Evolution génétique et signification des associations de phosphates de la pegmatite d'Angarf-Sud, plaine de Tazenakht, Anti-Atlas, Maroc

par ANDRÉ-MATHIEU FRANSOLET (¹), KURT ABRAHAM (²) et JEAN-MARIE SPEETJENS (¹)

(1) Institut de Minéralogie, Université de Liège, Place du Vingt-Août, 9, B-4000 Liège (Belgique).

(²) Institut für Mineralogie, Ruhr-Universität Bochum,

Universitätsstrasse 150, Postfach 10 21 48, D-4630 Bochum-1 (Westdeutschland).

Résumé. — De nouvelles analyses chimiques à la microsonde électronique des phosphates de la pegmatite d'Angarf-Sud, Plaine de Tazenakht, Anti-Atlas, Maroc, confirment ou précisent la composition chimique de la triphylite, de la scorzalite, de la ferrisicklerite, de l'heterosite, de la ferroalluaudite, de la chlorapatite et de la fluorapatite. Les propriétés cristallographiques sont également fournies pour la ferrisicklerite riche en Fe³⁺ (a = 5.843, b = 9.913 et c = 4.783 Å) et pour la ferroalluaudite, riche en Fe²⁺ et pauvre en Mn (a = 11.898, b = 12,541, c = 6.434 Å et $\beta = 114$ °G'). Les 21 phosphates actuellement connus dans le gisement sont présentés sous forme d'une liste récapitulative.

S'appuyant à la fois sur les informations d'ordre chimique et sur les relations pétrographiques observées en lames minces, la discussion des différentes étapes du processus d'évolution globale à partir d'une seule génération de triphylite riche en Fe et en Mg, conduit à la proposition de schémas génétiques. Deux séquences d'évolution sont distinguées : (1) Triphylite \rightarrow ferroalluaudite + chlorapatite \rightarrow fluorapatite et (2) Triphylite \rightarrow ferrisicklerite \rightarrow heterosite. Une phase d'hydratation aurait affecté simultanément la triphylite et la ferroalluaudite, produisant la barbosalite et la tavorite, d'une part, et la barbosalite et la mélonjosephite, d'autre part. L'altération superficielle transforme notamment la ferroalluaudite et la chlorapatite en un mélange intime de lipscombite et de mitridatite.

On propose de considérer la ferroalluaudite, résultant de la transformation métasomatique, et la ferrisicklerite et l'heterosite, produits issus du lessivage de Li et de l'oxydation concomitante des cations métalliques de transition, comme minéraux typomorphes sur la base de leur composition chimique. De plus, il semble que, vu le rôle de Ca dans la ferrisicklerite ainsi que le processus d'oxydation mis en évidence dans les ferroalluaudites, la formation de ferroalluaudite oxydée et de ferrisicklerite se soit déroulée simultanément. Grâce à la découverte de chlorapatite, nécessitant un apport de Ca et de Cl dans la phase fluide hydrothermale, on suggère que Li est lessivé sous forme de chlorure lors de l'oxydation de la triphylite en ferrisicklerite mais que l'excès de Ca a notablement restreint le développement de ce mécanisme d'altération à Angarf-Sud.

Mots-clés : phosphates Fe-Mn, apatites Cl et F, pegmatites, évolution génétique, Maroc.

Genetic evolution and significance of the phosphate mineral assemblages in the Angarf-Sud pegmatite, Tazenakht Plain, Anti-Atlas, Morocco.

Abstract. — New electron microprobe chemical analyses on the phosphate minerals from the Angarf-Sud pegmatite, Tazenakht Plain, Anti-Atlas, Morocco, confirm or specify the chemical composition for triphylite, ferrisicklerite, heterosite, ferroalluaudite, chlorapatite, and fluorapatite. The crystallographic properties are also yielded for the Fe³⁺ very rich ferrisicklerite (a = 5.843, b = 9.913 and c = 4.783 Å) and for the ferroalluaudite, rich in Fe²⁺ and poor in Mn (a = 11.989, b = 12.541, c = 6.434 Å and $\beta = 114^{\circ}6'$). The 21 phosphate minerals presently known in the pegmatite are listed in a recapitulatory way.

On the basis on both the chemical data and the petrographic relationships observed in thin sections, the discussion of the different stages of the whole evolution process from one generation of triphylite, rich in Fe and Mg, leads up to the proposal of genetic schemas. Two evolution sequences are distinguished : (1) Triphylite \rightarrow ferroalluaudite + chlorapatite \rightarrow fluorapatite, and (2) Triphylite \rightarrow ferrisicklerite \rightarrow heterosite. A hydration stage could have altered both triphylite and ferroalluaudite, giving barbosalite and tavorite, on one hand, and barbosalite and melonjosephite, on the other one. The weathering transforms, among others, ferroalluaudite and chlorapatite into a fine grained mixture of lipscombite and mitridatite.

For ferroalluaudite, as a result of the metasomatic transformation, as well as for ferrisicklerite and heterositeccccc products of the Li leaching and concomitant oxidation of the transition metallic cations, we propose to consideeeeeee their chemical composition as a typomorphic character. Moreover, taking into account the role of Ca in thomshold ferrisicklerite chemical composition and the oxidation process observed for the ferroalluaudites, the formation oxxxxxx oxidized ferroalluaudite and ferrisicklerite is thought to be a simultaneous phenomenon. Subsequently to thomson

detection of chlorapatite requiring an increase of the activity of both Ca and Cl in the fluid hydrothermal phase, it is also suggested that the Li is leached as chloride during the oxidation of triphylite into ferrisicklerite. However, the large amount of Ca, in the case of the Angarf-Sud pegmatite, seems to have drastically restricted the development of this oxidation stage.

Key words : Fe-Mn phosphates, Cl- and F-bearing apatites, pegmatites, genetic evolution, Morocco.

INTRODUCTION

La pegmatite d'Angarf-Sud, dite "lentille à béryl" (Bouladon et al., 1950), constitue une des plus importantes du champ pegmatitique mis en place dans les migmatites et les micaschistes précambriens de la plaine de Tazenakht, Anti-Atlas, Maroc. Longue de 100 m, puissante d'environ 25 m et orientée NNE, la pegmatite d'Angarf-Sud présente, sur le terrain, une allure sub-elliptique et une structure nettement zonée. Au contact du corps pegmatitique, les micaschistes se chargent de bâtonnets de tourmaline noire, formant une auréole continue de 20 à 30 cm. La zone externe de la lentille, épaisse d'1 m, abrite de gros empilements de muscovite avec du quartz et un peu de feldspath potassique interstitiels. La zone intermédiaire de largeur variable, contient essentiellement des cristaux de feldspath potassique, parfois énormes (3 à 4 m³), et du quartz. Le noyau de quartz considérable peut atteindre 15 m de puissance dans la partie visible. Au contact de la zone intermédiaire avec cette masse de quartz, existaient quelques amas de béryl pierreux dont 350 t furent extraites depuis l'origine jusqu'en 1951 (Morin, 1952). Au voisinage des poches à béryl, se trouvent des concentrations de phosphates, accolées au noyau de quartz et se débitant en nodules dont le diamètre peut atteindre 20 à 30 cm.

En plus de l'importance économique due à la richesse en béryl, les problèmes de la minéralogie des phosphates de la pegmatite d'Angarf-Sud, effleurés par les premiers observateurs, ont suscité un intérêt certain à l'occasion du XIX^e Congrès géologique international d'Alger en 1952 et de nombreux échantillons de phosphates ont été distribués dans le monde. Malheureusement, les recherches ont été abandonnées et les résultats non publiés.

Un regain d'intérêt concernant les phosphates de ce gisement s'est récemment manifesté parun ensemble de données minéralogiques détail-!!!!!!lées sur la barbosalite (Čech *et al.*, 1972), sur la mélonjosephite (Fransolet, 1973), sur la triphylite riche en magnésium et la tavorite (Fransolet, 1974) et sur divers phosphates d'origine tardive (Fransolet, 1984). Des considérations génétiques ont également été publiées sur le remplacement de la muscovite par la scorzalite (Fransolet, 1975*a*) et sur la séquence d'évolution triphylitealluaudite-fluorapatite (Fransolet, 1975*b*).

Présentée à l'occasion du jubilé scientifique de Monsieur F. Permingeat, Directeur de recherche du C.N.R.S. au laboratoire de Minéralogie de l'Université Paul-Sabatier de Toulouse, qui a activement participé à la mise en valeur des pegmatites à muscovite et béryl de la plaine de Tazenakht, cette recherche poursuit trois objectifs. Le premier est consacré à la mise au point des données minéralogiques récemment acquises sur les phosphates de la pegmatite d'Angarf-Sud. Le deuxième, purement descriptif, concerne les relations structurales complexes des associations de phosphates. Enfin le troisième objectif s'attache à la discussion et à la proposition d'un schéma génétique des phosphates sur la base d'arguments pétrographiques et géochimiques.

NOUVELLES DONNÉES MINÉRALOGIQUES

Méthodes analytiques

La grande majorité des déterminations minéralogiques repose sur l'identification par diffraction des rayons X. Cependant, dans quelques cas, l'examen pétrographique des lames minces a décelé des minéraux en quantité trop faible pour appliquer ce contrôle d'identification systématique. Sur la base des diffractogrammes de poudre, dont la lecture des d est corrigée à l'aide d'un étalon interne Pb(NO₃)₂, les paramètres cristallographiques des phosphates majeurs ont été calculés grâce au programme Fortran d'affinement par moindres carrés (Evans *et al.*, 1963).

Bien que certaines analyses chimiques aient été faites par voie humide (J.-M. S.), notamment dans le cas de mélanges pour envisager l'évolution globale des assemblages de phosphates, l'examen des lames minces et les résultats de l'étude par diffraction des rayons X montrent souvent que la composition chimique des phosphates ne peut être valablement établie qu'à partir d'analyses effectuées à la microsonde électronique. Celles-ci ont été réalisées par l'un de nous (K.A.) au moyen d'un équipement CA-MEBAX complètement automatisé. Les conditions opératoires sont 15 kV et 15 nA. Les composés suivants ont servi d'étalons : quartz (Si), berlinite synthétique (P), Al2O3 (Al), Fe3O4 (Fe), Mn métal, MgO (Mg), albite (Na), wollastonite (Ca), NaCl (Cl) et topaze (F).

Afin de déterminer qualitativement le rôle des anions dans les apatites, en particulier, celui de OH^- et CO_3^{2-} , quelques spectres infrarouges ont été enregistrés à l'aide d'un spectromètre BECKMAN IR 4250, dans le domaine de 300 à 4000 cm⁻¹, sur des pastilles contenant 2,5 et 7 mg de matière finement broyée et dispersée dans KBr.

Descriptions minéralogiques

Un nouvel examen des échantillons analysés (Fransolet, 1975b et 1984) ainsi qu'une investigation du matériel recueilli à Angarf-Sud, lors de l'excursion organisée par la Société française de Minéralogie et de Cristallographie en 1981, ont permis de préciser les propriétés minéralogiques de l'alluaudite, de la ferrisicklerite et des apatites, et d'obtenir des informations complémentaires sur la triphylite, l'heterosite et la scorzalite à partir d'analyses chimiques à la microsonde électronique.

1. La triphylite

De nouvelles analyses à la microsonde, sur une triphylite très fraîche et riche en Mg, montrent, d'un échantillon à l'autre, des variations peu significatives (Tableau I). La teneur en Mn fluctue légèrement ; celles en Fe et Mg restent pratiquement constantes. Vis-à-vis de l'analyse chimique effectuée par voie humide (Fransolet, 1974), les résultats des mesures à la sonde indiquent l'existence d'une triphylite légèrement plus ferreuse, alors que Mg ne varie pas. Si on

1	1	2	3	4	5	6
		(N=3)	(N=9)	(N=6)	(N=5)	(N=4)
SiO,	114.10	0,18	- 1	0,16	0,22	0,24
P205	45,62	45,14	46,18	47,03	47,09	47,25
Fe ₇ 0 ₃	0,62			44,76	43,29	41,86
FeO	35,42	36,55	37,22	-		-
MnO	4,64	3,20	2,79	1,97	2,49	3,57
MgO	3,71	3,68	3,85	3,57	3,83	3,75
CaO	0,12	-	0,01	0,10	0,83	0,76
Na ₂ 0	0,23	-	0,01	0,01	-	0,02
Li ₂ 0	9,41	[9,41]	19,641	[1,20]	[1,32]	[1,36
H20	0,31	-		0.4.3	20-VI)	1141
total	100,08	98,16	99,70	98,80	99,07	98,81
Nombres de cations	calculés	sur la	base de	4(P,Si)	dans la	maille
p5+	4.00	3,98	4,00	3,98	3,98	3,98
Si ⁴⁺	-	0,02	-	0,02	0,02	0,02
Fe ³⁺	0,05	-	-	3,37	3,25	3,13
Fe ²⁺	3,07	3,18	3,18	-	-	-
Mn ²⁺	0,41	0,28	0,24	0,17	0,21	0,27
Mg ²⁺	0,57	0,57	0,59	0,53	0,57	0,56
Ca ²⁺	0,01	1-11		0,01	0,09	0,08
$\Sigma(2)$	4,11	4,03	4,01	4,08	4,12	4,04
Na ⁺	0,05		-	-	0.000	-
Li ⁺	3,92	3,94	3,97	0,48	0,53	0,54
Σ(1)	3,97	3,94	3,97	0,48	0,53	0,54
Fe/(Fe+Mn)	0,88	0,92	0,93	0,95	0,94	0,92
		0.07	0 94	0.96	0.95	0,93

 $\Sigma(1)$: somme des cations sur le site M1 de cette structure.

