

## Alteración de las biotitas y biotitas cloritizadas de la granodiorita de Collserola (Barcelona)

Albert SOLÉ i BENET

Instituto de Geología Jaime Almera, CSIC. C. Martí i Franquès, s/n. 08028 Barcelona.

### RESUMEN

Se estudia la alteración natural experimentada por las biotitas y biotitas cloritizadas de la granodiorita de la Serra de Collserola (Barcelona), bajo clima mediterráneo. Se muestrearon nueve perfiles, separándose magnéticamente las biotitas de la fracción arena, analizándose químicamente (elementos totales), por difracción de R.X. y microscopía electrónica de barrido. También se estudiaron con el microscopio petrográfico láminas delgadas de muestras no perturbadas.

Las biotitas evolucionan progresivamente primero a interestratificados biotita-vermiculita y después a vermiculita, apreciándose una tendencia a la esmectización, sugiriendo que las condiciones medioambientales en las que se ha producido la alteración son muy similares a las actuales. La fase clorita procedente de las biotitas cloritizadas permanece inalterada en dicho medio.

*Palabras clave:* Alteración superficial. Clima mediterráneo. Micromorfología. Difracción R.X. Análisis químico.

### ABSTRACT

The weathering of biotites and chloritized biotites from a granodiorite from Serra de Collserola (Barcelona, Spain), under mediterranean climate, has been studied. The sand fraction from the horizons of nine pedological profiles were sampled and the biotites magnetically separated and analysed by XRD, SEM and chemically. Thin sections of undisturbed samples were also studied.

The weathering sequence from non-chloritized biotites was Biotite → Interlayer B-V → Vermiculite with a trend towards smectitization. The chlorite mineral from chloritized biotites remains unchanged in this environment. These results suggest that the weathering environment has been quite similar to the present one.

*Key words:* Weathering. Mediterranean climate. Micromorphology. XR. Diffraction. Chemical analysis.

### INTRODUCCIÓN

Entre los minerales fundamentales del granito, la biotita se altera rápidamente en condiciones superficiales (Biro, 1962), siendo sus productos de alteración buenos indicadores mineralógicos del grado de alteración en diferentes ambientes (Ismail, 1970; Novikoff *et al.*, 1972; Pedro, 1984; Seddoh, 1973; Seddoh y Pedro, 1974). Aunque las condiciones ambientales pueden haber variado durante el proceso de alteración, es posible evaluarlas comparando perfiles de alteración en una gran escala geográfica (Graf von Riechenbach y Rich, 1975).

La alteración de biotitas ha sido ampliamente estudiada por geólogos y edafólogos en regiones tropicales y templadas, estudios basados principalmente en difracción de RX, ATP, ATD, y análisis químicos (Alexiades *et al.*, 1973; Ismail, 1970; Meunier, 1975; Novikoff *et al.*, 1972; Seddoh y Pedro, 1974; Tardy, 1969). Otros autores complementan los análisis mencionados con observaciones microscópicas y ultramicroscópicas (Bisdorn, 1967; Bisdorn *et al.*, 1982; Curmi y Maurice, 1981; Eswaran y Bin, 1978; Eswaran y Heng, 1976; Seddoh y Robert, 1972; Verheye y Stoops, 1975; Wilson, 1966).

Las secuencias de alteración citadas, en clima templado húmedo indican una transformación de la biotita a vermiculita, pasando a veces por interestratificados biotita-vermiculita. Cuando alguno de estos autores cita la presencia de caolinita, ésta se encuentra siem-

pre rellenando espacios entre planos de exfoliación. En clima áridos, citan una transformación a montmorillonita, que suele pasar por un estado intermedio de vermiculita (Ismail, 1970; Tardy, 1969; Tsawlassou *et al.*, 1972). Y en climas tropicales húmedos, una caolinitización total que pasa a veces por los estados biotita-vermiculita, vermiculita y vermiculita-caolinita, produciéndose la caolinitización de las biotitas por pseudomorfosis.

En la zona mediterránea, a pesar de contar con algunos trabajos sobre alteración de rocas graníticas basados esencialmente en balances geoquímicos globales (Bech *et al.*, 1975); Chevalier y Dejou, 1972), sólo se ha encontrado un estudio específico sobre la alteración de biotitas que incluye datos micromorfológicos (Penven *et al.*, 1981). Estos autores, en clima mediterráneo húmedo (Pm = 1500 mm con tres meses de sequía en verano, Tm = 18°C), encuentran un tipo de alteración intermedio entre los citados de clima templado y los de tipo tropical húmedo y señalan la coexistencia de vermiculitas y caolinitas en pseudomorfosis.

Paralelamente a los anteriores trabajos citados, los estudios basados en la alteración experimental de biotitas han sido también numerosos, permitiendo precisar los mecanismos de alteración bajo una amplia gama de condiciones.

Los estudios experimentales han permitido determinar el inicio de la vermiculitización en la apertura de las micas debida a la substitución del K interlamina por cationes más hidratables (como Ca, Mg, Na), seguida por una oxidación del Fe<sup>2+</sup> de la capa octaédrica. Este fenómeno tiene lugar en medios aireados en presencia de soluciones cargadas en cationes básicos, en condiciones, pues, neutras o moderadamente alcalinas (Robert, 1971).

Si la alteración prosigue en un medio muy rico en cationes, el mineral va perdiendo carga laminar, alcanzándose el estadio de la esmectita. Esta transformación se ve favorecida por la baja carga laminar inicial, por lo que las micas dioctaédricas (illitas, glauconitas) se alterarán con mayor facilidad a esmectitas que las micas trioctaédricas las cuales se alterarán preferentemente a vermiculitas (Robert, 1973).

En medios más ácidos, al A1 de la capa octaédrica de las micas pasa al espacio interlamina en donde se hidroxila progresivamente dando vermiculitas aluminicas primero, las cuales al irse organizando el A1 de la interlamina llegarán a dar cloritas secundarias, diferentes de las cloritas primarias que se forman en condiciones metamórficas o hidrotermales (Robert y Pedro, 1972). En la cloritización secundaria pueden interve-

nir o bien los ácidos inorgánicos en medios diluidos o bien los ácidos orgánicos moderadamente complejantes, como el tartárico y el salicílico (Vicente *et al.*, 1977).

Algunos ácidos del suelo procedentes de azúcares, como el galacturónico (común en suelos de tipo podzólico), provocan una alteración a vermiculitas de baja carga llamadas también esmectitas de transformación (tienen el comportamiento de las vermiculitas, pero una carga interlamina comparable a las esmectitas) Vicente *et al.*, 1977).

Otros ácidos orgánicos altamente complejantes, como el cítrico y el oxálico, causan la destrucción de la estructura del mineral (Vicente *et al.*, 1977). Esto último sucede también en medios no complejantes fuertemente ácidos o en medios lixiviantes muy poco cargados en cationes (hidrólisis) (Robert y Pedro, 1972).

