

CARACTERISATION DU BITUME DU MASSIF CALCAIRE DE VISE (BELGIQUE) ET COMPARAISON AVEC DES ANTHRAXOLITES NORD-AMERICAINES

DIANO ANTENUCCI ET POL BOURGUIGNON

Institut de Minéralogie, Université de Liège, Sart Tilman (B18), B-4000 Liège, Belgique

ABSTRACT

Newly determined chemical compositions, obtained by ^{13}C , nuclear magnetic resonance, infrared absorption spectroscopy and X-ray diffraction, as well as optical measurements, indicate some properties of the Visé bitumen: $0.16 < \text{H/C} < 0.53$, $0.03 < \text{O/C} < 0.06$, $\sim 99\%$ aromatic compounds, no absorption peaks between 1900 and 1600 cm^{-1} , $d_{002} \sim 3.43 \text{ \AA}$, $n \sim 1.94$, $R_o = 3.76\%$, $R_a = 13\%$, no birefractance. It is a "migrabitumen" of a cataimponite-like high rank. Its evolution is independent of that of the surrounding limestones. The crystallographic characteristics are quite similar to those of so-called anthraxolite of New York and Ontario.

Keywords: bitumen, anthraxolite, ^{13}C nuclear magnetic resonance, infrared absorption spectroscopy, X-ray diffraction, optics, Belgium, New York, Ontario.

SOMMAIRE

De nouvelles analyses chimiques élémentaires, des données par résonance magnétique nucléaire ^{13}C , absorption infrarouge, diffraction des rayons X, ainsi que des mesures optiques précisent certaines propriétés du bitume de Visé: $0.16 < \text{H/C} < 0.53$, $0.03 < \text{O/C} < 0.06$, $\sim 99\%$ de composés aromatiques, pas de bande d'absorption dans le domaine compris entre 1900 et 1600 cm^{-1} , $d_{002} \sim 3.43 \text{ \AA}$, $n \sim 1.94$, $R_h = 3.76\%$, $R_a = 13\%$, biréfractance nulle. Il s'agit d'un "migrabitume" de rang équivalent à une cataimponite, dans un encaissant calcaire non métamorphique. La comparaison avec des anthraxolites de New York et de l'Ontario révèle des propriétés cristallographiques très voisines.

Mots-clés: bitume, anthraxolite, résonance magnétique nucléaire ^{13}C , absorption infrarouge, diffraction des rayons X, optique, Belgique, New York, Ontario.

INTRODUCTION

Un bitume belge est inclus dans les fractures ou géodes des calcaires dinantiens non métamorphiques du massif de Visé, à proximité de Liège. Un travail antérieur axé sur la diffraction des rayons X, l'optique et les résultats d'analyses chimiques anciennes a montré une aromaticité relativement avancée (Antenucci & Bourguignon 1986). Des méthodes plus élaborées permettent de quantifier ces caractéristiques et d'aboutir donc à une identification plus précise. Puisque le terme *anthraxolite* a été choisi par

analogie avec la composition chimique élémentaire et des propriétés physiques d'exemples d'anthraxolite nord-américains (King 1963, Mélon *et al.* 1976), il convient d'étoffer cette comparaison par la mise en oeuvre de méthodes complémentaires étendues à des échantillons nord-américains issus également d'un contexte carbonaté.

La terminologie de ces composés et des matériaux organiques en général est assez complexe. Alpern (1980) propose de compléter la notion de kérogène (phase organique insoluble des sédiments) par un concept génétique applicable notamment aux bitumes (produits décomposés ou néoformés, solubles ou non) et distingue les protobitumes, autochtones, des migrabitumes, allochtones. Les deux termes *kérogène* et *bitume* s'appliquent donc à l'anthraxolite. Puisqu'il s'agit d'un produit de remplissage de vides, le terme plus précis de migrabitume est permis (Alpern 1980). Ces bitumes migrés ont généralement reçu des noms locaux à consonance minéralogique (albertite, gilsonite, grahamite, imponite, wurtzite, *etc.*) mais qui ne répondent pas à des critères chimiques (Antenucci & Bourguignon 1986). Cette nomenclature est très désordonnée.

MÉTHODES

Les échantillons belges font partie de la collection de l'Institut de Minéralogie de l'Université de Liège (n° 2854, 5011, 5016, 5017, 8474, 8475 et 20022). Les spécimens de gisements américains appartiennent au Royal Ontario Museum: n° 476, 6714, M 8126 (Sudbury, Ontario), M 19341 (Port Arthur, Ontario), M 19552 (Kingston, Ontario) et M 36946 (Kickory Hill, Fonda, New York, U.S.A.).

Après examen au stéréomicroscope, les échantillons ont été broyés manuellement jusqu'à obtention d'une fraction $\leq 75 \mu\text{m}$. Les spécimens belges 2854 et 20022 ont fait l'objet d'une nouvelle analyse chimique élémentaire avec un appareil Leco CHN 600; l'oxygène est obtenu par différence. Les spectres par résonance magnétique nucléaire (RMN) ^{13}C (éch. 2854 et 20022) ont été obtenus à l'état solide avec un équipement Varian XL 200. Les spectres d'absorption infrarouge ont été enregistrés sur un équipement Perkin-Elmer 1320; les pastilles ont été confectionnées par mélange de 1 mg de matière organique dans 100 mg de KBr.

