

Dépôt Institutionnel de l'Université libre de Bruxelles / Université libre de Bruxelles Institutional Repository Thèse de doctorat/ PhD Thesis

Citation APA:

Pasteels, P. (1964). Mesures d'âges sur le zircon par les mérhodes U/Pb et Pb210/Pb. Application à deux études géochronologiques: Alpes centrales et terre de la Reine Maud (Antarctique) (Unpublished doctoral dissertation). Université libre de Bruxelles, Faculté des sciences, Bruxelles.

Disponible à / Available at permalink : https://dipot.ulb.ac.be/dspace/bitstream/2013/215410/3/ca45d769-94ec-420c-b008-964a1c3c7ab3.txt

(English version below)

Cette thèse de doctorat a été numérisée par l'Université libre de Bruxelles. L'auteur qui s'opposerait à sa mise en ligne dans DI-fusion est invité à

prendre contact avec l'Université (di-fusion@ulb.be).

Dans le cas où une version électronique native de la thèse existe, l'Université ne peut garantir que la présente version numérisée soit identique à la version électronique native, ni qu'elle soit la version officielle définitive de la thèse.

DI-fusion, le Dépôt Institutionnel de l'Université libre de Bruxelles, recueille la production scientifique de l'Université, mise à disposition en libre accès autant que possible. Les œuvres accessibles dans DI-fusion sont protégées par la législation belge relative aux droits d'auteur et aux droits voisins. Toute personne peut, sans avoir à demander l'autorisation de l'auteur ou de l'ayant-droit, à des fins d'usage privé ou à des fins d'illustration de l'enseignement ou de recherche scientifique, dans la mesure justifiée par le but non lucratif poursuivi, lire, télécharger ou reproduire sur papier ou sur tout autre support, les articles ou des fragments d'autres œuvres, disponibles dans DI-fusion, pour autant que : - Le nom des auteurs, le titre et la référence bibliographique complète soient cités;

- L'identifiant unique attribué aux métadonnées dans DI-fusion (permalink) soit indiqué;

- Le contenu ne soit pas modifié.

L'œuvre ne peut être stockée dans une autre base de données dans le but d'y donner accès ; l'identifiant unique (permalink) indiqué ci-dessus doit toujours être utilisé pour donner accès à l'œuvre. Toute autre utilisation non mentionnée ci-dessus nécessite l'autorisation de l'auteur de l'œuvre ou de l'ayant droit.

------ English Version ------

This Ph.D. thesis has been digitized by Université libre de Bruxelles. The author who would disagree on its online availability in DI-fusion is

invited to contact the University (di-fusion@ulb.be).

If a native electronic version of the thesis exists, the University can guarantee neither that the present digitized version is identical to the native electronic version, nor that it is the definitive official version of the thesis.

DI-fusion is the Institutional Repository of Université libre de Bruxelles; it collects the research output of the University, available on open access as much as possible. The works included in DI-fusion are protected by the Belgian legislation relating to authors' rights and neighbouring rights. Any user may, without prior permission from the authors or copyright owners, for private usage or for educational or scientific research purposes, to the extent justified by the non-profit activity, read, download or reproduce on paper or on any other media, the articles or fragments of other works, available in DI-fusion, provided:

- The authors, title and full bibliographic details are credited in any copy;

- The unique identifier (permalink) for the original metadata page in DI-fusion is indicated;
- The content is not changed in any way.

It is not permitted to store the work in another database in order to provide access to it; the unique identifier (permalink) indicated above must always be used to provide access to the work. Any other use not mentioned above requires the authors' or copyright owners' permission. UNIVERSITE LIBRE

N 2759

DE BRUXELLES

FACULTE DES SCIENCES

MESURES D'AGES SUR LE ZIRCON PAR LES METHODES U/Pb ET Pb 210

APPLICATION A DEUX ETUDES GEOCHRONOLOGIQUES :

ALPES CENTRALES ET TERRE DE LA REINE MAUD (ANTARCTIQUE)

Paul PASTEELS

Aspirant du Fonds National de la Recherche Scientifique Service de Géologie et Géochimie Nucléaires de l'U. L. B.

Thèse présentée en vue de l'obtention du grade de Docteur en Sciences Géologiques et Minéralogiques, suivie d'une thèse annexe.

<u>CET OUVRAGE N'ETANT PAS</u> <u>DANS LE DOMAINE PUBLIC.</u> <u>NE PEUT ETRE COMMUNIQUE</u> <u>QU'AVEC L' AUTORISATION DE L'AUTEUR.</u>

Septembre 1964

UNIVERSITE LIBRE

DE BRUXELLES

FACULTE DES SCIENCES

MESURES D'AGES SUR LE ZIRCON PAR LES METHODES U/Pb ET Pb²¹⁰/Pb

APPLICATION A DEUX ETUDES GEOCHRONOLOGIQUES :

ALPES CENTRALES ET TERRE DE LA REINE MAUD (ANTARCTIQUE)

Paul PASTEELS

Aspirant du Fonds National de la Recherche Scientifique Service de Géologie et Géochimie Nucléaires de l'U.L.B. 550.43

Thèse présentée en vue de l'obtention du grade de Docteur en Sciences Géologiques et Minéralogiques, suivie d'une thèse annexe.



Septembre 1964

P 268m

Cop.-

TABLE DES MATIERES

Avant-propos	5
Subdivisions du travail	8
Première partie. Les méthodes géochronologiques dans leur état actuel	9
Chapitre 1 - L'analyse par dilution isotopique	9
I - 1 - 1 Principe de la méthode	9
I - 1 - 2 Avantages de la dilution isotopique, dans le cas des	
mesures d'âge	-11
Chapitre 2 - La méthode Potassium-Argon	12
I - 2 - 1 Principe de la méthode	12
I - 2 - 2 Pertes et réincorporations d'argon	13
I - 2 - 3 Application aux matériaux jeunes	15
Chapitre 3 - La méthode Rubidium-Strontium	16
I - 3 - 1 Principe de la méthode	16
I - 3 - 2 Géochimie du Rubidium et du Strontium	17
I - 3 - 3 Composition isotopique du strontium commun	18
I - 3 - 4 Pertes et redistributions de Sr ⁸⁷	21
Chapitre 4 - La méthode du Plomb	25
I - 4 - 1 Principe de la méthode	25
I = 4 = 2 Ages discordants	29
Chapitre 5 - Application au zircon de la méthode du Plomb	39
I - 5 - 1 Propriétés générales du zircon	39
I - 5 - 2 La méthode Pb/ α	43
I - 5 - 3 Application au zircon de la méthode du Plomb complète	44
I - 5 - 4 Expériences de lavage aux acides	45
I - 5 - 5 Age pattern du zircon	46
Chapitre 6 - Comparaison des méthodes géochronologiques et établisse	- 52
ment d'un âge absolu	
I - 6 - 1 Comparaison entre les diverses méthodes de mesure d'âge	52
I - 6 - 2 L'échelle des temps géologiques	55
Deuxième partie. Mises au point expérimentales	54
Chapitre 1 - Séparation mécanique du zircon et mesure de l'activité	α 59
II - 1 - 1 Echantillonnage	59
II - 1 - 2 Séparation du zircon	59
II - 1 - 3 Mesure de l'activité α et examen du concentré	61
265838	

	Chapitre 2 - Méthode de dilution isotopique : chimie	64
	II - 2 - 1 Préparation, calibrage et vérification des spikes	64
	II - 2 - 2 Mise en solution du minéral et séparations de U et Pb	41
	II - 2 - 3 Précautions pour éviter les contaminations	46
	Chapitre 3 - Spectrométrie de masse	82
	II - 3 - 1 Description du spectromètre	82
	II - 3 - 2 Spectrométrie du Plomb	82
	II - 3 - 3 Spectrométrie de l'Uranium	90
	Chapitre 4 - Application au zircon de la méthode du Ra D	91
	II - 4 - 1 Introduction	91
	II - 4 - 2 Techniques utilisées	94
	II - 4 - 3 Etalonnage	95
	II - 4 - 4 Résultats expérimentaux	103
	II - 4 - 5 Conclusions	107
	Annexe au chapitre 4 - Résultats expérimentaux des mesures du Ra D	
	(Pb ²¹⁰) concernant six échantillons de zircon	109
r	oisième partie. Applications géochronologiques	115
	Chapitre 1 - Etudes géochronologiques dans les Alpes centrales :	
	introduction	-115
	Chapitre 2 - Massif de l'Aar	114
	III - 2 - 1 Introduction géologique	117
	III - 2 - 2 Résultats géochronologiques Rb/Sr et K/A publiés par	art
	d'autres auteurs	-119
	III - 2 - 3 Description des échantillons de roche et de zircon	121
	III - 2 - 4 Mesures sur zircon	127
	III - 2 - 5 Discussion des résultats et conclusions	129
	Chapitre 3 - Granite de Baveno - Monte Orfano	132
	III - 3 - 1 Introduction géologique	132
	III - 3 - 2 Résultats géochronologiques publiés par d'autres auteur	s 133
	III - 3 - 3 Description des échantillons de roche et de zircon	134
	III - 3 - 4 Mesures sur zircon	137
	III - 3 - 5 Discussion des résultats et conclusions	138
	Chapitre 4 Granite d'Habkern	140
	III - 4 - 1 Introduction géologique	140
	III - 4 - 2 Mesure Rb/Sr	140
	III - 4 - 3 Description des échantillons de roche et de zircon	141
	III - 4 - 4 Mesures sur zircon	142
	III - 4 - 5 Discussion des résultats et conclusions	142

T

	Chapitre 5 -	Gneiss de la Silvretta	144
	III - 5 - 1	Introduction géologique	144
	III - 5 - 2	Résultats Rb/Sr publiés par d'autres auteurs	145
	III - 5 - 3	Description des échantillons de roche et de zircon	146
	III - 5 - 4	Mesures sur zircon	148
	III - 5 - 5	Discussion des résultats et conclusions	148
	Chapitre 6 -	Application des mesures sur halos pléochroïques à l'étude	
		du métamorphisme alpin	152
	III - 6 - 1	Introduction	152
	III - 6 - 2	Principe et hypothèses de base de la méthode	152
	III - 6 - 3	Techniques et mode de représentation des résultats	154
	III - 6 - 4	Age du métamorphisme alpin, dans les Alpes centrales	155
	III - 6 - 5	Applications de la méthode des halos.	157
		Problème du point de comparaison	
	III - 6 - 6	Tableau des résultats et conclusions	159
	Chapitre 7 -	Etude géochronologique des Monts Sör-Rondane, Terre de la	
		Reine Maud (Antarctique)	160
	III - 7 - 1	Introduction géologique	160
	III - 7 - 2	Résultats géochronologiques Rb/Sr et K/A	164
	III - 7 - 3	Description des échantillons de roche et de zircon	165
	III - 7 - 4	Mesures sur zircon	170
	III - 7 - 5	Discussion des résultats et conclusions	171
Qua	trième partie	. Conclusions générales	175
	IV - 1 - 1	Techniques et méthodologie	115
	IV - 1 - 2	Conclusions intéressant la géologie et la géochronologie.	176
Bib	liographie		182

TABLE DES FIGURES

Fig. I - 3 - 4A	Evolution de la composition isotopique du strontium au
	cours du temps
Fig. I - 3 - 4B	Graphique des isochrones
Fig. I - 4 - 1	Familles radioactives naturelles
Fig. I - 4 - 2A	Diagramme "Concordia"
Fig. I - 4 - 2B	Courbes de diffusion continue suivant les modèles de
	TILTON (a) et de WASSERBURG (b) pour des minéraux de 1800 m.a.
Fig. II - 3 - 2B	Spectrogramme de plomb de zircon
Fig. II - 3 - 20	Diagramme triangulaire permettant la détermination
	graphique de Pb rad
Fig. II - 4 - 3B	Courbe d'étalonnage du compteur de Geiger (étalon a)
Fig. III - 1	Carte tectonique sommaire des Alpes centrales (1 : 1.000.000)
Fig. III - 5 - 5	Diagramme "Concordia" relatif aux zircons de la Silvretta
Fig. III - 6 - 3	Halos de quelques roches des Alpes. Réseau d'isochrone d'après le granite de la Bresse (Vosges)
La numérotation d	des figures correspond à celle des subdivisions du texte
Il en est de même	e des tableaux hors-texte.

PLANCHES PHOTOGRAPHIQUES

Planche	I	Zircons	de	roches	des	AI	Lрев				
Planche	II	Zircons	de	roches	de	la	Terre	de	la	Reine	Maud

THESE ANNEXE.

201

AVANT-PROPOS

Les méthodes géochronologiques basées sur la radioactivité ont pris un développement important depuis que le perfectionnement des techniques a permis leur application aux minéraux de roches ordinaires. L'introduction de l'analyse par dilution au moyen d'isotopes stables (INGHRAM,1954) constitue dans ce domaine une étape très importante. Trois méthodes de datation sont actuellement d'un usage courant : la méthode U(Th)/Pb, la méthode Rb/Sr et la méthode K/A. Leurs indications se complètent plus qu'elles ne se remplacent mutuellement : chaque minéral, chaque élément a son comportement particulier.

D'un autre côté, la mise en oeuvre de ces méthodes exige un équipement important, en locaux et appareillage, ainsi qu'un personnel qualifié permanent. Ceci n'est justifié que dans l'optique d'un programme de mesure de longue haleine, portant sur un grand nombre d'échantillons. L'application d'une seule méthode géochronologique ne pourra se faire que dans le cadre restreint où cette méthode à elle seule pourra fournir toutes les indications souhaitables. Un laboratoire équipé pour la mise en oeuvre des trois méthodes pourra évidemment aborder l'étude de problèmes beaucoup plus vastes et plus complexes. Depuis quelques années, le Service de Géologie et Géochimie Nucléaires, dirigé par M. le Professeur E.PICCIOTTO (à l'origine, Section de Géologie Nucléaire du Laboratoire de Physique Nucléaire) a entrepris un pareil programme d'équipement.

C'est dans le cadre de ce programme plus vaste que s'intègre mon travail de mise au point et d'application d'une méthode géochronologique. Je tiens à adresser mes remerciements les plus vifs à M. le Professeur E.PICCIOTTO, qui m'a dirigé dans mon travail, dont les indications et les conseils m'ont guidé constamment.

Cette thèse concerne l'application de la méthode U/Pb au zircon, le seul minéral uranifère très répandu, en faible abondance, auquel cette application soit presque toujours possible, grâce aux perfectionnements techniques rappelés plus haut. En fait, des trois méthodes précitées, elle est la plus délicate du point de vue expérimental. Mais sa mise en oeuvre est indispensable si l'on veut disposer d'informations complètes dans les cas intéressants et compliqués. La mise au point au laboratoire des techniques de dilution isotopique pour le dosage de U et Pb s'imposait, car aucune technique plus rapide ou moins coûteuse n'allie la sensibilité et la précision qui sont requises dans le cas présent.

Les problèmes techniques sont de divers ordres : séparation mécanique

du zircon, séparation et dosage de U et Pb à l'état de traces, spectrométrie de masse de très faibles quantités de plomb et d'uranium. Je n'aurais pu surmonter ces difficultés si je n'avais pu être guidé par des personnes ayant une grande expérience de ces questions, que je voudrais remercier ici.

Pour la séparation du zircon, j'ai pu profiter de l'hospitalité de M. le Professeur E.NIGGLI, et de la direction de Mlle E.JAGER, à l'Institut de Minéralogie et de Pétrographie de l'Université de Berne, ainsi que de l'hospitalité de M. le Professeur L.CAHEN, Directeur du Musée Royal de l'Afrique Centrale à Tervuren.

Pour les opérations de purification des réactifs et de chimie du zircon, l'aide et les conseils de Mmes D.LEDENT et S.DEUTSCH, ainsi que leur expérience acquise au California Institute of Technology, m'ont été particulièrement profitables.

Enfin, les problèmes de spectrométrie de masse ont été résolus assez aisément grâce au spectromètre construit au laboratoire par M.REINHARZ, R.DELWICHE et J.KATZ (1962), et à l'aimable compétence de R.DELWICHE et C.LAY.

Puisque seules des considérations techniques et matérielles ont jusqu'à présent limité la généralisation des mesures d'âges sur zircon, il paraissait intéressant de vérifier si des simplifications expérimentales ne pouvaient pas être obtenues. C'est dans ce but que j'ai cherché à appliquer au zircon la méthode du Ra D, où l'Uranium est dosé par l'activité d'un de ses descendants, isotope du Flomb, ce qui offre certains avantages. Une technique adéquate de mesure de faible activité a été mise au point à cet effet.