Asimismo, se ha determinado que si cierto grado de oxidación (condiciones normales de aireación) debe acompañar la formación de vermiculitas, sólo una oxidación intensa provoca la expulsión del Fe de la capa octaédrica y la formación o bien de hidratos de Fe en la superficie externa de las partículas o bien de vermiculitas hidroxiférricas (Vicente-Hernández *et al.*, 1983).

En el presente estudio se presentan los grados de alteración alcanzados por la fracción arena de biotitas y biotitas cloritizadas de rocas graníticas de la Sierra de Collcerola que, a pesar de una arenización y edafización evidentes, presentan una alteración casi nula en los feldespatos potásicos y escasa en las plagioclasas, por lo que el principal responsable de la arenización parece ser la biotita que presenta, sin embargo, poca alteración aparente.

Se caracterizan los aspectos morfológicos (micromorfológicos), mineralógicos y químicos de la evolución experimentada y de la tendencia evolutiva de estos minerales desde la roca fresca hasta los horizontes más superficiales y se comparan con los resultados obtenidos en otras áreas geográficas y con los de las alteraciones experimentales.

## ORIGEN Y DESCRIPCIÓN DE LOS MATERIALES

El granito estudiado aflora en una banda SW-NE al pie de la Sierra de Collcerola, formando la base de una serie metamórfica paleozoica considerablemente tectonizada.

Geomorfológicamente el afloramiento forma parte de la mitad inferior de una ladera en general cóncava orientada al SE y en la que se puede apreciar al menos un rellano.

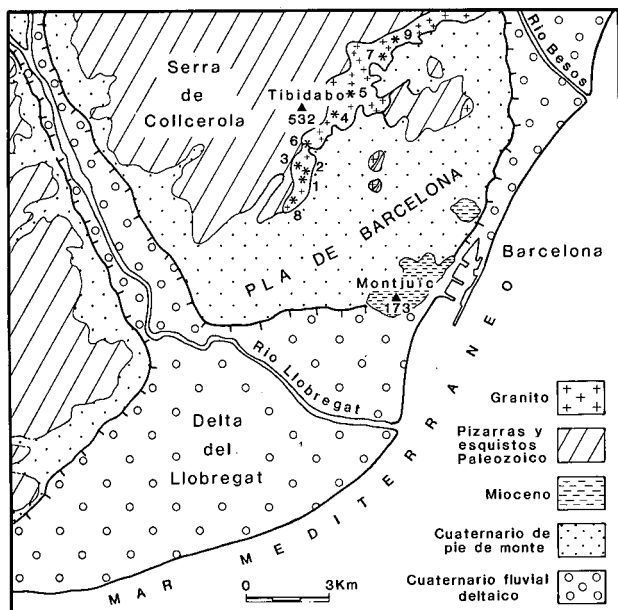


Figura 1.- Situación de la banda granítica de Collcerola y puntos de muestreo.

Figure 1.- Situation of granitic outcrop in Collcerola range (Barcelona) and sampling points.

Según Vaquer (1972), «petrográficamente es una granodiorita bastante uniforme con estructura granuda con cierta tendencia a profídica; raramente se presenta fresca en superficie, oscilando la capa de alteración entre varios centímetros hasta varios metros; la biotita es el máfico mas abundante, presentándose en laminitas subidiomorfas».

El clima de la zona es «mediterráneo subhúmedo, variedad media», con  $P_m = 600$  mm,  $T_m = 16^\circ\text{C}$ , presentando la zona estudiada una elevada insolación durante todo el año debido a su orientación geográfica.

La asociación vegetal climática natural de la zona es «Quercetum illicis galloprovinciale», pero debido a la degradación antrópica encontramos *Pinus pinea*, *Anthyllis cytisoides* y áreas deforestadas con vegetación ruderal muy pobre.

El mayor grado de diferenciación edáfica que presenta el regolito granítico es un suelo morfológicamente parecido a los fersialíticos descritos en el Maresme (Bech *et al.*, 1983), no encontrándose completo ningún perfil, sino truncados por la erosión y fosilización por coluviones graníticos recientes.

Se muestrearon los horizontes de cinco perfiles completos desde la roca madre coherente hasta el horizonte superficial del suelo granítico, y cuatro perfiles in-

TABLA I.- Descripción macromorfológica del perfil T-3.

TABLE I.- Macromorphological description of the representative profile T-3.

0 - 10 cm:	color pardo; presencia de restos orgánicos, textura areno-limosa; poco estructurado; muy friable; actividad biológica media; numerosas raíces; formado a partir de un coluvión pizarroso-granítico; ligera eferescencia al HCl 10%; límite neto con el horizonte subyacente.
Al	
10 - 50 cm:	color beige; formado por el mismo material que el anterior, pero con menores trazas de actividad biológica; límite neto con el horizonte subyacente.
C	
50 - 60 cm:	color rojizo (2.5 YR 4/6); aparentemente no orgánico; textura arenosa; estructura poliédrica poco neta; friable; con revestimientos ferro-arcillosos muy finos en numerosas fisuras; fuerte actividad biológica; límite gradual con el horizonte subyacente.
2BW	
60 - 90 cm:	color beige-rojizo (5 YR 5/6); aparentemente no orgánico; textura arenosa gruesa; estructura particular; friable; escasos revestimientos ferriarcillosos muy finos; escasa actividad biológica; límite gradual con el horizonte subyacente.
2BW/C	
90 - 300 cm:	color beige (7, / YR 6/2); aparentemente no orgánico; se mantiene la estructura del granito si bien la diyuncción de los granos es total, por lo que tenemos el típico saprolito granítico.
2C	
300 - 400 cm:	granito muy fisurado, aparentemente sin otros signos de alteración; constituye la transición con la roca madre.
2CR	
400 cm — :	granito con biotita parcialmente cloritizada, aparentemente sin signos de alteración superficial.
2R	

completos en los que sólo se muestreó el regolito granítico.

Se ubican a lo largo de toda la banda granítica y en diferentes situaciones de la ladera: T-6, en la parte alta de la banda granítica; T-1-2-3, en la parte media baja, sobre un rellano; T-8, en la parte baja del afloramiento.

El perfil mejor desarrollado es el T-3, seguido del T-8 y en último lugar el T-6. Cabe señalar que la profundidad a que aparece la roca madre varía desde algo más de 1 m en T-6, a más de 4 m en T-8 (en T-4-5-7-9 no pudo verse la roca fresca). Se presenta la descripción de campo de sólo el T-3 en el cuadro I.

## MÉTODOS

En las muestras procedentes de los regolitos graníticos se separó directamente por tamizado la fracción 0.5 mm - 2.0 mm. De ella se separaron las biotitas mediante un separador magnético (patente CNRS, método de Forrer) ajustando la intensidad de corriente a 0.34 A.

