée (WCI) a été identifiée comme authigène. Il a donc été possible de définir un critère de cristallinité vraie de l'illite, c'est-à-dire un critère prenant en compte uniquement le pôle illite proprement dit (PCI et WCI) et traduisant l'augmentation effective de la taille moyenne du domaine cohérent de diffraction de cette phase (Fig. 14). Dans cette optique, le critère défini prend en compte dans un premier temps la proportion de cristaux illitiques présentant de faibles tailles de domaine cohérent (PCI). Cette proportion est caractérisée par l'intensité relative du pic PCI. Dans un deuxième temps, la taille de domaine cohérent de ces cristaux est quantifiée par son influence d'une part sur la largeur (FWHM) et d'autre part sur la position de la raie de diffraction associée. Une faible taille de domaine cohérent engendre en effet un élargissement des raies de diffraction ainsi qu'un déplacement vers les petits angles en raison du caractère fortement décroissant du facteur de structure de l'illite dans cette zone angulaire. Il faut noter que les tailles

plus importantes de domaine cohérent ne peuvent être estimées aisément ni à partir de la largeur des raies de diffraction, l'influence instrumentale ne pouvant dans ce cas être négligée, ni à partir de leur position qui sert de référence dans ce domaine angulaire. L'évolution régulière de ce paramètre de cristallinité, comme celle des deux paramètres précédents (proportions relatives et composition minéralogique des I-S), est corrélée positivement avec la profondeur maximale d'enfouissement supposée atteinte par les grès du réservoir rotliegende.

Parallèlement à cette évolution des séquences d'empilement de feuillets illite et smectite selon l'axe c^* (épaisseur des séquences d'empilement et proportions relatives des deux types de feuillets constituant l'empilement), la structure cristallographique tridimensionnelle évolue également en fonction de la profondeur maximale d'enfouissement supposée (Fig. 15). Si le polytype de ces minéraux illitiques est identique (1M) dans tous les échantillons étudiés (le polytype 2M₁ n'est pas observé dans nos échantillons même les plus profonds), il n'en est pas de même pour la localisation de la lacune octaédrique de ces minéraux dioctaédriques [deux des trois sites de la couche octaédrique sont occupés (DRITS & TCHOUBAR, 1990; REYNOLDS, 1993; LANSON, 1994)]. Initialement située majoritairement dans les sites octaédriques trans pour les échantillons les plus superficiels

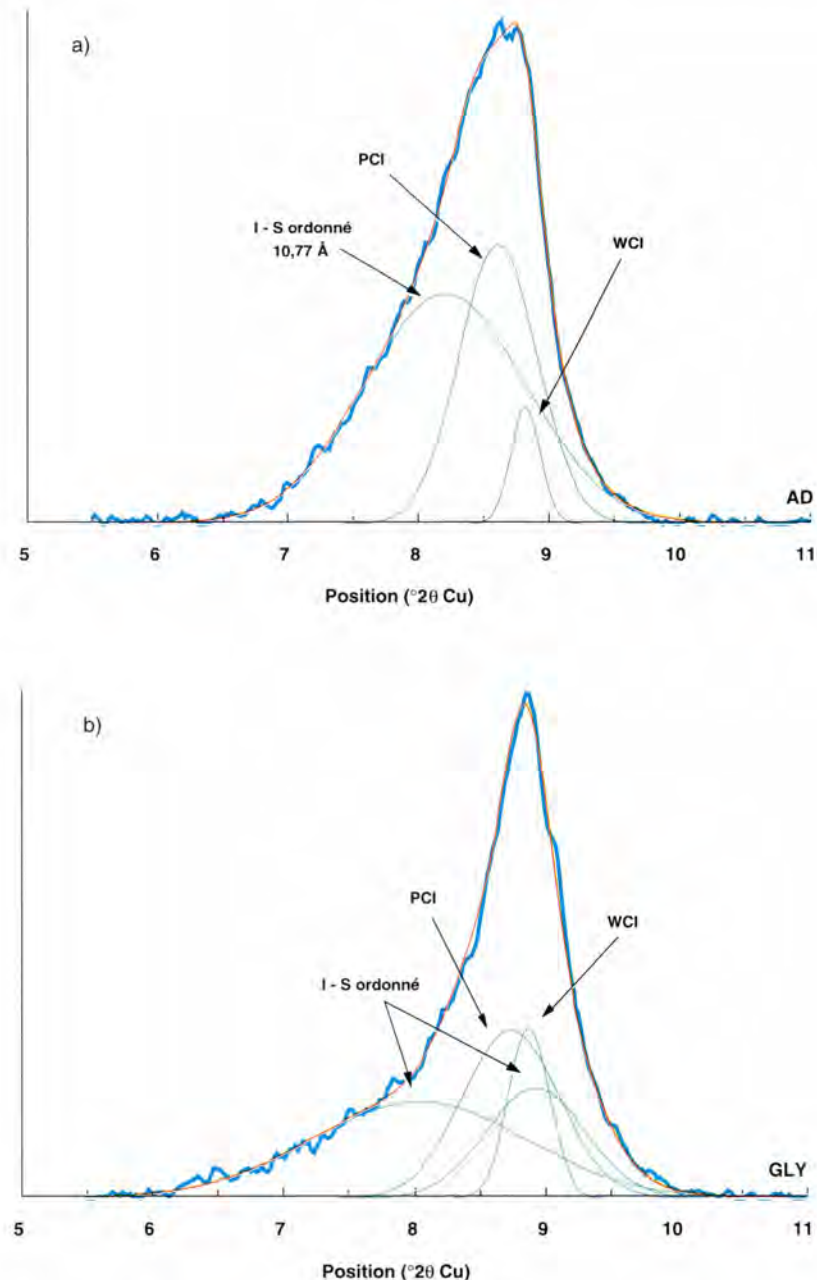


FIGURE 11

Exemple de décomposition des diffractogrammes d'un échantillon du puits 2 (3321 m) (modifié d'après LANSON *et al.*, soumis)
 a) Préparation séchée à l'air (AD). — b) Préparation saturée de glycérol (GLY).

En accord avec LANSON & BESSON (1992), chaque sous-population représentée par un pic élémentaire lors de la décomposition du diffractogramme AD doit également être représentée par un pic élémentaire lors du traitement du diffractogramme GLY. De plus, si la population associée à ce pic élémentaire est composée de cristaux I-S, un pic élémentaire supplémentaire doit être ajouté puisque les phases interstratifiées I-S sont caractérisées par un doublet dans cette zone angulaire (un pic de part et d'autre de 10.0 Å).

*Decomposition of profiles from a sample taken from well 2 (3321 m) (modified from LANSON *et al.*, submitted).*

a) air-dried profiles. — b) glycerol-solvated profiles (GLY).

As stated by LANSON & BESSON (1992), for the decomposition of the GLY profile there should be an elementary peak associated to any elementary peak fitted on the AD profile. Furthermore, if this elementary peak is associated with an expandable I-S phase, an additional peak should be introduced because a doublet is associated with glycerol-solvated I-S mixed-layer phases in this angular range (one peak on each side of 10.0 Å).

(polytype 1Mt), cette lacune est ensuite préférentiellement localisée dans les sites octaédriques cis (polytype 1Mc). Sur les diffractogrammes de rayons X obtenus sur des préparations non-orientées des diverses fractions granulométriques, l'évolution des intensités relatives des pics -112 et 112 de ces deux polytypes (1Mt et 1Mc) indique en effet que ces minéraux essentiellement trans vacants pour les échantillons les plus superficiels deviennent majoritairement cis vacants pour les échantillons les plus profonds. Cette évolution est confirmée par l'augmentation, avec la profondeur d'enfouissement présumée, de l'intensité des pics 111 ou -113, par exemple, du polytype 1Mc. Cette modification du polytype est sensible même pour de faibles différences

de profondeur et peut être observée, par exemple, entre le haut et le bas du réservoir rotligende du puits 2 (Fig. 15).