TABLEAU 1. COMPOSITION CHIMIQUE DES COMPOSÉS QUALIFIÉS D'ANTHRAXOLITE

	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
C ₃ ^x	83.46	90.67	88.65	89.25	87.55	83.7	90.25	94.92	94.25	90.42	90.50	94.50	86.37
H	1.13	1.59	3.83	3.11	3.90	2.6	4.16	0.52	1.26	3.94	3.97	0.90	4.02
O	3.92	3.25					3.69	1.69	1.97	3.42	1.93		5.28
N	0.89	1.17	5.12	4.66	7.55	13.45	0.52	1.04	0.78	1.30	1.36	4	1.24
S	2.80	3.17	1.80	2.10	0.48		0.66	0.31	0.42	0.57	0.52	0.60	1.69
Cend. ^{xx}	7.8	0.15	0.60	0.88	0.52	0.25	0.72	1.52	1.32	0.35	1.72	-	2
	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	101.10
	% molaires												
C	83.60	80.88	64.1	68.63	62.56	67.04	63.15	92.71	85	64.43	64.84	87.32	62.46
H	13.52	16.97	33.2	28.67	33.44	24.9	34.95	6.03	13.07	33.72	34.16	9.92	34.71
O	2.87	2.14	2.7	2.69	3.98	8.04	1.9	1.25	1.27	1.84	1	2.75	2.82
H/C	0.16	0.21	0.51	0.41	0.53	0.37	0.55	0.06	0.16	0.52	0.52	0.11	0.55
O/C	0.03	0.02	0.04	0.04	0.06	0.11	0.03	0.01	0.01	0.03	0.01	0.03	0.04

x: en poids; xx: cendres.

1 et 2: Visé - Université de Liège 2854 et 20022. Analystes M. Saussez (C,H,N) et J.-M. Speetjens (S, cendres). 3 à 6: Visé, Mélon et al. (1976). 7: Kingston, Ontario, ROM M19552: Dunn & Fisher (1954). 8: Sudbury, Ontario, ROM 476: Dunn & Fisher (1954). 9: Union Island, N.W.T.: Rutherford (1928). 10: Little Falls, N.Y.: Dunn & Fisher (1954). 11: Salisbury, N.Y.: Dunn & Fisher (1954). 12: Alaska: Runnells (1965). 13: U.R.S.S.: Zezin & Sokolova (1967).

Les diffractogrammes de poudre sur support de verre ont été enregistrés avec un équipement Philips PW 1390, en utilisant le rayonnement FeK α et un monochromateur. La vitesse de déroulement du papier était de 1°2 θ /min. La largeur du pic à mi-hauteur ($w_{1/2}$) exprimée en degrés 2 θ a été mesurée suivant la technique de Wedeking & Hayes (1983). L'enregistrement sur film (chambre Debye-Scherrer) a été effectué pendant 15 heures d'exposition (rayonnement CuK α , filtre Ni).

Des mesures en lumière réfléchie (éch. 20022) ont permis de déterminer l'indice de réfraction (n) et l'indice d'extinction (k) par une méthode ellipsométrique, la réflectance dans l'air (R_a) par une méthode microrélectométrique. Un ellipsomètre automatique est alimenté par une source laser ($\lambda = 632.8$ nm) sous une incidence voisine de 70°. Un ellipsomètre manuel est alimenté par une source à filtre de couleur centré sur la radiation $\lambda = 589$ nm avec une largeur de bande de 10 nm et une incidence de 45°. Le pouvoir réflecteur dans l'air (R_a) a été mesuré pour trois longueurs d'onde λ distinctes: 545, 589 et 633 nm. L'étalon utilisé est le carbure de silicium, dont la réflectance Re vaut 20.4% ($\pm 1\%$) pour $\lambda = 545$ nm, 20.2% ($\pm 1\%$) pour $\lambda = 589$ nm, 19.9% pour $\lambda = 633$ nm. Pour les longueurs d'onde 633 nm et 589 nm, la comparaison des résultats obtenus en réflectométrie et en ellipsométrie constitue un contrôle de qualité des mesures.

RÉSULTATS

Composition chimique élémentaire

Le Tableau 1 rassemble les résultats d'analyses chimiques de composés qualifiés d'anthraxolite. Les colonnes 1 et 2 représentent des analyses nouvelles; les autres sont anciennes, y compris celles concernant le matériau belge. Tous les échantillons comprennent entre 6 et 35% de H et moins de 4% de O (molaires). En effet, l'analyse n° 6 regroupe sous la rubrique oxygène la somme O + N + S et surestime dès lors le pourcentage en oxygène (Antenucci & Bourguignon 1986). Les nouvelles analyses d'échantillons de Visé révèlent des taux d'hydrogène inférieurs à ceux fournis antérieurement pour d'autres échantillons, lesquels sont néanmoins affectés par une aromatisation marquée.