TABLA II.- Descripciones micromorfológicas de las biotitas en el contexto de sus horizontes de procedencia.

TABLE II.- Micromorphological features and other relevant micromorphological aspects from the sampled horizons.

		MICROSCOPIO POLARIZANTE											LUPA BINOCULAR			
		BIOTITAS						OTROS ASPECTOS								
		abertura por los planos de exfol.	perdida de pleocroísmo	perdida de birrefringencia	ferruginización	fragmentación	cloritización	alteración estruct. primitiva roca	seritización feidespatos	iluvación de arcilla	recarbonatación	porosidad	exfoliación	perdida hábito pseudohexagonal	corrosión bordes	cloritización
T-8	R	-	-	-	+	-	+	-	+	-	-	-	-	-	-	-
	2C 2Bw	++	+	+	++	-	+	++	+	-	-	++	++	-	+	-
T-3	R	-	-	+	+	-	++	-	+	-	-	-	-	-	-	+++
	2C 2Bw	++	+	+	+	-	<+	+	+	+	+	+	<+	-	+	+
T-6	R	-	-	-	+	-	+++	-	+	-	-	-	-	++	-	+++
	2C 2Bw	++			++	-	<+	<+	+	<+	+	+	<+	<+	+	+
T-4	2C	+	-	+	<+	-	-		+	-	-	+	<+	-	+	+
T-5	2C	+	+	+	+	+	-	++	+	-	-	++	+	+	++	-
T-7	2C	+	<+	<+	+	-	-	++	+	-	-	+	+	+	+	-

Las biotitas de las rocas frescas se separaron por el mismo método después de triturar la roca con una machacadora de mandíbulas.

Se eligió dicha fracción granulométrica por presentar las biotitas la mejor pureza (ausencia de granos mixtos) juntamente con un bajo grado de ferrificación (la radiación de fluorescencia que las lámparas con anticátodo de Cu producen sobre el Fe disminuye considerablemente la nitidez de las reflexiones, especialmente en los ángulos más bajos, que son precisamente los de mayor interés en la identificación de filosilicatos).

En algunos horizontes se separaron además las biotitas > 2 mm.

Las biotitas separadas se lavaron en baño de ultrasonidos y se sometieron a los siguientes análisis:

- observación con la lupa binocular;
- observación con el MEB («JEOL» JSM 35);
- tras pulverizarlas se analizaron con un difractor de rayos X («Rigaku» biplano, con anticátodo de

Cu) los correspondientes agregados orientados (normales, glicolados, saturados con K y calentados a 250°C y 550°C);

- análisis termogravimétricos y térmico-diferenciales (microbalanza «SETARAM») sólo en alguna muestra;
- análisis químico total tras fusión alcalina para determinar Si, Al, Fe, Ti y Mn y tras ataque fluorídrico + perclórico para Na, K, Mg y Ca; el Fe<sup>2+</sup> se determinó con el método de Cooke.

Se tomaron además muestras no perturbadas en cajas de Kubierna, y tras su consolidación con resina poliéster (Brewer, 1964), se prepararon láminas delgadas de todos los horizontes.

## MICROMORFOLOGÍA

### Observaciones con la lupa binocular

Las biotitas de la roca fresca presentan colores negros y pardonegros, brillantes, a veces con tonalidades verdosas, hábito prismáticos a tabular, con pris-

mas hexagonales bien formados sobre todo en T-1, T-2, T-3 y T-8.

Las biotitas de la roca fisurada, del regolito y del suelo pierden su color oscuro para hacerse progresivamente más claro, pardo amarillento y ámbar, con pérdida de brillo; a pesar de conservar el hábito prismático a tabular pseudohexagonal, los ángulos de algunos cristales aparecen algo romos.

En la roca del T-6 predominan los cristales de color pardo-verdoso, con los bordes algo irregulares, angulosos, en el regolito predominan los colores verde claro, manteniéndose las formas irregulares angulosas.

#### *Observaciones con el microscopio petrográfico*

##### A. Rocas frescas (2R):

— El granito T-8 presenta una estructura granuda típica con abundante microfisuración. Plagioclasas irregularmente sericitizadas. Las biotitas tienen formas idiomorfas a subidimorfas, colores de pardo-negro a pardo-claro, con fuerte pleocroísmo; algunas pocas están parcialmente cloritizadas, afectando la cloritización sólo los bordes de los cristales (lámina I, foto 1); no se observan fisuras abiertas por los planos, pero sí la presencia de algunas líneas negras siguiendo dichos planos y decoloraciones parciales en los bordes perpendiculares a la dirección de exfoliación.

— La roca de T-1, T-2 y T-3 presenta las mismas características que T-8, excepto un mayor grado de cloritización en las biotitas.

— La roca T-6 presenta una estructura granuda algo más fina que las anteriores, también con microfisuración importante. Las plagioclasas están ligeramente sericitizadas. Las biotitas, que conservan sus formas, están fuertemente cloritizadas, hasta un 90%; presentando además importantes líneas y masas negras siguiendo los planos de exfoliación (óxidos hidratados de hierro).

##### B. Regolitos profundos (horizontes 2C)

En todos los perfiles observados, excepto T-6, las características son similares: persistencia de la estructura de la roca original, pero con una densa red de fisuras que individualiza a la mayoría de granos minerales. Mismo grado de sericitización de las plagioclasas. Las biotitas conservan su fuerte pleocroísmo, pero en cambio aparecen fisuras parcialmente abiertas entre los planos de exfoliación, que casi siempre presentan revestimientos negros (segregaciones de óxidos hidratados de hierro), lo cual suele ir emparejado a una ligera pérdida de color en el resto de la biotita.

En T-6, la densa red de fisuras del regolito contiene algunos revestimientos muy finos ferro-arcillosos de color amarillo-rojizo, discontinuamente birrefringentes, con microlaminación irregular. El grado de apertura de las biotitas cloritizadas por los planos de exfoliación es aquí muy inferior al de los demás perfiles, en cambio, las segregaciones de óxidos de Fe que se presentan aquí sobre todo en los bordes perpendiculares a la dirección de exfoliación son más abundantes.