4. — DISCUSSION ET CONCLUSION

4.1. SCHÉMA GÉNÉRAL DE LA TRANSFORMATION DIAGÉNETIQUE DES MINÉRAUX ARGILEUX

Malgré la variabilité des paléoconditions d'enfouissement supposé et de température, l'enchaînement des épisodes de cristallisation et de croissance des minéraux argileux reste assez homogène dans tous les réservoirs gréseux rot-

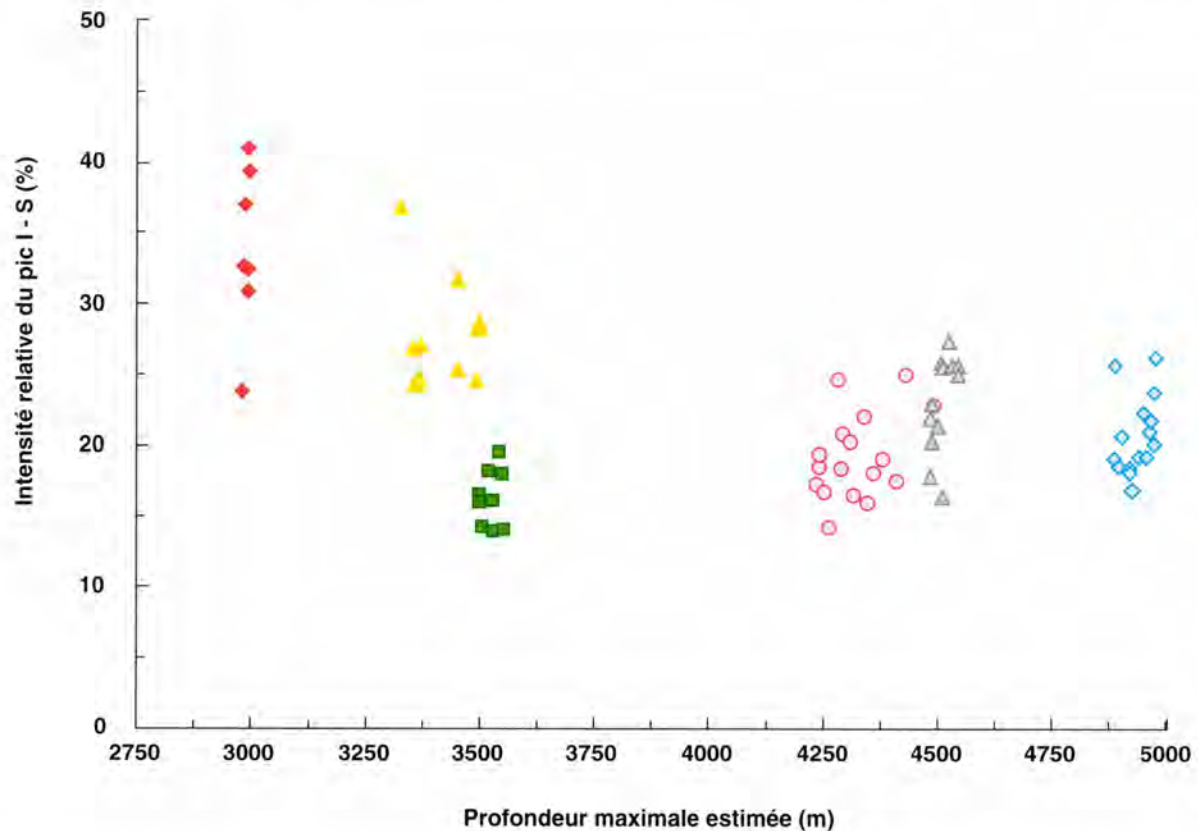


FIGURE 12

Évolution de l'intensité relative du pic attribué aux interstratifiés illite-smectite ordonnés, c'est-à-dire de $(\text{Int. I-S})/(\text{Int. PCI} + \text{Int. WCI} + \text{Int. I-S})$, en fonction de la profondeur maximale d'enfouissement estimée (modifié d'après LANSON *et al.*, soumis) (pour les figurés : voir Fig. 10).

*Evolution of the relative intensity of the ordinate I-S peak (see text for details) as a function of the estimated maximum burial depth (modified from LANSON *et al.*, submitted) (see Fig. 10 for patterns).*

liégende du Slochteren inférieur situés dans le sud de la mer du Nord. Dans le Broad Fourteens Basin, cette séquence diagénétique peut être résumée ainsi (Fig. 16) :

- depuis la sédimentation jusqu'à l'orogénèse cimmérienne, cristallisation de kaolinite induite par les fluides acides provenant des roches mères sous-jacentes (Coal Measures, Westphalien B), suivie d'une évolution progressive kaolinite-dickite;
- au moment de l'orogénèse cimmérienne, illitisation brutale de l'ensemble des minéraux du groupe kaolin induite par une augmentation de la température et la présence de nombreuses failles qui ont permis d'importantes circulations de fluides.

4.2. IMPLICATIONS SUR LES CIRCULATIONS DE FLUIDES

Les épisodes successifs de cristallisation et de croissance des minéraux illitiques et du groupe kaolin reflètent les interactions entre les minéraux constitutifs des grès rotliégende et des fluides « extérieurs » possédant des origines et des caractéristiques physico-chimiques contrastées :

- fluides acides, vraisemblablement expulsés des Coal Measures sous-jacents, pour la dissolution des feldspaths

potassiques, la cristallisation de la kaolinite, et l'évolution postérieure kaolinite-dickite;

- saumures enrichies en potassium, provenant vraisemblablement des formations salifères sus-jacentes du Zechstein, pour l'illitisation massive des minéraux du groupe kaolin.

Les paragenèses argileuses, ainsi que les séquences de cristallisation de ces minéraux observées dans les différents réservoirs de mer du Nord sont en accord avec la présente étude du BFB. D'une part, l'enfouissement diagénétique antérieur à la surrection cimmérienne du réservoir est enregistré par l'avancement de la conversion kaolinite-dickite, qui est postérieure à la cristallisation de la kaolinite aux dépens des feldspaths potassiques; d'autre part, comme dans beaucoup d'autres réservoirs de mer du Nord, l'illitisation des minéraux du groupe kaolin n'est pas corrélée avec les paléoenfouissements présumés. Cette illitisation se produit généralement lors de périodes tectoniques actives, caractérisées par une augmentation momentanée de la température, une fracturation intense et la circulation de fluides. Cet épisode d'illitisation peut donc être considéré comme un épisode de type hydrothermal, les caractéristiques cristallochimiques des minéraux illitiques étant alors représentatives des conditions de température régnant au moment de cet épisode.