Analyse par résonance magnétique nucléaire

Deux bitumes de Visé (n° 2854 et 20022) révèlent une bande unique comprise entre 140 et 110 ppm (Fig. 1). Les valeurs communes de 140-110 ppm exprimées par le signal principal traduisent donc, dans les deux cas, une aromatisation très avancée; la plus forte appartient au n° 2854, qui présente un faciès tubulaire. En effet, le calcul fournit 99.9% de composés aromatiques pour l'échantillon 2854 et 92.6% pour le spécimen 20022.

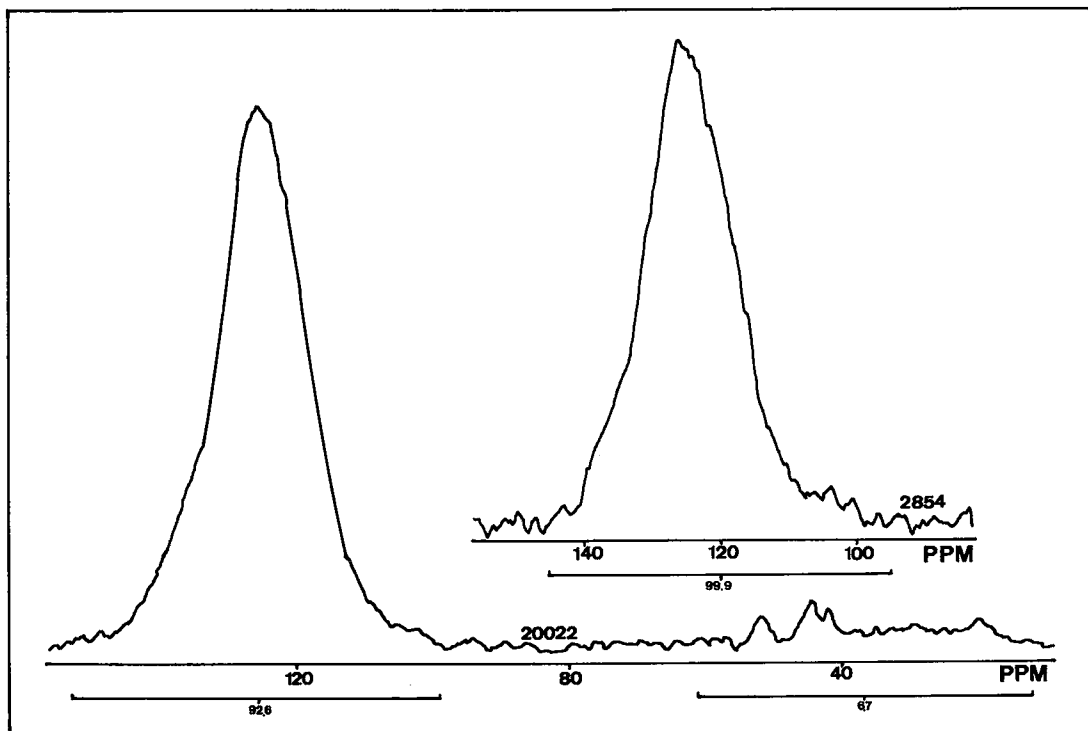


FIG. 1. Spectres RMN ^{13}C (n° 2854 et 20022).

Pour ce dernier cas, il faut cependant noter quatre petites bandes supplémentaires dans la zone comprise entre 20 et 60 ppm, dues à des composés non aromatiques. La valeur des glissements chimiques suggère l'existence de groupements méthyle (20 ppm) d'une part et de groupements éther ou ester, ou encore de carbone tertiaire ou quaternaire (40–50 ppm) d'autre part. Étant donné la médiocre résolution des pics, l'attribution rigoureuse n'est pas possible. L'ensemble de ces faibles bandes totalise 6.7% de composés aliphatiques.

Spectroscopie d'absorption infrarouge

Généralement, le spectre d'absorption infrarouge des kérogènes montre des bandes d'absorption principales à 2980 et 2855 cm^{-1} dues aux groupes aliphatiques C–H. Des bandes majeures sont également présentes à 1710 et 1630 cm^{-1} relatives à des liaisons C = O et C = C, respectivement (Spiro & Aizenshtat 1983).

Les spectres des spécimens belges et nord-américains sont tous analogues et caractérisés par l'absence de bandes d'absorption. Éventuellement, une légère bosse située entre 3600 et 3100 cm^{-1} serait

due à un peu d' H_2O dans les échantillons, voire même dans la pastille de KBr. Le doublet de faible intensité à 2920 et 2840 cm^{-1} exprime vraisemblablement l'existence de groupes CH_2 ou CH_3 , voire des deux. En deçà de ce domaine de fréquence, plus aucune bande d'absorption n'a été enregistrée. Cependant un échantillon canadien (M 19552) se distingue légèrement par une vague bande entre 1550 et 1600 cm^{-1} , dont l'attribution rigoureuse est délicate, étant donné le profil général du spectre. Il s'agit peut être de vibrations C = O ou C = C (Rouxhet *et al.* 1980).