TABLEAU I. — Analyses chimiques de la triphylite, de la ferrisicklerite et de l'heterosite d'Angarf-Sud.
1. Analyse par voie humide de la triphylite (Analyste J.-M. Speetjens in Fransolet, 1974); 2-6. Analyses à la microsonde électronique (Analyste : K. Abraham) de la triphylite (2 et 3), de la ferrisicklerite (4 et 5) et de l'heterosite (6) associée à la ferrisicklerite (5). N indique le nombre d'analyses

ponctuelles effectuées par échantillon. Le pourcentage en poids de Li_2O est calculé en respectant l'équilibre des charges dans la formule.

Chemical analyses of triphylite, ferrisicklerite, and heterosite from Angarf-Sud. 1. Wet chemical analysis of triphylite (Analyst: J.-M. Speetjens in Fransolet, 1974); 2-6. Electron microprobe analyses (Analyst: K. Abraham) of triphylite (2 and 3), ferrisicklerite (4 and 5), and heterosite (6) associated with ferrisicklerite (5). N gives the number of the point analyses made on one sample. The weight percentage of Li_2O is calculated to balance the charges in the formula.

envisage les éléments mineurs, Na et Ca, il est vraisemblable que la triphylite analysée par voie humide n'était pas pure. Les teneurs en Na₂O et CaO (Tableau I, colonne 1), non détectées à la sonde, font évidemment penser à la présence d'alluaudite et de jahnsite qui pénètrent profondément le long des clivages dans les noyaux de triphylite (voir plus loin). Malgré les impuretés, on ne doit pas exclure la possibilité d'une faible variation du rapport $Fe^{2+}/(Fe^{2+}+Mn)$ de 0,88 à 0,93 dans le minéral.

Il ressort donc que le contenu élevé en Mg de la triphylite est confirmé, ainsi que son caractère très ferreux, la rapprochant du pôle extrême LiFePO₄. Les trois analyses (Tableau I) sont également reportées dans le diagramme triangulaire Fe_{tot}-Mn-Mg de la figure 1.

2. La ferrisicklerite

Moins fréquente que la triphylite et la ferroalluaudite, la ferrisicklerite se reconnaît rapidement par sa teinte brun chocolat à brun rougeâtre dans la cassure, et par son éclat un peu résineux. Elle se débite suivant les clivages orthogonaux et il n'est pas rare d'observer des rosettes de rockbridgeite brune ou des encroûtements fins de jahnsite miel, tapissant ces plans de clivage. En lames minces, elle apparaît biaxe positive, avec un 2 V de l'ordre de 50 à 60°, une dispersion r < v nette et un pléochroïsme distinct et peu intense : X = jaune ocre, Y = brun jaune.

Il est impossible d'envisager une analyse chimique par voie humide car la ferrisicklerite est envahie par l'alluaudite, la jahnsite et la rockbridgeite. La composition chimique est établie sur la base d'analyses à la sonde ; deux analyses représentatives sont fournies dans le tableau I. Les nombres de cations sont calculés sur la base de $4(PO_4)^{3-}$ dans la maille ; le nombre de Li⁺ correspond au déficit des charges positives. On remarque le contenu élevé en Mg, de l'ordre de 0,55 atomes par maille, comparable à celui de la triphylite. Cette richesse en Mg n'est pas exceptionnelle car, d'une part, dans une ferrisicklerite de la pegmatite de Tuva, URSS, Martyanov et



FIG. 1. — Représentation, dans le diagramme triangulaire Fe_{tot}-Mn-Mg, de la composition chimique de triphylite (carrés), de la ferrisicklerite (cercles), de l'heterosite (étoile) et des ferroalluaudites (triangles) de la pegmatite d'Angarf-Sud (voir tableaux I, II et III). Les symboles vides correspondent aux analyses chimiques par voie humide, les symboles pleins, à celles effectuées à la microsonde électronique.

Plot of the chemical composition of triphylite (squares), ferrisicklerite (circles), heterosite (star), and ferroalluaudites (triangles) from the Angarf-Sud pegmatite in the ternary diagram Fe_{tot} -Mn-Mg (see tables I, II and III). The empty symbols refer to the wet chemical analyses, the full symbols to the electron microprobe analyses.

Pinevitch (1954) ont dosé 3,92 % MgO en poids et, d'autre part, Fontan (1978) donne une analyse chimique à la microsonde d'une ferrisicklerite, provenant d'une pegmatite du Massif des Trois Seigneurs, Ariège, France, avec 3,8 % MgO en poids. Cependant, la ferrisicklerite d'Angarf-Sud se distingue par son contenu en Fe^{3+} , de l'ordre de 3,3 atomes par maille. Il est certainement le plus élevé, actuellement connu, si on se réfère aux données recensées par Fontan et al. (1976) et Shigley (1982). Avec un rapport $Fe^{3+}/(Fe^{3+}+Mn^{2+})$ oscillant entre 0.95 et 0.925 (Tableau I), le minéral se rapproche fortement du terme extrême en Fe³⁺ de la série ferrisicklerite-sicklerite. Les deux analyses sont reportées dans le diagramme triangulaire de la figure 1. Si on compare le contenu en Fe total, Mn et Mg de ces deux ferrisicklerites avec celui des triphylites analysées dans les mêmes conditions (colonnes 2 et 3 du tableau I), on peut considérer, compte tenu des erreurs analytiques, qu'ils sont pratiquement identiques. Cette observation se dégage également de l'examen des rapports (Fetot+Mg)/(Fetot+Mg+Mn) indiqués dans le tableau I.

Le diffractogramme de poudre, se rapportant à la ferrisicklerite dont l'analyse est reprise dans la colonne 5 (Tableau I), permet de calculer les paramètres de la maille orthorhombique : a =5,843(1) Å, b = 9,913(2) Å, c = 4,783(1) Å et V = 277,03(6) Å³. Ces propriétés cristallographiques, comparées avec celles de la ferrisicklerite de Sidi-Bou-Othmane, caractérisée par un rapport (Fe_{tot}+Mg)/(Fe_{tot}+Mg+Mn) = 0,661 (Fontan *et al.*, 1976), montrent nettement l'influence de Fe³⁺ et Mg²⁺ sur le rétrécissement des dimensions de la maille.

3. L'heterosite

Identifiée dans une masse d'alluaudite (Fransolet, 1975b), l'heterosite, assez rare, a été retrouvée dans un échantillon, lors de l'examen des ferrisicklerites. Biaxe négative, l'heterosite se distingue par son pléochroïsme plus intense (X = jaune brun et Z = rouge pourpre), observé sur une section presque parallèle au plan des axes optiques.

D'après le résultat de l'analyse chimique de cette heterosite (Tableau I et figure 1), on constate que le rapport $(Fe_{tot}+Mg)/(Fe_{tot}+Mg+Mn)$ et le contenu de 0,56 atomes Mg par maille n'ont pas varié de manière significative par

rapport aux valeurs obtenues pour la ferrisicklerite associée. Pour équilibrer les charges dans la formule, la teneur calculée de 1,36 % Li_2O correspond à 0,54 atomes Li par maille, nombre proche du contenu en Mg. Si on ne tient pas compte du Ca, la formule idéalisée de l'heterosite est :

 $(Li_{0,14}^+\Box_{0,86})(Fe_{0,79}^{3+}Mg_{0,14}^{2+}Mn_{0,07}^{3+})(PO_4)$

comparable à celle de la ferrisicklerite associée,

 $(Li_{0,19}^+\Box_{0,81})(Fe_{0,81}^{3+}Mg_{0,14}^{2+}Mn_{0,05}^{2+})(PO_4)$

Ces deux minéraux ne présentent donc que peu de différences dans leur composition chimique. A cause de la prédominance nette de Mg sur Mn en site M2, l'oxydation du Mn dans l'heterosite n'affecte que faiblement le nombre de Li^+ en site M1.

L'heterosite et la ferrisicklerite d'Angarf-Sud présentent d'ailleurs des diagrammes de poudre pratiquement identiques. Faisant suite à une remarque de Fontan *et al.* (1976) sur l'identité des termes idéaux et extrêmes, ferrisicklerite et heterosite Fe³⁺PO₄, il est évident que l'heterosite d'Angarf-Sud, proche du terme extrême et très riche en Mg, mériterait une investigation détaillée de ses propriétés minéralogiques, malgré la très faible quantité de matière actuellement disponible.

4. La ferroalluaudite

Suite aux données minéralogiques et aux conclusions sur l'alluaudite en masses abondantes, deux types d'alluaudite avaient été distingués sur la base de leur contenu en calcium, alors que leurs propriétés minéralogiques varient peu (Fransolet, 1975b).

L'examen de l'alluaudite la moins riche en Ca confirme les données antérieures. Cette alluaudite se présente relativement pure, en masses vert bleuté, tenaces et compactes, bordées d'une croûte irrégulière d'apatite cryptogrenue gris rose à rougeâtre qui les recoupe également en veinules anastomosées. L'examen des propriétés optiques est délicat à cause de l'état finement grenu de l'alluaudite. En lame mince, elle est biaxe positive avec un 2V grand, une dispersion r < v forte et un pléochroïsme très net et intense : X = gris vert, légèrement bleuté ; Y = Z = vert bouteille avec une nuance bleutée. L'orientation optique correspond à celle observée par Thoreau (1954) et Huvelin *et al.* (1977) En frottis de grains minuscules, encore très absorbants, l'indice de réfraction moyen = 1,775(5).

L'analyse chimique de cette alluaudite par voie humide est présentée dans le tableau II. En s'appuyant sur les observations des lames minces, la contamination par la barbosalite, estimée à environ 10 %, n'est pas négligeable. L'analyse recalculée fait apparaître que la teneur en H_2O de 0,45 % pourrait être due à la présence de barbosalite.

L'établissement de la formule structurale, suivant le modèle proposé par Moore (1971) et les nombres de cations calculés sur la base de $12(PO_4)^{3-}$ dans la maille, donne :

- $M2 = 0.05 \text{ Al}^{3+} + 5.47 \text{ Fe}^{3+} + 1.57 \text{ Mg}^{2+} + 0.01 \text{ Li}^{+} + 0.90 \text{ Fe}^{2+}$ M1 = 2.87 Fe²⁺ + 1.13 Mn²⁺
- $X1 = 0.25 \text{ Mn}^{2+} + 1.71 \text{ Ca}^{2+} + 2.04 \text{ Na}^{+}$
- $X2 = 2,06 \text{ Na}^+ + 1,94 \square$

	а	Ъ	с	d
P205	42,81	43,75	12,000	11,810
A1203	0,12	0,13	0,050	0,049
Fe ₂ 0 ₃	24,17	22,43	5,468	5,382
FeO	14,30	13,93	3,774	3,714
MnO	4,51	5,04	1,383	1,361
MgO	2,91	3,25	1,569	1,545
CaO	4,42	4,94	1,715	1,688
Na ₂ 0	5,84	6,52	4,096	4,031
Li ₂ 0	0,01	0,01	0,013	0,013
H20	0,45	-	-	-
Insol.	0,69	-	-	-
total	100,23	100,00		

TABLEAU II. — Composition chimique d'une ferroalluaudite d'Angarf-Sud. a : Analyse par voie humide (Analyste : J.-M. Speetjens) ; b : Recalculée à 100 % après avoir soustrait 10 % de barbosalite Fe²⁺Fe²⁺₂(PO₄)₂(OH)₂ en impuretés ; c : Nombres de cations sur la base de 12 PO₄ dans la maille ; la somme des charges positives est 37,545 d'où un excès de 1,545 ; d : Nombres de cations sur la base de 48 oxygène dans la maille.