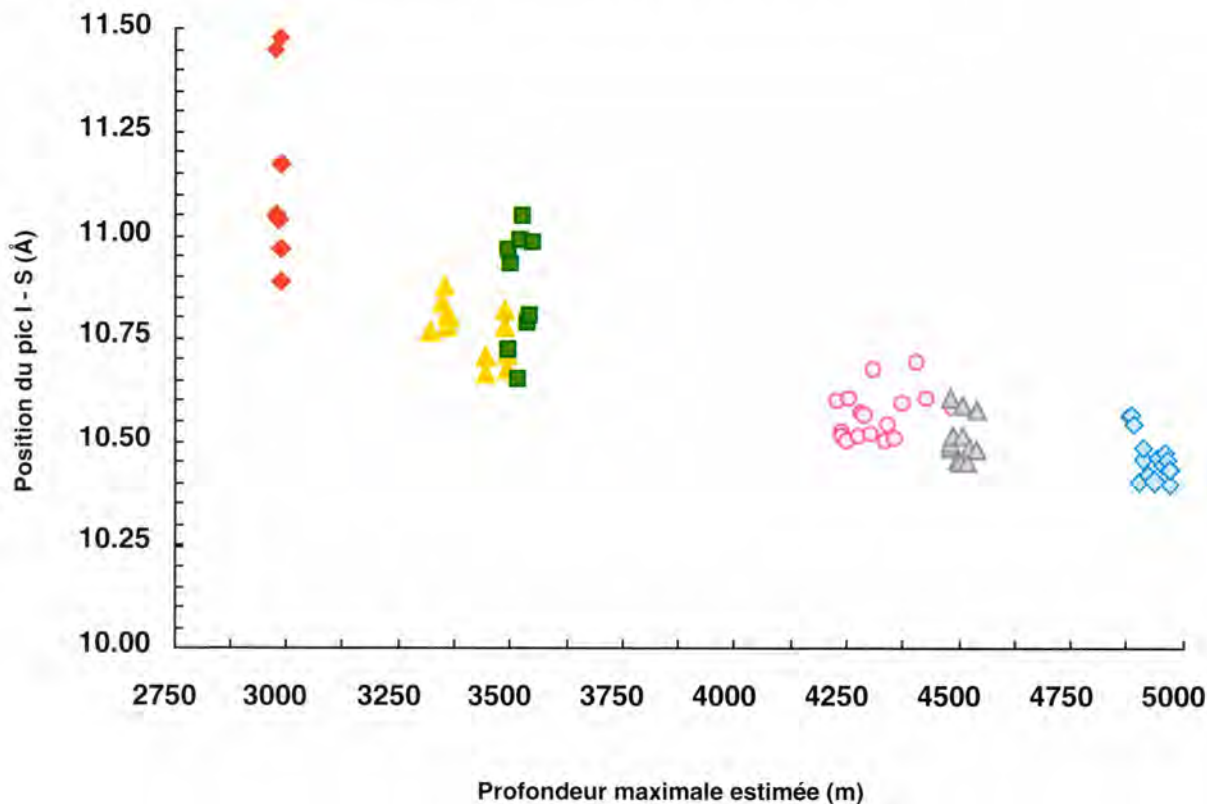


FIGURE 13

Évolution de la position, obtenue par décomposition des diffractogrammes expérimentaux, du pic attribué aux interstratifiés illite-smectite ordonnés en fonction de la profondeur maximale d'enfouissement estimée (modifié d'après LANSON *et al.*, soumis) (pour les figurés : voir Fig. 10).

*Evolution of the ordered I-S peak position, obtained from peak decomposition, as a function of the estimated maximum burial depth (modified from LANSON *et al.*, submitted) (see Fig. 10 for patterns).*

4.3. TRANSFORMATION DIAGÉNÉTIQUE DES MINÉRAUX DU GROUPE KAOLIN

En réponse aux conditions diagénétiques croissantes, la morphologie des minéraux du groupe kaolin évolue progressivement depuis des accordéons vers des cristaux isométriques individualisés. Cette transformation est à mettre en relation avec la modification de leur structure cristallographique tridimensionnelle, bien que les évolutions morphologiques et structurales ne soient pas strictement concomitantes. Ces modifications de morphologie et de structure ont été observées initialement dans les bassins charbonniers de l'ancienne Union Soviétique (KOSOVSKAYA & SHUTOV, 1963; SHUTOV *et al.*, 1970), puis, plus récemment dans de nombreux réservoirs de mer du Nord. EHRENBORG *et al.* (1993) ont décrit de telles transitions kaolinite-dickite dans plusieurs réservoirs de la plate-forme norvégienne, dont les âges varient entre le Trias supérieur et le Jurassique moyen. La coexistence de kaolinite et de dickite a également été observée dans le réservoir rotliedende situé en Allemagne du Nord (GAUPP *et al.*, 1993; PLATT, 1993) ou dans le réservoir Brent du champ de Hutton, situé dans la zone nord de la mer du Nord (McAULAY *et al.*, 1993). Malgré l'abondance des cas observés, le caractère progressif de

cette transition kaolinite-dickite, et donc la possibilité d'utiliser l'avancement de cette réaction pour préciser les estimations des paléoconditions d'enfouissement et de température, n'avait pas encore été montré de façon indiscutable.

Les observations réalisées sur nos échantillons montrent que la transition kaolinite-dickite est une conversion progressive induite par un processus global de minimisation de l'énergie libre du cristal. L'amélioration initiale de la cristallinité de la kaolinite, résultant de l'élimination des défauts structuraux, est suivie par la conversion kaolinite-dickite proprement dite, qui s'effectue sans changement radical de la forme des cristaux. Cette absence d'évolution morphologique suggère, en accord avec les observations de RUIZ CRUZ & MORENO REAL (1993), une première transformation à l'état solide par l'intermédiaire de structures hybrides (interstratifiées ?) entre kaolinite et dickite. Enfin, la dickite pseudomorphosant les accordéons de kaolinite recristallise tardivement. Cette transformation, très similaire au mûrissement des cristaux (dissolution-recristallisation), n'intervient que lorsque la dickite représente l'essentiel des minéraux du groupe kaolin, au moins l'essentiel de ceux qui n'ont pas été altérés lors de l'illitisation. Dans le réservoir rotliedende du BFB, l'avancement de cette transformation kaolinite-dickite est fonction de l'historique supposé d'en-

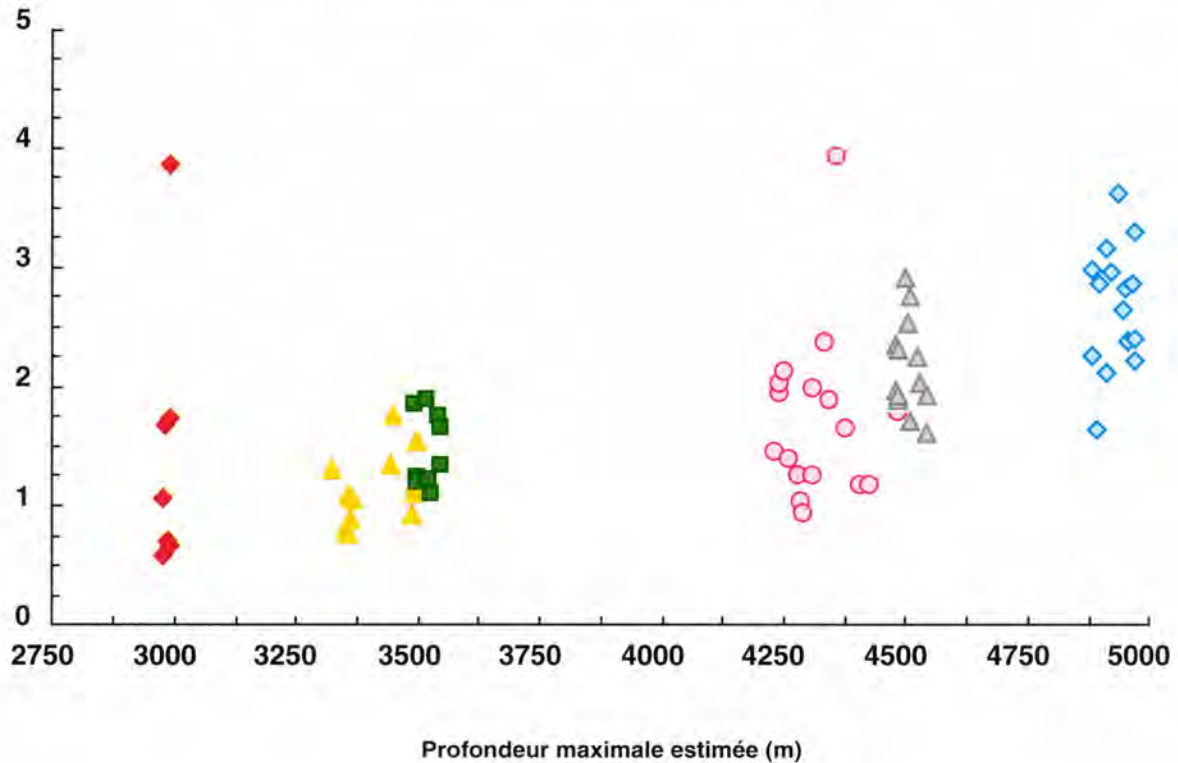


FIGURE 14

Évolution de la cristallinité de l'illite en fonction de la profondeur maximale d'enfouissement estimée (modifié d'après LANSON *et al.*, soumis).