Dans le domaine compris entre 1900 et 1600 cm^{-1} , tous les spectres sont semblables à ceux obtenus avec le graphite et d'autres matériaux organiques très évolués (Spiro & Aizenshtat 1983).

Diffraction des rayons X

Du point de vue cristallographique, l'évolution des composés carbonés est reflétée par l'espacement entre plans réticulaires 001, qui diminue au cours de l'aromatization du kérogène et tend vers la valeur du graphite ($d_{002} = 3.36 \text{ \AA}$). La distinction porte donc sur le paramètre d_{002} tant pour les charbons

TABLEAU 2. VALEURS DE d_{002} (Å) OBSERVEES

Ech. belges	d_{002}	Ech. nord-américains	d_{002}
n° 2854	3.43	n° 476	3.50
5011	3.42	6714	3.51
5016	3.43	M8126	3.52
5017	3.42	M19341	3.43
8474	3.44	M19552	3.47
8475	3.43	M36946	3.47
20022	3.42		

(Izawa 1968) que pour les bitumes (Ergun 1968, Welin 1966).

Un travail précédent sur des échantillons d'anthraxolite belges a mis en évidence l'analogie entre les diffractogrammes de poudre, avec une réflexion 002 située à 3.43–3.44 Å (Antenucci & Bourguignon 1986). Des échantillons américains enregistrés dans les mêmes conditions révèlent tous un pic large à 3.47 ou vers 3.50 Å, exception faite de l'échantillon M 19341 avec une bande de diffraction vers 3.43 Å (Tableau 2). Par rapport au matériau de Visé, on observe donc une tendance vers des valeurs à peine plus élevées.

Le faciès de la réflexion principale est comparable à celui des échantillons d'anthraxolite belges: base généralement évasée et profil asymétrique; le sommet peut être érodé ou clairement exprimé (Fig. 2). L'échantillon M 19552 se distingue nettement des autres par un profil plus effilé. La largeur du pic à mi-hauteur ($w_{1/2}$) varie de 2.5° à 6.5° 2 θ . L'absence de réflexion hkl se vérifie sur film pour l'échantillon 2854.

Outre la réflexion principale inhérente au composé organique, d'autres pics de faible intensité apparaissent chez certains spécimens de l'Ontario. Les n° 476 et 6714 sont accompagnés de quartz; pour les n° M 8126 et M 19341, il s'agit d'un phyllosilicate, très probablement une nacrite. L'intervention de ces divers contaminants est tout à fait secondaire.

En conclusion, sur le plan radiocristallographique, les échantillons d'anthraxolite analysés sont donc proches soit d'une imponosite (Ergun 1968), soit des semi-anthracites (Izawa 1968).

Propriétés optiques

Les examens actuels fournissent les données consignées au Tableau 3, relatives à l'échantillon 20022. Il n'existe pas de clivage apparent ni de réflexion interne. Aucune biréfractance n'a pu être observée, ni en orthoscopie, ni en conoscopie. L'isotropie optique est par ailleurs confirmée au microréflexotomètre.

Le spécimen n° 5011 de Visé a montré une biréfractance quasi nulle (Y. Somers, comm. pers.) et une