Chemical composition of a ferroalluaudite from Angarf-Sud. a : Wet chemical analysis (Analyst : J.-M. Speetjens); b : Recalculated to 100 % after subtraction of 10 % barbosalite $Fe^{2+}Fe^{3+}(PO_4)_2$ (OH)₂ as impurity; c : Cation numbers on the basis of 12 PO₄ in the cell; the sum of the cationic charges is 37.545 with an excess of 1.545; d : Cation numbers on the basis of 48 oxygen in the cccccccell.

D'après la colonne c du tableau II, ce calcul conduit à un excès de 1,545 charges positives. Cet écart, comparé aux résultats obtenus par Moore et Ito (1979) est acceptable. Si on établit les nombres de cations sur la base de 48 oxygène, le nombre de P dans la maille serait 11,810. L'analyse recalculée paraît donc valable. La distribution des cations sur les différents sites cristallographiques met en évidence le rôle essentiel de Fe³⁺ sur M2, de Fe²⁺ sur M1, de Na⁺ sur X1 et X2. On note, sur ce dernier, des lacunes assez importantes. D'après la classification des alluaudites proposées par Moore et Ito (1979), ce minéral serait donc une ferroalluaudite-NaNa. Le diffractogramme de poudre de cette ferroalluaudite permet de calculer les paramètres de la maille monoclinique : a =11,898(2); b = 12,541(2); c = 6,434(1) Å, $\beta = 114^{\circ}6'(1')$ et V = 876.3(2) Å³.

L'alluaudite en association directe avec la triphylite a donné près de 12 % CaO en poids, malgré soustraction de 5 % d'apatite en impuretés (Fransolet, 1975b). Comme la précédente, cette alluaudite est vert sombre et finement grenue. Son indice de réfraction moyen est de 1,79 \pm 0,01. De manière générale, son pléochroïsme est plus intense : X = rose saumon avec une nuance verdâtre et Z = vert bleu, mais l'orientation optique est identique.

L'examen par diffraction des rayons X du produit analysé (Fransolet, 1975b) a montré que le rôle des impuretés était largement sousestimé. Par comparaison avec les données cristallographiques acquises sur la ferroalluaudite massive, cette alluaudite est mélangée à de l'apatite et à de la barbosalite dans des proportions importantes. La richesse en Ca serait liée à la présence d'une apatite en grains fins, imbriqués dans la structure en mosaïque (voir plus loin).

Dans le but de fixer les idées sur le rapport Fe^{2+}/Fe^{3+} , un des critères essentiels de la classification de Morre et Ito (1979), le nombre de Fe^{3+} est calculé de manière à réaliser l'équilibre électrique à partir de l'analyse chimique à la microsonde, comme le suggère Fontan (1978).

Sept analyses chimiques d'alluaudites sont données dans le tableau III, ainsi que les nombres de cations calculés sur la base de $12(PO_4)^{3-}$ et leur répartition sur les sites M2, M1, X1 et X2 définis par Moore (1971). L'examen rapide

LES PHOSPHATES DE LA PEGMATITE D'ANGARF-SUD

1		1	2	3	4	5	6	7
		N=3	N=3	N=3	N=4	N=6	N=4	N=4
	P205	44,61	44,70	44,26	43,08	43,26	43,11	43,20
	FeO	31,78	34,21	34,31	30,58	31,74	29,43	31,00
	MnO	5,87	3,64	5,08	5,73	6,49	8,10	5,99
	MgO	4,95	3,80	2,82	4,21	3,45	4,83	4,81
	CaO	3,44	3,66	3,33	3,49	ā ,54	3,66	3,77
	NazO	9,84	10,77	10,53	8,37	8,87	7,45	7,06
	total	100,49	100,78	100,33	95,46	97,35	96,58	95,83
	Nombre	s de cat	ions cal	culés sur	la base	de 12	PO4 dans	la maille
	p ⁵⁺	12,00	12,00	12,00	12,00	12,00	12,00	12,00
	Fe ²⁺	8,44	9,07	9,19	8,41	8,70	8,09	8,51
	Mn ²⁺	1,58	0,98	1,38	1,60	1,80	2,26	1,66
	Mg ²⁺	2,34	1,80	1,35	2,06	1,68	2,37	2,35
	Ca ²⁺	1,17	1,24	1,14	1,23	1,24	1,29	1,33
	Na ⁺	6,06	6,62	6,54	5,34	5,63	4,75	4,49
	۵	2,88	3,20	3,34	4,06	3,53	3,23	3,81
	Fe ³⁺	2,88	3,20	3,34	4,06	3,53	3,23	3,81
	Fe ²⁺	5,56	5,87	5,85	4,35	5,17	4,86	4,70
	Formul	es crist	allochim	iques d'aj	près Moo	re (197	/1)	
	Mg ²⁺	2,34	1,80	1,35	2,06	1,68	2,37	2,35
MZ	Fe ³⁺	2,88	3,20	3,34	4,06	3,53	3,23	3,81
	Fe ²⁺	2,78	3,00	3,31	1,88	2,79	2,40	1,84
	Fe ²⁺	2,78	2,87	2,54	2,47	2,38	2,46	2,86
M1	Mn ²⁺	1,22	0,98	1,38	1,53	1,62	1,54	1,14
	Ca ²⁺	11-11	0,15	0,08	100	-	2.561	1.4.1
	Mn ²⁺	0,36	12.01	-	0,07	0,18	0,72	0,52
X1 -	Ca ²⁺	1,17	1,09	1,06	1,23	1,24	1,29	1,33
	Na	2,47	2,91	2,94	2,70	2,58	1,99	2,15
x2	j Na ⁺	3,59	3,71	3,60	2,64	3,05	2,76	2,34
	0	0.41	0.29	0.40	1.36	0 95	1.24	1.66

S.

uj iti

t

TABLEAU III. — Analyses chimiques à la microsonde électronique des ferroalluaudites d'Angarf-Sud. 1-5 : Ferroalluaudite associée à la triphylite ; 6 et 7 : Ferroalluaudite associée à la ferrisicklerite. Δ : Déficit entre les charges cationiques et les 36 charges négatives des groupes PO₄, lorsque Fe est exprimé sous forme de FeO. N : voir tableau I. Analyste : K. Abraham.

Electron microprobe analyses of ferroalluaudite from Angarf-Sud. 1-5: Ferroalluaudite associated with triphylite; 6 and 7: Ferroalluaudite associated with ferrisicklerite. Δ : Deficit between the cationic charges and the 36 negative charges of the PO₄ groups, when Fe is given as FeO. N: see Table I. Analyst: K. Abraham.

des formules cristallochimiques (Tableau III) montre qu'il s'agit encore de *ferroalluaudite*-NaNa (Moore et Ito, 1979). On remarque cependant que ces alluaudites sont plus riches en fer ferreux que celle analysée par voie humide (Tableau II). Bien que Fe^{3+} soit systématiquement dominant sur le site M2, le rôle de Fe^{2+} n'y est

pas négligeable, en particulier dans le cas des trois premières analyses (association directe avec de la triphylite fraîche) pour lesquelles le rapport Fe³⁺/Fe⁺ sur M2 est proche de 1/1. On note encore la distribution très irrégulière de Mg qui passe de 1,35 à 2,37 atomes par maille. Par comparaison avec les données analytiques de Fontan (1978) et de Moore et Ito (1979), une telle richesse en Mg n'est pas fréquente ; une alluaudite du Massif des Trois Seigneurs en contiendrait 2.88 atomes et celle de Dyke Lode, Black Hills, 2,41. Le site M1 est essentiellement occupé par Fe²⁺ et on constate que Mn²⁺ peut varier de 0,98 à 2,26 atomes par maille. Na est largement représenté sur X1 et Ca est constant. Enfin, sur le site X2, Na domine et il faut noter que les lacunes réticulaires sont faibles dans les trois premières analyses.

Pour cette alluaudite riche en Fe^{2+} , on est d'ailleurs tenté de proposer une formule idéalisée, NaNaFe²⁺(Fe³⁺Fe²⁺)₂(PO₄)₃, entre la ferrohagendorfite et la ferroalluaudite, suivant les critères de Moore et Ito (1979).

Toutes les analyses chimiques des alluaudites (Tableaux II et III) sont représentées dans le diagramme triangulaire Fe_{tot}-Mn-Mg (Figure 1), d'une part, et dans le diagramme Fe²⁺-Fe³⁺-Mn (Figure 2), proposé par Fisher (1957), d'autre part. Cette dernière représentation met immédiatement en évidence l'originalité de la composition chimique des ferroalluaudites d'Angarf-Sud, peu oxydées et pauvres en Mn.

5. Les apatites

Les récentes investigations nous amènent à distinguer la chlorapatite et la fluorapatite pour lesquelles les données concernent essentiellement la composition chimique.

La chlorapatite se présente en petites plages (30 à 50 microns) incolores et de biréfringence faible ($\approx 0,008$), intimement associées à la ferroalluaudite. L'examen par diffraction des rayons X a permis de la reconnaître dans le mélange avec la ferroalluaudite et la barbosalite, grâce à deux raies anormalement intenses à 2,842 Å (1231) et à 2,757 Å (3030), qui coincident pratiquement avec les d(221) et (041) de la ferroalluaudite. D'après l'analyse chimique à la microsonde et le calcul de la teneur en H₂O (Tableau IV), la composition idéale de cette apatite est :



FIG. 2. — Représentation, dans le diagramme triangulaire de Fisher (1957), de la composition chimique des ferroalluaudites d'Angarf-Sud (triangles noirs de 1 à 8). Comparaison avec les données antérieures : 1-17 (Moore et Ito, 1979); 18-19 (Quensel, 1940); 20 (Mason, 1941a); 21 (Haapala, 1966); 22-23 Buranga (Fransolet, 1975b) et 24 Buranga (Boury, 1981).

Plot of the chemical composition of the ferroalluaudites from Angarf-Sud (black triangles 1-8) in the Fisher's (1957) triangular diagram. Comparison with the previous data : 1-17 (Moore et Ito, 1979); 18-19 (Quensel, 1940); 20 (Mason, 1941a); 21 (Haapala, 1966); 22-23 Buranga (Fransolet, 1975b), and 24 Buranga (Boury, 1981).

$(Ca_{4,6}Fe_{0,2}Mn_{0,2})_5(PO_4)_3(Cl_{0,5}OH_{0,3}F_{0,2})$

La *fluorapatite* cryptogrenue très abondante forme une croûte parfois épaisse, enveloppant les nodules de phosphates. Elle montre une

	1	2	3
	(N=6)	(N=6)	
P205	41,11	40,92	42,86
Fe0	3,03		0,45
MnO	2,75	-	0,10
MgO		100	0,06
Sr0	-	-	0,09
CaO	48,93	54,69	55,03
Na ₂ 0	-	-	0,09
K20	-	-	0,01
H ₂ O	[0,50]*	[0,12]*	0,64
F	0,90	3,00	2,04
C1	3,21	0,79	n.d.
Insol.	16.51.5		0,54
	100,43	99,52	101,91
O#C1#F	- 1,10	- 1,44	- 0,86
total	99,33	98,08	101,05

cassure conchoïdale, faiblement esquilleuse qui rappelle le silex. En lame mince, elle se présente comme celle qui remplace l'alluaudite de Sidi-bou-Othmane, Maroc (Huvelin *et al.*, 1972). Elle est caractérisée par un rapport c/a de 0,734 (Fransolet, 1975b). Une analyse chimique à la microsonde et une autre par voie humide sont données dans le tableau IV. Par comparaison, on note immédiatement que cette fluorapatite ne montre aucune substitution sur le site Ca, décelable à la sonde. Les éléments mineurs,

TABLEAU IV. — Analyses chimiques des apatites d'Angarf-Sud. 1: Chlorapatite, et 2: Fluorapatite. Analyse à la microsonde électronique (Analyste : K. Abraham). 3: Analyse par voie humide (Analyste : J.-M. Speetjens) effectuée sur une prise de fluorapatite non purifiée. N : voir tableau I.

Chemical analyses of apatites from Angarf-Sud. 1 : Chlorapatite, and 2 : Fluorapatite. Electron microprobe analyses by K. Abraham. 3 : Wet chemical analysis (Analyst : J.-M. Speetjens) made on unpurified fluorapatite. N : see Table I. dosés par voie humide, seraient dus à des impuretés, principalement l'hématite $(0,54 \% Fe_2O_3)$ et les phosphates en veinules qui traversent la croûte en tous sens. La composition idéale de la fluorapatite est :

$$Ca_5(PO_4)_3(F_{0,82}Cl_{0,12}OH_{0,06})$$

Contrairement à la chlorapatite, la fluorapatite contient de faibles teneurs en CO_3^{2-} , détectées qualitativement sur les spectres infrarouges qui révèlent, systématiquement dans le cas des fluorapatites, des bandes distinctes vers 1430 et 1460 cm⁻¹.