Cristallinité = $0,1 / (\text{Int. rel. PCI}) / (\text{FWHM pic PCI}) / (\text{Pos. pic PCI} - \text{Pos. pic WCI})$; l'intensité relative du pic PCI, c'est-à-dire $\text{Int. PCI} / (\text{Int. PCI} + \text{Int. WCI} + \text{Int. I-S})$, est exprimée en %; les positions des pics sont calculées en Å, la largeur à mi-hauteur (FWHM) du pic PCI est exprimée en $^{\circ}2\theta$ Cu K α ; la différenciation entre les sous-populations PCI, WCI et I-S est uniquement destinée à permettre une description simplifiée de la population de cristaux illitiques mais n'implique pas l'existence réelle de deux populations distinctes de cristaux illitiques (pour les figurés : voir Fig. 10).

*Evolution of illite crystallinity (see text for details) as a function of the estimated maximum burial depth (modified from LANSON *et al.*, submitted).*

Crystallinity = $0,1 / \text{PCI peak rel. int.} / \text{PCI peak FWHM} / (\text{PCI peak pos.} - \text{WCI peak pos.})$; relative intensity of PCI peak, that is $\text{PCI int.} / (\text{PCI int.} + \text{WCI int.} + \text{I-S int.})$, is expressed in %, peak positions are expressed in Å, whereas peak width at half maximum intensity (FWHM) is expressed in $^{\circ}2\theta$ Cu K α ; the differentiation between PCI, WCI and I-S is simply a convenient way to describe the illite population but does not imply the actual existence of two populations of illite particles (see Fig. 10 for patterns).

fouissement et de température subi par les sédiments entre leur dépôt et la phase tectonique cimmérienne; il peut être suivi en diffraction des rayons X mais également en analyse thermique différentielle, ou en spectroscopie infrarouge.

4.4. STRUCTURE DES MINÉRAUX ILLITIQUES EN FONCTION DE LA TEMPÉRATURE

Dans le Broad Fourteens Basin, toutes les caractéristiques structurales des minéraux illitiques, c'est-à-dire la teneur en illite des I-S, les proportions relatives d'I-S et d'illite, la cristallinité de l'illite et la localisation des lacunes octaédriques, sont corrélées positivement avec les conditions de température estimées dans le réservoir rotligende au moment de l'orogénèse cimmérienne. L'intérêt de la décomposition des diffractogrammes de rayons X pour décrire les stades terminaux de la transformation smectite-illite est indéniable (LANSON & BESSON, 1992; LANSON & VELDE,

1992). Cette méthode permet en effet de caractériser, précisément et sur un grand nombre d'échantillons, les modifications de chacun des modes I-S, PCI et WCI coexistant dans les échantillons naturels. Il est ainsi possible de suivre, avec l'augmentation de la température, la diminution de la proportion relative des I-S, leur enrichissement en illite et l'amélioration de la cristallinité de l'illite. L'ensemble de ces paramètres est classiquement figuré par un indice de « cristallinité ».

Parallèlement à ces modifications des empilements de feuillets observés selon l'axe c^* (diffraction des rayons X sur poudres orientées) il a également été possible de mettre en évidence une modification de la structure cristallographique tridimensionnelle des minéraux illitiques. Cette modification, affectant la répartition des lacunes dans la couche octaédrique, n'avait préalablement été décrite que dans un contexte hydrothermal, et n'avait pas été caractérisée dans la diagenèse. L'intérêt d'une telle évolution réside essentiellement dans ses implications potentielles sur la forme des particules illitiques (une structure = une morphologie ?).

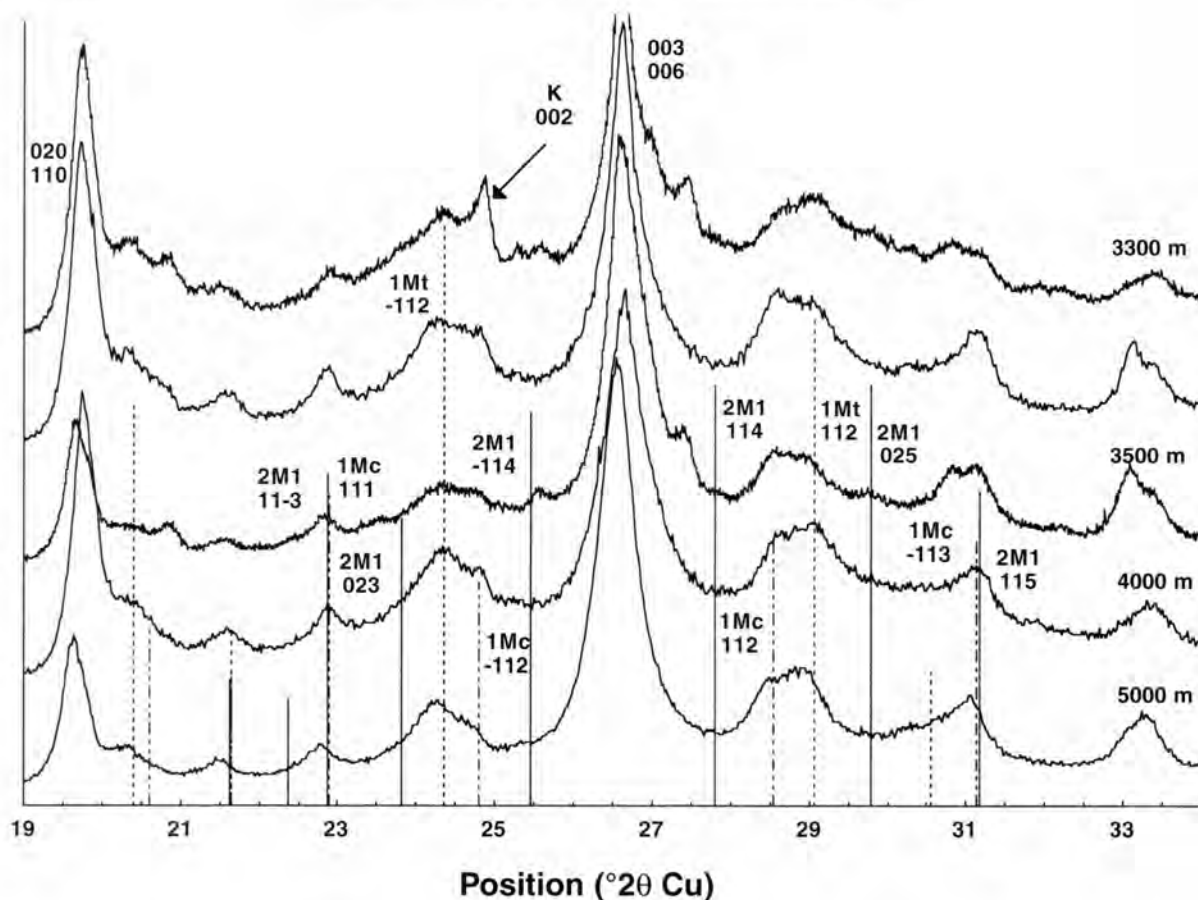


FIGURE 15

Évolution de la structure cristallographique tridimensionnelle des minéraux illitiques en fonction de la profondeur maximale d'enfouissement estimée (modifié d'après LANSON *et al.*, soumis).