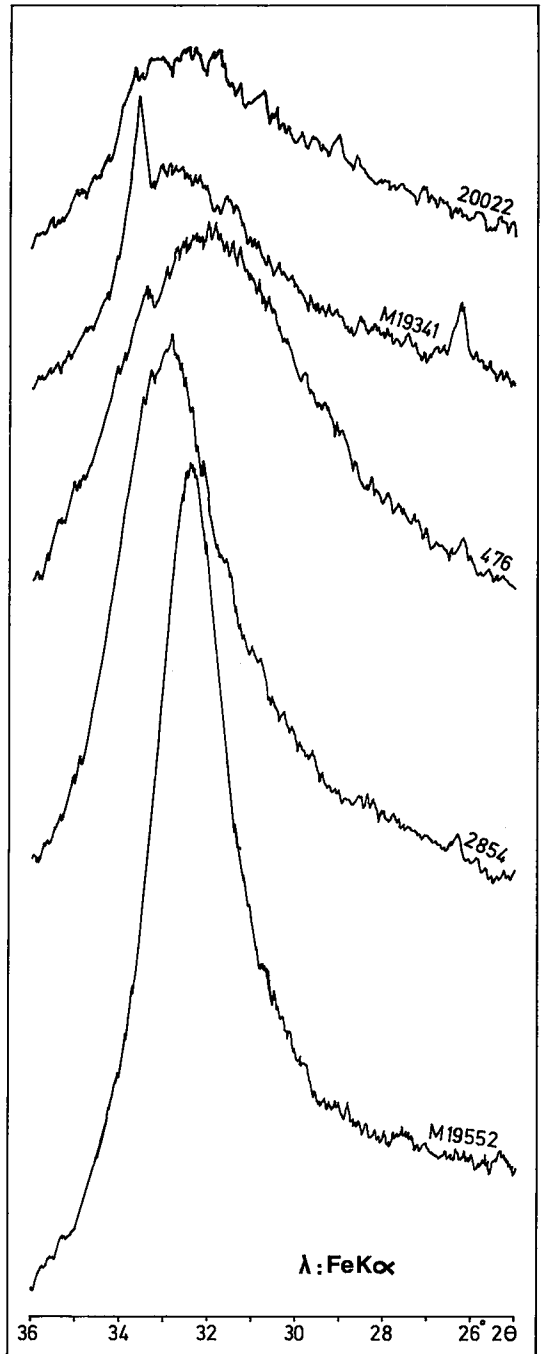


FIG. 2. Diffractogrammes de poudre.

réfractance dans l'huile de 3.76% (Antenucci & Bourguignon 1986).

TABLEAU 3. CARACTERES OPTIQUES: INDICE DE REFRACTION (n), INDICE D'EXTINCTION (k) ET POUVOIR REFLECTEUR (R_a) DANS L'AIR

Méthodes	\bar{n}	σ	σ''	\bar{k}	σ	σ''	$\bar{R}_a\%$	σ	σ''
Ellipsométrie									
$\lambda = 589 \text{ nm}$	1.98	0.0296	0.018	0.46	0.06	0.04	12.9	0.636	0.4
$\lambda = 632.8 \text{ nm}$	1.91	0.008	0.008	0.51	0.017	0.016	12.5	0.17	0.07
Réflectométrie									
$\lambda = 545 \text{ nm}$							12.7	0.27	0.16
$\lambda = 589 \text{ nm}$							13.2	0.26	0.16

Echantillon 20022. σ : écart type, σ'' : écart sur la moyenne, avec une espérance de 95%.

DISCUSSION

Les résultats d'analyses chimiques élémentaires exprimés en pourcentages molaires sont généralement illustrés par le diagramme de Van Krevelen (1961), où le rapport H/C s'exprime en fonction de O/C. Outre le fait d'éviter les incertitudes éventuelles des valeurs de C, H et O, cette représentation exprime au mieux le degré d'évolution du matériau (Hunt 1978). Ainsi l'analyse chimique élémentaire du bitume de Visé traduit une évolution relativement avancée, visible sur ce diagramme (Fig. 3), où deux groupements apparaissent, comprenant chacun des représentants belges et nord-américains. Des analyses d'échantillons supplémentaires combleraient vraisemblablement l'hiatus entre ces deux régions. Cette situation reflète sans doute une certaine hétérogénéité des gisements.

Vis-à-vis des étapes évolutives conçues par Durand & Monin (1980), ces matériaux se situent en transition entre les zones B₂ et C, voire en zone C, où l'aromatization est poussée.

L'analyse par résonance magnétique nucléaire en ¹³C à l'état solide montre clairement le caractère aromatique très largement dominant, sinon exclusif, avec un signal unique entre 140 et 110 ppm (Fig. 1); cependant des composés aliphatiques peuvent subsister (n° 20022).

Ce fait semble d'ailleurs confirmé par les spectres d'absorption infrarouge, typiques de composés organiques très évolués, où des liaisons aliphatiques sont encore timidement présentes. En effet, lorsque ces kérogènes subissent une évolution thermique, le nombre de bandes d'absorption diminue progressivement, pour devenir nul dans le cas du graphite (Spiro & Aizenshtat 1983).

Par comparaison avec des données diffractométriques antérieures (French 1964, Ergun 1968, Izawa 1968, Landis 1971), celles obtenues pour les composés belges (Antenucci & Bourguignon 1986) et nord-américains reflètent un fort degré d'aromatization. L'ordonnance tridimensionnelle du graphite n'est cependant pas atteinte; les raies *hkl* sont absentes. Les bandes de diffraction comprises entre

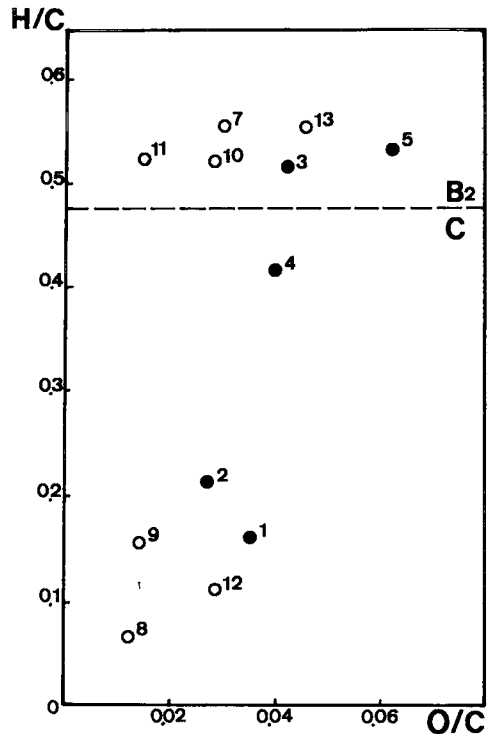


FIG. 3. Position des échantillons dans le diagramme de Van Krevelen (1961) suivant la numérotation du tableau 1. ● Echantillons belges, ○ Echantillons nord-américains. B₂ et C: zones de Durand & Monin (1980).