##### C. Regolitos superficiales (horizontes 2BW)

— Excepto en T-6, todos los perfiles presentan:

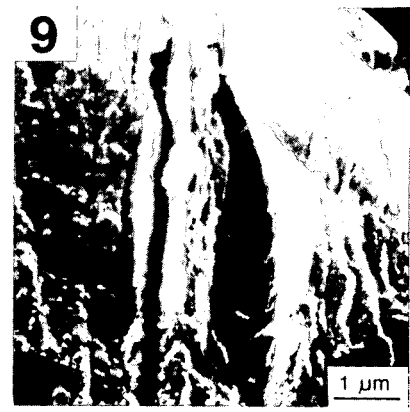
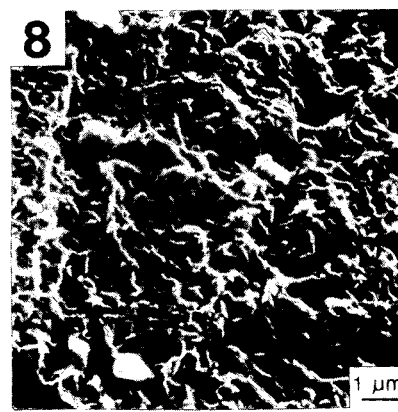
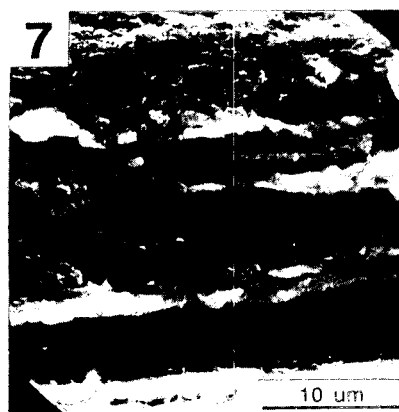
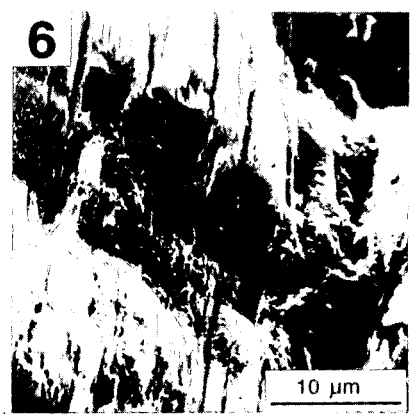
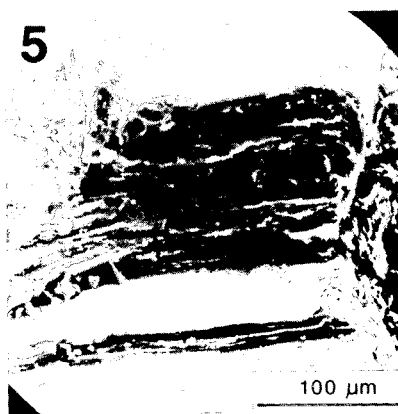
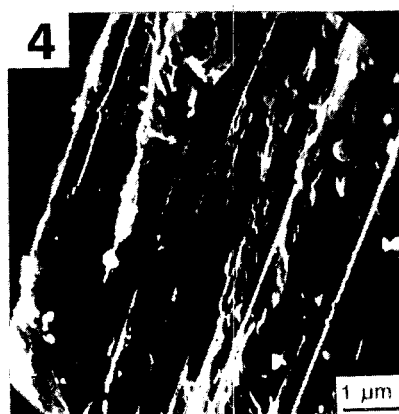
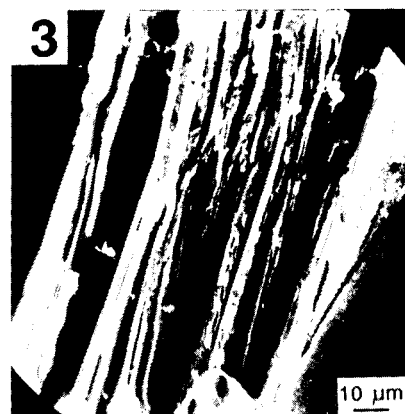
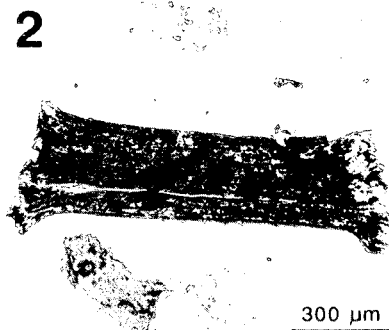
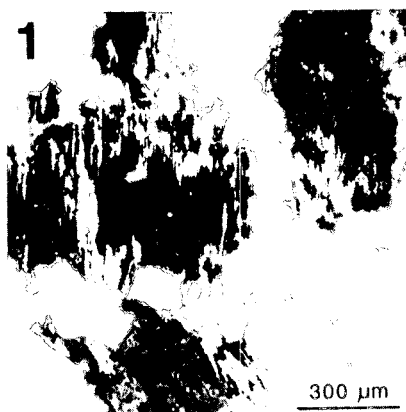
Una fisuración muy importante que conserva sólo parcialmente la estructura original de la roca. Algunas veces se encuentran revestimientos ferro-arcillosos finos a gruesos en las fisuras. Mismo grado de sericitización de las plagioclasas que en los regolitos profundos y que en las rocas coherentes. En las biotitas: una decoloración ligera acompañada de una pérdida de pleocroísmo; una pérdida de birrefringencia que afecta en general sólo parcialmente a los cristales; frecuente apertura total siguiendo planos de exfoliación en otros casos menos frecuentes, los extremos de las laminillas micáceas se abren «en escoba» lámina I (foto 2), manteniéndose intactas las partes centrales; importantes segregaciones ferruginosas que se concentran en los planos de exfoliación abiertos y en los bordes de los cristales.

— En T-6, la estructura de la roca original está completamente conservada a pesar de la elevada fisuración. Aquí todas las fisuras están tapizadas o rellenas de acumulaciones ferroarcillosas discontinuamente birrefringentes. El grado de sericitización de las plagioclasas es similar al que presenta la roca coherente. Las biotitas cloritizadas, en cambio, presentan aperturas incompletas por los planos de exfoliación a lo que se encuentran asociados importantes segregaciones ferruginosas, así como en los bordes de las laminillas.

#### *Observaciones con el microscopio electrónico de barrido.*

Las biotitas frescas presentan superficies basales lisas y sin signos de alteración y una disposición de sus laminillas muy regular, notándose algunos planos de exfoliación (Lámina I foto 3) que delimitan y separan algunos aplamientos compactos de laminillas con los bordes bien delimitados (Lámina I, foto 4).

Las biotitas alteradas procedentes del regolito no presentan una separación de los apilamientos de laminillas como citan Seddoh y Robert (1972), pero sí superficies basales más irregulares y corroídas (Lámina I,



I.AMINA I.- Aspectos representativos de los estadios de alteración de las biotitas vistas con el microscopio polarizante y con el MEB.

Foto 1: La cloritización primaria afecta en diferente grado a las biotitas de las rocas frescas; en este caso, T-3, afecta sólo los bordes de los minerales. Nícoles paralelos.

Foto 2: Apertura de las biotitas por sus extremos (en escoba) en los regolitos superficiales. Nícoles paralelos.