Les applications géologiques ont porté sur une assez grande varieté de cas. On a recherché des situations géologiques simples, connues, afin d'éprouver les possibilités de la méthode et de revoir certaines notions admises concernant l'interprétation des résultats. On s'est aussi attaché à résoudre des problèmes géologiques locaux plus compliqués ou encore peu étudiés. On s'est limité toutefois à l'étude des terrains paléozoïques qui offrent, en Europe surtout mais aussi en dehors de l'Europe, de larges domaines d'étude encore peu abordés par la géochronologie. Dans ce domaine des âges relativement "jeunes", l'utilité de la méthode U/Pb a souvent été contestée. Il serait plus exact de dire que sa mise en oeuvre exige une bonne précision expérimentale dans l'analyse isotopique du plomb, faute de quoi les résultats sont inutilisables. Dans les terrains précambriens, il a été maintes fois observé que des résultats Rb/Sr et K/A demandent à être confirmés et complétés par des mesures

sur zircon. On conçoit mal pourquoi il en irait autrement dans le cas de roches plus jeunes, et nous nous proposons de fournir des exemples qui préciseront cette question.

Des mesures Rb/Sr sur les mêmes roches ont été faites à Berne par Mlle-E.JAGER et M.H.WÜTHRICH, et à Bruxelles par Mme S.DEUTSCH, principalement. On dispose aussi de quelques résultats K/A. On a veillé à discuter et interprêter ces résultats géochronologiques assez complets en fonction de toutes les données géologiques disponibles. Les informations complémentaires pouvant être apportées par l'examen au microscope des échantillons de roche et de zircon n'ont pas été négligées.

Une importante partie de mon travail est consacrée à l'étude de quelques problèmes de géologie alpine. La chaîne des Alpes fournit en effet des cas fort bien étudiés, simples ou compliqués à souhait, pouvant servir en quelque sorte à éprouver les possibilités des méthodes géochronologiques. Le Professeur E.NIGGLI, de l'Université de Berne, a accepté de diriger cette partie de ma thèse, pour tout ce qui concerne ses implications géologiques, y compris le choix des problèmes intéressants. Qu'il veuille trouver ici l'expression de toute ma gratitude.

Les échantillons des expéditions Antarctiques Belges, prélevés principalement par le Professeur E.PICCIOTTO fournissaient par ailleurs l'occasion d'appliquer la méthode au cas très différent d'une région encore très mal connue. C'est en pareil cas que la géochronologie a fait dès ses débuts la preuve de son utilité. Les mesures sur zircon ont été prévues dès le début du programme de datation entrepris au laboratoire, sur du matériel antarctique.

Je ne voudrais terminer cet avant-propos sans remercier vivement A. GIULIANI qui a effectué une partie des mesures préliminaires et de vérification, et, pour leur aide apportée avec beaucoup d'obligeance, aux chercheurs et techniciens du Service que je n'ai pas encore nommés, ainsi qu'aux techniciens des services généraux de la Physique Nucléaire.

J'ai eu l'heureuse occasion, à propos de certains aspects de mon travail, de pouvoir profiter des avis de personnes compétentes, au cours de fructueuses discussions. Ce sont particulièrement les Professeurs L.CAHEN, J.GEISS, J.MICHOT, L.T.SILVER, que je voudrais remercier à ce sujet.

Je voudrais également exprimer ma gratitude au Fonds National de la Recherche Scientifique, qui m'a offert la possibilité de me consacrer à la Recherche. L'Institut Interuniversitaire des Sciences Nucléaires a contribué au soutien matériel de mes travaux. Pour une part, ceux-ci ont été effectués dans le cadre du contrat n°013-61-7 AGEC de l'association EURATOM-U.L.B.-CNEN.

Subdivisions du travail

La première partie est introductive et traite de l'état actuel de la science géochronologique. A cause des développements récents et très rapides de celle-ci, une revue de la question nous a paru nécessaire. On a traité plus en détail tout ce qui concerne la méthode U/Pb appliquée au zircon.

Dans une deuxième partie, on a groupé tout ce qui concerne les mises au point méthodologiques. Les trois premiers chapitres concernent les diverses opérations nécessaires à l'obtention d'une mesure d'âge sur zircon par dilution isotopique, et le quatrième traite des possibilités d'application au zircon de la méthode du Ra D (Pb²¹⁰). A ce propos, on a essentiellement cherché à vérifier si une autre technique, plus simple, n'était pas utilisable. Les résultats ne complètent donc pas ceux obtenus par dilution isotopique, qui se suffisent à eux-mêmes et seront seuls discutés dans la troisième partie. Celle-ci concerne les applications.

Les cinq premiers chapitres de cette partie III traitemides cas géologiques pris dans les Alpes centrales. On a consacré un sixième chapitre à une brève revue des résultats obtenus par la méthode des halos pléochroïques, aux mêmes roches ou à des roches appartenant aux mêmes unités géologiques. Ces résultats obtenus par une méthode relativement originale, mise au point au laboratoire par DEUTSCH, HIRSCHBERG et PICCIOTTO (1956), peuvent être reconsidérés à la lumière d'indications géochronologiques plus sûres et plus complètes, acquises à l'heure actuelle. Le dernier chapitre de la troisième partie concerne la géochronologie des Monts Sör Rondane, Terre de la Reine Maud.

Les conclusions finales font l'objet de la quatrième partie.

PREMIERE PARTIE. LES METHODES GEOCHRONOLOGIQUES DANS LEUR ETAT ACTUEL

CHAPITRE 1. L'ANALYSE PAR DILUTION ISOTOPIQUE

I-1-1 Principe de la méthode

La dilution isotopique "au moyen d'isotopes stables" (stable isotope dilution) est une méthode de dosage des éléments chimiques qui allie une grande précision à une sensibilité élevée. Son inconvénient est la mise en oeuvre d'une technique coûteuse: la spectrométrie de masse. Comme elle nécessite l'emploi d'isotopes enrichis (en principe stables mais ils peuvent être radioactifs), son développement n'est que récent (INGHRAM 1955).

On ajoute à la solution totale d'un échantillon une quantité connue d'un traceur isotopique de l'élément à doser. Ce traceur, désigné aussi par les termes d'étalon interne, isotope enrichi, ou "spike" (terme anglais) a une composition isotopique connue et aussi différente que possible de celle de l'élément à doser présent dans l'échantillon. L'équilibre isotopique doit être assuré dans le mélange avant toute opération de séparation chimique éventuelle et de spectrométrie de masse. La composition isotopique de l'élément à doser est altérée par l'ajoute du spike, et la mesure de cette composition isotopique nouvelle permet le calcul de la concentration. En effet, elle ne dépend que des proportions relatives du spike et de l'élément à doser.

Toute opération subséquente de séparation et de purification chimique est conditionnée par les exigences de la spectrométrie de masse. On peut s'abstenir de toute séparation si l'élément s'ionise à température peu élevée et en présence de quantités proportionnellement élevées d'autres substances. C'est le cas du Rubidium. Pour d'autres éléments s'ionisant plus difficilement, on peut s'abstenir de purifications poussées s'il n'y a pas de masses isobares s'ionisant à la même température. On envisage ici le cas d'un dépôt solide sur un filament qui assure l'ionisation. La spectrométrie des gaz (Argon) fait appel à d'autres techniques. Dans tous les cas, on peut ignorer complétement le rendement des séparations chimiques effectuées après l'addition du spike et l'homogénéisation isotopique.

Soit un élément dont on désigne par a, b, ..., les isotopes.

Soient X_a , X_b ,... le nombre de moles des isotopes a, b,..., contenus dans X moles d'échantillon. On connaît X_a/X , X_b/X , etc (composition isotopique de l'élément à doser).

Soient S_a, S_b,... le nombre de moles des isotopes a,b,..., contenus dans S moles de spike.

Soient M_a, M_b,... le nombre de moles des isotopes, a,b,..., contenus dans M moles de mélange. M = S + X, M_a = S_a + X_a, etc. Le rapport M_a/M_b est déterminé au spectromètre de masse.

$$\frac{M_{a}}{M_{b}} = \frac{S_{a} + X_{a}}{S_{b} + X_{b}} = \frac{S_{a} + \frac{X_{a}}{X} \cdot X}{S_{b} + \frac{X_{b}}{X} \cdot X}$$

d'où

$$X = \frac{\frac{M_a}{M_b} \cdot S_b - S_a}{\frac{X_a}{\frac{X}{X} - \frac{M_a}{M_b} \cdot \frac{X_b}{X}}}$$
 (I -1 -1)

Cette formule concerne le cas du mélange de deux constituants. On voit que la mesure du rapport de deux isotopes suffit pour le calcul de X. Au cas où il y aurait un troisième isotope C , le calcul pourrait être fait également soit par le rapport M_a/M_c , soit par le rapport M_b/M_c . On choisira le rapport qui donne la meilleure précision. L'erreur sur X est plus grande que l'erreur sur la mesure spectrométrique du rapport M_a/M_b , sauf dans un cas particulier. Ce cas est celui où $M_a = S_a$ et $M_b = X_b$: chacun des deux isotopes dont on mesure le rapport n'est présent que dans le spike, pour l'un, que dans l'échantillon, pour l'autre. Le"facteur de magnification" de l'erreur est égal à 1. Dans le cas général, ce facteur est supérieur à 1 et varie avec les proportions relatives de X et S , et avec le rapport isotopique choisi pour le calcul, s'il y a plus de deux isotopes (R.WEBSTER dans SMALES et WAGER 1960).

On peut considérer également le cas du mélange de trois constituants de compositions isotopiques différentes et connues : S + X + Y = M. Seul, le nombre de moles S est connu. Dans le cas d'une mesure d'argon, par exemple, on aura un mélange du spike, de A⁴⁰ radiogénique, et de l'argon atmosphérique provenant de sources diverses. De même, il convient de distinguer entre Sr^{87} radiogénique et Sr commun (élément Sr de composition isotopique ordinaire), Pb radiogénique et Pb commun. Le calcul de X (et de Y) exige alors la mesure des proportions relatives de 3 isotopes au moins dans le mélange M = S + X + Y. Comme on verra au chapitre V, où le cas du plomb sera traité plus en détail, l'utilisation d'un graphique triangulaire a - b - c est plus aisé que le calcul.

I - 1 - 2 Avantages de la dilution isotopique, dans le cas des mesures d'âge

Pour plusieurs raisons, la dilution isotopique s'impose dans le cas des mesures d'âge sauf pour le dosage du potassium, ainsi que de U, Th et Pb dans les minerais uranifères et thorifères riches : uranimite, pechblende, thorite, etc.

Premièrement, il n'est guère d'autres méthodes d'analyse permettant un dosage de quelques centaines ou dizaines de ppm (10⁻⁶gr/gr) à 1 ou 2 % près, pour une grande variété d'éléments.

Ensuite, dans le cas du descendant radiogénique : A, Sr, Pb, il y a généralement mélange avec l'élément ordinaire, que ce dernier soit présent dans l'échantillon, ou introduit par les réactifs et au cours des manipulations. Seule une analyse isotopique peut faire la part de ce qui est radiogénique et de ce qui est commun. Quelle que soit la méthode d'analyse que l'on propose d'appliquer, il convient donc de faire aussi une analyse isotopique.

Dans le cas de l'argon et du strontium, si l'on fait cette mesure spectrométrique, indispensable dans la grosse majorité des cas, sur un mélange de trois constituants S + X + Y au lieu de deux X + Y , on peut calculer X sans qu'aucuneautre mesure ne soit nécessaire.

Dans le cas du plomb une mesure spectrométrique du mélange X + Y est indispensable, car c'est la seule manière dont on dispose pour déterminer la composition isotopique de X , la fraction radiogénique du plomb. Cellcci est en effet constituée selon les cas, de deux ou trois isotopes, contrairement au cas de A et de Sr où il n'y a qu'un isotope radiogénique. les proportions relatives des isotopes radiogéniques dans le plomb dépendent de l'âge et du rapport Th/U et sont donc très variables. Donc, le dosage du plomb d'un minéral uranifère par dilution isotopique requiert deux mesures spectrométriques : X + Y et S + X + Y. Mais la dilution isotopique s'impose pour d'autres raisons, que l'on aura l'occasion de détailler au chapitre 5.

Pour en revenir au cas du strontium, une mesure de Sr⁸⁷ rad est encore possible avec une précision passable dans un échantillon où $sr^{87}rad/sr^{87}total = 0,1.$ Or sr^{87} ne constitue que 7 % du Sr commun. X1 vient donc : $sr^{87}rad/sr$ total = 0,7 %. Une méthode d'analyse autre que la dilution isotopique exigerait que l'on soit assuré au départ que $sr^{87}rad/sr$ total = 100 %.

CHAPITRE 2. LA METHODE POTASSIUM-ARGON

I - 2 - 1 Principe de la méthode

La composition isotopique du Potassium naturel est, actuellement,

^{K39}	93,08 %
к ⁴⁰	0,0119 %
к41	6,91 %

(valeurs tabulées par CHERDYNTSEV, 1961, p.273).

De ces trois isotopes, seul K^{40} est radioactif. Il se désintègre par deux processus : émission β^- pour donner Ca⁴⁰, capture électronique suivie d'émission γ , pour donner A⁴⁰. Théoriquement, deux méthodes de mesure d'âge basées sur la radioactivité du Potassium sont concevables : l'une basée sur le rapport A⁴⁰/K⁴⁰, l'autre sur le rapport Ca⁴⁰/K⁴⁰. Cette dernière méthode n'est toutefois applicable qu'à des minéraux dépourvus de presque toute trace de calcium non radiogénique car Ca⁴⁰ constitue 97 % du Ca naturel. Elle a pu être appliquée avec succès, dans quelques cas, à des sylvites et des lépidolites.

Si $\lambda \beta$ est la constante de désintégration β^- , λ_2 la constante de désintégration par capture électronique, l'âge A/K se calcule par la relation

$$t = \frac{1}{\lambda_e + \lambda_\beta} \ln \left(1 + \frac{\lambda_e + \lambda_\beta}{\lambda_e} - \frac{\left[A^{40}\right]}{\left[\kappa^{40}\right]}\right)$$

Les mesures précises des constantes λ_e et λ_β se heurtent à des difficultés expérimentales. Cette question est passée en revue par L.T. ALDRICH et G.W.WETHERILL (1958) qui adoptent les valeurs de

$$\lambda_{e} = 5,85 \cdot 10^{-11} \text{ ans}^{-1} \pm 5\%$$

 $\lambda_{\beta} = 4,72 \cdot 10^{-10} \text{ ans}^{-1}$

qui représentent une moyenne des meilleures déterminations physiques.

Pour les âges de moins de 1000 m.a., l'erreur sur l'âge introduit par l'incertitude sur les constantes est presque proportionnelle à l'incertitude sur $\lambda_{\mathfrak{S}}$, et presque insensible à l'incertitude sur $\lambda_{\mathfrak{S}}$. De nombreux auteurs utilisent les valeurs indiquées plus haut. FOLINSBEE, BADSGAAPD, LIPSON (Université d'Alberta) utilisent des valeurs très légèrement différentes. Des auteurs soviétiques et W.H.PINSON Jr.(1961) utilisent une valeur de λ ede quelque 5 % plus faible, conduisant donc au calcul de valeurs de t de 5 % plus élevées. Il y a également une petite incertitude sur l'abondance de K⁴⁰, qui serait plutôt de 0,0118 %, suivant RANKAMA (1963). Il ne faut pas perdre de vue que d'autres valeurs, certainement plus inexactes, de λ e ont été utilisées pour certaines mesures publiées avant 1958.

La méthode K/A est applicable à tous les minéraux potassiques, y compris certaines amphiboles et certains pyroxènes, et aux roches contenant quelques pourcent de potassium, sans séparation des minéraux. Cet avantage, qui paraît considérable, est compensé par la relative facilité avec laquelle l'argon peut migrer hors du réseau du minéral hôte.

I - 2 -2 Pertes et réincorporations d'argon

Pertes d'argon à basse température dans les conditions naturelles

Ces pertes peuvent être mises en évidence par comparaison des résultats obtenus sur différents minéraux d'une même roche, par la méthode K/A seule ou d'autres méthodes également. L'expérimentation en laboratoire, à températures élevées, permet d'établir des lois extrapolables aux conditions de température plus basses. On a pu reconnaître différentes positions structurales de l'argon dans le réseau des minéraux étudiés, et mesurer les énergies d'activation correspondantes pour la migration de l'argon. Dans ce domaine, un travail très important a été effectué notamment par : J.REYNOLDS ; E.K.GERLING et I.M.MOROZOVA ; J.F.EVERNDEN, G.H. CURTISS, R.KISTLER et J.OBRADOVITCH ; K.I.AMIRKHANOV, S.B.BRANDT, et E.N. BARTNISKII (1961) ; H.W.FECHTIG, GENTNER, et J.ZAHRINGER ; S.R.HART ; J. GEISS et D.C.HESS (les références complètes sont données dans HURLEY et al. 1962).

Le microcline perthitique est susceptible de perdre, à basse température, une proportion variable d'argon : de 5 % à 85 % dans les cas extrêmes, et environ 25 % à 30 % dans une proportion importante des cas. Cette migration, suivant AMIRKHANOV et al. (1961), serait le résultat d'un processus de désorption à partir des discontinuités dans le réseau cristallin, et non un processus de diffusion. Ces auteurs décrivent une technique destinée à éliminer A et K se trouvant dans la zone instable de désordre structural. SARDAROV (1957) a observé une relation nette entre le degré de perthitisation du microcline et la perte d'argon dans ce minéral (estimée par comparaison de t K/A de paires mica-microcline).