3.35 et 3.50 Å (Fig. 2) trahissent sans doute des distorsions au sein des couches hydrocarbonées responsables des espacements interplanaires variables. Une telle structure est généralement qualifiée de turbostratique, pour laquelle une valeur de d_{002} de 3.43 Å est minimale (Oberlin *et al.* 1980). En revanche, le profil plus aigu du pic des spécimens 2854 et M 19552 pourrait être l'image d'une meilleure ordonnance bidimensionnelle.

La relation entre H/C et d_{002} est illustrée (Fig. 4) pour les bitumes belges et des composés étrangers pour lesquels ces données sont disponibles (Ergun 1968, Spiro & Aizenshtat 1983, Wedeking & Hayes 1983). Pour la majorité des échantillons, l'espacement interplanaire prédominant varie entre 3.43 et 3.60 Å dans le domaine de $0.075 \leq H/C \leq 0.55$. Les valeurs de d_{002} inférieures à 3.43 Å sont relatives aux schistes graphiteux. Les positions sont beaucoup moins dispersées que pour des valeurs de H/C supérieures à 1, où une certaine convergence se dessine à mesure que progresse la déshydrogénation (Antenucci & Bourguignon 1986).

Tous les échantillons de Visé montrent un pic de diffraction vers 3.43 Å, et ce, pour des valeurs de

H/C variant de 0.16 à 0.53. Dans cet intervalle, la variation de ce rapport n'affecte donc pas d_{002} . En revanche, malgré un H/C inférieur (0.06), l'échantillon canadien n° 476 présente une valeur de d_{002} de 3.50 Å. Mais dans le domaine intéressant les spécimens belges, aucune relation ne paraît exister entre

les deux paramètres. La valeur de d_{002} reste indépendante du rapport H/C lorsque ce dernier est compris entre 0.5 et 0.2 (Antenucci & Bourguignon 1986). Cette observation est confirmée par les nouvelles analyses, qui l'étendent à des valeurs de H/C inférieures. La distance interplanaire d_{002} d'environ 3.43 Å semble bien représenter une valeur pivot. Une relation entre d_{002} et $w_{1/2}$ a été proposée par Wedeking & Hayes (1983). Bien que la comparaison n'est pas permise, du fait de la différence de la longueur d'onde du rayonnement utilisé, la distribution de nos valeurs ne semble pas suggérer la tendance postulée, à savoir la diminution simultanée des valeurs de d_{002} et $w_{1/2}$.

D'autre part, ces mêmes auteurs établissent des relations entre $w_{1/2}$ et le rapport H/C. Concernant ce dernier, rappelons que la position de certains composés belges ne peut être déterminée avec précision quand les données chimiques et cristallographiques ne s'adressent pas aux mêmes spécimens (Antenucci & Bourguignon 1986).

Compte tenu de cette imprécision et du faible nombre de points déterminables et plutôt dispersés, il serait prématuré de tenter une comparaison des résultats à ce point de vue. La largeur à mi-hauteur du pic, qui traduit la variation des espacements, situerait les échantillons de Visé dans la zone où le paramètre $w_{1/2}$ aurait tendance à croître avec la diminution de H/C ($0.5 > H/C > 0.1$) d'après les auteurs précités. La relation inverse postulée entre les deux paramètres dans le domaine $0.1 < H/C \leq 0.5$ ne peut être confirmée ou infirmée par les résultats actuels. Ce comportement serait dû à une détérioration de l'empilement des couches aromatiques suite à la rupture de liaisons aliphatiques dans ou entre les unités structurales. Ce phénomène serait indépendant du type de kérogène et de l'ambiance physicochimique durant sa maturation; il constituerait une étape entre deux discontinuités de tendance lors de la graphitisation, qui se réalise alors de manière soudaine (Wedeking & Hayes 1983). De plus, il n'est pas démontré que le matériau de Visé soit graphitable (J.N. Rouzaud, comm. pers.).

Les observations diffractométriques permettent donc d'attribuer à ces kérogènes des positions variables, mais cantonnées au sein de la deuxième phase d'évolution de Wedeking & Hayes (1983).

Les caractères optiques s'inscrivent dans la même tendance évolutive et confirment le rang élevé de ce bitume isotrope et non stratifié. La valeur de la réflectance dans l'huile permet de le qualifier de "cataimponite", selon la nomenclature adoptée par Jacob (1975).