Foto 3: Algunos planos de exfoliación separan paquetes de laminillas de bordes bien delimitados. Biotita procedente de la roca fresca T-8. Imagen MEB.

Foto 4: Detalle de la foto anterior en donde se observan apilamientos muy compactos de laminillas. Roca fresca T-8:

Foto 5: Aspecto general de una biotita alterada a vermiculita procedente del regolito superficial T-8 en la que se observa una superficie basal irregular y corroída. Imagen MEB.

Foto 6: Detalle de la foto 5. El mineral presenta un aspecto fundido en los bordes de los paquetes de laminillas, típico de vermiculitas.

Foto 7: Los paquetes de laminillas de las biotitas alteradas a vermiculitas empiezan a torcerse y desmenuzarse en el regolito superficial T-8. Imagen MEB.

Foto 8: Los bordes de los paquetes de laminillas parecen transformarse a esmectitas en el regolito superficial T-3. Imagen MEB.

Foto 9: Oxihidratos de Fe recubriendo una biotita alterada en el regolito T-6. Imagen MEB.

PLATE I.- Microphotographs (through optical and SEM microscopes) of representative weathering stages of biotites.

Photo 1: Primary chloritization affects biotites in different degree. In this case, T-3, the chloritization only affects mineral edges. Cross polarized light.

Photo 2: Opening of biotites at their ends, in a brush-like form. Plain polarized light.

Photo 3: Splitting of exfoliated biotite from unweathered rock T-8. Notice sharp lamellae edges. SEM image.

Photo 4: Detail of photo n° 3, with compact piles of lamellas. Unweathered biotite from T-8.

Photo 5: Irregular and corroded basal surface in a vermiculitized biotite from the regolith T-8 SEM image.

Photo 6: Lamellas edges have a smelted-like pattern. Typical biotite weathered to vermiculite. Detail of photo n° 5.

Photo 7: Weathering proceeds and vermiculite edges twist and crumble. Upper regolith. SEM image.

Photo 8: Smectite pattern in the lamellae edges of a weathered biotite in the upper regolith T-3. SEM image.

Photo 9: Iron oxyhydrates coating a weathered biotite in the upper regolith T-6. SEM image.

fotos 5) y bordes de paquetes de laminillas de aspecto fundido (Lámina I, foto 6).

A escala de paquete de laminillas, los bordes empiezan a torcerse y desmenuzarse (Lámina I, foto 7), iniciándose un proceso de arcillización que en algunos casos (T-8) parece dar lugar a esmectitas (Lámina I, foto 8).

Se observaron revestimientos de óxidos hidratados de hierro en los minerales alterados de los regolitos (Lámina I, foto 9).

## DIFRACTOMETRÍA DE R.X.

En el cuadro III se presentan los resultados del análisis difractométrico.

Se confirma la clasificación de las biotitas «frescas» obtenida con el microscopio óptico: la comparación de las intensidades relativas de los picos de la biotita (10, 5, 3, 33, ... Å) con los de la clorita (14, 7, 4, 7, 3, 5, ... Å) permite caracterizar las biotitas como «muy poco cloritizadas» (perfil T-8), «medianamente cloritizadas» (perfiles T-1, T-2 y T-3) y «muy cloritizadas» (Perfil T-6).

En cuanto a las biotitas y biotitas cloritizadas alteradas, las muestras sin tratar presentan, en general, una

TABLA III.- Minerales detectados por difracción de R.X. y su abundancia relativa.

TABLE III.- X.R. diffractometrically detected minerals (semiquantitative evaluation).

perfil	horizonte	mineralogía y abundancia relativa
T-8	2R	mica triocáedrica (+ + + +), clorita (+)
	2C	vermiculita (+ + + +), interestratificado B-V (+), clorita (+)
	2BW	vermiculita (+ + + +), clorita (+)
T-3	2R	mica triocáedrica (+ + +), clorita (+ +)
	2C	interestratificado irregular B-V (+ + + +)
	2BW	vermiculita (+ + + +)
	A	vermiculita (+ + + +)
T-6	2R	mica triocáedrica (+), clorita (+ + + +)
	2C	intergrado V-Cl (+ +), vermiculita (+ +), clorita (+)
	2BW	intergrado V-Cl (+ + +), clorita (+ +)
T-4	2C	vermiculita (+ + + +)
T-5	2C	vermiculita (+ + + +)
T-7	2C	vermiculita (+ + + +)
T-8	2C	vermiculita (+ + + +)

reflexión a 14 Å y a veces una «meseta» entre 14 Å y 10 Å (este último caso se produce siempre o bien en los horizontes profundos del regolito o bien, independientemente de la profundidad, en los granos > 1 mm); las muestras saturadas con K y los tratamientos por calentamiento a 200° y 550°C, provocan una fuerte reflexión a 10 Å; con etilenglicol las muestras se hinchan poco, apenas superan los 15 Å; todo esto indica que las biotitas se han alterado a vermiculitas, pasando por un estado intermedio de interestratificado irregular B-V.

Sin embargo, en el perfil T-6, en donde la biotita está mucho más cloritizada, en los horizontes del regolito, además de la presencia de vermiculita y clorita, domina un mineral que si bien en estado natural está expandido a 14 Å, calentado a 550°C, presenta reflexiones a 11,8 y 7,7, comportándose como un intergrado vermiculita-clorita.

El tratamiento con dimetilsulfóxido (González y Sánchez, 1968) confirmó la no presencia de caolinita.

## ANÁLISIS QUÍMICOS Y FÓRMULAS ESTRUCTURALES

Las fórmulas estructurales que se derivan de los análisis químicos permiten comparar las transformaciones de las diferentes capas de átomos. Se han establecido siguiendo la convención clásica: a) cálculo del número

TABLA IV.- Constitución elemental de las biotitas y biotitas cloritizadas de tres perfiles representativos.

TABLE IV.- Total analysis (%) of biotites and chloritized biotites from three representative profiles.

	horizonte	SiO2	Al2O3	FeO	Fe2O3	MgO	CaO	Na2O	K2O	H2O	total
T-8	2R	36.7	25.7	18.7	0.6	4.9	0.9	0.4	6.6	2.4	96.9
	2C	37.0	24.6	13.2	4.0	8.7	2.2	0.5	5.4	5.2	100.8
	2BW	35.3	22.5	2.05	13.65	7.3	3.4	0.4	2.4	13.2	100.2
T-3	2R	33.0	27.3	19.9	0.0	10.2	1.1	0.5	4.5	4.8	101.3
	2C	39.0	20.6	0.4	14.9	2.5	1.5	0.5	0.9	14.6	99.6
	2BW	39.7	17.6	0.4	14.6	2.2	1.4	0.9	1.2	14.4	96.7
T-6	2R	27.1	32.3	21.9	0.0	5.3	1.3	0.4	0.9	8.2	97.4
	2C	34.0	22.9	2.75	20.45	3.6	2.3	0.5	1.7	13.2	101.4
	2BW	31.0	26.2	8.04	12.76	4.7	1.2	0.4	1.0	13.0	98.3

de cationes para una red deshidratada de 22 cargas negativas; b) ocupación de las posiciones tetraédricas por el Si, dejando el resto para el Al; c) el Al restante en posición octaédrica; d) todos los demás cationes se colocan en posición octaédrica, excepto los alcalinos y el Ca, que se sitúan en posición interlamina. Para la «casi» clorita del perfil T-6, se ha considerado una red deshidratada de 28 cargas negativas (como correspondería a una clorita).