La sanidine volcanique ne perdrait par contre pas d'argon à basse température (BAADSGAARD et al., 1961 ; ADAMS and ROGDERS, 1961). Les micas et la hornblende paraissent conserver presque quantativement leur argon à faible température. Les âges K/A mesurés sur glauconie sont généralement assez exacts, dans la mesure où ce minéral n'a pas subi de modifications structurales, lesquelles peuvent se produire, à température très modérée, suite par exemple à l'enfouissement. Les glauconies paléozoïques donnent souvent des âges trop bas (EVERNDEN et al., 1961 ; MURINA et SPRINTSSON 1961). On a cherché aussi à appliquer la méthode à l'illite a thigène contemporaine de la sédimentation. La méthode K/A est également applicable à des minéraux détritiques, dans le but de faire des études de provenance.

Les mesures d'âges K/A sur roche totale sont susceptibles de donner des résultats inexacts par défaut, dans la mesure où la roche contient du feldspath perthitique ou d'autres minéraux à faible rétention. C'est le cas le plus fréquent. ERICKSON et KULP citent un cas de 100 % de rétention pour une cornéenne, 75 % à 85 % pour une diabase, 40 % seulement pour un basalte (1961). Les verres volcaniques non dévitrifiés conserveraient presque tout leur argon, à l'inverse de verres dévitrifiés (SCHAEFFER et al.,1961).

Pertes d'argon durant le broyage en laboratoire

De telles pertes peuvent se produire et il convient de prendre certaines précautions pour les éviter. Ainsi GERLING et al. (1961) ont pu montrer qu'un simple broyage mécanique du mica peut provoquer une perte de l'argon allant jusqu'à 30 %, par distorsion du réseau. (Divers travaux sur la question sont également cités et résumés par RANKAMA 1963). Incorporation d'un excès d'argon radiogénique

S.R.HART et R.T.DODD, Jr. (1962) ont pu montrer que dans certains cas le pyroxène pouvait incorporer de l'argon radiogénique en excès, vraisemblablement dans les imperfections du réseau cristallin. P.E.DAMON et J.L. KULP avaient déjà montré en 1958 que des silicates à structure annulaire comme la tourmaline, le béryl, la cordiérite, pouvaient inclure dans leur réseau un large excès d'argon et d'hélium par rapport au potassium; à l'uranium et au thorium présents.

Pertes d'argon à températures élevées

A des températures élevées, c'est-à-dire au cours d'un épisode métamorphique, les micas sont susceptibles de perdre tout, ou une fraction importante de leur argon. La hornblende se comporte comme un minéral

plus résistant, à cet égard. Une étude systématique de la question a été faite par S.HART (1962), dans un cas simple de métamorphisme de contact.

P.M.HURLEY et al.(1962) ont pu montrer, dans un cas où la situation géologique paraît très claire, que l'argon (et peut-être le Sr) ne peut s'accumuler dans le réseau de la biotite aussi longtemps que la roche, après la cristallisation métamorphique du mica, demeure dans une zone relativement profonde. Les auteurs concluent :

"If the above conclusions are true, the ages commonly measured by K-Ar and Rb-Sr on biotite may actually reflect the time of major uplift and erosion, which coincide with that of sedimentation, and not with the initial period of metamorphism and igneous intrusion in the orogenic belt. For example, in New Zealand the biotite age values post-dated the time of metamorphism by more than 100 m.y." (ref.cit.p.79).

Indépendamment, D.KRUMMENACHER (1961), arrive à une conclusion analogue. Une série de mesures faites sur des micas de l'Himalaya du Népal montre que, d'une manière fort nette, l'âge apparent K/A des micas est d'autant plus jeune que le faciès métamorphique est plus profond. Ce qui amène l'auteur à constater : "...lorsque cette immense série de 8000 à 9000 m (...) s'est érodée, les roches catazonales se sont trouvées plus tard que les roches épizonales dans une partie de l'écorce terrestre telle que les minéraux potassiques pouvaient retenir leur argon radiogénique." Cela correspondrait (réf.cit.) à une vitesse d'érosion de 15 cm par siècle environ.

I - 2 - 3 Application aux matériaux jeunes

La très grande sensibilité de la mesure de l'argon par dilution au moyen d'isotopes stables permet l'application de la méthode K/A à des minéraux et des roches très jeunes. On est limité par la contamination en argon atmosphérique provenant notamment de l'air adsorbé sur les fragments de roche ou de minéral, en dépit du fait qu'ils sont préchauffés des heures durant dans un vide poussé. Appliquée aux matériaux volcaniques, la méthode K/A peut servir à dater le Pléistocène, voire, indirectement, des fossiles d'Hominidès (CURTISS, LIPSON, et EVERNDEN 1956 ; LEAKEY, EVERNDEN et CURTISS, 1961, EVERNDEN, CURTISS, SAVAGE, JAMES 1964). Il faut choisir des matériaux non susceptibles de perte d'argon à basse température, ou contrôler d'un manière ou l'autre l'absence de pertes. Il faut aussi s'assurer de l'absence de matériaux remaniés provenant des cheminées volcaniques, etc...

CHAPITRE 3. LA METHODE RUBIDIUM-STRONTIUM

I - 3 - 1 Principe de la méthode

Le Rubidium naturel est constitué des deux isotopes 85 et 87. Ce dernier, qui constitue 27,85 % du total (CHERDYNTSEV, 1961) se désintègre par émission β^- en Sr⁸⁷. La constante de désintégration de Rb⁸⁷ a fait l'objet de plusieurs déterminations récentes, donnant des valeurs un peu différentes (consulter ALDRICH et WETHERILL, 1958, HINTERBERGER, 1960, GLENDENIN 1961, HAMILTON et al., 1962). Les géochronologistes utilisent soit l'une, soit l'autre des deux valeurs suivantes:

$$\lambda_{\rm Rb}^{87} = 1,39.10^{-11} {\rm ans}^{-1} ({\rm ou} \ T_{\Xi}^{1} = 50.10^{9} {\rm ans})$$
 (ALDRICH et al.1956)
= 1,47.10^{-11} {\rm ans}^{-1} ({\rm ou} \ T_{\Xi}^{1} = 47.10^{9} {\rm ans}) (FLYNN et GLENDENIN, 1959)

La première de ces deux valeurs a été déterminée, "géologiquement", par comparaison des rapports $\text{Rb}^{87}/\text{Sr}^{87}$ rad. avec des âges au plomb concordants de minéraux cogénétiques. La seconde est le résultat d'une mesure d'activité, considérée comme très exacte. Les âges apparents calculés avec $T\frac{1}{2} = 50.10^9$ ans sont de 6 % plus élevés que ceux calculés avec $T\frac{1}{2} = 47.10^9$ ans. Ceci ne doit pas être perdu du vue si l'on compare les résultats obtenus par des auteurs différents.

L'âge apparent t Rb/Sr se calcule par la formule

$$t = \frac{1}{\lambda_{Rb}^{87}} \ln \left(1 + \frac{\left[sr^{87}\right]}{\left[Rb^{87}\right]}\right) \text{ ou } t \approx \frac{1}{\lambda_{Rb}^{87}} \frac{\left[sr^{87}\right]}{\left[Rb^{87}\right]} \quad (I - 3 - 1)$$

[Sr⁸⁷] est la fraction radiogénique du Sr⁸⁷ total présent. Il faut en général tenir compte de la présence de Sr commun. Ce dernier a approximativement la composition isotopique suivante :

Le strontium commun auquel on s'est référé au chapitre I, est défini comme étant le strontium incorporé dans le minéral au moment de sa cristallisation, ou introduit secondairement, ou encore introduit au laboratoire par les réactifs et les manipulations. Mais dans tous les cas où le strontium commun est assez abondant, on peut considérer que les deux dernières sources de contamination citées sont de peu d'importance. Les minéraux et les roches à rapport Rb/Sr peu élevés (calciques ou basiques) ne contiennent que du Sr commun. Or, dans ces roches, on observe une certaine variation en ce qui concerne l'abondance du Sr⁸⁷, les proportions relatives du 84, 86, 88 étant très constantes. Un strontium enrichi en isotope 87 radiogénique peut très bien être réincorporé dans un matériel nouveau quelconque. Il suffit pour cela qu'il provienne d'un matériel préexistant à rapport Rb/Sr élevé où Sr⁸⁷rad s'est accumulé d'une manière sensible au cours des durées géologiques. Le strontium le plus pauvre en 87 est celui formé par nucléosynthèse uniquement. On ne peut espérer le retrouver dans aucun matériel terrestre accessible, qui se serait constitué en système clos à rapport Rb/Sr très faible depuis l'origine de la Terre. Par contre, il pourrait bien être présent dans certaines météorites: les achondrites.

Il peut donc y avoir un doute en ce qui concerne la composition isotopique du strontium commun. La question est de peu d'importance pour les minéraux très pauvres en strontium commun comme les lépidolites, biotites et muscovites. Dans les autres cas il importe que l'incertitude soit levée. On verra plus en détail dans ce qui suit comment on procède, et quelles sont les implications pétrologiques de cette variation dans la composition isotopique du strontium. Notons au passage que la notion de strontium commun est relative puisque tout composant radiogénique n'en est pas exclu. L'important est de savoir à partir de quel moment une partie déterminée de l'addition radiogénique s'est produite.

I - 3 - 2 Géochimie du Rubidium et du Strontium

Le Rubidium est un métal alcalin qui, en gros, accompagne le Potassium dans les minéraux et les roches. Bien qu'il soit plus abondant que le Plomb, par exemple, on n'a jamais rencontré de minéral dont il soit le constituant majeur. Le rayon ionique de Rb^+ (1,57 ou 1,60 Å) (J.GREEN, 1959) est voisin de celui de K⁺(1,42 ou 1,45 Å) mais un peu plus grand. Ceci explique la concentration du Rb dans les minéraux et les roches de cristallisation tardive, et notamment les pegmatites.

Le Strontium est cinq ou six fois plus abondant que le Rb dans les roches crustales. Dans l'ensemble, il accompagne le Calcium (rayons ioniques : Sr⁺⁺1,16/Å, Ca⁺⁺1,03 Å). Suivant AHRENS (1949) il peut également se substituer au Potassium, d'une façon limitée, et surtout dans les produits de première cristallisation à cause de sa double charge et de son rayon ionique plus petit.

La seule application des règles de GOLDSCHMIDT rend donc compte des

TABLEAU I - 3 - 2. CONCENTRATION DU RUBIDIUM ET DU STRONTIUM DANS DIVERS TYPES DE ROCHE (en gr/T ou ppm).

Type de roche	Faure et Hurley 1963		Vinograd	lov 1962	Powell 1962		
	Rb	Sr	Rb	Sr	Rb	Sr	
Ultrabasiques (dunites, etc (pyroxénites	- 0.5	- 49	2	10	-	:	
Basiques : gabbro, basalte	32	440	45	440		-	
Intermédiaires (granodiorites)	122	440	100	800	-		
Acides (granite)	196	197	200	300	-		
Syénites	136	156		-	-		
Roches alcalines		-		-	110(1)	1.000-10.000(2)	
Carbonatites		-	-	-	<1(3)	5,000-200.000 (2)	
Anorthosites	0,6	280	-	-		-	
Calcaires	<5	610				-	
Schistes	149	300	200	4 50		-	

Références pour les données rassemblées par Powell, 1962 :

(1) Turekian et Wedepohl (1961)
 (2) Pecora (1956)
 (3) Higazy (1954)

grands traits de la distribution géochimique de Rb et de Sr. Par exemple, le feldspath potassique de pegmatite, de cristallisation tardive, a, en général, un rapport Rb/Sr élevé, à l'inverse des feldspaths potassiques de nombreux granites, des granodiorites surtout.

Le tableau I - 3 - 2 reproduit les données récentes sur les abondances de Rb et Sr dans divers types de roche. Sauf pour la teneur en Sr des roches intermédiaires, il y a assez bon accord entre les données rassemblées par VINOGRADOV et celles de FAURE et HURLEY. Pour certains types de roche, les données sont encore très peu nombreuses et les indications fournies par le tableau pourraient être sujettes à revision : anorthosites, pyroxénites.

On notera la teneur très élevée en Sr des carbonatites et des roches alcalines (syénites néphéliniques, etc.). Le feldspath potassique, dont a signalé plus haut le comportement variable, peut contenir dans ces roches jusqu'à 1000 ppm de Sr(GERASIMOVSKII et LEBEDEV, 1958). Par contre, le microcline des pegmatites complexes à Li et Cs, peut contenir jusqu'à 2 % (20.000 ppm) de Rb, et très peu de Sr. C'est dans ces pegmatites que l'on rencontre des espèces ou variétés minérales pouvant contenir quelques pour mille à 2 ou 3 % de Rb : le microcline, l'amazonite, la muscovite lithique, la lépidolite, la zinnwaldite, la polucite, certains béryls, la rhodizite, la tourmaline rose(SOLODOV,1959). L'adulaire et la leucite peuvent également être citées parmi les minéraux riches en Rb. On a noté des enrichissements métasomatiques en Rb, notamment dans des cornéennes (ZAMARIODZE, 1961).

La répartition dans les minéraux du Rb et du Sr n'est pas gouvernée seulement par les règles de GOLDSCHMIET, TAUSON (1958) constate que le Rb se concentre de préférence dans la biotite, par rapport au feldspath potassique, dans un même type de roche. Il explique ce fait par la coordination 12 de K⁺ dans la biotite, qui conviendrait mieux au gros ion Rb⁺. Par ailleurs, dans une même roche, les micas sont généralement plus pauvres en Sr que le feldspath potassique.

I - 3 - 3 Composition isotopique du strontium commun

Le tableau I - 3 - 3 rassemble la plupart des données récentes sur la question. L'abondance du 87 peut être exprimée en %, ou encore par référence à un quelconque des isotopes non radiogéniques dans leur totalité, dont on admet que les proportions relatives ne varient pas. C'est souvent le rapport 87/86 qui est pris en considération, mais on pourrait tout aussi bien considérer le rapport 87/88, par exemple.

TABLEAU I - 3 - 3. RAPPORT 87/86 DU Sr COMMUN DES ROCHES BASIQUES ET CALCIQUES.

.

	Powell, Hurley et Fairbairn, 1962(x), et Gast, 1960	Hamilton et Deans, 1963	Hedge et Walthall, 1963	Urbach 1962 et al.	
Achondrites	0,7005 à 0,7027				
Basaltes océaniques	0,7045 à 0,7095		0,7023 à 0,7032		
Basaltes continentaux	0,7065 à 0,7105		0,7030 2 0,7108		
Calcaires et dolomies sédimentair	es marins				
récents et eau de mer	2 0 7085 2 0 7135		0,7070 a 0,7080	0,7020 a 0,7030	
anciens (x x)	5 0,1000 2 0,1100	0,710 à 0,7185 (600-1000)	0,7052	$\begin{cases} 0,7029 \ge 0,7040 \ (300-850) \\ 0,7015 \ge 0,6963 \ (>500) \end{cases}$	
très anciens (x x)	0,704	0,7021 à 0,7040	0,7004	0,699 (>1500)	
Carbonatites	0,7045 à 0,7095	0,704 à 0,709			

x y compris données reportées par Gast, Faure, Pinson, Herzog, Cormier

xx âges en millions d'années.

L'examen du tableau I - 3 - 3 révèle plusieurs points, qui ont donné lieu déjà, de la part des auteurs des mesures, à d'abondantes discussions, qui seront résumées ici brièvement. On notera d'abord qu'il y a des différences systématiques entre les mesures faites dans différents laboratoires. Elles seraient dues en grande partie aux effets de fractionnement isotopique à la source du spectromètre. Une correction est souvent appliquée. Elle est basée sur l'hypothèse que la déviation observée entre les rapports 86/88 mesurés et une certaine valeur que l'on admet comme étant exacte (et invariable dans les échantillons naturels) est entièrement due à l'effet de fractionnement au cours de la mesure. Malgré cela, les mesures faites dans différents laboratoires ne sont pas, sauf exception, comparables entre elles. Par contre on peut utiliser les données comparatives obtenues dans un même laboratoire sur des matériaux divers. Compte tenu de ceoi, on peut faire plusieurs constat**itions** portant sur des variations naturelles.

- Les achondrites contiennent le strontium le plus pauvre en Sr⁸⁷.
- Le strontium des basaltes continentaux est plus riche, en moyenne, en Sr⁸⁷ que celui des basaltes océaniques.
- Il paraît y avoir une relation entre l'âge des calcaires marins et la teneur du Sr en Sr⁸⁷. Celui-ci est plus abondant, comme il est normal, dans le Sr des calcaires récents. Une plus grande précision que celle obtenue jusqu'à présent serait requise pour vérifier la généralité du fait et pour en dégager, éventuellement, une méthode de mesure d'âge.
- Le strontium des carbonatites a la même composition isotopique que celle des basaltes océaniques. Il en est de même, d'ailleurs, des roches alcalines associées. POWELL, HURLEY et FAIRBAIRN, 1962, concluent que carbonatites et roches alcalines sont comagmatiques et d'une origine subsialique.