CONCLUSION

L'extension des analyses à un plus grand nombre d'échantillons de provenance diverse, et par des

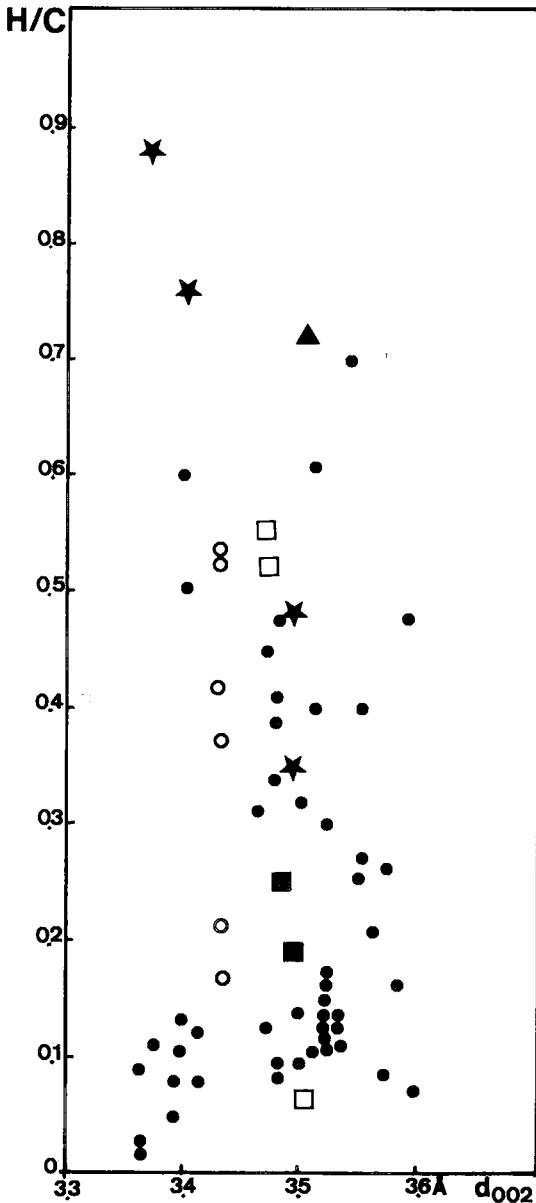


FIG. 4. Diagramme d_{002} - H/C. Symboles: ○ Echantillons belges (ce travail), □ Echantillons nord-américains (ce travail), ▲ Ergun (1968), ★ Spiro & Aizenshtat (1983), et ● Wedeking & Hayes (1983).

méthodes d'investigation plus nombreuses, confirme les conclusions antérieures (Antenucci & Bourguignon 1986). La convergence des résultats fournis par chacune des méthodes permet de mieux caractériser le bitume de Visé. Ce matériau est affecté d'une aromatisation très avancée et d'une structure turbostratique à distances interplanaires variables. Son mode de gisement, son faciès parfois stalactitique, et ses propriétés optiques, permettent de qualifier l'antraxolite de Visé de "migrabitume" (Alpern 1980), dont le rang est celui d'une cataimponite (Jacob 1975).

Ce produit est le résidu solide d'une évolution qui a dépassé le stade de production de gaz et d'huile, dans un contexte géologique non métamorphique. Etant donné son rang élevé, il serait particulièrement difficile de remonter aux précurseurs biologiques (Hunt 1978). Les marqueurs, généralement isolés par chromatographie dans des kéroènes moins évolués (Vandenbroucke 1980), sont très probablement absents, le composé ayant atteint en effet une région du diagramme de Van Krevelen où la mémoire tend à s'effacer. Sans doute faut-il rechercher le matériau mère dans la matière vivante dont témoigne le caractère très fossilifère de l'encaissant calcaire. Étant donné le contexte carbonaté des échantillons nord-américains, dont les propriétés cristallographiques sont très voisines, il est pertinent de rappeler l'hypothèse de Dunn & Fisher (1954), qui implique une dégradation comparable au processus de "fusinisation" à basses pression et température, favorisée par le milieu carbonaté, jouant le rôle de catalyseur. Sur la base des informations disponibles, il est impossible de déterminer si l'aromatisation du kéroène de Visé était acquise avant migration, ainsi que postulé par King (1963) pour des composés nord-américains.

Ce cas illustre l'indépendance de l'évolution de la matière organique vis-à-vis de celle de l'encaissant. Si pour ce dernier, le seul stade de diagenèse (au sens des géologues) est atteint, pour la matière organique, c'est celui qualifié de métagenèse par le vocabulaire appliqué aux kéroènes (Durand & Monin 1980).

REMERCIEMENTS

Notre reconnaissance s'adresse à plusieurs personnes et organismes auxquels nous sommes redevables de l'élaboration de ce travail. Les échantillons nord-américains ont été fournis par M. D.B. Sturman du Royal Ontario Museum. M. Beugnies (Mons) et Mlle Somers (Institut National des Industries Extractives, Liège) se sont chargés d'examen optiques. M. Gelan (Hasselt) a réalisé l'étude par RMN. Les surfaces polies ont été confectionnées au laboratoire de M. Dimanche. M. Laszlo a mis à disposition l'équipement IR. Des analyses chimiques élémentaires sont l'oeuvre de MM. Saussez (INIE) et Speetjens. Les

communications personnelles de MM. Alpern et Rouzaud (Orléans) ainsi que la critique du manuscrit par M. Fransolet, les deux lecteurs et le rédacteur, furent précieuses.