## DISCUSIÓN Y CONCLUSIONES

Como ya ha sido citado por algunos autores (Seddoh y Pedro, 1974), los grados de alteración detectados con la lupa binocular y con el microscopio óptico

no se corresponden muy bien con los resultados facilitados por otras técnicas analíticas: mientras con el microscopio óptico el grado de alteración máximo corresponde al estado de la parabiota, es decir, alteración sin expansión (Seddoh, 1973), la difracción de R.X. y los análisis térmicos indican una expansión total del mineral que los diferentes tratamientos y los análisis térmicos confirman como vermiculita.

Por otro lado, las biotitas de la roca fresca del perfil T-8, que con el microscopio óptico parecen inalteradas, químicamente presentan ya cierta alteración: oxidación de una pequeña parte del Fe<sup>2+</sup> octaédrico.

A partir de los análisis químicos puede determinarse que se trata de biotitas de las especies *siderofilita* y *lepidomelana* en porcentajes variables.

TABLA V.- Fórmulas estructurales derivadas de los análisis químicos.

TABLE V.- Structural formula derived from the total analysis.

T-8(2R) :	(Si <sub>2.72</sub> Al <sub>1.28</sub> )O <sub>10</sub>	(Al <sub>0.98</sub> Fe <sup>3+</sup> <sub>0.03</sub> Fe <sup>2+</sup> <sub>1.17</sub> Mg <sub>0.54</sub> Ca <sub>0.07</sub> K <sub>0.63</sub> Na <sub>0.06</sub> (OH) <sub>2</sub>	carga e.i. = 0.83
T-8(2C) :	(Si <sub>2.66</sub> Al <sub>1.34</sub> )O <sub>10</sub>	(Al <sub>0.76</sub> Fe <sup>3+</sup> <sub>0.22</sub> Fe <sup>2+</sup> <sub>0.80</sub> Mg <sub>0.94</sub> Ca <sub>0.17</sub> K <sub>0.50</sub> Na <sub>0.07</sub> (OH) <sub>2</sub>	carga e.i. = 0.91
T-8(2BW) :	(Si <sub>2.69</sub> Al <sub>1.31</sub> )O <sub>10</sub>	(Al <sub>0.72</sub> Fe <sup>3+</sup> <sub>0.79</sub> Fe <sup>2+</sup> <sub>0.13</sub> Mg <sub>0.83</sub> Ca <sub>0.28</sub> K <sub>0.23</sub> Na <sub>0.06</sub> (OH) <sub>2</sub>	carga e.i. = 0.85
T-3(2R) :	(Si <sub>2.40</sub> Al <sub>1.60</sub> )O <sub>10</sub>	(Al <sub>0.60</sub> Fe <sup>3+</sup> <sub>0.00</sub> Fe <sup>2+</sup> <sub>1.22</sub> Mg <sub>1.11</sub> Ca <sub>0.08</sub> K <sub>0.42</sub> Na <sub>0.07</sub> (OH) <sub>2</sub>	carga e.i. = 0.66
T-3(2C) :	(Si <sub>3.20</sub> Al <sub>0.80</sub> )O <sub>10</sub>	(Al <sub>1.20</sub> Fe <sup>3+</sup> <sub>0.02</sub> Fe <sup>2+</sup> <sub>1.03</sub> Mg <sub>0.31</sub> Ca <sub>0.13</sub> K <sub>0.09</sub> Na <sub>0.08</sub> (OH) <sub>2</sub>	carga e.i. = 0.44
T-3(2BW) :	(Si <sub>3.25</sub> Al <sub>0.75</sub> )O <sub>10</sub>	(Al <sub>0.97</sub> Fe <sup>3+</sup> <sub>0.91</sub> Fe <sup>2+</sup> <sub>0.02</sub> Mg <sub>0.27</sub> Ca <sub>0.12</sub> K <sub>0.13</sub> Na <sub>0.14</sub> (OH) <sub>2</sub>	carga e.i. = 0.52
T-6(2R) :	(Si <sub>2.71</sub> Al <sub>1.29</sub> )O <sub>10</sub>	Al(OH) <sub>6</sub> (Al <sub>0.52</sub> Fe <sup>2+</sup> <sub>1.83</sub> Mg <sub>0.79</sub> Ca <sub>0.14</sub> K <sub>0.11</sub> Na <sub>0.07</sub> (OH) <sub>2</sub>	
T-6(2C) :	(Si <sub>2.60</sub> Al <sub>1.40</sub> )O <sub>10</sub>	(Al <sub>0.68</sub> Fe <sup>3+</sup> <sub>1.19</sub> Fe <sup>2+</sup> <sub>0.18</sub> Mg <sub>0.41</sub> Ca <sub>0.19</sub> K <sub>0.17</sub> Na <sub>0.07</sub> (OH) <sub>2</sub>	carga e.i. = 0.62
T-6(2BW) :	(Si <sub>2.44</sub> Al <sub>1.55</sub> )O <sub>10</sub>	(Al <sub>0.90</sub> Fe <sup>3+</sup> <sub>0.76</sub> Fe <sup>2+</sup> <sub>0.53</sub> Mg <sub>0.56</sub> Ca <sub>0.10</sub> K <sub>0.10</sub> Na <sub>0.06</sub> (OH) <sub>2</sub>	carga e.i. = 0.37



Cuando la roca madre contiene biotitas en un grado de cloritización nulo o escaso, los correspondientes regolitos, desde el más profundo (menos alterado) al más superficial (más alterado), presentan la secuencia:

BIOTITA → INTERESTRAFICADO B-V → VERMICULITA

La existencia de biotita y clorita en las rocas frescas puede sugerir a priori que debemos encontrar en los regolitos los productos de alteración procedentes de ambas especies minerales. Sin embargo, las observaciones microscópicas y los análisis difractométricos permiten detectar distintos grados de cloritización de las biotitas de las rocas madre y la naturaleza muy puntual de dichas cloritizaciones. Así por ejemplo en T-6 y en T-1-2-3 las biotitas iniciales están bastante cloritizadas mientras que sus correspondientes regolitos lo están en mucho menor grado. En las secuencias de alteración de T-8 y T-3, entre la biotita inicial y la vermiculita final encontramos siempre el eslabón intermedio constituido por interestratificados B-V. En cambio la clorita inicial de T-8 y T-3, o bien se conserva en el regolito T-8, o bien desaparece en T-3, no encontrándose en ninguno de los dos casos el intergrado V-C1 que sería el término intermedio de alteración entre la clorita inicial y la vermiculita final (Seddoh y Pedro, 1974).