Dans les roches sialiques, on observera des valeurs du rapport Sr⁸⁷/Sr⁸⁶ plus élevées et variables, parfois très élevées. On en a d'abondants exemples, fournis par chaque application de la méthode Rb/Sr en "roche totale" à des granites ou des rhyolites, parfois à des gneiss. Il faut tenir compte du fait que ces roches ont souvent été sélectionnées en fonction de leur caractère alcalin et acide. En vue d'obtenir une bonne précision sur la mesure d'âge on a recherché des matériaux à rapport Rb/Sr élevés. On ne peut donc en tirer des indications géochimiques ou sur un rapport Sr⁸⁷/Sr⁸⁶ crustal moyen. Des données beaucoup plus intéressantes à cet égard sont fournies par FAURE, HURLEY et FAIRBAIRN, 1963. Par des mesures sur le strontium extrait des coquilles de mollusques d'eau douce, ces auteurs tentent de préciser des valeurs moyennes relatives au bassin de drainage d'une rivière, et donc, d'une certaine région en province géologique. Les valeurs moyennes obtenues sont respectivement :

Province Kénorienne (2.500 millions d'années) = $0,721 \pm 0,005$ Province Hudsonienne(1.700 millions d'années) = $0,720 \pm 0,002$ Province Grenvillienne(1.000 millions d'années) = $0,717 \pm 0,004$

Ces données ne sont comparables qu'aux chiffres de la colonne de droite : POWELL et al., du tableau I-I-J . La différence, par rapport aux roches d'origine subcrustale (basaltes océaniques) et même aux calcaires marins, est significative. Dans une roche ignée jeune, de quelque composition chimique qu'elle soit, la présence de strontium à rapport 87/86 élevé pourra donc être considérée comme une preuve d'une origine sialique et un rapport peu élevé la preuve d'une origine simique. Cette idée, exprimée ici d'une manière schématique, est développée par FAURE et HURLEY (1963). Comme exemple, on peut citer les résultats de HEDGE et WALTHALL, 1963, concernant des roches volcaniques récentes non basaltiques : rapports entre 0,7029 et 0,709, et des granites de moins de 250 m.a. (millions d'années) : rapports entre 0,704 et 0,712. Ces chiffres peuvent être comparés à ceux de la colonne HEDGE et WALTHALL du tableau I-I-J. Il faut conclure à une origine probable mixte ou simique pour la plupart des roches considérées.

Un raisonnement analogue peut être appliqué aux roches acides anciennes, à condition que l'on ait un moyen de déterminer la composition isotopique du strontium inclus dans ces roches au moment de leur cristallisation. Celle-ci peut se déduire du rapport Rb/Sr actuel et de la composition isotopique actuelle du strontium, à condition que l'on connaisse l'âge de la roche ⁽¹⁾. Ce dernier peut être déterminé par une mesure Rb/Sr ou K/A sur un minéral isolé, dans certains cas, ou par une mesure U/Pb sur zircon.

HURLEY, HUGHES et al.(1962) appliquent ce raisonnement à de nombreuses roches, d'âge divers, du continent nord-américain et généralisent leurs conclusions à l'échelle continentale. Ils concluent qu'il y a différenciation de matériel sialique neuf, à partir du sima, à chaque période orogénique, ou d'une manière plus ou moins continue au cours du temps, et

⁽¹⁾ On verra plus loin que l'on peut obtenir, et la composition isotopique du Sr initial, et l'âge, par des mesures Rb/Sr en roche totale sur plusieurs échantillons, dans certaines conditions.

qu'il y a un accroissement corrélatif des aires continentales. Toutefois ces auteurs ne cherchent pas à distinguer entre différenciation magmatique primaire à partir du sima, et d'autres processus de différenciation, par exemple métamorphique, au sein du sial lui-même (la majorité des roches prises en considération par les auteurs cités ont un rapport Rb/Sr plus élevé que le sial moyen, et même que le granite moyen, d'après les estimations des auteurs eux-mêmes).

On notera aussi que le strontium de l'eau de mer n'est pas représentatif du strontium crustal, ni apparemment du strontium dissout apporté par les rivières. Cette anomalie, au moins apparente, n'a pas donné lieu jusqu'à présent à de nombreuses tentatives d'explication ; on ne dispose d'ailleurs que trop peu de données sur l'apport des rivières et sur la composition isotopique moyenne du Sr crustal.

I - 3 - 4 Pertes et redistributions de Sr⁸⁷

La technique de dilution isotopique a rendu possible l'application de la méthode Rb/Sr aux biotites et muscovites de plus de 10 millions d'années, au feldspath potassique des pegmatites granitiques ordinaires, dans la plupart des cas, et parfois au feldspath des granites. La méthode peut être appliquée aussi "en roche totale" aux granites alcalins et aux rhyolites, voire à des granodiorites et des syénites, si une bonne précision peut être obtenue, aussi bien sur la composition isotopique du Sr actuel que sur celle du Sr initial(commun). Si celle-ci n'est pas mesurable directement sur la roche elle-même, on peut la déterminer par exemple sur une roche basique associée que l'on suppose de même origine (comagmatique s'il s'agit de roches magmatiques). Sans analyse isotopique du Sr, la méthode Rb/Sr n'est applicable (avec certaines réserves) qu'aux minéraux des pegmatites lithiques.

On peut s'attendre à ce que les lois gouvernant les migrations de l'Argon et du Strontium ne soient pas les mêmes, si l'on considère les propriétés très différentes de ces deux éléments. La mobilisation de Sr⁸⁷ radiogénique semble être peu importante à basse température, sauf dans la biotite, qui est un minéral relativement altérable. D'après VIALETTE (1962), les âges apparents Rb/Sr des biotites ne sont pas affectés sensiblement par l'altération superficielle, sauf si celle-ci atteint un stade très avancé. Par contre, les données de ZARTMAN (1963) indiquent un abaissement habituel de l'âge apparent, aussi bien pour les biotites altérées récemment que celles altérées anciennement.

Dans les conditions du métamorphisme, la biotite se révèle également

un minéral très sensible (TILTON et al., 1958, WETHERILL et al. 1962, DEUSER et HERZOG, 1962, MONTEYNE-POULAERT et al., 1962, etc.). Le terme "métamorphisme" doit être pris ici dans une acceptation très large. Il peut très bien se produire des pertes de Sr⁸⁷ sans qu'il n'y ait d'altération notable dans la composition minéralogique de la roche, c'est-à-dire sans qu'il n'y ait à proprement parler de métamorphisme, au sens strict du terme. De même que l'argon, le strontium ne serait retenu quantitativement dans le réseau de la biotite qu'à partir du moment où la roche aura été ramenée à un niveau superficiel par la remontée isostatique. Ce phénomène est ou n'est pas, directement, en relation avec la température : il peut correspondre à l'arrêt des circulations aqueuses permettant les derniers échanges géochimiques. Dans le temps, cela correspondrait aux derniers filons et exsudations de quartz (CAHEN, DELHAL, LEDENT et REINHARZ, 1963). En effet, la perte du Sr radiogénique par la biotite (ou éventuellement l'enrichissement en Rb) serait gouvernée par un mécanisme d'échange ionique (KULP et ENGELS 1962) tandis que la migration de l'argon s'opérerait par diffusion et dépendrait donc plus étroitement de la température. De nombreux exemples attestent que la muscovite et le feldspath perdent moins facilement Sr⁸⁷ radiogénique. Ce sont des minéraux moins altérable. En outre, on a vu que Sr²⁺ est facilement accepté par le réseau du feldspath potassique.

Il peut y avoir dans la même roche plusieurs générations de micas, ou de feldspath potassique, que seul un examen soigneux au microscope pourra déceler (JAGER, KEMPTER et al., 1961) (CAHEN, DELHAL, LEDENT et REINHARZ, 1963). Si des mesures sont effectuées sur de tels mélanges, sans que l'on ne s'en doute, on pourra faire état de soi-disant pertes de Sr, purement fictives.

Enfin, on constate que la "roche totale" dans les cas de roches éruptives métamorphisées, donne un âge apparent Rb/Sr plus élevé que les minéraux isolés : t Rb/Sr roche totale > t Rb/Sr feldspath > t Rb/Sr muscovite > t Rb/Sr biotite est la séquence la plus fréquemment observée. Aucun minéral ne peut donc servir à dater le métamorphisme : il s'agit manifestement d'"âges mixtes" intermédiaires entre les âges de la première cristallisation et du métamorphisme subséquent. COMPSTON et JEFFERY (1959) ont imaginé de tourner la difficulté en faisant une hypothèse simple : au moment du métamorphisme, il y a en échange, circulation du Sr allant jusqu'à une homogénéisation isotopique dans les divers minéraux constitutifs de la roche, cette dernière se comportant en système fermé pour Rb et Sr. Il est facile de vérifier la validité de ce modèle par une construction graphique simple. Deux modes de représentation gra-

phique sont d'un emploi courant :

A. On exprime Sr^{87}/Sr^{86} en fonction de t. Dans un matériel se comportant en système fermé, le rapport Sr^{87}/Sr^{86} est fonction linéaire du temps (fig. I - 3 - 4A)

$$\frac{[sr^{87}]_{tot}}{[sr^{86}]} = \frac{[sr^{87}]_{com}}{[sr^{86}]} + \frac{[sr^{87}]_{rad}}{[sr^{86}]} = \frac{[sr^{87}]_{com}}{[sr^{86}]} + \frac{\lambda_{Rb}^{87}.[Rb^{87}]}{[sr^{86}]} \cdot t$$

(voir formule I - 3 - 1 sous sa forme approximative).

A partir de la composition isotopique actuelle du Sr et du rapport Rb/Sr, on établit la droite qui exprime l'évolution de la composition isotopique du Sr au cours du temps, dans le passé. Si il y a eu homogénéisation complète à t_m , les droites relatives aux différents minéraux et à la roche totale doivent se recouper en un point, dont l'abscisse est t_m et l'ordonnée le rapport $\mathrm{Sr}^{87}/\mathrm{Sr}^{86}$ à t_m . L'intersection de la droite "roche totale" avec l'horizontale $\mathrm{Sr}^{87}/\mathrm{Sr}^{86} = 0,71$ correspond à t_o , âge de la roche.

B. Un mode de représentation graphique également utilisé, et se prêtant au même traitement des résultats, est celui où $\mathrm{Sr}^{87}/\mathrm{Sr}^{86}$ est exprimé en fonction de Rb⁸⁷/Sr⁸⁶ (fig.I -3 - 4B). Sur un tel graphique, à chaque échantillon correspond un point. Si il y a eu homogénéisation du Sr à t_m, les points correspondant à la roche et aux minéraux s'alignent sur une droite isochrone dont la pente exprime t_m, et l'ordonnée à l'origine $\mathrm{Sr}^{87}/\mathrm{Sr}^{86}$ à t_m. L'âge de la roche est exprimé par la pente de la droite passant par l'ordonnée à l'origine 0,71 et le point correspondant à la roche totale.

On a pu vérifier l'exactitude de tels schémas, au moins approximativement, dans un certain nombre de cas concrets. Ce sont des cas de simple métamorphisme (COMPSTON et JEFFERY 1961, FAIRBAIRN, HURLEY et PINSON, 1961). Le même modèle s'appliquerait au cas de granites d'anatexie et permettrait alors de mettre en évidence un rapport Sr⁸⁷/Sr⁸⁶ <u>initial</u> plus élevé que 0,71. La différence est que dans le cas d'une anatèxie s'effectuant à partir de roches sédimentaires, l'âge "roche totale" que l'on peut calculer, ou obtenir par construction graphique, en faisant l'hypothèse d'un rapport Sr⁸⁷/Sr⁸⁶ initial de 0,71 est dépourvu de signification (VIALETTE, 1962).

Par le même traitement graphique, on peut s'attacher à résoudre des problèmes plus complexes. Soit un ensemble de roches granitiques ou autrer, cogénétiques : ayant le même âge, probablement, et la même origine magma-



tique ou anatectique. On sait en outre (ou l'on soupçonne) qu'un métamorphisme subséquent a affecté ces roches. L'application de la construction graphique A ou B à divers échantillons de roche totale à rapports Rb/Sr différents permet en principe de résoudre le problème de l'âge de la première différenciation. En outre, on aura, par le rapport Sr⁸⁷/Sr⁸⁶ initial déterminé par la même occasion, une indication sur une origine mafique, sialique ou mixte. L'application de la construction graphique aux minéraux isolés d'une ou plusieurs roches permettra de dater le métamorphisme subséquent.

Des exemples d'application sont donnés par COMPSTON, JEFFERY et RILEY 1960 et ALSOPP 1961. Ce dernier cas concerne 5 "Old granites" du Transvaal. qui se révèle avoir un âge de 3.200 millions d'années et un rapport Sr⁸⁷ Sr⁸⁶ initial de 0,7106. Mais un essai d'application du traitement graphique aux minéraux isolés révèle une homogénéisation incomplète seulement du Sr au cours d'un épisode métamorphique ultérieur. On ne peut donc fixer qu'une limite supérieure à l'âge de celui-ci. D'autres cas de remobilisation et échange seulement partiel du Sr ont été observés : tout dépend de l'intensité du métamorphisme et de l'importance des redistributions de matière qui se sont opérées à la faveur de ce dernier. On peut aussi imaginer que le schéma soit obscurci dans des cas de métamorphisme se déroulant en plusieurs phases assez distinctes dans le temps. Rappelons qu'il a été observé des pertes de Sr dans la biotite dans des conditions qui ne sont pas très précisément celles du métamorphisme proprement dit.

Il était admis généralement, au moins durant les années 1958-1961, que les roches totales se comportaient habituellement en systèmes fermés pour Rb et Sr. Or il a été observé que cela n'est pas toujours le cas. En particulier, la roche peut subir un métamorphisme avec échange de matière. On reviendra sur cette question au chapitre 6.

CHAPITRE 4 LA METHODE DU PLOMB

I - 4 - 1 Principe de la méthode

L'Uranium naturel comporte deux isotopes à période longue par rapport aux durées géologiques : U^{238} et U^{235} . Le rapport actuel de ces deux isotopes est : $U^{238}/U^{235} = 137,7$ (en atomes). Le Thorium n'est constitué que d'un seul isotope à demi-vie longue : Th^{232} . Les trois nucléides Th^{232} , U^{238} , U^{235} sont les têtes des trois familles radioactives naturelles (voir fig. I - 4 - 1) dont les termes ultimes sont trois isotopes stables du Plomb:

$$U^{238} \rightarrow Pb^{206}$$
 $T_{2}^{1} = (4,51 \pm 0,01) \cdot 10^{9} \text{ ans}$ $\lambda = 1,53_{7} \cdot 10^{-10} \text{ ans}^{-1}$
 $U^{235} \rightarrow Pb^{207}$ $T_{2}^{1} = (7,13 \pm 0,16) \cdot 10^{8} \text{ ans}$ $\lambda = 9,7_{2} \cdot 10^{-10} \text{ ans}^{-1}$

(valeurs recommandées par STIEFF et al., 1959)

Th²³²--+ Pb²⁰⁸
$$T_{\overline{2}}^{\pm} = (1,39 \pm 0,02).10^{10} \text{ ans } \lambda = 4,99.10^{-11} \text{ ans}^{-1}$$

(valeur recommandée par ALDRICH et WETHERILL, 1958)

La période de U²³⁸ est connue de manière très exacte. Celles de U²³⁵ et Th²³² à quelque 2 % près. Pour des âges se chiffrant en dizaines de m.a. ou davantage, il n'y a pas lieu de faire intervenir les périodes des membres intermédiaires des familles radioactives dans le calcul, et on a simplement :

$$\left[Pb_{rad}^{206}\right] = \left[U^{238}\right] \quad (e^{\lambda U^{238} \cdot t} - 1) \tag{1}$$

$$[Pb_{rad}^{207}] = [v^{235}] (e^{\lambda v^{235}} \cdot t_{-1})$$
 (2)

$$\left[Pb_{rad}^{208} \right] = \left[Th^{232} \right] \left(e^{\lambda Th^{232} \cdot t} - 1 \right)$$
 (3)

ou
$$t = \frac{1}{\lambda v^{238}} \ln (1 + \frac{\left[\frac{Pb_{rad}}{rad}\right]}{\left[v^{238}\right]}$$
), etc.

Il y a lieu de tenir compte de la présence éventuelle de plomb commun, et de faire une correction adéquate, comme dans le cas du Strontium ou de l'Argon.