RÉFÉRENCES

- ALPERN, B. (1980): Pétrographie du kéroène. *In Kerogen: Insoluble Organic Matter from Sedimentary Rocks* (B. Durand, ed.). Technip, Paris (339-384).
- ANTENUCCI, D. & BOURGUIGNON, P. (1986): Données nouvelles sur l'antraxolite de Visé (Belgique). *Ann. Soc. Géol. Belgique* **109**, 629-634.
- DUNN, J.R. & FISHER, D.W. (1954): Occurrence, properties, and paragenesis of antraxolite in the Mohawk Valley. *Am. J. Sci.* **252**, 489-501.
- DURAND, B. & MONIN, J.C. (1980): Elemental analysis of kerogens. *In Kerogen: Insoluble Organic Matter from Sedimentary Rocks* (B. Durand, ed.). Technip, Paris (113-142).
- ERGUN, S. (1968): X-ray studies of coals and carbonaceous materials. *U.S. Bur. Mines Bull.* **648**.
- FRENCH, B.M. (1964): Graphitization of organic material in a progressively metamorphosed Precambrian iron formation. *Science* **146**, 917-918.
- HUNT, J.M. (1978): Characterization of bitumens and coals. *Am. Assoc. Pet. Geol. Bull.* **62**, 301-302.
- IZAWA, E. (1968): Carbonaceous matter in some metamorphic rocks in Japan. *J. Geol. Soc. Japan* **74**, 427-432.
- JACOB, H. (1975): Mikroskopphotometrische Analyse natürlicher fester Erdölbitumina. *Colloque international CNRS: Pétrographie de la Matière Organique des Sédiments* (Paris 1973, B. Alpern, ed.), 104-113.
- KING, L.H. (1963): On the origin of antraxolite and imponite. *Can. Dep. Mines Tech. Surv., Mines Br. Res. Rep.* **R-116**.
- LANDIS, C.A. (1971): Graphitization of dispersed carbonaceous material in metamorphic rocks. *Contrib. Mineral. Petrol.* **30**, 34-45.
- MÉLON, J., BOURGUIGNON, P. & FRANSOLET, A.-M. (1976): *Les Minéraux de Belgique*. Ed. Lelotte, Dison, Belgique.
- OBERLIN, A., BOULMIER, J.L. & VILLEY, M. (1980): Electron microscopic study of kerogen microtexture. Selected criteria for determining the evolution path and evolution stage of kerogen. *In Kerogen: Insoluble Organic Matter from Sedimentary Rocks* (B. Durand, ed.). Technip, Paris (191-241).

- ROUXHET, P.G., ROBIN, P.L. & NICAISE, G. (1980): Characterization of kerogens and of their evolution by infrared spectroscopy. *In Kerogen: Insoluble Organic Matter from Sedimentary Rocks* (B. Durand, ed.). Technip, Paris (163-190).
- RUNNELLS, D.D. (1965): Anthraxolite derived from indigenous organic matter in Middle Devonian dolomite, Cosmos Hills, Alaska. *J. Sed. Petrol.* **35**, 599-603.
- RUTHERFORD, R.L. (1928): Anthraxolite from the Northwest Territories of Canada. *Am. Mineral.* **13**, 516-518.
- SPIRO, B. & AIZENSHTAT, Z. (1983): Natural combustion and pyrolysis of bituminous rocks at the margin of Hatrurin, Israel. *In Advances in Organic Geochemistry 1981* (M. Bjory, ed.). J. Wiley & Sons, New York (799-807).
- VANDENBROUCKE, M. (1980): Structure of kerogens as seen by investigations on soluble extracts. *In Kerogen: Insoluble Organic Matter from Sedimentary Rocks* (B. Durand, ed.). Technip, Paris (415-443).
- VAN KREVELEN, D. W. (1961): *Coal*. Elsevier, Amsterdam.
- WEDEKING, K.W. & HAYES, J.M. (1983): Carbonization of Precambrian kerogens. *In Advances in Organic Geochemistry 1981* (M. Bjory, ed.). J. Wiley & Sons, New York (546-553).
- WELIN, E. (1966): The occurrence of asphaltite and thucholite in the Precambrian bedrock of Sweden. *Geol. Fören. Stockholm Förh.* **87**, 509-596.
- ZEZIN, R.B. & SOKOLOVA, M.N. (1967): Macroscopic occurrence of carbonaceous matter in hydrothermal deposits of the Khibiny pluton. *Dokl. Acad. Sci. U.S.S.R., Earth Sci. Sect.* **177**, 217-220.

Reçu le 19 juillet, 1988, manuscrit révisé accepté le 21 novembre, 1988.