Les profondeurs portées sur la figure sont les profondeurs maximales d'enfouissement estimées; les intensités relatives et les positions des raies caractéristiques des différents polytypes ont été calculées par DRITS *et al.* (1993).

Du haut vers le bas : fractions granulométriques $< 0,2 \mu\text{m}$ d'échantillons provenant des puits 2 (3 350 m et 3 495 m), 6 (2 893 m), 3 (4 285 m), et 5 (2 968 m).

*Evolution of the 3D crystallographic structure of illitic minerals as a function of the estimated maximum burial depth (modified from LANSON *et al.*, submitted).*

*Depths shown on the figure are estimated maximum burial depths; d-values and relative intensities for the various polytypes have been calculated by DRITS *et al.* (1993).*

From top to bottom : $< 0,2 \mu\text{m}$ fractions of samples from wells 2 (3 350 m and 3 495 m), 6 (2 893 m), 3 (4 285 m), and 5 (2 968 m).

Enfin, il faut noter que les caractéristiques structurales des minéraux illitiques ne traduisent pas l'avancement d'une réaction smectite-illite, qui n'est pas observée dans le réservoir étudié, mais les conditions de température lors de l'illitisation hydrothermale des kaolins ($\sim 155 \text{ Ma}$).

4.5. CONCLUSION : PERSPECTIVES POUR LA CARACTÉRISATION DES MODIFICATIONS DE LA STRUCTURE CRYSTALLOCHIMIQUE DES MINÉRAUX ARGILEUX

Le caractère très commun des modifications morphologiques des minéraux du groupe kaolin, qu'elles aient été associées ou non à leurs modifications structurales, conforte l'intérêt croissant pour une caractérisation fine de la structure cristallographique tridimensionnelle des minéraux argileux. En effet l'évolution, décrite pour la première fois dans

un contexte diagénétique pour les minéraux illitiques, n'est vraisemblablement pas un cas isolé.

Pour les minéraux illitiques, cette caractérisation peut être réalisée par diffraction des rayons X; la modification de la localisation des lacunes au sein de la couche octaédrique engendrant en effet des modifications sensibles de la position et des intensités relatives des raies hkl . De plus, le traitement numérique (décomposition) des diffractogrammes expérimentaux permet d'obtenir rapidement des paramètres permettant de suivre les évolutions de la structure cristallographique monodimensionnelle de ces minéraux.

En revanche, la description des évolutions structurales des minéraux du groupe kaolin en diffraction des rayons X est encore très imparfaite, notamment en raison de la méconnaissance des structures intermédiaires entre kaolinite et dickite. Le couplage des techniques d'analyse thermique différentielle et de spectroscopie infrarouge doit permettre une caractérisation fine de ces structures.

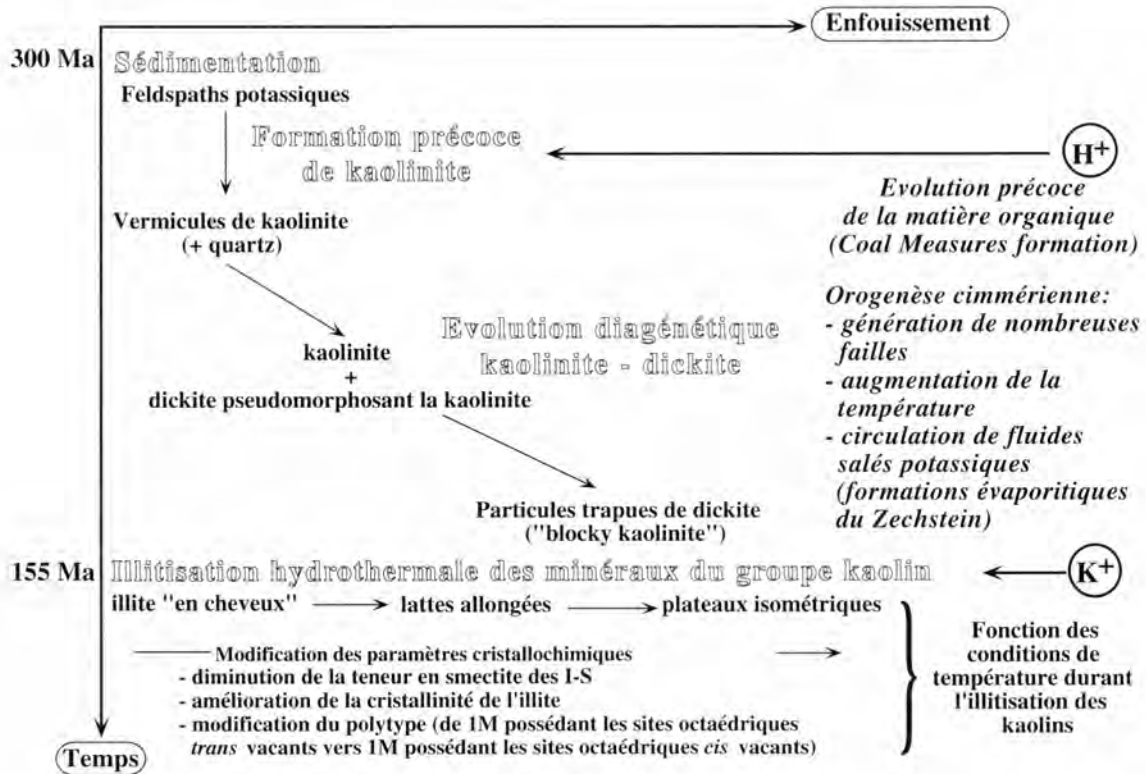


FIGURE 16

Schéma synthétique de la diagenèse des minéraux argileux au cours de l'enfouissement du réservoir gréseux rotliegende (Slochteren inférieur; Broad Fourteens Basin, sud de la mer du Nord) (modifié d'après LANSON *et al.*, soumis). Les facteurs contrôlant les réactions des minéraux argileux, ainsi que l'origine des fluides, sont indiqués en italique; les évolutions de la morphologie et de la structure cristallochimique des minéraux argileux en fonction de la profondeur maximale d'enfouissement estimée sont décrites en petits caractères.

*Schematic diagram of the reactions affecting clay minerals during burial diagenesis of the Rotliegende sandstone reservoir (Lower Slochteren; Broad Fourteens Basin, Southern North Sea) (modified from LANSON *et al.*, submitted).*

The factors controlling the clay mineral reactions, as well as the origin of the fluids, are indicated in italics; the morphological and crystallochemical evolutions of clay minerals as a function of the maximum burial depth are detailed in smaller characters.

Enfin, la grande taille des minéraux argileux présents dans des environnements possédant une porosité importante, au moins initialement, comme c'est le cas dans les réservoirs gréseux, rend indispensable l'étude non seulement des fractions granulométriques fines mais également des fractions plus grossières (jusqu'à 50 μm environ) pour obtenir une vision complète de la nature des différentes populations de minéraux argileux authigènes (TOWE, 1974).

Remerciements

L'aide très précieuse de Victor DRITS nous a permis d'interpréter correctement ses données présentées initialement au 30^e Meeting annuel de la Clay Mineral Society organisé à San Diego, Californie.

Les auteurs remercient également Elf Petroland, Conoco, Arco, Wintershall et Nam pour l'autorisation de publier cet article, de même que Bruce VELDE, Alain MEUNIER et Steve HILLIER pour leurs corrections et commentaires sur des versions préliminaires du manuscrit ainsi que Valérie MAITAN qui a mis en forme toutes les figures. Howard MAY a fourni les échantillons de kaolinite et de dickite utilisés comme réfé-

rence pour l'analyse thermique différentielle. Les moyens techniques du Centre des Métiers Pétroliers d'Elf Aquitaine Production nous ont permis d'acquérir l'essentiel des données présentées dans cet article.