6. La scorzalite

Bien que les propriétés chimiques et cristallographiques de ce minéral aient déjà fait l'objet d'une publication (Fransolet, 1975*a*), une analyse à la microsonde a été effectuée sur la scorzalite corrodant la muscovite.

D'après le tableau V, cette nouvelle analyse nous amène à proposer la composition (Fe_{0.63} $Mg_{0.37}$)Al₂(PO₄)₂(OH)₂, comparable à celle de la scorzalite de Corrego Frio, Minas Gerais, Brésil (Pecora et Fahey, 1950). Ce résultat indique une teneur en Fe plus élevée que celle obtenue antérieurement qui donnait un rapport Fe/(Fe+Mg) = 0,54 (Fransolet, 1975a). De telles variations sur la composition chimique d'une scorzalite d'un même assemblage de phosphates, provenant de la pegmatite de Buranga, Rwanda, sont actuellement mises en évidence. Toutefois, la présence d'impuretés pourrait expliquer cet écart entre les deux résultats analytiques sur la scorzalite d'Angarf-Sud. Les premiers essais de dosage à la microsonde n'avaient pas abouti car les tests d'homogénéité avaient décelé une importante contamination de ce minéral par des granules microscopiques d'apatite et d'hématite (Fransolet, 1975b).

Ces essais avaient également attiré l'attention sur l'existence d'une phase indéterminée, uniquement constituée de P et Al, véritablement interstratifiée entre la scorzalite et la muscovite, parallèlement au plan de clivage de celle-ci. L'observation des lames minces montre un cas isolé où ce phosphate d'aluminium se distingue plus nettement. Grâce à sa structure nématique fine, il préserve l'aspect légèrement incurvé des lamelles de muscovite. Puisque le phosphate d'aluminium, caractérisé par des macles polysynthétiques (Figure 3), est biaxe positif avec un

	Scorzalite	Phosphate indéterminé	Mélonjosephite	Barbosalite	Tavorite
P205	43,27	32,62	39,50	36,36	39,64
A1,0,	30,27	-	-	-	-
Fe_0_	-	46,39	[22,28]	[40,41]	44,17
Fe0	14,19	-	[16,97]	[12,98]	-
MnO	-	2,78	0,25	2,23	0,12
MgO	4,63	1,86	1,78	1,59	0,28
CaO	-	1,00	15,21	0,08	0,05
Na ₂ 0	-	1,98	-	-	-
Li ₂ 0	-	-	-	-	[8,34]
щŐ	[5,49]	?	[2,51]	[4,83]	[5,03]
total	97,85	-?-	98,50	98,48	97,63

TABLE V. — Analyses chimiques représentatives à la microsonde électronique. Analyste : K. Abraham. Les valeurs entre crochets sont calculées pour H₂O (suivant le nombre de groupes OH pour équilibrer la formule) et pour Li₂O (un Li dans la formule de la tavorite). La teneur en FeO obtenue pour la mélonjosephite est 37,02 % et est recalculée en FeO et Fe₂O₃ pour que Fe³⁺ = 1 dans la formule. La teneur en FeO obtenue pour la barbosalite est 49,35 % et est recalculée pour que Fe³⁺ = 2 dans la formule.

Representative electron microprobe analyses. Analyst : K. Abraham. The weight percentages in brackets are calculated for H_2O (following the OH group number balancing the formula), and for Li₂O (1 Li in the tavorite formula). The total iron weight content for mélonjosephite is 37.02 % as FeO; it is recalculated as FeO and Fe₂O₃ for Fe³⁺ = 1 in the formula. The total iron weight content for barbosalite is 49.35 %; it is recalculated for Fe³⁺ = 2 in the formula.

2V estimé à (+) 70° et possède des teintes d'interférences dans les gris blanc du premier ordre, on pourrait se trouver en présence d'une montebrasite. Il est exclu d'envisager une identification par diffraction des rayons X et la détermination de cette montebrasite reste, pour l'heure, sujette à caution.

A l'issue de ces descriptions minéralogiques, le tableau V fournit également les résultats des analyses chimiques, d'une part, sur un phosphate jaune or indéterminé, repéré en lame mince, qui remplace la ferrisicklerite à partir des clivages, et d'autre part, sur la mélonjosephite, la barbosalite et la tavorite déjà connues dans le gisement.

Enfin, en guise de conclusion à cette première partie, le tableau VI récapitule les 21 phosphates reconnus à ce jour dans la pegmatite d'Angarf-



FIG. 3. — Association scorzalite (en grains irréguliers S) - montebrasite (?) (en plages maclées et allongées M). L'étirement et le ploiement des plages du phosphate d'aluminium maclé préservent la structure feuilletée d'une plage de muscovite complètement remplacée. Nicols croisés.

Association scorzalite (irregular grains S) - montebrasite (?) (twinned and elongated grains M). The elongation and bending of the twinned Al phosphate preserve the foliated structure of a completely replaced muscovite grain. Crossed nicols.

Sud, donne une approximation de leur fréquence et reprend soit leur composition chimique idéalisée, soit leur formule chimique généralement admise, ainsi que les références bibliographiques.

EXAMEN DES RELATIONS PÉTROGRAPHIQUES

Faisant suite à une première description des relations structurales qui caractérisent les phosphates des assemblages de la pegmatite d'Angarf-Sud (Fransolet, 1975b), les faits essentiels de l'examen pétrographique sont complétés par les observations effectuées sur de nouveaux échantillons.

La triphylite se présente toujours en plages monominérales incolores, de dimensions centimétriques, caractérisées par des clivages orthogonaux. Ces plans de clivage favorisent l'envahissement progressif de la triphylite par divers minéraux, notamment la jahnsite, la barbosalite et la tavorite. En outre, on trouve, dans quelques échantillons, la *ferroalluaudite* seule au sein des plages monominérales, en grains vert bleu pléochroïques à contours crénelés, d'une taille de 80 à 100 microns. Ils s'imbriquent pour former des chapelets, souvent parallèles aux clivages, donnant naissance à des bourgeonnements ou des îlots qui corrodent le minéral-hôte. Entre les deux minéraux, le contact est rarement net; il est souvent souligné et masqué par des granules de barbosalite (Figure 4).

Ce phénomène de remplacement aboutit à la formation d'une auréole verte d'alluaudite, à structure en mosaïque. La taille des grains imbriqués n'a pas varié mais l'épaisseur de cette auréole systématique est très irrégulière. Dans certains cas, le noyau de triphylite est inexistant et la masse n'est pratiquement constituée que de ferroalluaudite (cas de l'échantillon mentionné dans le tableau II). Lorsqu'elle est relativement proche de la triphylite, la ferroalluaudite apparaît fraîche en lame mince. Sinon, on y observe des bouffées diffuses ou des alignements irréguliers de barbosalite en granules, de rares plaquettes hypidiomorphes d'hématite et de petits cristaux automorphes de quartz bipyramidés, partiellement remplacés par l'alluaudite. Associée à cette alluaudite, la chlorapatite forme des plages incolores, également à contours crénelés, qui participent à la structure en mosaïque. Il n'est pas possible, à partir des seules observations au microscope polarisant, de distinguer un remplacement de l'alluaudite par la chlorapatite ; ces deux minéraux donnent plutôt l'impression d'une syncristallisation.

La mélonjosephite se développe en une frange irrégulière ou en nids polygranulaires à structure allotriomorphe vers la périphérie de l'auréole de ferroalluaudite et, le plus souvent, au contact même avec la croûte de fluorapatite. En plus de son pléochroïsme intense, la mélonjosephite se distingue de l'alluaudite par la dimension plus grande des individus (pouvant atteindre 400 microns). Elle se présente rarement en veinules qui recoupent l'alluaudite, parfois jusqu'au noyau de triphylite. Au contact de l'alluaudite qu'elle remplace, la mélonjosephite s'entoure de barbosalite. La chlorapatite, parfois associée à la mélonjosephite, n'y a jamais été observée en plages finement dispersées.

La triphylite subit encore un phénomène de remplacement lié au développement du couple barbosalite-tavorite, d'une part, et à celui de la jahnsite, d'autre part. A la faveur des clivages, la barbosalite en granules serrés presque opa-

LES PHOSPHATES DE LA PEGMATITE D'ANGARF-SUD

TRIPHYLITE *	Li(Fe _{0.8} Mg _{0.15} Mn _{0.05})PO ₄	(2)(7)
FERROALLUAUDITE*	$Na_2Fe_2^{2+}Fe_3^{3+}(PO_4)_3 \rightarrow NaFe_2^{2+}Fe_2^{3+}(PO_4)_3$	(7)
FLUORAPATITE *	Ca ₅ (PO ₄) ₃ (F _{0.82} Cl _{0.12} OH _{0.06})	(5) (7)
SCORZALITE*	(Fe _{0.65} Mg _{0.37})Al ₂ (PO ₄) ₂ (OH) ₂	(4)(7)
LIPSCOMBITE*	$Fe_{0,6}^{2+}Fe_{2,4}^{3+}(PO_{4})_{2}(O_{0,4}OH_{1,6})$	(6)
MITRIDATITE*	Ca ₆ (H ₂ O) ₆ [Fe ₉ ³⁺ O ₆ (PO ₄) ₉].3H ₂ O	(6)
Systématiquement présen	ts, en plus faible quantité	
FERRISICKLERITE*	Lin 2 (Fen 8Mg. 15Mn. 05) PO4	(7)
MELONJOSEPHITE*	$CaFe^{2+}Fe^{3+}(PO_{A})_{2}(OH)$	(3)(5)
BARBOSALITE	$Fe^{2+}Fe_{2}^{3+}(PO_{A})_{2}(OH)_{2}$	(1)(7)
TAVORITE*	LiFe ³⁺ PO ₄ (OH)	(2) (6) (7
JAHNSITE*	$CaMn_2(Mg,Fe)_AFe_A^{3+}(PO_A)_8(OH)_2.18H_2O(?)$	(5)(6)
CHLORAPATITE*	(Ca _{4,6} Pe _{0,2} Mn _{0,2}) (PO ₄) ₃ (C1 _{0,5} OH _{0,3} F _{0,2})	(7)
Pas rares	THEY AN AN AN ANY ANY	
ROCKBRIDGEITE	$(\text{Fe}^{2+},\text{Mn})\text{Fe}_{4}^{3+}(\text{PO}_{4})_{3}(\text{OH})_{5}$	(6)
WHITLOCKITE	Ca ₁₈ Mg ₂ H ₂ (PO ₄) ₁₄	(6)
Rares		
ETEROSITE *	Li _{0.15} (Fe ³⁺ _{0.8} Mg _{0.15} Mn ³⁺ _{0.05})PO ₄	(7)
UREAULITE rose	Mn ₅ (PO ₄) ₂ (HPO ₄) ₂ .4H ₂ O	(6)
ESSELITE	Ca ₂ (Fe ²⁺ , Mn) (PO ₄) ₂ , 2H ₂ O	(6)
ONTGOMERYITE	Ca4MgA14 (PO4)6 (OH)4.12 H20	(6)
HOSPHOSIDERITE	FeP04.2H20	(6)
		(7)
ONTEBRASITE (?)	LIAIPO4 (OH,F)	(,)

TABLEAU VI. — Liste des phosphates identifiés dans la pegmatite d'Angarf-Sud. List of the identified phosphate minerals from the Angarf-Sud pegmatite.

ques, et la tavorite, en fines aiguilles ou en nids cryptogrenus, dessinent une sorte de treillis à mailles carrées, isolant des logettes de triphylite



(Figure 4). Le comportement de ces deux minéraux, intimement associés, est complexe. Parallèlement aux clivages de la phase-mère, on observe de fines traînées vert foncé de barbosalite

FIG. 4. — Remplacement de la triphylite (T) par la ferroalluaudite (FA) à partir des clivages du minéral-hôte, essentiellement. On observe les grains opaques de barbosalite (B) et les plages cryptogrenues de tavorite (TA) corrodant la triphylite également à partir de ses clivages. Nicols croisés.

Replacement of triphylite (T) by ferroalluaudite (FA) mainly along the cleavages of the hostmineral. Barbosalite (B) as opaque grains, and cryptocrystalline tavorite (TA) corrode triphylite along its cleavages too. Crossed nicols.