Si l'on divise membre à membre les équations (1) et (2), il vient :





Masse Atomique

$$\frac{\left[Pb_{rad}^{207}\right]}{\left[Pb_{rad}^{206}\right]} = \frac{\left[u^{235}\right]}{\left[u^{238}\right]} \cdot \frac{e^{\lambda u^{235} \cdot t}_{-1}}{e^{\lambda u^{238} \cdot t}_{-1}}$$
(4)

De l'équation (4), on peut tirer t également. Cette valeur n'est pas nécessairement égale à celles obtenues par les équations (1) ou (2). Les trois âges apparents t 206/238, t 207/235, t 207/206, qu'il est possible de calculer dans le cas d'un minéral uranifère, ne constituent que deux déterminations indépendantes de l'âge, puisque la formule (4) est obtenue en combinant les formules (1) et (2). Il est donc possible de calculer d'un quelconque de ces trois âges apparents à partir des deux autres, ou encore l'un quelconque des rapports utilisés pour le calcul d'un âge, à partir des deux autres :

 $\frac{\left[Pb_{rad}^{207}\right]}{\left[Pb_{rad}^{206}\right]} = \frac{\left[u^{238}\right] / \left[Pb_{rad}^{206}\right]}{\left[u^{235}\right] / \left[Pb_{rad}^{207}\right]} \cdot \frac{\left[u^{235}\right]}{\left[u^{238}\right]}$ (5)

L'ensemble de ces trois "âges apparents" constitue l'"àge pattern" (expression difficilement traduisible). Les différents patterns possibles sont susceptibles de discussions et d'interprétations qui permettent généralement de fixer la valeur probable de l'âge réel. Une conséquence du fait que les trois âges apparents ne constituent que deux déterminations indépendantes est que il n'y a que trois "àge patterns" possibles dans le cas d'un minéral d'uranium

t 206/238 = t 207/235 = t 207/206

t 206/238 < t 207/235 < t 207/206

t 206/238 > t 207/235 > t 207/206

Si le minéral contient du thorium en plus de l'uranium, on a un "age pattern" constitué de quatre valeurs d'âges apparents et trois déterminations indépendantes de l'âge. On remarquera qu'il n'y a aucune impossibilité mathématique à ce que t 208/232 prenne une valeur positive quelconque, en sorte qu'un grand nombre de patterns différents peuvent se présenter pour les minéraux uranifères et thorifères. Si tous les âges apparents sont égaux, on parlera d'"âges concordants", et d'"âges discordants" au cas contraire.

Correction du plomb commun

Le plomb naturel est un mélange de quatre isotopes stables de nombre de masse 204, 206, 207, 208. Il y a une assez grande variation dans les proportions relatives de ces isotopes, d'un minéral de plomb à l'autre. Cette variation est due à l'accumulation et à la redistribution au cours des temps géologiques, du plomb résultant de la désintégration de U et Th. La composition isotopique d'un plomb naturel dépend de son âge, c'est-àdire du moment à partir duquel l'addition de Pb²⁰⁶, Pb²⁰⁷ et Pb²⁰⁸ radiogénique a cessé. Ainsi le plomb d'une galène qui a cristallisé à une époque ancienne sera pauvre relativement en ces trois isotopes, par rapport au plomb d'une galène récente. Une partie des variations observées est due à d'autres facteurs : il peut y avoir dans un milieu à rapport U, Th/Pb particulièrement élevé une addition radiogénique anormalement importante, ou remaniement de plombs anciens et leur redéposition à une époque ultérieure, sans rapport radiogénique. Si Pb²⁰⁴, le seul isotope non rådiogénique dans sa totalité, est décelé par l'analyse isotopique du plomb d'un minéral d'uranium ou de thorium, on a la certitude de la présence du plomb commun, et une correction est nécessaire.

Par rapport au cas du strontium, il y a plusieurs différences à signaler. L'isotope 204 ne constitue que 1,3 à 1,5 % environ du plomb commun. Dans un mélange plomb commun - plomb radiogénique, son abondance est très faible et difficile à mesurer : il en résulte une imprécision sur la correction. En outre, il faut avoir de bonnes indications concernant la composition isotopique probable du plomb commun présent. Cette question complexe sera traitée plus en détail en thèse annexe.

Il importe donc de sélectionner des espèces minérales dépourvues de plomb commun, de prendre diverses précautions pour éviter les contaminations si on travaille sur un matériel à faible teneur en Pb rad.

Dans un minéral où U/Th > 1 (cas habituel du zircon), Pb²⁰⁶ constitue la majeure partie du plomb radiogénique : à cause de la faible abondance de U²³⁵, Pb²⁰⁷ est présent en beaucoup plus faible proportion. Il n'en va pas de même dans un plomb commun, où Pb²⁰⁷ \approx Pb²⁰⁶. Il en résulte que quand le plomb commun est assez abondant, on ne peut estimer correctement la proportion de Pb²⁰⁷rad, qui constitue moins de la moitié de Pb²⁰⁷total. En de tels cas, seul t 206/238 peut être calculé. Un exemple de correction de plomb commun, et de calcul de t 207/206, est donné en II - 3.

Ages "chimiques" U + Th/Pb

Une mesure d'âge sur un minéral uranifère ou thorifère exige donc une analyse isotopique du plomb. Avant la généralisation de l'usage de la spectrométrie de masse, on calculait l'âge à partir des teneurs en U, Th, Pb, ce qui suppose :

- a) que tout le plomb présent provient de la désintégration de U et Th, présents dans le minéral (absence de plomb commun)
- b) que le minéral s'est comporté en système fermé pour U, Th et Pb et les membres intermédiaires des familles radioactives durant toute son existence.

L'introduction de ces deux hypothèses peut être cause d'erreur importante. La méthode Pb/α , encore appliquée au zircon ces dernières années, est une variante de la méthode chimique. Malheureusement, le zircon est un minéral où les pertes de plomb constituent un phénomène habituel, comme on le verra plus en détail au chapitre suivant. La mise en oeuvre de la méthode du plomb complète, y compris analyse isotopique du plomb, s'impose donc.

Equilibre radioactif et méthode du Ra D

S'il n'y a pas migration de la tête de la famille radioactive $(U^{238}, U^{235}$ et Th²³²) ni des membres intermédiaires (fig. I - 4 - 1), durant un temps suffisamment long, il s'établit l'équilibre radioactif ou séculaire. En effet, les têtes de famille ont des périodes beaucoup plus longues que les membres intermédiaires. Dans cette condition, il peut s'établir un équilibre tel que le nombre de désintégration par unité de temps est le même pour chaque membre de la famille radioactive.

$$\lambda_{\circ}N_{\circ} = \lambda_{1}N_{1} \dots \lambda_{i}N_{i} \tag{6}$$

N est le nombre d'atomes d'un membre de la famille radioactive.

Si l'état d'équilibre est altéré par départ ou apport externe, il tendra à se rétablir avec le temps. Certains cas de déséquilibre ont ainsi pu servir à la mesure de durées géologiques courtes. En général, l'équilibre s'observe dans les minéraux primaires inaltérés. Le déséquilibre est de règle dans les minéraux de la zone d'oxydation et dans les caux naturelles.

Si l'on est assuré au départ que l'équilibre est réalisé, une mesure de l'activité $\lambda_i N_i$ d'un membre intermédiaire de la famille radioactive, permet la détermination de N_o, nombre d'atomes de la tête de la famille. Ainsi on peut doser U²³⁸ par extraction quantitative et mesure de l'activité du radon (Rn²²²). Une application convenant particulièrement à la détermination des âges au plomb a été proposée par F.G.HOUTERMANS (1951). La mesure chimique de l'uranium est remplacée par la mesure de l'activité d'un membre intermédiaire de la famille de U^{238} : Pb²¹⁰ ou Ra D. La mesure du rapport chimique U/Pb peut se calculer à partir de l'activité du Pb²¹⁰ dans une quantité donnée du plomb du minéral. On n'a pas besoin de connaître les teneurs en U et Pb, mais seulement le rapport des quantités présentes des deux éléments. Dès lors une mesure d'âge complète peut être faite sur une fraction quelconque du plomb, à condition que cette fraction soit bien représentative, dans sa composition isotopique, de tout le plomb contenu dans le minéral.

Dans le cas du zirzon, minéral probablement en équilibre, la méthode du Ra D pourrăit s'avérer très intéressante. Sa mise en oeuvre, si elle était réalisable avec des moyens techniques simples, pourrait se révéler plus rapide et moins onéreuse que la dilution isotopique, tout en offrant autant d'exactitude et de précision. Dans cet ordre d'idée, on a fait des mesures du Ra D sur quelques zircons. Cette partie de notre travail fait l'objet du chapitre II - 4 où l'on trouvera également une revue des applications de la méthode à des minéraux divers.

I - 4 - 2 Ages discordants

Mécanismes possibles des discordances d'âges, pour un minéral d'uranium

a) t 206/238 < t 207/235 < t 207/206

En l'absence de toute considération minéralogique, géologique ou autre, un"äge pattern" de ce type peut <u>toujours</u>, théoriquement, être expliqué par l'<u>un quelconque</u> des mécanismes que nous allons passer en revue (ou une combinaison de plusieurs d'entre eux).

- 1) Une perte de plomb radiogénique.

Cette perte peut être ancienne ou récente, épisodique ou continue. Cette perte peut se faire par l'intermédiaire d'un ou plusieurs membres de l'une ou des deux familles radioactives. Dans ce cas, l'un des deux isotopes 207 ou 206 sera perdu préférentiellement par rapport aux concentrations présentes dans le minéral. Le pattern a) se trouvera réalisé dans les cas suivants : perte des deux isotopes, dans les proportions où ils sont présents dans le minéral, à un moment ou durant un laps de temps quelconque de son existence ;
perte préférentielle du 206 ; perte du 206 seulement (p.ex. résultant d'une perte de Rn²²²) ; perte préférentielle du 207, si elle n'est pas trop importante et si elle accompagne une forte perte des deux isotopes.

- 2) Un enrichissement en uranium
- 3) Un mélange de deux minéraux d'âges différents, qui se seraient comportés chacun comme un système fermé, ou qui auraient perdu du plomb.
- 4) La réincorporation d'un plomb radiogénique ancien, au moment de la cristallisation du minéral.
- b) t 206/238 > t 207/235 > t 207/206

Ce "pattern" peut en principe s'expliquer soit par une

- 1) perte d'uranium
- 2) perte préférentielle importante du Pb²⁰⁷, accompagnant une perte peu importante de Pb²⁰⁶, éventuellement.

Il est possible d'imaginer des cas théoriques, où les "âges apparents" seraient concordants entre eux, tout en étant inexacts. Mais il est peu probable que ces cas soient souvent réalisés dans la pratique.

Mécanismos les plus fréquents des "discordances d'âges"

Heureusement, l'expérience a montré que parmi tous ces mécanismes possibles, pour un minéral donné se trouvant dans des conditions données, le choix est plus restreint.

Il y a deux manières d'interpréter les âges apparents discordants.

- a) Multiplier les mesures sur des échantillons de même âge ou présumés tels, ayant subi la même altération des rapports isotopiques, mais à des degrés divers.
- b) S'aider d'arguments indirects : état de l'échantillon, comparaison avec des cas analogues ayant reçu une exlication satisfaisante, arguments géologiques divers, comparaison avec des résultats Rb/Sr et K/A, etc.

On a pu montrer ainsi que les seuls mécanismes à prendre en considération, dans la plupart des cas, sont :

- une perte de plomb, sans fractionnement isotopique (bien que ce dernier point soit encore discuté) : uraninite, pechblende, zircon, monazite ;
- une perte préférentielle d'uranium : uraninite dans la zone d'oxydation des gisements à sulfures, monazite altérée ;
- une perte de radon (Rn²²²) : pechblende, carnotite, divers minéraux secondaires, kolm.

Le Radon (on dit aussi Emanation, le terme Radon étant alors réservé au seul isotope 222) un gaz noble susceptible de diffuser facilement hors du réseau du minéral-hôte, comme l'Argon ou l'Hélium. Il existe un isotope de Rn dans chaoune des trois familles radioactives naturelles (fig. I - 4 -1) mais on considère que seul Rn²²² (famille de U²³⁸) est susceptible de diffuser hors du minéral, d'une façon importante, à cause de sa période relativement longue. Cette conception très répandue est contredite dans une certaine mesure par des travaux expérimentaux de STARIK, 1956, et de ZYKOV, ZHIROV, ZHIROVA et IVANOV 1957 . Si, habituellement, la perte de Rn²²² est la plus importante, dans certaines conditions et pour certains minéraux Rn²¹⁹ ("Actinon") et Rn²²⁰ ("Thoron") sont perdus en plus forte proportion.

Diagramme "Concordia"

L'interprétation des âges au plomb est facilitée par l'emploi de diagrammes (voir notamment STIEFF et STERN 1961). Le plus utilisé est le graphique "Concordia" proposé par WETHERILL (1956) (fig.I - 4 - 2A).

Le rapport atomique $[Pb_{rad}^{206}] / [u^{238}]$ est exprimé en fonction du rapport atomique $[Pb_{rad}^{207}] / [u^{235}]$. Le lieu des points pour lesquels t 206/238 = t 207/235 est une courbe (Concordia) dont chaque point correspond à une valeur de t. Les patterns discordants sont représentés par un point, situé d'un côté de la courbe si t 206/238 < t 207/235, de l'autre côté dans le cas contraire. Tous les points situés sur une droite passant par l'origine correspondent à des t 207/206 égaux.

Soit un minéral de 1000 m.a., qui aurait perdu la moitié de son plomb à O m.a. (sans qu'il n'y ait de perte d'uranium). Le rapport $\left[Pb_{rad}^{207}\right]/\tilde{P}b_{rad}^{206}$ n'est pas modifié : le plomb perdu a la même composition isotopique que le plomb restant. Les rapports $\left[Pb_{rad}^{207}\right]/\left[U^{235}\right]$ et $\left[Pb_{rad}^{206}\right]/\left[U^{238}\right]$ ont tous deux baissés de moitié. Le point représentatif se trouvera donc sur la droite O - 1000, à égale distance de ces deux points.

De même, si un minéral de t₁ m.a. a perdu du plomb à t₂ m.a., t₂ étant une date ultérieure dans le passé, le point représentatif est situé sur la corde t₁-t₂. On admet bien entendu dans ce cas-ci également que le plomb perdu a la même composition isotopique que le plomb restant, au moment de la perte, et que, à l'exception de cette perte épisodique et brève, le minéral s'est comporté comme un système fermé pour U et Pb rad. La position du point sur la corde est une fonction liné**z**ire de la proportion du plomb perdu. La pente de la corde exprime le rapport $207_{rad}/206_{rad}$ du plomb perdu au moment t₂.

Un mélange accidentel de deux minóraux à "âges concordants", respecti-



vement de t₁ et t₂ m.a., donnera également un point situé sur la corde t_1-t_2 .

On peut montrer de même qu'un minéral de $t_1^{m.a.}$, qui a perdu de l'uranium, à $t_2^{m.a.}$, aura son point représentatif sur le prolongement de la corde t_1-t_2 , de l'autre côté de "Concordia".

Le diagramme de WETHERILL. présente d'autres propriétés remarquables, décrites en détail dans ALDRICH et WETHERILL 1958. Il est particulièrement utile dans les cas où une série de mesures a été faite sur des minéraux d'uranium d'un même gisement, sur diverses fractions de zircons extraites de la même roche, plus généralement chaque fois que l'on a de bonnes raisons de croire que des minéraux uranifères sont contemporains et ont connu la même histoire géologique. Les exemples d'application au zircon sont nombreux.

Diffusion continue et courbe "Discordia"

L'hypothèse d'une diffusion continue du plomb, au cours de toute l'existence du minéral d'uranium, a été présentée par NICOLAYSEN (1957). Moyennant quelques hypothèses simplificatrices (coefficient de diffusion constant, loi de FICK, etc.) il est possible de faire un traitement mathématique de la question et de calculer l'âge exact (dans la mesure où l'hypothèse admise est exacte) à partir de n'importe quel âge discordant de type t 206/238

< t 207/235 < t 207/206.

TILTON (1960) a montré que sur le diagramme de WETHERILL. (Concordia), les points représentatifs de minéraux de même âge satisfaisant au modèle de diffusion continue se répartissaient sur une courbe théorique ("Discordia") Celle-ci est très voisine d'une corde, sauf à son extrémité inférieure, comme on peut le voir sur la figure I - 4 - 2B. Dans certains cas géologiques concrets, TILTON a montré qu'une répartition suivant une corde (ou une courbe très voisine) des points correspondant à divers minéraux d'uranium, s'expliquait plus vraisemblablement par "diffusion continue" que par "perte épisodique". Ainsi des minéraux de localité diverses ont leur point représentatif au voisinage d'une corde 2.800 m.a.⁽¹⁾- 600 m.a. sans qu'il n'y ait, dans certains cas, d'évidence de métamorphisme il y a 600 m.a., et alors qu'il y a des évidences de métamorphisme à 1.800 m.a. (WETHERILL, KUOVO et al.,1962). Ceci montre une certaine indépendance des pertes de plomb vis-à-vis du métamorphisme, en tous cas pour le zircon ; en outre le modèle théorique de perte continue se révèle adéquat.

(1) Millions d'années, comme dans tout ce qui suit



Figure I-4-2B

Courbes de diffusion continue suivant les modèles de Tilton (a) et de Wasserburg (b) pour des minéraux de 1800 m.a. WETHEPILL (1963) a généralisé le modèle de TILTON et NICOLAYSEN aux cas où une perte d'uranium accompagne la perte de plomb, et où le coefficient de diffusion se voit augmenté d'une façon importante au cours d'une période brève. Le cas de la perte épisodique pure est combiné, en quelque sorte, au cas de la diffusion continue. La résolution de tels problèmes donne des familles de courbes sur le graphique Concordia.