5. — RÉFÉRENCES

- BAILEY, S.W. (1980). — Structures of layer silicates. — *In*: BRINDLEY, G.W. & BROWN, G. (eds.): Crystal structures of clay minerals and their X-ray identification. — *Mineral. Soc. London*, 5, 1-123.
- BERGER, G., LACHARPAGNE, J.-C., VELDE, B., BEAUFORT, D. & LANSON, B. (soumis). — Kinetic constraints for mineral reactions in sandstone/shale sequences and modelling of the effect of organic diagenesis. — *J. Sediment. Res.*
- BJØRLYKKE, K. & AAGAARD, P. (1992). — Clay minerals in North Sea sandstones. — *In*: HOUSEKNECHT, D.W. & PITTMAN, E.D. (eds.): Origin, Diagenesis, and Petrophysics of Clay Minerals in Sandstones. — *Spec. Publ. Soc. econ. Paleont. Mineral.*, 47, 65-80.

- BOOKIN, A.S., DRITS, V.A., PLANÇON, A. & TCHOUBAR, C. (1989). — Stacking faults in kaolin-group minerals in the light of real structural features. — *Clays and Clay Miner.*, **37**, 297-307.
- BRINDLEY, G.W., KAO, C.C., HARRISON, J.L., LIPSICAS, M. & RAYTHATHA, R. (1986). — Relation between structural disorder and other characteristics of kaolinites and dickites. — *Clays and Clay Miner.*, **34**, 239-249.
- BURLEY, S.D. (1984). — Patterns of diagenesis in the Sherwood sandstone group (Triassic), United Kingdom. — *Clay Miner.*, **19**, 403-440.
- BURLEY, S.D. & FLISCH, M. (1989). — K-Ar geochronology and the timing of detrital I/S clay illitization and authigenic illite precipitation in the Piper and Tartan fields, Outer Moray Firth, UK North Sea. — *Clay Miner.*, **24**, 285-315.
- BURST, J.F. (1969). — Diagenesis of Gulf Coast clayey sediments and its possible relation to petroleum migration. — *Bull. amer. Assoc. Petroleum Geol.*, **53**, 73-93.
- DRITS, V.A. & TCHOUBAR, C. (1990). — X-ray diffraction by disordered lamellar structures: Theory and application to microdivided silicates and carbons. — Springer-Verlag, Berlin, 371 pp.
- DRITS, V.A., PLANÇON, A., SAKHAROV, B.A., BESSON, G., TSIPURSKY, S.I. & TCHOUBAR, C. (1984). — Diffraction effects calculated for structural models of K-saturated montmorillonite containing different types of defects. — *Clay Miner.*, **19**, 541-561.
- DRITS, V.A., WEBER, F., SALYN, A.L. & TSIPURSKY, S.I. (1993). — X-ray identification of one-layer illite varieties: application to the study of illites around Uranium deposits of Canada. — *Clays and Clay Miner.*, **41**, 389-398.
- DUNOYER de SEGONZAC, G. (1970). — The transformation of clay minerals during diagenesis and low-grade metamorphism: A review. — *Sedimentology*, **15**, 281-346.
- EHRENBERG, S.N., AAGAARD, P., WILSON, M.J., FRASER, A.R. & DUTHIE, D.M.L. (1993). — Depth-dependent transformation of kaolinite to dickite in sandstones of the Norwegian continental shelf. — *Clay Miner.*, **28**, 325-352.
- FISCHER, M.J. & JEANS, C.V. (1982). — Clay mineral stratigraphy in the Permo-Triassic red bed sequences of BNOG 72/10-1A, Western Approaches, and the south Devon coast. — *Clay Miner.*, **17**, 79-90.
- GAUPP, R., MATTER, A., PLATT, J., RAMSEYER, K. & WALZEBUCK, J. (1993). — Diagenesis and fluid evolution of deeply buried Permian (Rotliegende) gas reservoir, northwest Germany. — *Bull. amer. Assoc. Petroleum Geol.*, **77**, 1111-1128.
- GLASMANN, J.R., LARTER, S., BRIEDIS, N.A. & LUNDEGARD, P.D. (1989). — Shale diagenesis in the Bergen High area, North Sea. — *Clays and Clay Miner.*, **37**, 97-112.
- GLENNIE, K.W. (1972). — Permian Rotliegende of northwest Europe interpreted in light of modern desert sedimentation studies. — *Bull. amer. Assoc. Petroleum Geol.*, **56**, 1048-1071.
- GOODCHILD, M.W. & WHITAKER, J.C. McD. (1986). — A petrographic study of the Rotliegende sandstone reservoir (Lower Permian) in the Rough gas field. — *Clay Miner.*, **21**, 459-477.
- GUVEN, N., HOWER, W.F. & DAVIES, D.K. (1980). — Nature of authigenic illites in sandstone reservoirs. — *J. sediment. Petrol.*, **50**, 761-766.
- HOFFMAN, J. & HOWER, J. (1979). — Clay minerals assemblages as low grade metamorphic geothermometers: Application to the thrust faulted disturbed belt of Montana, U.S.A. — *Spec. Publ. Soc. econ. Paleont. Mineral.*, **26**, 55-79.
- HOWARD, J.J. (1992). — Influence of authigenic-clay minerals on permeability. — In: HOUSEKNECHT, D.W. & PITTMAN, E.D. (eds.): Origin, Diagenesis, and Petrophysics of Clay Minerals in Sandstones. — *Spec. Publ. Soc. econ. Paleont. Mineral.*, **47**, 257-264.
- HOWER, J. & MOWATT, T.C. (1966). — The mineralogy of illites and mixed-layer illite/montmorillonites. — *Amer. Mineralogist*, **51**, 825-854.
- HOWER, J., ESLINGER, E.V., HOWER, M.E. & PERRY, E.A. (1976). — Mechanism of burial metamorphism of argillaceous sediment: 1. Mineralogical and chemical evidence. — *Bull. geol. Soc. Amer.*, **87**, 725-737.
- INOUE, A. (1986). — Morphological change in a continuous smectite-to-illite conversion series by scanning and transmission electron microscopies. — *Chiba Daigaku Kyoyobu Kenkyu hokoku*, **B**, **19**, 23-33.
- INOUE, A., KOHYAMA, N., KITAGAWA, R. & WATANABE, T. (1987). — Chemical and morphological evidence for the conversion of smectite to illite. — *Clays and Clay Miner.*, **35**, 111-120.
- INOUE, A., VELDE, B., MEUNIER, A. & TOUCHARD, G. (1988). — Mechanism of illite formation during smectite-to-illite conversion in a hydrothermal system. — *Amer. Mineralogist*, **73**, 1325-1334.
- KANTOROWICZ, J. (1984). — The nature, origin and distribution of authigenic clay minerals from Middle Jurassic Ravenscar and Brent group sandstones. — *Clay Miner.*, **19**, 359-375.
- KELLER, W.D., REYNOLDS, R.C. & INOUE, A. (1986). — Morphology of clay minerals in the smectite-to-illite conversion series by scanning electron microscopy. — *Clays and Clay Miner.*, **34**, 187-197.
- KIMPE, C. de & COLMET DAAGE, F. (1966). — Caractérisation des minéraux kaolinitiques par diverses techniques. — *Bull. Gr. franç. Arg.*, **18**, 14, 59-66.
- KOSSOVSKAYA, A.G. & SHUTOV, V.D. (1963). — Facies of epigenesis and metagenesis. — *Int. Geol. Rev.*, **7**, 1157-1167.
- KUBLER, B. (1964). — Les argiles, indicateurs de métamorphisme. — *Rev. Inst. franç. Pétrole*, **19**, 1093-1112.
- KUBLER, B. (1968). — Evaluation quantitative du métamorphisme par la cristallinité de l'illite: état des progrès réalisés ces dernières années. — *Bull. Centre Rech. Pau* — *SNPA*, **2**, 2, 385-397.
- KUBLER, B. (1990). — "Cristallinité" de l'illite et mixed-layers: brève révision. — *Schweiz. mineral. petrogr. Mitt.*, **70**, 89-93.
- LANSON, B. (1994). — Caractérisation par diffraction des rayons X des modifications de la structure cristallographique des minéraux argileux lors de la diagenèse. — *Thèse habilitation, Univ. Poitiers*, 74 pp.
- LANSON, B. & BESSON, G. (1992). — Characterization of the end of smectite-to-illite transformation: Decomposition of X-ray patterns. — *Clays and Clay Miner.*, **40**, 40-52.
- LANSON, B. & CHAMPION, D. (1991). — The I/S-to-illite reaction in the late stage diagenesis. — *Amer. J. Sci.*, **291**, 473-506.
- LANSON, B. & KUBLER, B. (1994). — Experimental determinations of the coherent scattering domain size distribution of natural mica-like phases with the Warren-Averbach technique. — *Clays and Clay Miner.*, **42**, (sous presse).
- LANSON, B. & MEUNIER, A. (1995). — La transformation des interstratifiés ordonnés ($S \geq 1$) illite-smectite en illite dans les séries diagénétiques. État des connaissances et perspectives. — *Bull. Centres Rech. Explor.-Prod. Elf Aquitaine*, **19**, 1, 149-165.
- LANSON, B. & VELDE, B. (1992). — Decomposition of X-ray diffraction patterns: A convenient way to describe complex diagenetic smectite-to-illite evolution. — *Clays and Clay Miner.*, **40**, 629-643.