(larges de 5 à 10 microns) et, de part et d'autre de celles-ci, des aiguilles de tavorite disposées normalement, formant un ruban de 20 à 40 microns dont le contact avec le minéral-hôte est ondulé et ourlé par une pellicule de barbosalite. Prolongeant en quelque sorte ces rubans de barbosalite-tavorite, il n'est pas rare de trouver la jahnsite en plages étirées suivant la direction des traces de clivage. Il faut cependant noter que la jahnsite peut se propager indépendamment du développement du couple barbosalite-tavorite. Au fur et à mesure que l'on se rapproche de l'auréole d'alluaudite, ce réseau d'altération se resserre. La barbosalite devient particulièrement dense et les alvéoles subrectangulaires de triphylite résiduelle sont davantage envahies par la jahnsite (Figure 5).



FIG. 5. — Remplacement pratiquement complet de la triphylite par la barbosalite (B), la tavorite (TA) et la jahnsite (J). Les plans de clivages orthogonaux de la phase hôte sont encore discernables, plus ou moins préservés par ce mécanisme de remplacement. Nicols croisés.

Nearly complete replacement of triphylite by barbosalite (B), tavorite (TA), and jahnsite (J). The orthogonal cleavages of the host-mineral are still visible, more or less preserved by this replacement process. Crossed nicols.

Si on considère maintenant les relations entre la *ferrisicklerite* et l'alluaudite, on peut simplement remarquer qu'elles sont identiques à celles décrites entre la triphylite et l'alluaudite. Toutefois, alors que la jahnsite envahit presque systématiquement les clivages de la ferrisicklerite, on n'y observe pas de couple barbosalite-tavorite caractéristique. Les relations entre la triphylite et la ferrisicklerite n'ont pu être examinées que

dans un seul échantillon. Quelques alvéoles résiduelles de triphylite, baignant dans la trame de barbosalite-tavorite et de jahnsite, en bordure de la zone à alluaudite, ont montré le contact entre la triphylite et la ferrisicklerite. Illustré à la figure 6, ce contact rappelle une observation faite par Boury (1981) dans les assemblages de phosphates Fe-Mn de Buranga, et par Fransolet et al. (1983) dans ceux de Tsaobismund, Namibie. La ferrisicklerite ne pénètre pas dans les clivages de la triphylite mais elle se présente en lamelles disposées en chevrons entrecroisés suivant une direction qui fait immédiatement penser à celles des lamelles d'exsolutions de sarcopside dans la triphylite (Peacor, 1969 ; Fransolet, 1977a).

Entre la ferrisicklerite et l'heterosite, les relations sont nettement différentes. La seconde remplace la première d'une façon absolument identique à celle observée dans la pegmatite de Marivolanitra, Madagascar (Fransolet, 1975b) et dans la pegmatite de Sidi-bou-Othmane (Fontan et al., 1976). L'heterosite se développe dans la ferrisicklerite à la faveur des fractures ou des clivages envahis par l'alluaudite altérée, par le phosphate jaune or indéterminé ou par des produits opaques (oxydes de Fe ?).



FIG. 6. — Association montrant la triphylite (T) (avec ses clivages encore visibles dans le coin supérieur gauche, plus ou moins parallèles aux bords du cliché photographique), la ferrisicklerite (FE) en lamelles gris foncé et la barbosalite (B) en grains opaques. Nicols croisés.

Association showing triphylite (T) (with its cleavages still visible in the upper left corner, almost parallel to the picture edges), dark grey lamellae of ferrisicklerite (FE), and opaque grains of barbosalite (B). Crossed nicols. La scorzalite est toujours associée à la muscovite en écailles centimétriques dans la zone corticale des masses de phosphates, mais également dans l'alluaudite et parfois même dans la triphylite. Le remplacement du mica par la scorzalite a déjà été décrit (Fransolet, 1975*a*). Cependant, on a pu détecter des plages incolores et maclées, qui pourraient être identifiées à de la montebrasite, en mélange intime avec la scorzalite. Dans un cas, deux minéraux ont complètement remplacé une paillette de muscovite (Figure 3).

Toutes les masses de phosphates montrent un cortex plus ou moins épais (de quelques mm à 3 cm) constitué de fluorapatite de couleur gris blanc à rouge violacé (voir plus haut ; tableau IV). De plus, des veinules de fluorapatite recoupent, en tous sens, les nodules de phosphates. Le passage de la zone à alluauditemélonjosephite à cette zone corticale est macroscopiquement franc. Sous le microscope polarisant, alluaudite et mélonjosephite sont corrodées par cette apatite. La chlorapatite se charge d'impuretés microscopiques mais il est très difficile de saisir la transition chlorapatite-fluorapatite. Le contact entre alluaudite et apatite, finement dentelé, est souvent masqué par une accumulation d'oxydes de Fe ou de mitridatite.

La fluorapatite cryptogrenue présente une texture chagrinée. Les grains xénomorphes de 30 à 50 microns ont des extinctions ondulantes et prennent souvent un aspect fibreux à grossièrement sphérolitique, suggérant une cristallisation assez rapide. La teinte rougeâtre de cette apatite est provoquée par une pigmentation extrêmement fine d'hématite ou d'oxydes de Fe amorphes aux rayons X, en traînées ou bouffées diffuses. Il n'est pas rare de rencontrer des plaquettes idiomorphes d'hématite, des cubes de pyrite fracturés, recimentés et recoupés par des lamelles d'hématite, et quelques grains corrodés de chalcopyrite accessoire.

Cette croûte de fluorapatite est sillonnée de minces veinules d'une apatite plus tardive, s'accompagnant de mitridatite et de jahnsite. De tels filonnets peuvent d'ailleurs recouper les masses de phosphates jusqu'au noyau de triphylite ou de ferrisicklerite. Ni la barbosalite, ni la tavorite, ni la mélonjosephite n'ont été reconnues dans la fluorapatite.

Des amas de quartz fissuré, localement teinté en rouge par des paillettes d'hématite, sont fréquents dans l'alluaudite ou la fluorapatite. Ces fissures sont garnies de mitridatite, de jahnsite et d'apatite. Les observations en lame mince n'ont pas permis de trouver des relations entre l'huréaulite rose, la messelite, la whitlockite et la montgomeryite.

Enfin, sur le terrain, certains nodules de phosphates verts, garnis d'une croûte de fluorapatite, rappellent les masses d'alluaudite. Toutefois, ce noyau vert foncé, avec des nuances vert brun ou vert olive, terreux dans la cassure et parfois pulvérulent, est constitué par un mélange intime de *lipscombite* et de *mitridatite*, avec quelques mouches de goethite. Dans les cavités, se développent des rosettes bien cristallisées de mitridatite, de rares cristaux de phosphosidérite (Fransolet, 1984) et quelques houppes de fluorapatite. En lame mince, on observe des plages résiduelles de ferroalluaudite et de mélonjosephite, alors qu'aucune trace d'altération n'est visible dans l'enveloppe de fluorapatite.

DISCUSSION ET PROPOSITION D'UN SCHÉMA GÉNÉTIQUE

D'après les observations sur le terrain et l'examen minéralogique et pétrographique, la triphylite, en masses importantes, est le seul phosphate lithique primaire de la pegmatite d'Angarf-Sud. De plus, elle serait encore le seul minéral qui aurait entraîné, d'une façon notable, au cours de sa cristallisation dans la zone intermédiaire, la fixation de Fe, de Mg et de Mn. En effet, bien que des minéraux appartenant au groupe des niobo-tantalates aient été recueillis dans quelques pegmatites de la plaine de Tazenakht, aucun n'a été trouvé en place à Angarf-Sud (Permingeat, 1955).

L'étude du comportement de la triphylite en réponse à des modifications physico-chimiques, liées à l'évolution du gisement pegmatitique, conduit à la proposition d'un schéma génétique, traduisant, par comparaison avec d'autres gisements, une certaine originalité des assemblages de phosphates de la pegmatite d'Angarf-Sud.

Les données antérieures (Fransolet, 1974, 1975a et b) et les faits nouveaux d'observations nous amènent à distinguer cinq aspects qui seront discutés successivement : les relations entre la triphylite et la scorzalite, la séquence triphylite-ferroalluaudite + chlorapatite-fluorapatite, le processus d'oxydation triphylite-ferrisicklerite-heterosite, la phase d'hydratation et l'altération superficielle.

1. Les relations entre la triphylite et la scorzalite

Parmi les 21 phosphates recensés dans le gisement, deux sont riches en aluminium : la scorzalite et, probablement, la montebrasite. L'examen pétrographique montre à l'évidence que ces deux minéraux remplacent la muscovite, source d'Al lors de sa déstabilisation en présence d'une solution enrichie en phosphore, fer et magnésium (Fransolet, 1975a). De plus, triphylite et scorzalite auraient cristallisé presque simultanément ; la formation d'une éventuelle montebrasite renforcerait cette hypothèse. Bien que la présence de cette "montebrasite" ne soit pas systématique entre la muscovite corrodée et la scorzalite, le remplacement du mica résulte d'une réaction complexe en deux étapes : la première donnant un phosphate d'Al (lithique ?) et la deuxième conduisant au remplacement de celui-ci par la scorzalite. Ce mécanisme de transformation d'une muscovite en phosphates d'aluminium également décrit à Sidi-bou-Othmane (Fontan, 1978) et, en particulier, celui d'une muscovite en montebrasite mérite de retenir l'attention au cours de recherches ultérieures. Il se présente exactement à l'inverse de celui récemment décrit par London et Burt (1982), à savoir l'altération de montebrasite en muscovite.

2. La séquence triphylite-ferroalluaudite + chlorapatite-fluorapatite

Comme le développement de cette séquence constitue un phénomène complexe, remarquablement bien exprimé dans la pegmatite d'Angarf-Sud, nous envisagerons séparément les deux étapes.

a) Le remplacement de la triphylite par la ferroalluaudite

Moore (1971) donne une liste d'occurrences antérieurement décrites et fournit de nouveaux exemples illustrant ce type de remplacement, fréquent dans les assemblages de phosphates. Le cas étudié ici vient confirmer la conclusion de cet auteur : l'alluaudite remplace la triphylite par un processus d'échange métasomatique Li \rightarrow Na. Cependant, l'étude détaillée de ce mécanisme apporte des arguments nouveaux sur trois points précis.

S'appuyant sur les conclusions de Moore (1971) et de Moore et Molin-Case (1974) ainsi que sur les observations de Huvelin et al. (1972), nous avons accepté que, dans certains cas, le rapport Fe/(Fe+Mn) soit maintenu constant au cours du remplacement métasomatique de la triphylite par l'alluaudite (Fransolet, 1977b). Si on compare les points 1 (triphylite) et 8 (alluaudite) dans le diagramme de la figure l, cette hypothèse se justifie encore quand on se limite aux seuls résultats des analyses par voie humide. En revanche, les analyses à la microsonde montrent que la ferroalluaudite tend à s'enrichir en Mn et Mg d'une manière assez sensible par rapport à la phase-mère (Figure 1). Des variations du contenu en Fe. Mn et Mg ont également été observées entre la triphylite et l'alluaudite de Tsaobismund (Fransolet et al., 1983). On ne peut donc plus affirmer qu'au cours de la transformation triphylite-alluaudite, les cations métalliques de transition restent immobiles. Toutefois, dans le cas présent, les particularités de la composition chimique de la triphylite se reflètent dans celle de la ferroalluaudite, à savoir la richesse en Mg et la pauvreté en Mn.

Le deuxième point concerne l'état d'oxydation des différentes ferroalluaudites d'Angarf-Sud. D'une manière générale, d'après les analyses chimiques (Tableaux II et III), ces alluaudites sont peu oxydées par rapport à celles connues dans la littérature (Figure 2). De plus, on constate que les alluaudites directement associées à la triphylite contiennent 8,5 à 10 % Na₂O en poids, que celles en relation avec la ferrisicklerite révèlent 7 à 7,5 % Na2O et que l'alluaudite du tableau II montrant quelques plages d'heterosite n'en contient que 6,5 %. On note encore, d'après la figure 7, que le contenu en Ca ne varie pas de façon très sensible. L'idée de distinguer, au sein des alluaudites s.l., un processus d'oxydation comparable à celui du groupe triphylite-ferrisicklerite-heterosite, comme le proposaient Quensel (1940) et Mason (1941a), se justifie effectivement. Dans le cas d'Angarf-Sud, on peut également suggérer, en idéalisant les résultats analytiques obtenus, une



FIG. 7. — Représentation, dans le diagramme triangulaire (Fe+Mn+Mg)O-Fe₂O₃-CaO, de la séquence majeure triphylite - ferroalluaudite + chlorapatite - fluorapatite, de la composition chimique de la mélonjosephite, de la barbosalite (d'après Čech et al., 1972), de la mitridatite et de la lipscombite (d'après Fransolet, 1984). La flèche 1-2 montre également le résultat de l'altération supergène d'un assemblage ferroalluaudite + chlorapatite + barbosalite (point 1) en une association lipscombite + mitridatite (+ goethite et/ou phosphosidérite) (point 2). Voir Tableau VII. Les traits interrompus relient les minéraux qui résulteraient d'une syncristallisation (voir texte).