En T-6, sin embargo, la roca madre contiene biotitas en un alto grado de cloritización y sus regolitos presentan el intergrado V-C1. Seddoh y Pedro (1974) encuentran este mineral en relación con cloritas primarias en una granito del Macizo Central francés (clima mucho más húmedo y frío que el mediterráneo), e indican que o bien puede proceder de la alteración de las cloritas «normales» de la roca o bien proceder directamente de cloritas «degradadas» o «imperfectas» presentes ya en la roca granítica. Como la clorita encontrada en la roca fresca T-6 puede considerarse «normal», y ateniéndonos al tipo de evolución general encontrado en los demás perfiles, se considera que el intergrado V-C1 procede más probablemente de una clorita degradada que de la alteración superficial de una clorita normal.

Si se admitiera la hipótesis de una evolución edáfica «clorita a intergrado V-C1», estaríamos en un grado de alteración superior lo que supondría admitir grados de evolución diferentes para regolitos semejantes; si se considerara que el intergrado V-CL procede de una biotita inicial, habría que admitir, según Robert y Pedro (1972) y Vicente *et al.* (1977), un medio más ácido, totalmente distinto del que ha dado lugar a las vermiculitas en todos los demás perfiles de la zona estudiada, por lo que esta eventualidad parece poco probable.

Así pues, es probable que no se produzca alteración edáfica para la clorita en este medio:

CLORITA + CLORITA DEGRADADA → CLORITA + CLORITA DEGRADADA

Esta ausencia de alteración edáfica en las cloritas primarias quizá permita explicar la relación que se observa entre el grado de cloritización primaria de las biotitas de las rocas madre con el desarrollo de los regolitos en la Serra de Collcerola: cuanto más cloritizada está la biotita de la roca, menor espesor tiene el perfil de alteración (T-6, con la biotita más cloritizada, presenta un perfil de algo más de 1m; T-8, con la biotita menos cloritizada, presenta un perfil de más de 4m; T-1-2-3 es un caso intermedio). Si bien pueden existir otras causas que hayan intervenido en el espesor actual de dichos regolitos, la influencia del grado de cloritización primaria de las biotitas en la arenización del granito de Collcerola no puede descartarse.

Los análisis químicos de elementos totales reflejan los cambios mineralógicos y permiten caracterizar los cambios geoquímicos ocurridos:

— una oxidación progresiva del  $Fe^{2+}$  desde los niveles menos alterados hasta los más alterados.

— una pérdida progresiva del K interlaminar y una ganancia progresiva en Ca, lo que hace suponer que el Ca pasa a ocupar gran parte de las vacantes dejadas por el K. Las excepciones a esta tendencia se relacionan con el alto grado de cloritización de las biotitas del T-6, o bien, T-1-2-3, en donde se observa un ligero enriquecimiento de K en el regolito superficial respecto al regolito profundo, que podría atribuirse a una retrogradación parcial de la vermiculita a biotita.

— una hidratación progresiva importante sobre todo en los productos de alteración de las biotitas más pura y mucho menos en los minerales alterados procedentes de biotitas muy cloritizadas (ya previamente hidratadas durante la cloritización primaria).

Las fórmulas estructurales permiten constatar:

— una pérdida de los iones bivalentes, en especial el  $Fe^{2+}$ ;

— disminuye la ocupación octaédrica; se pasa de un mineral inicial predominantemente trioctaédrico a un mineral progresivamente más dioctaédrico;

— disminuye la carga de los espacios interlaminares.

Todo esto parece indicar una tendencia evolutiva de la alteración hacia la esmectización, si nos basamos en los resultados experimentales (Robert, 1971 y 1973), tendencia que se manifiesta en el inicio de esmectización de los bordes de las laminillas de las macrovermiculitas del perfil T-8 observadas con el MEB (Lámina I, foto 8).

Según los trabajos experimentales, las esmectitas se producen en medios ricos en Ca y Mg y Si (OH)<sup>4</sup> y pobres en K y Al, medios totalmente similares a los actuales en la zona estudiada en donde se observa recarbonatación en los horizontes superiores del suelo.

Indicaría también, como sucede en la alteración experimental de biotitas, que la estabilidad de la fase vermiculita (en este caso macrovermiculitas) en este medio es relativa.

Las segregaciones de oxihidratos de Fe observadas con el microscopio óptico y con el MEB, paralelamente a una ligera pérdida del Fe + 2 de la capa octaédrica, detectada (Vicente Hernández *et al.*, 1983) contribuyen ciertamente a la rubefacción del regolito, especialmente en los horizontes 2BW; dichas condiciones son las típicas bajo climas con regímenes de humedad contrastados (estaciones secas y calidas y estaciones húmedas y algo más frías) como el mediterráneo.

Esta evolución general de la biotitas en la región mediterránea concuerda con los resultados encontrados por Ballbé (1982) en la fracción arcillosa de suelos graníticos del Maresme (Barcelona) y coincide con las evoluciones encontradas por Tardy (1969), las citadas por Tsawlassou *et al.* (1972) y las revisadas por Douglas (1977). En todas estas alteraciones se requieren medios neutros o ligeramente alcalinos y un perfecto drenaje que asegure una oxidación intensa.

Finalmente cabe destacar la utilidad del uso conjunto de varias técnicas analíticas: si aisladamente casi todas coinciden en el diagnóstico del producto final, sólo en conjunto permiten explicar los tipos de evoluciones encontrados y sus excepciones o variantes.

#### AGRADECIMIENTOS

El autor agradece al Dr. M. Robert del Laboratorio de Suelos del INRA de Versailles por facilitarle el uso del DRX, las termobalanzas y el MEB y por su ayuda y orientación en las interpretaciones; al Dr. N. Fedoroff del INAPG de Grignon por su ayuda en la parte de Micromorfología; a la Dra. M.A. Vicente del Centro de Edafología del C.S.I.C. de Salamanca por sus oportunos comentarios en la revisión del manuscrito; a los Dres. R. Juliá y F. Plana por su revisión del trabajo. Agradece asimismo la información facilitada por el Dr. Enrique sobre las cloritizaciones en las granodioritas de la Sierra Litoral.

#### BIBLIOGRAFIA

ALEXIADES, C.A., POLYZOPOULOS, N.A., KOROXENIDES, N.S., AXARIS, G.S., 1973: High trioctaedral vermiculite content in the sand, silt and clay fractions of a gray brown podzolic soil in Greece. *Soil Science*, 116 (5): 363-375.