- LANSON, B., BEAUFORT, D., BERGER, G., BARADAT, J. & LACHARPAGNE, J.-C. (soumis). — Late-stage diagenesis of clay minerals in porous rocks: Lower Permian Rotliegend reservoir off-shore of The Netherlands. — *J. Sediment Res.*
- LEDoux, R.L. & WHITE, J.L. (1964a). — Infrared study of selective deuteration of kaolinite and halloysite at room temperature. — *Science*, **145**, 47-49.
- LEDoux, R.L. & WHITE, J.L. (1964b). — Infrared study of the hydroxyl groups in intercalated kaolinite complexes. — *Clays and Clay Miner.*, **13**, 289-315.
- LEE, M., ARONSON, J.L. & SAVIN, S.M. (1989). — Timing and conditions of Permian Rotliegend sandstone diagenesis, southern North Sea: K/Ar and oxygen isotopic data. — *Bull. amer. Assoc. Petroleum Geol.*, **73**, 195-215.
- MACKENZIE, R.C. (1970). — Differential thermal analysis. 1: Fundamental aspects. — Academic Press, New York, 775 pp.
- MCAULAY, G.E., BURLEY, S.D. & JOHNES, L.H. (1993). — Silicate mineral authigenesis in the Hutton and NW Hutton fields: implications for sub-surface porosity development. — In: PARKER, J.R. (ed.): *Petroleum Geology of Northwest Europe*. — Proc. 4th Conf., Geol. Soc. London, 1377-1393.
- MCHARDY, W.J., WILSON, M.J. & TAIT, J.M. (1982). — Electron microscope and X-ray diffraction studies of filamentous illitic clay from sandstones of the Magnus field. — *Clay Miner.*, **17**, 23-39.
- MORRIS, K.A. & SHEPPERD, C.M. (1982). — The role of clay minerals in influencing porosity and permeability in the Bridport sands of Wyth Farm, Dorset. — *Clay Miner.*, **17**, 41-54.
- PARKER, T.W. (1969). — Classification of kaolinite by infrared spectroscopy. — *Clay Miner.*, **8**, 135-141.
- PERRY, E.A. & HOWER, J. (1970). — Burial diagenesis in Gulf Coast pelitic sediments. — *Clays and Clay Miner.*, **18**, 165-177.
- PERRY, E.A. & HOWER, J. (1972). — Late-stage dehydration in deeply buried pelitic sediments. — *Bull. amer. Assoc. Petroleum Geol.*, **56**, 2013-2021.
- PLATT, J.D. (1993). — Controls on clay minerals distribution and chemistry in the early Permian Rotliegend of Germany. — *Clay Miner.*, **28**, 393-416.
- POLLASTRO, R.M. (1985). — Mineralogical and morphological evidence for the formation of illite at the expense of illite/smectite. — *Clays and Clay Miner.*, **33**, 265-274.
- PYE, K. & KRINSLEY, D.H. (1986). — Diagenetic carbonate and evaporite minerals in Rotliegend aeolian sandstones of the southern North Sea: Their nature and relationship to secondary porosity development. — *Clay Miner.*, **21**, 443-457.
- REYNOLDS, R.C. (1993). — Three-dimensional X-ray powder diffraction from disordered illite: Simulation and interpretation of the diffraction patterns. — In: REYNOLDS, R.C. & WALKER, J.R. (eds.): *Computer applications to X-ray powder diffraction analysis of clay-minerals*. — Clay Miner. Soc., workshop lectures, **5**, 44-78.
- REYNOLDS, R.C. & HOWER, J. (1970). — The nature of interlayering in mixed-layer illite-montmorillonites. — *Clays and Clay Miner.*, **18**, 25-36.
- RIGHI, D. & JADAULT, P. (1988). — Improving soil clay minerals studies by high-gradient magnetic separation. — *Clay Miner.*, **23**, 225-232.
- ROBINSON, A.G., COLEMAN, M.L. & GLUYAS, J.G. (1993). — The age of illite growth, Village Fields area, southern North Sea: Evidence from K-Ar ages and 180/160 ratios. — *Bull. amer. Assoc. Petroleum Geol.*, **77**, 68-80.
- ROSSEL, N.C. (1982). — Clay mineral diagenesis in Rotliegend aeolian sandstones of the southern North sea. — *Clay Miner.*, **17**, 69-77.
- RUIZ CRUZ, M.D. & MORENO REAL, L. (1993). — Diagenetic kaolinite/dickite (Betic Cordilleras, Spain). — *Clays and Clay Miner.*, **41**, 570-579.
- SEEMANN, U. (1982). — Depositional facies, diagenetic clay minerals and reservoir quality of Rotliegend sediments in the Southern Permian Basin (North Sea): A review. — *Clay Miner.*, **17**, 1, 55-67.
- SHUTOV, V.D., ALEKSANDROVA, A.V. & LOSIEVSKAYA, S.A. (1970). — Genetic interpretation of the polymorphism of the kaolinite group in sedimentary rocks. — *Sedimentology*, **15**, 69-82.
- SRODON, J. (1979). — Correlation between coal and clay diagenesis in the Carboniferous of the upper Silesian coal basin. — In: MORTLAND, M.M. & FARMER, V.C. (eds.): *Developments in Sedimentology*. — Proc. Intern. Clay Conf., Oxford, 1978, Elsevier, Amsterdam, **27**, 251-260.
- SRODON, J. (1984). — Mixed-layer illite-smectite in low-temperature diagenesis: Data from the Miocene of the Carpathian foredeep. — *Clay Miner.*, **19**, 205-215.
- THOMAS, M. (1986). — Diagenetic sequences and K/Ar dating in Jurassic sandstones, central Viking graben: Effects on reservoir properties. — *Clay Miner.*, **21**, 695-710.
- TOWE, K.M. (1974). — Quantitative clay petrology: The trees but not the forest?. — *Clays and Clay Miner.*, **22**, 375-378.
- TSIPURSKY, S.J. & DRITS, V.A. (1984). — The distribution of octahedral cations in the 2:1 layers of dioctahedral smectites studied by oblique-texture electron diffraction. — *Clay Miner.*, **19**, 177-193.
- TURNER, P., JONES, M., PROSSER, D.J., WILLIAMS, G.D. & SEARL, A. (1993). — Structural and sedimentological controls on diagenesis in the Ravenspurn North gas reservoir, UK southern North Sea. — In: PARKER, J.R. (ed.): *Petroleum Geology of Northwest Europe*. — Proc. 4th Conf., Geol. Soc. London, 771-785.
- VELDE, B., SUZUKI, T. & NICOT, E. (1986). — Pressure-Temperature-Composition of illite/smectite mixed-layer minerals: Niger delta mudstones and other examples. — *Clays and Clay Miner.*, **34**, 435-441.
- WEAVER, C.E. (1960). — Possible uses of clay minerals in search for oil. — *Bull. amer. Assoc. Petroleum Geol.*, **44**, 1505-1518.
- WEAVER, C.E. & BECK, K.C. (1971). — Clay water diagenesis during burial: How mud becomes gneiss. — *Spec. Pap. geol. Soc. Amer.*, **134**, 96 pp.
- VAN WIJHE, D.H. (1987). — The structural evolution of the Broad Fourteens Basin. — In: BROOKS, J. & GLENNIE, K. (eds.): *Petroleum Geology of Northwest Europe*. — Proc. 3rd Conf., Graham & Trotman, London, **3**, 315-323.