Triangular diagram (Fe+Mn+Mg)O - Fe_2O_3 -CaO, and plot of the major evolution sequence triphylite ferroalluaudite + chlorapatite - fluorapatite, as well as of the chemical composition of mélonjosephite, of barbosalite (following Čech et al., 1972), of mitridatite, and of lipscombite (following Fransolet, 1984). The arrow 1-2 also shows the result of the supergene alteration of an assemblage ferroalluaudite + chlorapatite + barbosalite (point 1) into an association lipscombite + mitridatite (+ goethite and/or phosphosiderite) (point 2). See Table VII. The dashed lines connect the minerals considered as syncrystallization products (see text).

sous-séquence

NaNaFe²⁺(Fe³⁺Fe²⁺)(PO₄)₃ \rightarrow

 \Box NaFe²⁺(Fe³⁺)₂(PO₄)₃

dont nous reparlerons plus loin.

Enfin, la coexistence d'une apatite très riche en chlore avec la ferroalluaudite, constitue un fait important sous-estimé au départ (Fransolet, 1975b). Dans la littérature, on dispose de peu d'informations sur la présence d'apatite intimement associée à l'alluaudite. Ce mélange n'existe pas, ainsi à Buranga (Fransolet, 1975b et 1977b), à Tsaobismund (Fransolet *et al.*, 1983) ou n'a pas attiré l'attention. A Sidi-bou-Othmane, Huvelin *et al.* (1972) signalent des veinules d'apatite et défalquent 1,51 % de fluorapatite pour obtenir la composition chimique de l'alluaudite. En ce qui concerne la présence de chlore ou de chlorapatite dans de tels assemblages, les données de la littérature sont également très discrètes. Il est donc important de rappeler ici que des traces de Cl ont été détectées dans les varulites de Varuträsk par Th. Berggren (*in* Quensel, 1940) et que, parmi les produits d'altération de la lithiophilite des pegmatites du district White Picacho, Arizona, une chlorapatite, riche en Mn, a été analysée par London et Burt (1982).

A Angarf-Sud, le mélange ferroalluauditechlorapatite est pratiquement systématique, ce qui nous porte à croire que le remplacement métasomatique de la triphylite y est plus complexe. Il y a un échange Li \rightarrow Na+Ca produisant à la fois de l'alluaudite et de la chlorapatite.

La présence d'une telle apatite apporte quelques informations nouvelles sur cet échange métasomatique. D'après Ekström (1973), la quantité de chlore dans l'apatite est essentiellement contrôlée par la température, le pH et l'activité en Cl⁻ de la phase fluide. Pour Latil et Maury (1977), la fixation de Cl⁻ dans l'apatite est principalement conditionnée par le pH du milieu de formation, alors que l'influence de la température est mineure. Sur la base de la teneur en chlore observée dans l'apatite associée à la ferroalluaudite et grâce aux indications fournies par ces auteurs, on peut raisonnablement penser que la phase fluide, responsable de la transformation métasomatique, est plutôt acide et que l'activité de F y est négligeable vis-à-vis de celle de Cl-. Dès lors, il semblerait que le vecteur de l'échange métasomatique Li \rightarrow Na+Ca soit le chlore. On est alors tenté de proposer les réactions H₂O

et

$$Li^+ + CaCl_2 \xrightarrow{H_2O} Ca^{2+} + Cl^- + LiCl$$

 $Li^+ + NaCl \rightarrow Na^+ + LiCl$

 Li^+ provenant de la triphylite, Na⁺ formant l'alluaudite, et Ca²⁺ et Cl⁻ précipitant sous forme de chlorapatite.

Il ne faut toutefois pas comparer ce mécanisme à celui de formation des chlorapatites lors de la scapolitisation. En effet, celles-ci se développent à température élevée, par interaction de solutions riches en phosphore et chlore avec des roches calciques. Ici, on doit envisager un apport de Ca et Cl qui réagit avec un phosphate primaire, processus devenant impossible si on considère des températures élevées (Valyashko et al., 1968). Malheureusement, il n'est pas encore possible de fixer un ordre de température, mais d'après les nombreux travaux expérimentaux sur l'apatite, on pourrait suggérer que le remplacement de la triphylite par la ferroalluaudite et la chlorapatite à Angarf-Sud s'est opéré en-dessous de 400°C.

c) La formation de fluorapatite

Le développement d'une couronne de fluorapatite, remplaçant la paragenèse alluauditechlorapatite, de façon parfois spectaculaire à Angarf-Sud, n'est pas un phénomène propre au gisement. Par exemple, la varulite de Varuträsk, Suède, est remplacée par une hydroxylapatite manganésifère (Mason, 1941b). Dans la pegmatite de Hunnakko, Finlande, il s'agit d'une apatite riche en CO₂ (Haapala, 1966). A Sidi-bou-Othmane, Huvelin *et al.* (1972) décrivent une croûte de fluorapatite corrodant l'alluaudite. Le même processus est observé à Tsaobismund (Fransolet *et al.*, 1983).

Ce remplacement par la fluorapatite marque un nouveau changement dans le processus d'évolution des assemblages de phosphates. L'aspect de cette apatite fait d'abord penser à un gel qui aurait cristallisé rapidement. Sa formation, à l'exclusion de tout autre phosphate, s'est accompagnée d'une migration pratiquement complète de Na, Mn, Mg, ainsi que de Fe dont une partie a cependant recristallisé sous forme d'hématite ou d'oxydes amorphes, disséminés dans la fluorapatite. De plus, la fluorapatite, postérieure au dépôt des sulfures, s'est développée dans des conditions oxydantes : la chalcopyrite est corrodée et la pyrite se transforme en hématite. Enfin, la présence de fluorapatite indique un léger enrichissement en F⁺ dans la solution hydrothermale et un abaissement de la température. D'après Latil et Maury (1977), on ne doit pas non plus écarter la possibilité d'un déplacement partiel du Cl⁻ par F⁻ et OH⁻ dans la chlorapatite elle-même, lors de ce changement des conditions de milieu.

3. Le processus d'oxydation triphylite-ferrisicklerite-heterosite

Ce processus d'oxydation, fréquemment observé dans les assemblages de phosphates des pegmatites granitiques, n'est pas très développé dans le gisement d'Angarf-Sud. La ferrisicklerite y est peu abondante et l'heterosite, rare. L'examen pétrographique nous a montré que les deux étapes de ce processus présentent des relations structurales différentes.

D'après la figure 6, le contact entre triphyliteferrisicklerite, lorsqu'il n'est pas masqué par des phénomènes d'altération postérieure, montre des lamelles de ferrisicklerite dont l'orientation dans la phase-mère rappelle celle des exsolutions de sarcopside. La comparaison des formules cristallochimiques de ces minéraux est également suggestive :

 $\begin{array}{c} \text{Li}_2\text{Fe}_2^{2+}(\text{PO}_4)_2 \ - \ (\ \Box \ \text{Fe}^{2+})(\text{Fe}_2^{2+})(\text{PO}_4)_2 \\ \text{triphylite} \qquad \text{sarcopside} \end{array}$

et

 $\underset{ triphylite}{\text{Li}_2(\text{Fe}^{2+}\text{R}^{2+})(\text{PO}_4)_2 - (\text{Li} \Box)(\text{Fe}^{3+}\text{R}^{2+})(\text{PO}_4)_2 }$

où \mathbb{R}^{2+} = Mn, Mg.

Un mécanisme de cristallisation de la ferrisicklerite peut être proposé à partir de ces constatations, ce qui expliquerait la discontinuité observée dans la distribution du Fe^{2+} et du Fe^{3+} entre triphylite et ferrisicklerite. En présence d'une solution oxydante, la triphylite se corrode et Li migre. Il en résulte, au contact solidefluide, un micromilieu appauvri en Li qui recristallise en donnant deux phases solides, non miscibles, isostructurales et qui se fixent sur la triphylite-mère suivant un processus épitaxique, déjà évoqué par Keller (1974). L'intensité du lessivage de Li, couplé au pouvoir oxydant de la solution aboutit au remplacement progressif, voire même complet de la triphylite.

D'après les données analytiques (Tableau I et figure 1), le rapport Fe/Mn/Mg ne varie pas de manière très significative lors de ce processus d'oxydation, comme cela a été récemment confirmé après analyses à la microsonde des triphylites et des ferrisicklerites de Tsaobismund (Fransolet *et al.*, 1983). Cependant, d'après le tableau I, on remarque, dans la ferrisicklerite et dans l'heterosite, des teneurs non négligeables en CaO, alors que, dans la phase-mère, cet élément est en faible quantité, à la limite de sensibilité de la méthode d'analyse.

Cet enrichissement assez sensible en Ca de la ferrisicklerite par rapport à la triphylite, qui vient compliquer le schéma théorique du processus d'oxydation tel qu'on l'admet généralement (Fontan et al., 1976), semble constituer, dans le cas d'Angarf-Sud, un critère important dans l'établissement de la séquence globale de l'évolution des phosphates. En effet, l'apparition de chlorapatite, accompagnant la ferroalluaudite lors du processus métasomatique, traduit un accroissement de l'activité de Ca, auquel la ferroalluaudite paraît peu sensible (Figure 7). De plus, on a également noté un appauvrissement net en Na. partant un état d'oxydation plus élevé dans la ferroalluaudite associée à la ferrisicklerite (voir tableau III). Ces observations tendent à montrer qu'au cours du développement du processus métasomatique, les conditions physicochimiques ne sont pas uniformes. Ainsi, le lessivage de Li, déjà provoqué par l'échange métasomatique, se poursuit pour donner de la ferrisicklerite, et ce déficit en alcalins finit par affecter également Na, ce qui se traduit dans la sous-séquence proposée ferroalluaudite \rightarrow ferroalluaudite oxydée. En d'autres termes, cela signifierait que la formation de ferrisicklerite, ferroalluaudite oxydée et même de chlorapatite pourrait être pratiquement simultanée dans le processus d'évolution globale. De plus, le chlore, vecteur de Na et de Ca au cours de la transformation métasomatique de la triphylite, faciliterait l'élimination du Li sous forme de chlorure lors du processus d'oxydation qui donne la ferrisicklerite et qui aboutit à l'heterosite.

A Angarf-Sud, le remplacement assez discret de la ferrisicklerite par l'heterosite peut également s'expliquer par un mécanisme de croissance épitaxique (Keller, 1974), sans faire apparaître des phénomènes de démixtions intermédiaires. Comme le notent Fontan et al. (1976), la zone de transition entre ferrisicklerite et heterosite est très étroite et on observe un changement brusque dans la variation des couleurs d'absorption des deux minéraux. Toutefois. d'après les formules chimiques indiquées plus haut, le passage de la ferrisicklerite à l'heterosite n'implique pas ici un lessivage complet du Li, suivant le schéma théorique traditionnel (Mason, 1941a). Cette phase d'oxydation peu développée semble prendre place, bien après la formation des alluaudites, au contact de solutions résiduelles oxydantes.

4. La phase d'hydratation

Depuis la description de la barbosalite et de la tavorite par Lindberg et Pecora (1955), la transformation de triphylite en un mélange intime de ces deux minéraux a souvent été mise en évidence. Toutefois, l'huréaulite, également associée à ce couple barbosalite-tavorite (Fransolet, 1976), n'a pas été observée à Angarf-Sud où ce processus d'altération est nettement exprimé (Figures 5 et 6).

Même sans analyse chimique globale de cette paragenèse, on peut admettre, sur la base d'analyses des minéraux considérés séparément (Tableau V), que la transformation de la phasemère, au cours de laquelle Ca et Na ne semblent pas intervenir, s'accompagne d'une hydratation. importante, d'une oxydation notable du Fe et d'un lessivage partiel de Li. L'absence d'huréaulite pourrait être liée à la pauvreté relative en Mn de la phase-mère, élément que l'on trouve en faibles teneurs dans la barbosalite et la tavorite (Tableau V).

La formation ultérieure de jahnsite dans les clivages de la triphylite semble indiquer un prolongement de l'action de cette phase d'hydratation, avec une influence accrue du Ca.

En plus de son association intime avec la tavorite, au cours de l'altération de la triphylite, la présence de barbosalite dispersée dans la ferroalluaudite et, localement, en relation avec la formation de mélonjosephite, pose un problème supplémentaire dans l'interprétation du processus d'évolution.