WASSERBURG (1963) propose un modèle de diffusion continue, différant dans son principe de celui de TILTON et NICOLAYSEN, et qui constituerait une meilleure approximation des cas réels. Le coefficient de diffusion, supposé constant dans le modèle de ces deux auteurs, ainsi que dans la généralisation présentée par WETHERILL , est ici fonction directe du temps et de la teneur en U + Th. En effet, la perte de plomb pourrait être favorisée par le désordre structural ; il y a même des résultats nombreux, concernant le zircon, qui montrent qu'il y a là plus qu'une simple hypothèse (SILVER, 1963a). Le nombre de défauts du réseau est fonction de l'irradiation subie par le minéral (métamictisation) et donc fonction des teneurs en U et Th, et du temps. Le lieu des points satisfaisant au modèle de WASSERBURG pour des échantillons d'âge donné sont des courbes, analogues aux courbes "Discordia" de TILTON, mais situées un peu en dessous de celles-ci. L'intersection supérieure fixe toujours l'âge exact ; l'intersection inférieure du prolongement de la partie subrectiligne de la courbe est plus bas et fixe comme pour Discordia, un pseudo-âge de perte épisodique purement fictive.

RUSSEL et AHRENS (1957) ont invoqué un autre processus tendant à produire les régularités observées sur le diagramme Concordia : une perte préférentielle de Pb²⁰⁷ accompagnant une perte récente de plomb. La différence d'énergie des particules a , donc des noyaux de recul, dans les deux familles de U²³⁸ et U²³⁵, respectivement, constituerait un mécanisme possible pour une telle perte préférentielle. Si l'on admet au contraire, comme le font les auteurs cités jusqu'à présent (TILTON, WETHEFILL, . WASSERBURG, SILVER, etc.) que la perte est ancienne, il n'y a pas lieu de faire état de perte préférentielle de Pb²⁰⁷ : le plomb qui était présent à un moment donné du passé dans un minéral d'uranium était plus riche en Pb²⁰⁷ que le plomb qui y est présent actuellement. Pour RUSSEL et AHRENS, un mécanisme possible pour une perte plus importante de Pb²⁰⁷ est fourni par la différence d'énergie des noyaux de recul, lors des émissions α, dans les deux familles de U²³⁸ et U²³⁵, respectivement. Un plomb radiogénique enrichi en 207 pourrait être emmagasiné dans les fissures et défauts structuraux, pour être lessivé en proportions variables lors des circulations de solutions aqueuses, par exemple au cours de l'alté-

ration supergène.

Cas de l'âge apparent t 208/232

Pour un échantillon isolé, les trois âges apparents t 206/238, t 207/235 et t 207/206 obéissent <u>toujours</u> à un pattern régulier, pour la simple raison que l'une quelconque de ces trois valeurs peut se calculer à partir des deux autres. Par contre, comme on l'a vu plus haut, il n'y a aucune raison mathématique pour que t 208/232 ne puisse prendre une valeur quelconque positive. Ceci peut donner l'illusion d'un comportement particulièrement capricieux du plomb 208.

La majorité des auteurs admet que Pb²⁰⁷ et Pb²⁰⁶ sont perdus dans les proportions où ils se trouvent, dans les cas de pertes : il n'y a pas de fractionnement entre ces deux isotopes. S'il en était de même de Pb²⁰⁸ (fraction radiogénique), on devrait nécessairement avoir, dans le cas de perte de plomb :

t 208/232 < t 206/238 < t 207/235 < t 207/206 \leq âge réel⁽¹⁾ avec t 208/232 très voisin de t 206/238. C'est l'inégalité des périodes respectives de Th²³², U²³⁸, U²³⁵ qui impose cet ordre. Soit par exemple un minéral de 1000 m.a. qui a perdu la moitié de son plomb à 0 m.a.. L'àge pattern est le suivant :

t 208/232	t 206/238	t 207/235	t 207/206
506 m.a.	519 m.a.	617 m.a.	1000 m.a.

On pourrait dire que pour un minéral donné, il y aurait habituellement perte sélective de Pb²⁰⁸ rad par rapport au plomb d'uranium, si dans la règle, on observait :

t 208/232 << t 206/238 au lieu de t 208/232 << t 206/238

Les premiers résultats de TILTON, DAVIS, WETHER ILL et ALDRICH, obtenus sur zircon par la méthode de dilution isotopique (mise au point par ces auteurs au cas du zircon) paraissent indiquer, en effet, une pareille perte sélective de 208, d'une manière habituelle (1957). Le point a été considéré comme étant plus ou moins acquis, et dans diverses revues de la question faite dans la suite, il est dit et répété que Pb²⁰⁸ est perdu préférentiellement, pour des raisons que l'on ignore. Les mesures nombreuses faites dans la suite, principalement par le groupe de Washington (TILTON et al.) ne confirment ce fait que d'une manière partielle : il est des cas assez nombreux de perte préférentielle de plomb d'uranium

(1) t 207/206 = âge réel si la perte s'est effectuée il y a 0 m.a.

(Pb²⁰⁷rad et Pb²⁰⁶rad) par rapport à Pb²⁰⁸. Il scrait donc plus exact de dire que les plombs provenant respectivement, de la désintégration de U et de Th, ne se comportent pas de la même manière. Cela peut s'expliquer par une répartition différente de U et Th dans un échantillon minéral : de tels cas ont été effectivement observés (von BUTTLAR et HOUTER-MANS 1951). Il ne faudrait donc pas tirer argument de cette situation pour postuler que Pb²⁰⁶rad et Pb²⁰⁷rad peuvent avoir également, chacun son comportement particulier et être fractionnés d'une manière variable lors des pertes de plomb. Les deux isotopes de l'uranium dont ils proviennent par désintégration sont répartis d'une manière parfaitement homogène dans un minéral. Notons enfin que L.T.SILVER (voir plus de détails au chapitre suivant) a observé en plusieurs cas la présence de thorite dans des concentrés de zircon. La thorite perd son plorb radiogénique très facilement. Bien que le minéral soit, en gros, éliminé lors du lavage à l'acide du concentré final de zircon, il pourrait en subsister, ne serait-ce que sous forme d'inclusions dans des grains de zircon. Il y a là une possibilité d'explication de la fréquence relative de perte préférentielle de Pb²⁰⁸rad, dans le cas du zircon.

Ages discordants et erreurs expérimentales

Chaque "âge apparent" est affecté d'une marge d'erreur: expérimentale, calculable à partir des erreurs-sur les données expérimentales brutes :

- a) erreur dans le dosage de U,
- b) erreur dans le dosage de Pb rad,
- c) erreur dans l'analyse isotopique du plomb.

Si la discordance d'âge est faible et comprise dans les marges d'erreurs dont sont affectés les âges apparents, on est tenté de conclure à la non-existence d'une discordance réelle. Il importe de bien observer, cependant, que le fait que la discordance <u>puisse</u> s'expliquer par les erreurs expérimentales n'implique pas qu'elle <u>doive</u> être expliquée de cette manière. La discordance peut être réelle et même plus grande que les résultats n'indiquent. Un cas de concordance apparemment parfaite peut masquer une discordance faible mais très réelle, n'excédant pas la marge d'erreur.

Il y a un autre point sur lequel il faut attirer l'attention. Imaginons que la marge d'erreur sur le rapport [U] / [Pb rad] soit de 5 %. Cela entraîne aussi bien sur t 206/238 que sur t 207/235 une erreur de la même importance à peu près : 5 %. Faut-il conclure qu'une divergence de 9 % entre ces deux âges apparents est dans la marge d'erreur expéri-

35+

mentale ? Non, car une divergence de ce genre ne pourrait avoir d'autre cause expérimentale qu'une détermination incorrecte du rapport $Pb^{207}rad/Pb^{206}rad$. Si nous faisons une erreur par excès, ou par défaut, dans la détermination du rapport [U] / [Pb rad], il en résulterrait respectivement une erreur par défaut, ou par excès <u>aussi bien</u> sur t 206/238 que sur t 207/235 ; cela ne saurait être cause d'une divergence entre ces deux valeurs. On ne peut donc comparer entre elles que les marges d'erreurs affectant des données expérimentales indépendantes, ce qui est moins simple que l'on ne pourrait croire de prime abord.

L'erreur dans le dosage de Pb rad (b) dépend dans une certaine mesure de l'erreur dans l'analyse isotopique du plomb puisque la proportion de Pb rad dans Pb total se déduit de l'abondance du 204. Si le dosage est fait par dilution isotopique, la composition isotopique du plomb non additionné du "spike" est une donnée qui intervient dans le calcul de la concentration.

Si l'on ne recherche pas l'absolue rigueur, on pourra admettre que les erreurs désignées plus haut par a), b) et c) sont indépendantes dans la plupart des cas. L'erreur sur la concentration en Pb rad dépend davantage de l'analyse isotopique du plomb "spiké". On peut faire une autre simplification, dans le cas des minéraux jeunes, à rapport Th/U > 1, et où la proportion de plomb commun n'est pas considérable (cas de la plupart de nos mesures). L'erreur sur la proportion de Pb²⁰⁶rad dans Pb total ou dans Pb rad est négligeable car cette proportion est élevée. Dès lors t 206/238 n'est affecté que des erreurs a) et b).

L'erreur sur t 207/206 ne dépend que de c).

Dans ce cas particulier, on pourra donc conclure à une discordance réelle, s'il n'y a pas recouvrement des marges d'erreurs affectant respectivement t 206/238 et t 207/206.

Cas des minéraux jeunes

Le cas des minéraux jeunes, déjà abordé à propos de la correction du plomb commun et des erreurs expérimentales, nous intéresse tout particulièrement : la plupart de nos mesures concerne des zircons paléozoïques. Le cas des âges au plomb "jeunes" est très spécial et il a été dit que la méthode du plomb ne convient que fort mal dans le domaine 0 - 500 m.a.

36.

 a) Une faible erreur sur le rapport 207/206 entraîne une large erreur sur l'âge apparent calculé d'après ce rapport ; t 207/206 est affecté d'une large erreur expérimentale, même si la mesure est bonne. Une incertitude de 1 % sur la valeur du rapport 207_{rad}/206_{rad} entraîne une erreur de

2 % sur t 207/206 = 1000 m.a. $4,5 \% \qquad " = 500 \text{ m.a.}$ $7 \% \qquad " = 300 \text{ m.a.}$ $25 \% \qquad " = 100 \text{ m.a.}$

Indépendamment des erreurs expérimentales, l'incertitude de 2 % sur λu^{235} entraîne une erreur double de celle tabulée plus haut, et systématique.

b) t 206/238 et t 207/235 ont toujours des valeurs très voisines, même si t 207/206 a une valeur très différente. Dans le cas de perte de plomb, l'abaissement relatif de ces deux valeurs est quasi proportionnel à la fraction de plomb perdue. Un exemple peut illustrer cette situation : Soit, <u>par hypothèse</u>, un minéral d'uranium qui s'est formé il y a 300 m.a., et qui a perdu la moitié de son plomb il y a 0 m.a. Les âges apparents sont :

t 206/238	t 207/235	t 207/206
152 m.a.	161 m.a.	300 m.a.
Tirer argument	de la concordance entre t	206/238 et t 207/235 conduirait
à conclure que	le minéral est âgé de 155	m.a., ce qui est faux par hy-
pothèse. Aucun	argument no peut être tiré	de cette concordance.

Supposons maintenant, pour en revenir à ce qui a été dit plus haut sur les erreurs expérimentales, que nous disposions de résultats expérimentaux concernant le minéral d'uranium en question, résultats que nous nous proposons de discuter et d'interprêter:

t 206/238	t 207/235	t 207/206	
150 ± 5 m.a.	155 ± 10 m.a.	240 ± 100 m.a.	

Les marges d'erreur expérimentales sont celles entraînées par une erreur de 3 % sur le rapport $[U] / [Pb_{rad}]$ et une erreur de 4 % sur le rapport $Pb_{rad}^{207}/Pb_{rad}^{206}$. Une erreur aussi importante sur ce dernier rapport peut résulter de la présence de quelque 20 % de Pb commun, par exemple. Un raisonnement incorrect serait le suivant : la discordance étant attribuable aux erreurs expérimentales, je conclus que le minéral est âgé de 150 m.a. Ou encore : t 207/206 est imprécis, comme il l'est toujours ;

37.

par contre il y a excellente concordance entre t 206/238 et t 207/235, et cette concordance est dans les marges d'erreurs expérimentales ; nous avons donc la preuve que l'âge réel est de 150 m.a. (± 10 m.a., ou ± 5 m.a.). Un tel raisonnement serait encore moins justifié si l'on avait :

t 206/238	t 207/235	t 207/206
150 ± 5 m.a.	155 ± 7 m.a.	240 ± 50 m.a.

Dans le premier cas, on ne peut dire que ceci : t 207/206 est trop imprécis pour être utile, on ne dispose que d'un résultat U/Pb, correct s'il n'y a pas eu de perte de plomb, trop faible s'il y a eu perte de plomb, etc.

Dans le deuxième cas, on peut conclure à la discordance réelle et au pattern de perte de plomb. Dès lors, t 207/206 fournit une indication plus <u>exacte</u> de l'âge, même si le résultat expérimental est moins <u>précis</u> que t 206/238.

On voit que si l'on est décidé à appliquer la méthode du plomb à un minéral uranifère jeune, il est fort important de chercher à obtenir un t 207/206 pas trop imprécis. Cela n'est pas une chose impossible, généralement. En outre, il convient de calculer les erreurs expérimentales. Aussi bien une surestimation qu'une sous-estimation de celles-ci, surtout celle affectant t 207/206, peut conduire à des conclusions, soit trop vagues soit erronnées.

CHAPITRE 5 APPLICATION AU ZIRCON DE LA METHODE DU PLOMB

I - 5 - 1 Propriétés générales du zircon

Le zircon est un minéral très répandu, bien qu'en faible abondance. Il satisfait à la double condition indispensable à l'application de la méthode du Plomb :

- a) Présence d'uranium et de thorium en teneur suffisante, dans la plupart des cas
- b) Le plomb commun est absent ou présent en très faibles teneurs

En outre, c'est un minéral qui résiste bien à l'altération.

Abondance dans les roches

POLDERVAART (1956) donne comme abondance moyenne du zircon dans les roches granitiques le chiffre de 470 gr/T (ppm), mais la variation d'un cas à l'autre autour de ce chiffre moyen est important : 70 à 2000 ppm.

Les roches intermédiaires et basiques seraient sensiblement plus pauvres en zircon.

Le zircon (détritique) est également présent dans de nombreuses roches sédimentaires et métamorphiques.

Caractères d'une population de zircon

L'étude des caractères des minéraux accessoires, et surtout du zircon, est souvent utilisée dans des buts purement géologiques. Dans les roches sédimentaires, les "accessoires" permettent de faire des études de provenance. En ce qui concerne les roches ignées, le but est de chercher à établir des relations entre différents massifs. On a tenté aussi d'établir un critère permettant de distinguer les roches ortho - des roches para -, ou encore les granites autochtones des granites intrusifs (POLDERVAART 1950) (POLDERVAART et ECKELMANN 1955).

Les caractères observés le plus souvent sont :

- La forme : euèdres ou non ; arrondis mécaniquement (zircons détritiques), corrodés. Cristaux brisés. Excroissances.
- 2) La dimension et les proportions. Une grande importance est attachée au rapport l/L (largeur/longueur) apparent des grains isolés examinés au microscope. Les zircons détritiques sont courts, car les prismes allongés sont brisés durant le transport.
- 3) Les caractères optiques : limpidité, couleur, biréfringence. Ces caractères sont en rapport avec le degré de <u>métamictisation</u> (voir plus loin). Zonage (fréquent) ou absence de zonage.

4) Abondance et nature des inclusions. On a souvent décrit des "noyaux" de zircon inclus dans un autre zircon. Le cas d'observation le plus fréquent (peut-être parce qu'il est le plus facilement observable) est celui d'un zircon coloré dans un zircon clair (voir photos dans la 3e partie). On a souvent considéré ces faits d'observation comme une preuve de la "réincorporation" de zircons d'une roche préexistante, par assimilation d'enclaves ou tout autre processus (HOPPE 1959).

D'après POLDERVAART (1950), la recristallisation du zircon au cours du métamorphisme ne se ferait qu'à partir du stade des granulites (sens germanique). Elle se caractériserait par la formation d'excroissances, une disparition de la couleur.