6. — ANNEXES

Ce chapitre est destiné à définir quelques uns des concepts utilisés dans cet article. L'intérêt récent porté à la structure cristalochimique tridimensionnelle des minéraux argileux justifie une définition de cette notion, tout au moins pour les minéraux des groupes kaolin et illite. Cette définition est essentiellement basée sur la synthèse faite par LANSON (1994) à partir des travaux de BAILEY (1980), DRITS *et al.* (1984), TSIPURSKY & DRITS (1984), BOOKIN *et al.* (1989) et DRITS & TCHOUBAR (1990). Les dérivés d'utilisation, soulignées par KUBLER (1990), de la notion de cristallinité, initialement

définie sur la base de la largeur des pics de diffraction (WEAVER, 1960; KUBLER, 1964, 1968), nous semblent justifier une redéfinition plus stricte de la cristallinité.

6.1. STRUCTURE CRISTALLOCHIMIQUE TRIDIMENSIONNELLE DES MINÉRAUX DIOCTAÉDRIQUES

Toutes les familles de minéraux argileux sont constituées par des empilements de couches octaédriques et tétraédriques et sont différenciées en fonction des séquences d'empilement de ces couches. Dans les couches tétraédriques, chaque tétraèdre SiO_4 est lié aux tétraèdres voisins par trois de ses sommets, créant ainsi une surface plane d'atomes d'oxygène qui forment un anneau hexagonal plus ou moins déformé. La couche octaédrique est quant à elle formée de deux plans (O, OH) dans lesquels il est possible de distinguer trois sites octaédriques distincts en fonction de la répartition spatiale de ces anions. Dans les minéraux dioctaédriques, l'occupation de deux de ces trois sites octaédriques par un atome d'aluminium laisse un site vacant (lacune). Ces couches sont classiquement considérées comme étant homogènes, c'est-à-dire comme présentant des répartitions homogènes de cations. L'intérêt récemment porté à la structure fine de ces couches, et en particulier à la répartition des lacunes dans les couches octaédriques, a été suscité par la nécessité de caractériser finement les cristaux argileux. Or, la seule définition d'un empilement (diffraction des rayons X sur préparations orientées) ne suffit pas pour définir un cristal qui, lui, possède une structure tridimensionnelle. Par exemple, un empilement de feuillets de type kaolinite va engendrer un cristal de kaolinite ou de dickite en fonction de la position de la lacune octaédrique dans ces feuillets *a priori* identiques.

6.1.1 Minéraux 1 : 1 dioctaédriques – Minéraux du groupe kaolin

Ces minéraux sont constitués de feuillets comprenant une couche octaédrique et une couche tétraédrique. En fonction de la position de la lacune dans un de ces trois sites octaédriques (A, B et C) non équivalents (BAILEY, 1980) on distingue trois types de feuillets 1 : 1 dioctaédriques (LANSON, 1994, Fig. 2). BOOKIN *et al.* (1989) ainsi que DRITS & TCHOUBAR (1990) ont montré, sur la base de critères diffractométriques, que la kaolinite est constituée d'un empilement de feuillets B uniquement, alors que la dickite consiste en un empilement régulier de feuillets B et C. Dans une structure de kaolinite présentant un empilement originellement sans défauts de feuillets B, l'introduction de feuillets C permet de définir des structures intermédiaires entre kaolinite et dickite (BOOKIN *et al.*, 1989). Ainsi, du point de vue de ce modèle, la transition kaolinite-dickite peut s'envisager simplement par l'augmentation de la proportion des défauts d'empilement (présence d'un feuillet C).

6.1.2. Minéraux 2 : 1 dioctaédriques – Minéraux illitiques

Ces minéraux sont constitués de feuillets comprenant deux couches tétraédriques siliceuses encadrant une couche octaédrique alumineuse. Dans l'espace compris entre deux feuillets consécutifs sont localisés les cations compensateurs des déficits de charge induits par les substitutions atomiques présentes dans la structure du feuillet. Ces substitutions concernent essentiellement le remplacement de Si^{4+} par Al^{3+} dans les tétraèdres, majoritaire dans les illites, et le remplacement de Al^{3+} par Fe^{3+} et Mg^{2+} dans la couche octaédrique. Les illites possèdent une charge interfoliaire de 0,9 par $\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ (LANSON & MEUNIER, 1995). Pour définir la structure d'un feuillet 2 : 1, il est nécessaire de connaître la répartition spatiale des différents cations ainsi que la répartition de la lacune entre les trois sites octaédriques non équivalents (LANSON, 1994, Fig. 4). Ces lacunes peuvent être localisées soit dans un site trans, où les groupements OH sont diamétralement opposés, soit dans un des deux sites cis, pour lesquels les groupements OH sont localisés sur la même arête. La répartition des sites vacants entre les trois sites octaédriques non équivalents est déterminée en fonction de la distribution des intensités entre les diverses raies $hk\ell$, mesurées par diffraction des rayons X sur des préparations non-orientées.

6.2. CRISTALLINITÉ DE L'ILLITE

Les dérives d'utilisation des termes "cristallinité" et "illite" nécessitent une redéfinition précise, du fait de l'intérêt de ce paramètre. L'estimation de l'épaisseur des domaines cohérents de diffraction, c'est-à-dire de la cristallinité *sensu stricto*, constitue en effet un pas essentiel dans la démarche permettant de décrire avec précision la structure cristallographique des minéraux argileux. Ce paramètre est particulièrement intéressant pour appréhender les problèmes de transformation minérale et surtout de croissance cristalline se produisant lors de la diagenèse tardive. Historiquement, Scherrer, en 1918, a été le premier à déterminer une formule permettant de déduire la taille des domaines cohérents de diffraction à partir de l'élargissement des raies. Cependant, ces méthodes ne permettent d'obtenir la taille moyenne du domaine cohérent qu'en l'absence de déformations du réseau cristallin induites par des contraintes (LANSON & KUBLER, 1994). Par conséquent, ces méthodes ne sont utilisables que pour l'étude des minéraux non interstratifiés.

Dans les stades terminaux de l'évolution diagenétique, la cinétique de transformation des minéraux argileux entraîne la coexistence de particules présentant des caractéristiques cristallographiques contrastées, I-S et illite, (LANSON & CHAMPION, 1991; LANSON & BESSON, 1992; LANSON & VELDE, 1992) et évoluant simultanément. Il est donc particulièrement important de faire la distinction entre l'élargissement des raies résultant de la faible taille de domaine cohérent de diffraction et celui qu'induit la présence d'interstratification. Il convient en effet d'éviter de confondre les deux phénomènes, alors qu'un seul concerne réellement la cristallinité.