En effet, on pourrait d'abord supposer que la barbosalite dans la ferroalluaudite résulte de la précipitation du léger excès de Fe, remobilisé lors de la métasomatose sodique et calcique, et qui ne s'est pas fixé dans l'alluaudite dès lors enrichie en Mn et Mg (Figure 1). Nous manquons d'arguments pour défendre cette hypothèse, d'autant plus que l'hématite dispersée dans l'alluaudite aurait pu jouer ce rôle. On est donc amené à envisager le remplacement de la ferroalluaudite par la barbosalite, celle-ci pouvant s'associer à la mélonjosephite, suite à l'action d'une phase d'hydratation lessivant Na.

Dans l'état actuel des connaissances, nous pensons que l'apparition de minéraux hydratés dans la triphylite (barbosalite-tavorite) et dans la ferroalluaudite mélangée à la chlorapatite (barbosalite-mélonjosephite) résulterait d'une même phase d'hydratation, altérant des contextes minéralogiques différents, lithique d'une part et sodico-calcique d'autre part. A l'appui de cette hypothèse, on peut rappeler la présence de mélonjosephite, associée à la barbosalite et à la tavorite dans la triphylite de la pegmatite de Sandamab, Namibie (Keller, 1974 et 1980).

Il n'en est pas moins vrai que des conditions particulières ont présidé à l'élaboration de la mélonjosephite. On remarque que ce minéral se développe aux dépens de l'alluaudite de préférence au contact de la fluorapatite, indiquant ainsi le résultat d'une réaction qui transformerait l'alluaudite lors de la mise en place de cette apatite. Cette condition ne semble pas suffire. Haapala (1966) et Huvelin *et al.* (1972) ne font pas état d'un minéral particulier au contact alluaudite-apatite. D'un autre côté, la composition chimique du mélange alluaudite-chlorapatite semble avoir joué un rôle important. On peut s'en rendre compte par le diagramme triangulaire, illustré à la figure 7. En y comparant la composition de la mélonjosephite avec l'analyse moyenne de deux échantillons de ce mélange (point 1 dans le diagramme) dans lequel intervient cependant la barbosalite (Tableau VII), on constate que Ca n'a pratiquement pas migré et que le rapport (Fe²⁺ + Mg²⁺ + Mn²⁺) / Fe³⁺ est resté sensiblement constant dans la mélonjosephite et dans le mélange.

	1	2
P205	41,73	35,87
A1203	0,06	0,02
Fe ₂ 0 ₃	16,45	43,59
FeO	15,11	1,36
MnO	3,66	2,32
MgO	1,99	0,12
CaO	14,52	8,69
Na ₂ 0	4,43	0,05
K20	0,01	<0,01
Li ₂ 0	0,11	11.1
HZO	1,27	5,86
CI	traces	-
Insol.	0,54	1,82
	99,88	99,71

TABLEAU VII. — Analyses chimiques globales. 1: Mélange ferroalluaudite-chlorapatite-barbosalite (moyenne de deux analyses); 2 : Mélange mitridatite-lipscombite (et goethite ?) (moyenne de deuxanalyses). Analyste : J.-M. Speetjens.

Bulk chemical analyses. 1 : Average of two analyses on a mixture ferroalluaudite-chlorapatite-barbosalite; 2 : Average of two analyses on a mixture mitridatite-lipscombite (and goethite ?). Analyst: J.-M. Speetjens.

Si on admet d'une part, que la mélonjosephite remplace la ferroalluaudite et la chlorapatite suite au développement de la fluorapatite et, d'autre part, que barbosalite, tavorite et mélonjosephite proviennent d'une même altération, par hydratation, on peut suggérer que la phase d'hydratation a été amorcée au moment de la formation de la fluorapatite.

5. L'altération superficielle

Les noyaux vert brun à vert olive, constitués

d'un mélange intime de lipscombite et de mitridatite, avec parfois de la goethite, enrobés dans une croûte de fluorapatite, sont le résultat d'un processus d'altération sélective qui a affecté la ferroalluaudite, la chlorapatite, la barbosalite et la mélonjosephite. D'après les descriptions de Čech *et al.* (1972), il n'est pas exclu que le mélange barbosalite-mitridatite, analysé par ces auteurs, soit également un produit d'altération de ferroalluaudite. Il s'agirait d'une étape localisée du processus d'altération, dans laquelle la barbosalite résultant elle-même d'une transformation par hydratation de la ferroalluaudite, serait particulièrement abondante et aurait résisté à l'altération en lipscombite.

act

si-

ite

eut

u-

se

e

Nous avons effectué deux analyses chimiques par voie humide du mélange lipscombite-mitridatite, dont la moyenne est comparée à celle des deux analyses de l'association ferroalluauditechlorapatite (Tableau VII). Cela montre que l'altération s'est accompagnée d'un apport notable de H₂O et d'un lessivage de Na, Mn et Mg. En représentant ces résultats dans le diagramme triangulaire de la figure 7 (points 1 et 2), on constate, de plus, une oxydation importante de fer et un léger appauvrissement du contenu en Ca. Le point 2 dans ce diagramme indique, par rapport au mélange lipscombite-mitridatite, un excès de Fe³⁺ dû à la présence de phosphosidérite et de goethite (Fransolet, 1984).

L'occurrence de mitridatite et de phosphosidérite dans ces associations nous permet de considérer la dernière étape comme un phénomène typiquement superficiel. Résulte également d'une telle altération, la rockbridgeite en rosettes dans les fissures de l'alluaudite ou de la ferrisicklerite. Enfin, parmi les minéraux tardifs, localisés dans les fissures de l'apatite ou du quartz, on observe un assemblage à huréaulite rose, jahnsite brune, messelite, montgomeryite et whitlockite, dont les quatre derniers sont caractérisés par leur contenu en Ca, Fe et Mg (Fransolet, 1984).

A la fin de cette discussion des problèmes génétiques, une synthèse est proposée sous forme de deux schémas, exposés dans les figures 8 et 9. Le premier (Figure 8) présente l'évolution générale des phosphates de la pegmatite d'Angarf-Sud à partir de la triphylite, mettant surtout l'accent sur les deux séquences envisagées. Le second schéma (Figure 9), d'allure nettement plus paragénétique, insiste sur le rôle essentiel des principaux événements géochimiques dans cette évolution.

CONCLUSIONS GÉNÉRALES

Dans l'étude de l'évolution génétique et géochimique des phosphates des pegmatites granitiques, le gisement d'Angarf-Sud constitue certainement un cas favorable et assez original. Cette constatation découle, à la fois, de l'investigation minéralogique détaillée des phosphates et de l'examen pétrographique de leurs relations mutuelles, recherches démontrant l'intérêt de ces minéraux dans la connaissance des pegmatites proprement dites et dans l'approche des phénomènes hydrothermaux postpegmatitiques.

La triphylite, minéral typomorphe

Dans cette pegmatite bien zonée, on peut facilement reconnaître les critères que propose Ginzburg (in Varlamoff, 1958-1959) pour définir le "type 4" de sa classification des pegmatites. De plus, les grands cristaux de microcline et l'abondance de muscovite montrent à l'évidence que l'étape potassique du processus pegmatitique, conçu par Ginzburg, y est très largement représentée. Le béryl apparaît en fin de cristallisation du microcline, ainsi que la triphylite. Toujours selon Ginzburg, ce phosphate typomorphe est le premier minéral à se déposer lors de la manifestation d'une étape lithique, et est le seul, si la quantité de lithium disponible est faible. La pegmatite d'Angarf-Sud est donc peu différenciée. Cette caractéristique se confirme par l'étude de la triphylite. En effet, nos recherches n'ont révélé qu'une seule génération de triphylite, avec un rapport Fe/(Fe+Mn) extrêmement élevé et un contenu en Mg, relativement exceptionnel, plus important que celui en Mn (Tableau I).

Les séquences d'évolution

D'une façon générale, l'examen des associations de phosphates d'Angarf-Sud permet de distinguer deux séquences d'évolution au départ de la triphylite (Figure 8).

La première séquence de transformation triphylite \rightarrow ferroalluaudite + chlorapatite \rightarrow

A.-M. FRANSOLET, K. ABRAHAM, J.-M. SPEETJENS



FIG. 8. — Schéma de l'évolution génétique globale des assemblages de phosphates d'Angarf-Sud, à partir de la triphylite riche en magnésium. Proc. pegm. = processus pegmatique.

Schema of the whole genetic evolution of the phosphate mineral assemblages from the Mg-rich triphylite of Angarf-Sud. Proc. pegm. = pegmatitic process.

fluorapatite est remarquablement développée. Elle montre le passage de la ferroalluaudite à la mélonjosephite associée à la barbosalite, ainsi que le remplacement de ces minéraux par un mélange intime lipscombite-mitridatite, expression de l'altération superficielle.

La deuxième séquence, dite de "Quensel et Mason" (Quensel, 1937, et Mason, 1941a) est le processus d'oxydation triphylite → ferrisicklerite → heterosite, nettement moins bien représenté à Angarf-Sud. Cette séquence semble se poursuivre par la transformation de la phasemère en barbosalite et tavorite, puis en jahnsite ; l'huréaulite ne s'est pas formée au cours de cette phase d'hydratation, vraisemblablement à cause de la pauvreté en Mn de la triphylite.

Les caractéristiques chimiques des phosphates majeurs de l'évolution

Bien que, pendant le remplacement métaso-

matique, la ferroalluaudite s'appauvrisse légèrement en Fe par rapport à la triphylite (Figure 1), sa composition chimique reflète encore les caractéristiques du minéral lithique, c'est-à-dire la richesse en Fe et en Mg (Tableaux II et III) et la pauvreté en Mn (Figure 2).

Lors du lessivage du Li et de l'oxydation concomitante des cations métalliques de transition dans la séquence de Quensel et Mason, le rapport Fe/(Fe+Mn) particulièrement élevé et la richesse en Mg sont maintenus presque constants dans la ferrisicklerite et dans l'heterosite. Cette particularité géochimique est telle que, mis à part le pléochroïsme, l'heterosite se distingue difficilement de la ferrisicklerite. En effet, cette heterosite est pauvre en manganèse et sa teneur en Mg préserve, en quelque sorte, un contenu non négligeable d'environ 0,6 Li par maille lors de l'oxydation de Mn²⁺ en Mn³⁺.

Même si l'alluaudite, la ferrisicklerite et l'he-

LES PHOSPHATES DE LA PEGMATITE D'ANGARF-SUD



FIG. 9. — Schéma paragénétique indiquant également le comportement des cations et les particularités majeures des phases fluides pendant l'évolution et l'altération des phosphates d'Angarf-Sud. La migration des cations est indiquée par une flèche vers le haut et l'apport, par une flèche vers le bas.

Paragenetic schema giving the cationic behaviour and the essential characteristics of the fluid phases, during the evolution and the alteration of the phosphate minerals in the Angarf-Sud pegmatite. The cation migration is shown by an arrow upwards, and the introduction, by an arrow downwards.

terosite ne sont pas considérées comme minéraux primaires (Fransolet, 1975b), on est tenté d'attribuer à leur composition chimique un caractère typomorphe hérité.

Les relations alluaudite-ferrisicklerite

La connaissance de la nature minéralogique précise de la ferroalluaudite d'Angarf-Sud nous a amené à trois faits importants. D'abord, dans sa formule structurale (Tableau III), Fe²⁺ occupe essentiellement le site M1, contrairement à de nombreux cas où Mn y joue un rôle prédominant (Moore, 1971). Ensuite, suivant que l'on s'adresse à une alluaudite associée à la triphylite ou à une alluaudite en relation avec la ferrisicklerite, on constate un faible déficit en Na dans le second cas par rapport au premier. Cela permet d'envisager la substitution Na⁺+Fe²⁺ \rightarrow \Box +Fe³⁺, de reprendre l'hypothèse de Mason (1941a) et de prouver que les ferroalluaudites d'Angarf-Sud présentent également une séquence d'oxydation. Enfin, les teneurs élevées

en Ca, antérieurement observées (Fransolet, 1975b) sont en fait dues à la présence de chlorapatite, intimement associée aux ferroalluaudites.

En parallélisant l'activité notable en Ca lors de la transformation métasomatique de la triphylite, l'introduction de ce cation dans la structure de la ferrisicklerite et de l'heterosite pendant le processus d'oxydation, ainsi que le faible déficit en Na et l'oxydation concomitante de Fe³⁺ dans les alluaudites, nous suggérons que le développement de deux séquences d'évolution tend à devenir un phénomène simultané (Figure 9), ménageant ainsi les hypothèses de Mason (1941*a*) et celles de Moore (1971) pour qui l'alluaudite peut remplacer la ferrisicklerite.