L'Uranium, le Thorium et le Plomb dans le zircon

L'Uranium et le Thorium peuvent remplacer isomorphiquement le Zirconium dans le réseau du zircon (rayons ioniques respectifs d'après GREEN 1959 : U⁴⁺ 0,97 - 1,01 ; Th⁴⁺ : 1,02 - 1,06 ; Zr⁴⁺: 0,79 - 0,82). MUMPTON et ROY (1961) ont pu établir expérimentalement que 4 ± 2 moles % Th Si O, et 4 ± 2 moles % U Si O_h peuvent se dissoudre dans Zr Si O_h , dans des conditions d'équilibre stable. Parmi les autres éléments qui peuvent remplacer isomorphiquement le Zirconium dans le zircon, citons l'Hafnium et les terres rares. Il est à peu près exclu que ni l'ion Pb²⁺ (rayon ionique 1,24 - 1,28, trop grand) ni Pb⁴⁺ ne puissent se présenter en substitution isomorphique. Pb 4+ n'est susceptible d'exister que dans des conditions très oxydantes difficiles à admettre lors de la cristallisation du zircon (AHRENS 1953, GOTTFRIED et al. 1959). D'autres minéraux accessoires : apatite, sphène, orthite, renferment souvent assez d'uranium pour permettre une mesure d'âge, n'était la présence de plomb commun. Celui-ci y est généralement présent ; Pb²⁺ est susceptible de remplacer Ca²⁺ (TILTON et al. 1955).

Les teneurs en U et Th du zircon sont très variables. Les valeurs extrêmes citées par HEINRICH (1958) pour U sont : de 30 ppm (10^{-6} gr/gr) à 3 % (c.à.d. 30.000 ppm). Le rapport Th/U est le plus souvent en dessous de 1 : 0,2 à 0,6, mais il y a des zircons plus thorifères qu'uranifères. Dans les zircons des roches granitiques, les teneurs les plus fréquentes en U sont de l'ordre de quelques centaines, voire un à deux mille ppm. Dans les zircons des diorites et des gabbros, les teneurs habituelles sont plus faibles : quelques dizaines de ppm (GOTTFRIED et al. 1959).

Dans le cas de la différentiation magmatique, U, Th, et Hf se concentreraient dans le liquide résiduel et les zircons des roches les plus tardives seraient enrichis en ces éléments (GOTTFRIED et al., 1959). D'un individu à l'autre, au sein d'une même roche, les teneurs en U et Th peuvent varier d'une manière très importante. Cette particularité s'observe bien sur les autoradiographies de lames minces non recouvertes. Généralement, les zircons les plus fins, dans un granite donné, sont aussi les plus actifs (SILVER, 1963 a,b). Les grains les plus fins seraient aussi les plus tardifs et il y aurait tout une évolution dans la cristallisation du zircon.

Très souvent, les zircons de granite et de pegmatite présentent un zonage concentrique. Les teneurs en U et Th peuvent varier notablement d'une zone à l'autre (LARSEN, Jr, et al., 1953). Dans le cas de gros zircons de pegmatite on a pu montrer par autoradiographie que le rapport U/Th peut varier d'une manière considérable d'une partie à l'autre d'un même cristal (von BUTTLAR et HOUTERMANS, 1951). Les expériences d'attaque progressive de SILVER et DEUTSCH (1961,1963) combinées à l'examen par autoradiographie, mettent en évidence le même phénomène. En outre, ces auteurs ont pu montrer qu'il n'y a pas, d'une zone à l'autre, homogénéité ni dans la concentration ni dans la composition isotopique du plomb radiogénique.

Les mêmes auteurs ont mis en évidence, dans un concentré de zircon pur à 99 % au moins, extrait d'un grandiorite, la présence de quelques pour mille d'uranothorite, contribuant pour plus de 50 % de la radioactivité totale. Ce n'est pas un cas isolé (SILVER, 1963 a). L'uraninite a également été signalée comme accessoire des granites (DEUTSCH et PICCIOTTO, 1956). Des microinclusions d'uraninite, parfois altérée, ont été observées dans des cyrtolites (zircons métamictes ou altérés de pegmatit es) (KOSTYLEVA, 1946, VAINSHTEIN, et al., 1959).

Altération et métamictisation

L'état métamicte peut être défini comme une altération de l'état cristallin qui se présente dans des minéraux uranifères et thorifères.

La métamictisation serait due en ordre principal au déplacement des atomes par le noyau de recul, lors de l'émission d'une particule α (HOLLAND et GOTTFRIED 1955, PELLAS 1954). Les caractères des minéraux métamictes ont été résumés par PABST (1952).

Lorsque la métamictisation est complète, ces minéraux sont optiquement isotropes et amorphes aux rayons X. Si elle est partielle, on observe une baisse de la biréfringence et une modification du diagramme aux R x : les pics sont épaissis, la dimension de la maille change.

Au chauffage, il se produit souvent une incandescence (pyrognomie). La structure est alors reconstituée. Si la métamictisation est très poussée, il peut se reformer, non pas un simple cristal, mais une mosaïque. Dans

41.

le cas du zircon très métamicte, il peut se former Zr 0₂ + Si 0₂, lors du chauffage. Pour KOSTYLEVA (1946) le zircon complètement métamicte doit être considéré déjà comme un mélange de Zr 0₂ et de Si 0₂.

Par rapport à l'espèce non métamicte, ou au minéral dont la structure a été reconstituée par chauffage, les minéraux métamictes sont :

plus fragiles, sans clivages (si la métamictisation est complète) moins denses

moins résistants à l'attaque aux acides

souvent hydratés, alors que l'espèce non métamicte ne l'est pas. Les zircons métamictes sont souvent colorés en brun ou jaune, et magnétiques (contrairement au zircon ordinaire).

Tous les zircons présentant certains de ces caractères ne sont pas nécessairement métamictes, mais peuvent avoir subi un autre type d'altération. L'hydratation du zircon est un phénomène qui accompagne souvent la métamictisation, mais qui peut être indépendante de celle-ci. FRONDEL et COLLETTE ont pu synthétiser du zircon hydraté (1957).

On appelle malacon le zircon brun, métamicte ou altéré. CLAUS (1936, p.25), (cité par POLDERVAART,1955) a pu observer la différence entre les zircons altérés et souvent arrondis, et les zircons métamictes avec éclat brillant et euèdres. Les deux variétés sont brunes, voire opaques, ont une biréfringence peu élevée et une densité faible. Les deux types décrits sont hydratés. Les zircons métamictes sont fortement radioactifs, contrairement aux zircons altérés (POLDERVAART 1955).

KOSTYLEVA (1946) a observé que dans les zircons dont la composition est proche de la formule théorique Zr Si O_4 la métamictisation se faisait sans absorption d'eau. Pour ZHIROV (1952), tous les zircons métamictes sont simplement des zircons altérés ; il pourrait y avoir introduction secondaire d'uranium à la faveur de l'altération, mais le rôle de la décroissance radioactive serait faible ou nul. Même si cette opinion repose sur des faits d'observation, on n'est pas autorisé à généraliser à partir de ceux-ci. En effet, plusieurs auteurs ont pu établir une relation quantitative entre le degré de métamictisation, évalué par la mesure précise de la densité et de la dimension de la maille, et de l'irradiation α totale (HURLEY et FAIRBAIRN, 1953, HOLLAND et GOTTFRIED,1955). Une méthode de mesure d'âge basée sur ce principe a pu être développée, pour les zircons très faiblement métamictes. Cette méthode a donné des résultats intéressants, bien qu'elle soit limitée par la possibilité de restauration de la structure au cours des phénomènes thermiques.

Suivant FRONDEL (1953), les cyrtolites (zircons brun-rouge de pegmatite, aux faces arrondies, riches en U et Th) seraient généralement des "produits de recristallisation microcristallins, pseudomorphes, de zircon métamicte". Des observations faites par cet auteur sur la cyrtolite de Hybla montrent des zones recristallisées microcristallines et des zones métamictes. Des zircons troubles laiteux, "métamictes recristallisés", probablement, ont été observés par GRÜNENFELDER et HAFNER, 1962 et GRÜNENFELDER, 1963, dans des granites du massif du St Gothard. Ces zircons sont riches en U et H_2O ; U est réparti irrégulièrement, d'après les observations faites à la microsonde.

I = 5 = 2 La méthode Pb/ α

On a vu plus haut que la méthode Pb/α est une variante de la méthode de mesure d'âge "chimique" U + Th/Pb, sans analyse isotopique. Son application suppose donc l'absence de plomb commun, et la constitution d'un système fermé pour U, Th et Pb rand.

La méthode Pb/ α a été développée à l'origine par LARSEN et ses collaborateurs (LARSEN, KEEVIL et HARRISON 1952). Une revue récente de la question a été faite par GOTTFRIED, JAFFE et SENFTLE (1959). STERN et ROSE (1961) présentent une comparaison entre la méthode Pb/ α et la méthode du plomb complète, sur les mêmes échantillons (voir aussi TILTON et al., 1957).

Le plomb est déterminé par une méthode spectrochimique. La mesure de l'activité α donne les concentrations en U et Th, si l'on admet à priori que ces éléments se trouvent présents dans un rapport donné. En effet, une mesure de l'activité α suivant la technique habituelle ne permet pas La détermination du rapport U/Th. A moins de déterminer ce rapport indépendamment, on lui attribuera une valeur arbitraire. L'erreur sur l'âge introduite par cette hypothèse peut atteindre dans les cas défavorables jusqu'à 15 à 20 %.

Habituellement, le rapport U/Th est plus grand que 1. La majeure partie de l'activité α est due à la famille de U²³⁸, et la majeure partie du plomb radiogénique est Pb²⁰⁶. L'âge Pb/ α est donc, à peu de chose près, l'âge apparent t 206/238.

Les principaux avantages de la méthode sont, d'une part le fait qu'elle ne nécessite que peu d'échantillon, et sa simplicité relative. Il faut noter toutefois que la détermination spectrochimique du plomb, avec une précision acceptable, nécessite une mise au point soigneuse (STERN et ROSE, 1961). Les auteurs cités admettent que l'âge est déterminé à 10 % près, si l'on ne tient pas compte de l'erreur supplémentaire introduite par une hypothèse inexacte concernant le rapport U/Th. Ces 10 % représentent l'erreur expérimentale et n'incluent pas l'incertitude concernant les deux hypothèses de base rappelées plus haut : pas de plomb commun, pas d'altération dans les rapports parent/descendant. Ces hypothèses ne sont pas vérifiées dans la moitié des cas au moins, ce qui limite fort l'utilité de la méthode.

Elle doit être considérée comme un moyon d'étude préliminaire permettant le choix des quelques échantillons destinés à l'application de la méthode du plomb complète, dont la mise en oeuvre requiert des échantillons plus importants et de gros moyens techniques.

I - 5 - 3 Application au zircon de la méthode du Plomb complète

Technique de dilution au moyen d'isotopes stables

Une mesure d'âge complète du zircon suppose :

- 1) La spectrométrie de masse d'une quantité très faible de plomb : environ 10 γ (1 γ = 10⁻⁶gr.)
- La séparation chimique du plomb destiné à l'analyse isotopique, sans introduction de contaminations élevées en plomb commun
- 3) Le dosage du plomb et de l'uranium, à l'état de traces, à mieux de 3 %. Par la technique de dilution au moyen d'isotopes stables, il est possible d'obtenir cette précision, et ceci, pour des quantités de plomb ou d'uranium de l'ordre de 1 γ, si nécessaire. La première application au cas du zircon est ducà TILTON et al., 1955. Il y a des raisons particulières qui rendent la méthode de dilution isotopique toute indiquée au cas de Pb rad à l'état de traces;
- La spectrométrie de masse de faibles quantités de plomb est de toute manière indispensable. Il n'est fait appel à aucune autre technique délicate, posant des problèmes supplémentaires d'appareillage et de mise au point.
- 2) Si une contamination en plomb commun se produit à un stade quelconque des opérations, il n'en résulte pas une grosse erreur systématique, comme se serait le cas pour n'importe quelle autre méthode de dosage. La concentration exacte en plomb radiogénique reste déterminable.
- 3) On n'a pas à connaître le rendement des séparations chimiques effectuées après l'homogénéisation isotopique spike-plomb de l'échantillon, dans la solution totale. Comme une séparation quantitative du plomb est impossible, une autre méthode de dosage exigerait l'utilisation d'un tradeur radioactif pour la détermination du rendement.

Le dosage de Th par dilution isotopique pose un problème particulier (TILTON, ALDRICH et INGHRAM 1954). Le seul traceur isotopique possible est Th²³⁰ ("Ionium"), émetteur α à période de 83.000 ans. Des précautions doivent être prises pour éviter les contaminations radioactives si on utilise des quantités de cet isotope de l'ordre du γ .

Autres méthodes de dosage de U, Th et Pb

ZHIROVA, ZYKOV et TUGARINOV (1961) dosent le plomb du zircon par polarographie oscillographique. Il est nécessaire de déterminer le rendement des séparations chimiques du plomb au moyen d'un traceur radioactif (Pb²¹⁰).

L'uranium et le thorium sont dosés par ces mêmes auteurs par le radon et le thoron, ce qui suppose l'équilibre radioactif (d'ailleurs très probable, dans le cas du zircon). Des méthodes colorimétriques peuvent être utilisées pour le dosage de U et Th, lorsque le zircon est particulièrement riche en ces éléments (malacons et cyrtolites) (SCHÜRMANN et al.,1956). Pour le thorium, la méthode colorimétrique est difficile, à cause de l'interférence du zirconium. CERRAI et GAZZARINI (1960) paraissent avoir résolu le problème, mais le procédé qu'ils décrivent est long et probablement assez délicat. En outre, il convient de mesurer soigneusement le rendement des séparations par traçage radioactif.

BUCHS (BUCHS et al. 1962) a mis au point une méthode de dosage de U, Th et Pb dans le zircon par fluorescence X, qui permet d'obtenir des âges "chimiques" (dits encore "plomb total") plus précis que ceux obtenus par Pb/ α .

La méthode du Ra D (voir chapitre précédent) permettrait aussi d'éviter la détermination du rendement de la séparation du plomb.

I - 5 - 4 Expériences de lavage aux acides

TILTON (1956) a étudié le comportement de divers minéraux uranifères, traités aux acides après broyage. Ces expériences ne visent pas à imiter les conditions naturelles mais peuvent contribuer à donner une réponse à certaines questions comme celle qui a déjà été abordée au chapitre 4 : lors d'une perte de plomb, les différents isotopes sont-ils perdus ou non dans les mêmes proportions ?

Un concentré de zircon pur à 99 % (Tory Hill, Ontario), traité 15 minutes à l'eau régale 1/1 bouillante, perd 15 % de son plomb. Il y a nettement une perte sélective de plomb commun et de plomb Pb²⁰⁸ radiogénique. Ce même zircon présente la particularité d'avoir un âge apparent 208/232 beaucoup plus faibles que les âges apparents à l'uranium, qui sont concordants. Le rapport 207_{rad}/206_{rad} est sensiblement le même dans l'acide de lavage et dans le zircon.

ZHIROV et al. (1957) ont procédé à un lavage prolongé d'une cyrtolite dans une solution d'acétate ammonique. La perte de plomb est de 12 %. Il y a une légère perte préférentielle de plomb commun. A l'inverse du cas décrit par TILTON, c'est le plomb d'uranium qui est perdu préférentiellement au plomb de thorium. Dans ce cas-ci également Pb²⁰⁷ et Pb²⁰⁶ rad rad

TILTON n'a pas cherché à localiser l'origine du matériel soluble. Ce peut être soit une impureté présente dans le concentré, même si ce dernier est pur à 99 % (cf SILVER et DEUTSCH, 1961, 1963), soit des inclusions dans le zircon, d'observation habituelle, soit "le matériel adjacent aux limites des grains ou remplissant les fissures du cristal" (TILTON). A pression ordinaire, seul le zircon très métamicte est susceptible d'être partiellement dissout par une attaque sévère aux acides.

Notons que pour débarasser le concentré final de zircon de la pyrite et d'autres sulfures, il est généralement nécessaire de procéder à un lavage à l'acide nitrique chaud (TILTON et al, 1957).

I - 5 - 5 Age pattern du zircon

Sur quelques 150 résultats publiés jusqu'en 1963, on ne compte que 12 cas de discordance t 206/238 > t 207/235 > t 207/206. On y compte une proportion particulièrement élevée de t 207/206 imprécis, ou de discordances faibles n'excédant pas la marge d'erreur expérimentale, en sorte que la proportion réelle des âges patterns de ce type pourrait être plus faible encore. Les âges concordants sont plutôt rares. Dans la majorité des cas, l'âge pattern est du type t $206/238 \leq t 207/235 \leq t 207/206$, la discordance étant d'importance très variable.

Causes probables des discordances

Perte de plomb, sans fractionnement entre Pbrad et Pbrad

En se servant d'arguments géologiques et autres, il a pu être observé que, dans la règle, le zircon perdait du plomb radiogénique. On a aussi vu (I - 4 - 2), que ces pertes étaient plus ou moins indépendantes du métamorphisme. Ces conclusions reposent dans une large mesure sur l'interprétation, facilitée par l'emploi du diagramme Concordia, de séries de résultats obtenus sur des échantillons cogénétiques. Rappelons à ce sujet le modèle de WASSERBURG (1963), avec coefficient de diffusion fonction du temps et de la teneur en U et Th, et les résultats de SILVER (1963 a,b) qui montrent bien que dans la règle, dans une population donnée, les zircons les plus riches en U et Th perdent le plus de plomb.