- BALLBE, E., 1975: *Génesis y evolución de los minerales de la fracción fina de los suelos de origen granítico de «El Maresme» (Barcelona)*. Resumen de la Tesis Doctoral. Universitat de Barcelona, Centre de Publicacions, 44 p.
- BECH, J., CHEVALIER, Y., DEJOU, J., 1975: Evolution géochimique superficielle des diorites quartziques dans les régions méditerranéennes humides; cas de Susqueda (Girona, Espagne). *C.R. Acad. Sci. Paris*, 280, série D, pp 387-390.
- BECH, J., CARDUS, J., LASALA, M., BOULEAU, A., LAMOUROUX, M., QUANTIN, P., SEGALÉN, P., 1983: Etude des sols formés sur les granites du Maresme (Catalogne, Espagne). *Cahiers de l'ORSTOM, sér. Pédologie*, XX (3): 209-221.
- BIROT, P., 1962: Contribution à l'étude de la désagregation des roches. Les Cours de la Sorbonne, Centre de Documentation Universitaire, Paris.
- BISDOM, E.B.A., 1967: Micromorphology of a weathered granite near the Rio de Arosa (NW Spain). *Leidse Geol. Meded.*, 37: 33-67.
- BISDOM, E.B.A., STOOPS, G., DELVIGNE, J., CURMI, P., ALTEMULLER, H.J., 1982: Micromorphology of weathering biotite and its secondary products. *Pedologie*, 32: 225-252.
- BREWER, R., 1964: *Fabric and mineral analysis of soils*. John Wiley & sons. 470 p.
- CHEVALIER, Y., DEJOU, J., 1972: Evolution géochimique superficielle en climat méditerranéen d'un granite à deux micas doté d'une porosité très élevée. *C.R. Acad. Sci. Paris*, 274, serie D, pp 1240-1243.
- CURMI, P., MAURICE, F., 1981: Microscope characterisation of the weathering in a granite saprolite, In E.A.E. Bisdom, ed., *Submicroscopy of soils and weathered rocks*, PUDOC, Wageningen, pp. 249-270.
- DOUGLAS, L.A., 1977: Vermiculites. In J.B. Dixon (ed) *Minerals in soil environments*, pp. 259-292. Soil Science Society of America. Madison, USA.
- ESWARAN, H., HENG, Y.Y., 1976: The weathering of biotite in profil on gneiss in Malasya. *Geoderma*, 16: 9-20.
- ESWARAN, H., BIN, W.C., 1978: A study of deep weathering profile on granite in Peninsular Malaysia, T. Physico-chemical and micromorphological properties. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 42: 144-149.
- GRAF VON REICHENBACH, H., RICH, C.I., 1975: Fine Grained Micas in Soils. in J.E. Gieseking, ed., *Soil Components*, Vol. 2, pp. 59-88.
- GONZALEZ GARCIA, S. y SANCHEZ CAMAZANO, M., 1968: Differentiation of kaolinite from chlorite by treatment with dimethylsulfoxide. *Clay Minerals*, 7: 447-450.
- ISMAIL, F.T., 1970: Biotite weathering and clay formation in arid and humid regions, California. *Soil Science*, 109 (4): 257-261.
- MEUNIER, A., 1975: Premières observations sur l'évolution des biotites de deux gisements d'arènes granitiques dans le Sud du Massif Armoricaïn (Région de Parthenay). *C.R. Acad. Sc. Paris*, t. 280, série D, pp. 221-224.
- NOVIKOFF, A., TSAWLASSOU, G., GAC, J.Y., BOURGEAT, F., TARDY, Y., 1972: Altération ds biotites dans les arènes des pays tempérés, tropicaux et équatoriaux. *Sci. Geol., Bull.*, 25 (4): 287-305.

- PEDRO, G., 1984: La genèse des argiles pédologiques. Ses implications minéralogiques, physico-chimiques et hydriques. *Sci. Geol., Bull.*, 37 (4): 333-347.
- PENVEN, M.J., FEDOROFF, N., ROBERT, M., 1981: Alteracion meteorica des biotites en Algerie. *Geoderma*, 26: 287-309.
- ROBERT, M., 1971: Etude expérimentale de l'évolution des micas (biotites) I. Aspects du processus de vermiculitisation. *Ann Agron.*, 22 (1): 43-93.
- ROBERT, M., 1973: The experimental transformation of mica toward smectite; relative importance of total charge and tetrahedral substitution. *Clays and clay minerals*, 21: 167-174.
- ROBERT, M., PEDRO, G., 1972: Etablissement d'un schéma de l'évolution expérimentale des micas trioctaédriques en fonction des conditions du milieu (pH, concentration). *Proceedings 1972 International Clay Conference*, pp 433-447.
- SEDDOH, F.K., 1973: *Altération des roches cristallines du Morvan: granites, granophyres, ryolites. Etude minéralogique, géochimique et micromorphologique*. These Doctorat Etat, Université de Dijon. 377 p.
- SEDDOH, F., PEDRO, G., 1974: Caractérisation des différents stades de transformation des biotites et biotites chloritisées dans les arènes granitiques du Morvan. *Bull. Groupe Franc. Argiles*, 26: 107-125.
- SEDDOH, F.K., ROBERT, M., 1972: Intérêt de l'utilisation du microscope électronique à balayage pour l'étude des micas et de leur évolution (évolution expérimentale et dans le milieu naturel). *Bull. Soc. Fran. Mineral. Cristall.*, 95: 75-83.
- TARDY, Y., 1969: Géochimie des altérations. Etude des arènes et des eaux de quelques massifs cristallins d'Europe et d'Afrique. *Mem. Serv. Carte Geol. Als. Lorr.*, 31, p. 199.
- VAQUER, R., 1972: *El metamorfismo y las rocas plutónicas y filonianas de la Sierra de Collserola*. Tesis doctoral inédita, Universidad de Barcelona.
- VERHEYE, W., STOOPS, G., 1975: Nature and evolution of soils developed on the granite complex in the subhumid tropics (Ivory Coast), II. Micromorphology and mineralogy. *Pédologie*, 25 (1): 40-55.
- VICENTE, M.A., RAZZAGHE, M., ROBERT, M., 1977: Formation on aluminium hydroxy vermiculite (Intergrade) and from mica under acidic conditions. *Clay Minerals*, 12: 101-112.
- VICENTE-HERNANDEZ, J., VICENTE, M.A., ROBERT, M., GOODMAN, B.A., 1983: Evolution des biotites en fonction des conditions d'oxydo-réduction du milieu. *Clay Minerals*, 18: 267-275.
- WILSON, J., 1966: The weathering of biotite in some Aberdeenshire soils. *Min. Mag.*, 35: 1080-1093

Recibido, abril 1987