Le problème de l'oxydation de la triphylite

La découverte de chlorapatite a provoqué une discussion sur certaines conditions physicochimiques du remplacement métasomatique de la triphylite : le pH du milieu de formation serait plutôt acide et l'activité en Cl⁻ descherente fluide, transportant Na et Ca, serait élevée. Nous avons également suggéré que le chlore joue un rôle important dans le lessivage de Li au cours de la séquence de Quensel et Mason. Toutefois, la richesse en Fe^{2+} des ferroalluaudites, le développement peu intense de la ferrisicklerite et la rareté de l'heterosite témoignent d'un degré peu élevé du processus d'oxydation.

Nous pensons, de plus, que le rôle du chlore dans les mécanismes d'oxydation de la triphylite pourrait être généralisé et envisagé dans d'autres pegmatites, à condition, cependant, de tenir compte à la fois du rapport Na/Ca et de l'activité de Cl⁻, vis-à-vis de celle de F⁻ et OH⁻ dans la phase fluide hydrothermale. Il est évident que, si l'activité en Ca de cette phase est trop faible, on ne trouvera pas trace de chlorapatite dans l'alluaudite. Si cette activité est forte, Ca bloque l'effet de Cl⁻ en le précipitant sous forme de chlorapatite, l'empêchant d'évacuer Li, sous forme de chlorure, et freinant par conséquent la formation de ferrisicklerite, comme cela semble avoir été le cas à Angarf-Sud.

La signification des phosphates mineurs et des produits d'altération superficielle

Contrairement au sodium qui s'est seulement manifesté pour former la ferroalluaudite, puis qui tend à migrer pendant la suite du processus d'évolution globale, le calcium, également apparu dans l'alluaudite et la chlorapatite, semble conditionner la suite des mécanismes. On le retrouve dans la fluorapatite abondante qui traduit, selon Latil et Maury (1977), une intervention non négligeable du fluor dans la phase fluide et une diminution de température. Ca caractérise la mélonjosephite, formée lors d'une étape d'hydratation qui affecte l'alluaudite, probablement pendant le dépôt de la fluorapatite. Finalement, Ca se fixe avec Fe³⁺ dans la mitridatite, parmi les produits de l'étape ultime d'altération météorique ou supergène, tout en accusant une faible migration (Figures 7, 8 et 9).

Alors qu'il tend à migrer dès l'étape d'hydratation, Mg peut accompagner Ca et/ou Fe lors de la cristallisation de quelques minéraux tardifs, peu fréquents dans le gisement, comme la whitlockite ou la montgomeryite.

En examinant donc la composition chimique des phosphates mineurs tardifs, se formant vers la fin du processus d'évolution, ainsi que le comportement des cations au cours des étapes de cette évolution (Figures 7, 8 et 9), on constate que ces phosphates témoignent d'une sorte d'héritage, certes moins accusé que dans le cas des phases majeures, des caractéristiques géochimiques des événements hydrothermaux qui ont précédé leur cristallisation.

REMERCIEMENTS

Les auteurs adressent leurs vifs remerciements à M. R. Pierrot (Direction du Service Géologique National, Orléans) ainsi qu'à MM. J. Mantienne (B.R.G.M.) et P. Sainfeld (Ecole Nationale Supérieure des Mines, Paris) qui leur ont soumis une collection de phosphates provenant d'Angarf-Sud. Ils expriment leur reconnaissance au Prof. P. Tarte (Université de Liège) qui a bien voulu enregistrer quelques spectres infrarouges. Les campagnes de prospection sur le terrain par A.-M. F. furent possibles grâce à des crédits du Ministère de l'Education Nationale de Belgique et à la collaboration du Service d'Etude des Gîtes Minéraux et de la Direction de la Géologie du Maroc, Rabat. Le premier auteur (A.-M. F.) témoigne encore sa gratitude au Fonds National de la Recherche Scientifique de Belgique pour l'octroi d'un mandat de chercheur qualifié. La lecture et les remarques de Dr F. Fontan (Université de Toulouse) ont considérablement amélioré la première version du manuscrit.

RÉFÉRENCES

- BOULADON, J., JOURAVSKY, G. et MORIN, P. (1950).
 Etude préliminaire des pegmatites à muscovite et béryl du Sud de la Plaine de Tazenakht. Notes Mém. Serv. géol. Maroc, 3, nº 76, 207-235.
- BOURY, P. (1981). Comportement du fer et du manganèse dans des associations de phosphates pegmatitiques. Mém. de licence, Inst. Minéral., Univ. Liège (inédit).

- CECH, F., JOHAN, Z. et POVONDRA, P. (1972). La barbosalite de la pegmatite d'Angarf-Sud, Plaine de Tazenakht, Anti-Atlas, Maroc. Notes Serv. géol. Maroc, 32, nº 241, 121-128.
- EKSTRÖM, T.K. (1973). Synthetic and natural chlorine-bearing apatite. Contr. Mineral. Petrol., 38, 329-338.
- EVANS, H.T. Jr., APPLEMAN, D.E. and HAND-WERKER, S.S. (1963). — The least-squares refinement of crystal unit cells with powder diffraction data by an automatic computer indexing method. (Abstract). Amer. Crystallogr. Ass. Meeting, 3.
- FISHER, D.J. (1957). Alluaudites and varulites. Amer. Mineral. 42, 661-664.
- FONTAN, F. (1978). Etude minéralogique et essais expérimentaux sur des phosphates de fer et de manganèse de pegmatites des Jebilet (Maroc) et des Pyrénées (France). Thèse Doctorat d'Etat, Univ. Paul Sabatier, Toulouse, 250 p.
- FONTAN, F., HUVELIN, P., ORLIAC, M. et PERMIN-GEAT, F. (1976). — La ferrisicklerite des pegmatites de Sidi-bou-Othmane (Jebilet, Maroc) et le groupe des minéraux à structure de triphylite . Bull. Soc. fr. Minéral. Cristallogr., 99, 274-286.
- FRANSOLET, A.-M. (1973). La mélonjosephite CaFe²⁺Fe³⁺(PO₄)₂(OH), une nouvelle espèce minérale. Bull. Soc. fr. Minéral. Cristallogr., 96, 135-142.
- FRANSOLET, A.-M. (1974). Les phosphates lithiques des pegmatites de la Plaine des Zenaga (Anti-Atlas, Maroc). Notes Serv: géol. Maroc, 35, nº 255, 137-143.
- FRANSOLET, A.-M. (1975a). On scorzalite from the Angarf-Sud pegmatite, Zenaga Plain, Anti-Atlas, Morocco. Fortschr. Miner. 52 (Spec. Issue, IMA-papers 9th Meeting Berlin, 1974), 285-291.
- FRANSOLET, A.-M. (1975b). Etude minéralogique et pétrologique des phosphates de pegmatites granitiques. Thèse de doctorat, Inst. Minéral., Univ. Liège (inédit).
- FRANSOLET, A.-M. (1976). L'huréaulite : ses propriétés minéralogiques et son rôle dans l'évolution génétique des phases Li(Fe,Mn)PO₄. Bull. Soc. fr. Minéral. Cristallogr. 99, 261-273.
- FRANSOLET, A.-M. (1977a). Intercroissances et inclusions dans les associations graftonite-sarcopside-triphylite. Bull. Soc. fr. Minéral. Cristallogr. 100, 198-207.
- FRANSOLET, A.-M. (1977b). Le problème génétique des alluaudites. Bull. Soc. fr. Minéral. Cristallogr. 100, 348-352.
- FRANSOLET, A.-M. (1984). Les phosphates secondaires de la pegmatite d'Angarf-Sud, Plaine des Zenaga, Anti-Atlas, Maroc. Notes Serv. géol. Maroc, 43 (sous presse).
- FRANSOLET, A.-M., KELLER, P. and FONTAN, F. (1983). — Preliminary results of the investigation of the phosphate minerals from the Tsaobismund

pegmatite, Namibia. Fortschr. Miner. 61, Bh. 1, 65-66.

- HAAPALA, I. (1966). On the granitic pegmatites in the Peräseinäjoki-Alavus area. South Pohjanmaa, Finland. Bull. Comm. géol. Finland, 224, 98 p.
- HUVELIN, P., ORLIAC, M. et PERMINGEAT, F. (1972). — Ferri-alluaudite calcifère de Sidi-bou-Othmane (Jebilet, Maroc). Notes Serv. géol. Maroc, 32, nº 241, 35-49.
- KELLER, P. (1974). Phosphatmineralien aus Pegmatiten Südwestafrikas. Aufschluss, 25, 577-591.
- KELLER, P. (1980). Giniit, Fe²⁺Fe³⁺₄[(H₂O)₂ |(OH)₂|(PO₄)₄], ein neues Mineral aus dem Pegmatit von Sandamab bei Usakos, Namibia. N. Jb. Miner. Mh. 1980, 49-56.
- LATIL, C. et MAURY, R. (1977). Contribution à l'étude des échanges d'ions OH⁻, Cl⁻ et F⁻ et de leur fixation dans les apatites hydrothermales. Bull. Soc. fr. Minéral. Cristallogr. 100, 246-250.
- LINDBERG, M.L. and PECORA, W.T. (1955). Tavorite and barbosalite, two new phosphate minerals from Minas Gerais, Brazil. Amer. Mineral. 40, 952-966.
- LONDON, D. and BURT, D.M. (1982). Alteration of spodumene, montebrasite and lithiophilite in pegmatites of the White Picacho District, Arizona. *Amer. Mineral.* 67, 97-113.
- MARTYANOV, N.N. et PINEVITCH, N.G. (1954). Sur un minéral du groupe de la sicklérite. Dokl. Akad. Nauk., U.R.S.S., 97, n° 6, 1057-1059 (en russe).
- MASON, B. (1941*a*). Minerals of the Varuträsk pegmatite. XXIII. Some iron-manganese phosphate minerals and their alteration products, with special reference to material from Varuträsk. *Geol. Fören.* Förhandl. 63, n° 2, 117-175.
- MASON, B. (1941b). Minerals of the Varuträsk pegmatite. XXVI. Mangan-hydroxyapatite. Geol. Fören. Förhandl. 63, nº 3, 279-284.
- MOORE, P.B. (1971). Crystal chemistry of the alluaudite structure type : Contribution to the paragenesis of pegmatite phosphate giant crystals. *Amer. Mineral.* 56, 1955-1975.
- MOORE, P.B. and ITO, J. (1979). Alluaudites, wyllieites, arrojadites: Crystal chemistry and nomenclature. *Mineral. Mag.* 43, 227-235.
- MOORE, P.B. and MOLIN-CASE, J. (1974). Contribution to pegmatite phosphate giant crystal paragenesis : II. The crystal chemistry of wyllieite, Na₂ Fe₂²⁺Al(PO₄)₃, a primary phase. Amer. Mineral. 59, 280-290.
- MORIN, P. (1952). Mica et béryl. Chap. XVII, pp. 337-346. In Géologie des gîtes minéraux marocains. Notes et Mém. Serv. géol. Maroc, nº 87.
- PEACOR, D.R. (1969). Triphylite-sarcopside-graftonite intergrowths from Custer, South Dakota. Amer. Mineral. 54, 969-972.

- PECORA, W.T. and FAHEY, J.J. (1950). The lazulite-scorzalite isomorphous series. Amer. Mineral. 35, 1-18.
- PERMINGEAT, F. (1955). Sur les niobo-tantalates de l'Anti-Atlas, Maroc : tapiolite et columbite. Bull. Soc. fr. Minéral. Cristallogr. 78, 123-156.
- QUENSEL, P. (1937). Minerals of the Varuträsk pegmatite. I. The lithium-manganese phosphates. Geol. Fören. Förhandl. 59, nº 1, 77-96.
- QUENSEL, P. (1940). Minerals of the Varuträsk pegmatite. XVII. Further comments on the minerals varulite and alluaudite. *Geol. Fören. Förhandl.* 62, nº 3, 297-302.
- SHIGLEY, J.E. (1982). Phosphate minerals in granitic pegmatites : A study of primary and secondary

phosphates from the Stewart pegmatite, Pala, Cali fornia. Ph. D. Thesis, Stanford Univ., 535 p.

- THOREAU, J. (1954). L'alluaudite de la pegmatit de Buranga (Ruanda). Bull. Acad. roy. Belgique Cl. Sci., série 5, 40, 230-237.
- VALYASHKO, V.M., KOGARKO, L.N. and KHODA KOVSKIY, I.L. (1968). — Stability of fluorapatite chlorapatite and hydroxylapatite in aqueous solutions at different temperatures. *Geochem. Intern.* 5, 21-30.
- VARLAMOFF, N. (1958-1959). Zonéographie de quelques champs pegmatitiques de l'Afrique centrale et les classifications de K.A. Vlassov et de A.I. Guinsbourg. Ann. Soc. géol. Belgique, 82, B55-B87.

United States and Article President fill (Article States) d'Arrest Stat. Die expressent Sene additionality Internet M. Address of the polyter of