Mais il y a au moins un cas où la perte paraît s'être opérée au cours d'un épisode de métamorphisme. Cela n'est d'ailleurs pas nécessairement en contradiction avec ce qui est observé dans d'autres circonstances, où la diffusion continue paraît plus probable, puisque le coefficient de diffusion est fonction de la température. Dans le cas décrit par SILVER (1963 b) (Cochise County, Arizona), 19 points expérimentaux se situent sur la corde 90 m.a. - 1660 m.a. du diagramme. Il s'agit de 19 systèmes U/Pb (zircons séparés suivant leur taille, uranothorite, etc) extraits d'un même massif post-tectonique. Il n'y a pas de résultat expérimental faisant exception à la régularité observée. De même, 7 points expérimentaux, correspondant à des systèmes U/Pb extraits de roches pré-et syntectoniques de la même région, se situent sur une corde 90 m.a. - 1720 m.a.. Par ailleurs, on sait que l'orogenèse laramide a été active dans la région aux environs de 90 m.a.. Dans le cas d'une perte par diffusion continue, l'intersoction inférieure de la corde devrait se situer aux environs des pointo 200 m.a. - 300 m.a. de la courbe Concordia.

D'autres cas d'arrangements linémires, cités par WASSERBURG (1963), cadrent mieux avec l'hypothèse de diffusion continue. Par ailleurs, il est des cas connus d'absence de porte de plomb au cours d'un épisode métamorphique important, par exemple dans le gneiss de Baltimore (TILTON et al., 1958). Il y a donc, outre la température et le désordre structural, d'autres facteurs déterminant l'importance des pertes de plomb. Ce pourrait être des caractères minéralogiques, par exemple, la dimension originelle (avant métamictisation) de la maille élémentaire (WASSERBURG). Enfin faut-il tenir compte des distances de diffusion. Qualitativement, il a été constaté que dans une population de zircons cogénétiques, ce sont souvent les grains les plus petits qui perdent le plus de plomb (NICOLAYSEN et al., 1958, SILVER et DEUTSCH, 1961, 1963, SILVER 1963 a et b). Mais dans les mêmes cas précisément il a été constaté que les zircons les plus fins sont aussi les plus riches en uranium. En sorte que l'on ne sait si c'est la taille plutôt que le désordre structural qui est le facteur important. Les distances de diffusion à considérer sont peut-être d'un autre ordre de grandeur que la dimension du grain, compte tenu des fissures, dislocations, etc(TILTON 1960).

Si donc on n'a pas encore une explication complète et satisfaisante du phénomène, il est bien établi sur un grand nombre de cas, que la perte de plomb radiogénique est un phénomène général pour le zircon, bien que d'importance variable. Il en résulte que t 206/238 pourra être considéré comme une valeur minimum de l'âge, suivant toute probabilité, et t 207/206 une valeur approchée mais généralement trop faible (ceci quand on ne dispose que d'un seul résultat expérimental). Il est par ailleurs souhaitable d'accumuler plusieurs résultats sur des échantillons différents d'une même unité géologique, ou de subdiviser le concentré de zircon en fraction de tailles et de susceptibilités magnétiques différentes. Cette dernière propriété est en effet fonction du degré de métamictisation.

Ejection des noyaux de recul

Si la perte de plomb s'effectuait par ce mécanisme, elle serait préférentielle pour Pb 207 rad (RUSSEL et AHRENS 1957) (cf I - 4 - 2). Ce mécanisme est susceptible d'expliquer théoriquement les régularités observées sur le diagramme "Concordia". L'intersection supérieure de la corde (ou courbe voisine d'une corde) fixe toujours l'âge. L'intersection inférieure est sans signification.

RUSSEL et AHRENS ont suggéré que dans le cas général, s'appliquant à divers minéraux uranifères, la perte de plomb était récente (ce qui peut se concevoir, si elle est liée à l'altération et à la circulation des eaux de surface) avec un fractionnement de 9 %. Mais la généralité d'un tel phénomène paraît peu probable.

a) Pour des minéraux jeunes, l'abaissement de t 207/206 serait très sensible pour une perte quelque peu importante. On sait en effet la variation considérable de t 207/206 pour une variation faible du rapport 207/206, dans le cas des âges de moins de 500 m.a. Or on n'observe pas que, d'une manière habituelle, t 207/206 soit trop bas pour les minéraux jeunes ayant perdu du plomb, comme cela devrait être le cas si Pb²⁰⁷ était perdu préférentiellement. Pour le zircon, il y a fort peu de données encore à ce sujet. b) Le processus ne paraît pas pouvoir expliquer quantitativement les grosses discordances. TILTON (1960) estime que pour des zircons de granite (quelques dizaines de microns de dimension moyenne), quelques pour mille de plomb peuvent être perdu par l'éjection des noyaux de recul ; ceux-ci ont une trajectoire de 4. 10⁻⁶ cm environ dans un minéral. Si les fissures et autres discontinuités jouaient un rôle important, quelques pour mille pourraient devenir quelques pour cent. Mais il y a des pertes de plomb de plus de 50 %.

c) Les expériences de lavage aux acides ne montrent pas de fractionnement du rapport 207/206, pour le plomb extrait. Ces expériences à dire.vrai, sont peu nombreuses, et le plomb radiogénique présent dans l'acide peut provenir d'une impureté radioactive soluble plutôt que du zircon lui-même. En tous cas, ces expériences ne fournissent pas d'évidence positive de la · présence d'un plomb enrichi en 207 dans les fissures du minéral.

Pourtant, dans un article très récent, CATANZARO et KULP (1964) considèrent que le mécanisme invoqué par RUSSEL et AHRENS doit être retenu comme une explication possible de régularités qu'ils observent sur le diagramme Concordia. Il s'agit d'un assez grand nombre de mesures sur zircon, avec des évidences de pertes de plomb importantes. Mais les deux cas étudiés sont trop complexes pour fournir une indication claire sur la manière dont ces pertes ont pu se produire.

Perte de radon

En ce qui concerne le zircon, il n'y a pas de cas connu de discordance importante qui paraisse devoir s'expliquer par une perte de Rn²²². Ce mécanisme ne rend pas compte des régularités observées sur des séries d'échantillons cogénétiques. En effet, sur le diagramme Concordia, on devrait observer une répartition suivant une parallèle à l'axe U²³⁸/Pb²⁰⁶ pour des pertes variables de Pb²⁰⁶ seulement. Or, ce n'est jamais cela qui est effectivement observé. GILETTI et KULP (1955) signalent des pertes de Rn²²², mesurées en laboratoire, allant jusqu'à 6,2 % pour le zircon. On pourrait donc concevoir que les pertes d'émanation (Rn²²² et sans doute Rn²¹⁹ en moindre proportion) puissent perturber un peu un schéma régulier de "diffusion continue" ou de "perte épisodique".

Réincorporation dans la roche de zircons anciens

Tout comme la perte de radon, un tel processus aurait pour effet de fausser t 207/206 par excès (la perte de plomb sans fractionnement ou préférentielle pour 207 ne peut fausser t 207/206 que par défaut). Une telle situation paraît vraisemblable, dans une roche granitique, dans les zones proches des contacts. Dans certaines roches métamorphiques aussi, on peut s'attendre à observer côte à côte deux générations de zircon, dont la plus récente, peut-être, sous forme d'excroissances autour de grains anciens. La possibilité de réincorporation de zircons vieux dans les granites a été évoquée par plusieurs auteurs (TILTON et al.,1957, HOPPE,1959). Des âges Pb/a trop élevés ont été interprêtés de cette manière (GOTTFRIED et al., 1959, GASTIL et DE LISLE, 1962). Il serait très souhaitable que ces données intéressantes soient confirmées par des mesures isotopiques.

Bien que pouvant être très important en certains cas, un tel phénomène ne paraît pas devoir être pris en considération dans le cas habituel d'un échantillon de roche ignée prélevé loin des contacts.

Erreur sur Au²³⁵

Comme on l'a vu plus haut, la constante de désintégration de U^{235} , soit 9,72 x 10⁻¹⁰ans⁻¹, n'a été déterminée qu'à 2,2 % près par FLEMING, GHIORSO et CUNNINGHAM (1952). L'utilisation par tous les auteurs d'une valeur légèrement inexacte aurait pour effet le calcul de t 207/235 légèrement inexacts aussi, ce qui paraît de peu d'importance. Mais les t 207/206 calculés de cette manière seraient faussés dans une mesure beaucoup plus grande, de même que les âges déterminés graphiquement sur le diagramme Concordia.

Les discordances d'importance variable que l'on observe ne peuvent pas s'expliquer par cet effet, qui serait systématique pour toutes les mesures faites sur toute espèce de minéral d'uranium. Mais il pourrait amener à considérer comme discordants des âges qui sont en concordance parfaite et réciproquement, avec toutes les conséquences que cela implique pour l'interprétation.

Dans un cas géologique concret de roche non métamorphisée ultérieurement, il a été observé un écart par excès de quelque 10 % des "âges" sur zircon, déterminés par l'intersection supérieure de la corde, et les "âges" Rb/Sr sur roches totales. Parmi les explications envisagées, il y a la possibilité d'une valeur de $\wedge U^{235}$ plus élevée de 2 % que celle de FLEMING et al. Remarquons cependant que cette hypothèse est présentée à titre de simple possibilité, qu'elle ne concerne qu'un seul cas géologique et une seule espèce de minéral uranifère (WASSERBURG, WETHERILL, SILVER et FLAWN 1962).

Une discussion exhaustive de la question comprendrait un examen de tous les résultats obtenus sur quelque minéral d'uranium que ce soit, et calculés avec $\lambda U^{235} = 9,72.10^{-10} \text{ ans}^{-1}$. On notera simplement qu'il est d'autres cas, où l'on ne constate nulle évidence d'une possibilité d'inexactitude de λU^{235} . Il est même au moins un cas, où ce ne serait pas une valeur plus élevée de λU^{235} qui pourrait : rendre compte de valeurs inattendues de t 207/206, mais plutôt une valeur plus basse (FERRARA', HIRT, JÄGER et NIGGLI 1962). Cette possibilité n'en est pas pour autant exprimée explicitement par les auteurs précités ; il est évident que l'on ne peut utiliser chaque fois la valeur de λU^{235} qui donne les résultats les plus facilement interprêtables. Pour des échantillons de moins de 500 m.a., la déviation systématique qui affectorait t 207/206 serait de quelque 60 m.a. (STIEFF et al., 1959) soit 12 % et plus. Il est étonnant qu'une telle déviation systématique, si elle existait, soit passée inaperçue. ALDRICH et WETHERILL (1958) ont constaté que des échantillons d'uraninite inaltérés donnent en général des âges concordants. Il n'a jamais été noté, que nous sachions, que cela n'était pas le cas pour des échantillons jeunes. Des mesures sur des échantillons d'uraninite de moins de 300 m.a. ont été faites par FERRARA et al., 1959, 1962, DARNLEY et al., 1960. Dans les deux ou trois cas t 207/206 coïncide très bien avec T 206/ 238. C'est également vérifié pour une uraninite de quelque 365 m.a. (WASSERBURG, HAYDEN et JENSEN 1956).

Assez probablement, la valeur de λU^{235} proposée par FLEMING et al. est exacte à mieux de 2 % près ; c'est là pour le moment tout ce qui paraît pouvoir être déduit des arguments d'ordre géochronologique et géologique. Cela permet le calcul de t 207/206 peu élevés, qui ne soient pas considérés au départ comme très approximatifs.

CHAPITRE 6 COMPARAISON DES METHODES GEOCHRONOLOGIQUES

ET ETABLISSEMENT D'UN AGE ABSOLU

I - 6 - 1 Comparaison entre les diverses méthodes de mesure d'âge

On a vu que les rapports des nucléides parents aux nucléides descendants pouvaient subir de nombreuses altérations, sous l'influence de facteurs divers, dont le métamorphisme. En général, le nucléide descendant tend à migrer hors du minéral-hôte dont il n'est pas un constituant normal. On ne peut donc pas s'attendre à ce que l'application de différentes méthodes au même minéral, ou de la même méthode à différents minéraux de la même roche, donne toujours le même résultat. Au contraire, on observe le plus souvent toute une séquence de valeurs.

Roches éruptives non métamorphiques

Des pertes de plomb dans le zircon, d'argon dans le feldspath peuvent se produire en l'absence de tout métamorphisme. Une phase de rétromorphose tardive, liée au même cycle éruptif et métamorphique au cours duquel la roche a été mise en place, une activité hydrothermale post-tectonique, ou simplement la lenteur de la remontée dans l'épizone peuvent provoquer des pertes de Sr et de A dans les micas, surtout la biotite, et peut-être aussi dans le feldspath.

Roches éruptives métamorphiques ou polymétamorphiques

Dans ce cas, les discordances les plus importantes sont observées. Dans le cas du <u>métamorphisme général</u>, elles se conforment à une séquence habituelle, sauf exception. En ordre croissant on a :

	1) t K/A sur feldspath
toujours trop faibles	2) t Rb/Sr sur biotite
	3) t K/A sur biotite
exacts ou trop faibles	4) t Rb/Sr sur muscovite
	5) t Rb/Sr sur feldspath potassique
exacts ou presque exacts	6) t Rb/Sr sur roche totale
	7) Age du zircon

(cf ALDRICH 1960, PICCIOTTO et COPPEZ 1963). Les indications "trop faibles" ou "exacts" se réfèrent à l'âge de la promière cristallisation. L'âge du zircon est celui fourni par un résultat concordant ou déduit grâce au graphique Concordia, d'un ensemble de plusieurs résultats discordants. On est un peu embarrassé de situer dans la séquence t K/A sur muscovite et t K/A sur hornblende, tant elle présente d'exceptions de détail. Le premier est habituellement trop faible, le second exact ou presque exact.

Dans le cas du <u>métamorphisme de contact</u>, on observe une inversion notable, sans doute en relation avec le caractère thermique du métamorphisme suivant KULP et ENGELS (1962). On a t K/A sur biotite < t Rb/Sr sur biotite. Une étude géochronologique du métamorphisme de contact a été faite par HART (1963). Cet auteur observe à faible distance une séquence inhabituelle :

t K/A sur biotite < t Rb/Sr sur biotite < t K/A sur feldspath < t Rb/Sr sur feldspath < t K/A sur hornblende

Plus loin du contact, l'ordre devient différent. Sur biotite, les âges mixtes (trop faibles) s'observent jusqu'à 10.000 pieds du contact, dans la direction perpendiculaire à l'allongement d'un stock subrectangulaire de 10.000 pieds de large, alors qu'il n'y a aucune manifestation visible, en lame mince, de métamorphisme dans les roches situées au delà de 3.000 pieds du contact. Mais t Rb/Sr sur feldspath est correct déjà à 20 pieds, et t K/A sur hornblende, à 100 pieds du contact. Les mesures faites sur biotite, aussi bien par Rb/Sr que par K/A, peuvent mettre en évidence donc une action métamorphique qui échappe à toute autre observation. L'usage du terme de "métamorphisme" peut prêter à confusion ; il s'agit, dans le cas décrit, principalement d'une élévation de température locale, durant un certain laps de temps.

Comparaison des mesures sur zircon et des mesures Rb/Sr sur roche totale

L'"âge du zircon" est égal ou supérieur aux âges apparents obtenus par d'autres méthodes. Ces dernières sont toujours susceptibles de donner des valeurs inférieures à l'âge de la première cristallisation de la roche, sauf en des cas assez limités de roches superficielles à refroidissement rapide, n'ayant pas subi de métamorphisme subséquent. Toutefois, comme on l'a vu au chapitre 3, les mesures Rb/Sr en "roche totale" sont considérées comme fournissant de bonnes indications sur l'âge réel. Des mesures sur plusieurs échantillons d'un même massif seraient susceptibles de montrer; par leur consistance interne, si la roche s'est comportée en système fermé ou non. Suivant une opinion qui paraissait, il y a deux ans encore, très défendable, deux méthodes seraient donc susceptibles de donner l'âge de la cristallisation ou de la différenciation d'une roche ignée (ce qui revient à peu près au même, probablement) : la méthode U/Pb complète appliquée au zircon, et la méthode Rb/Sr appliquée à la roche totale. Mais quelques cas, publiés récemment, de comparaison entre les deux méthodes ne confirment pas cette manière de voir. Il reste donc un travail fondamental à faire, dans des cas géologiquement simples et bien connus, pour découvrir l'explication de cette anomalie.

CLIFFORD, NICOLAYSEN et BURGER (1962), dans le cas d'un granite métamorphisé il y a quelque 570 m.a. (t Rb/Sr de la biotite), mesurent les âges apparents suivants :

1.700 m.a. pour le zircon

1.260 ± 70 m.a. pour la roche totale (Rb/Sr)

Ils concluent à une perte de strontium par la roche.

LANPHERE, WASSERBURG, ALBEE et TILTON (1963), dans le cas d'un dôme gneissique et granitique précambrien de Californie, métamorphisé durant l'orogenèse laramide, observent une remobilisation importante du strontium: des échantillons de "roche totale" de 85 kg se sont comportés en systèmes ouverts. Pour les granites et les gneiss oeillés, l'âge de la cristallisation serait donné par les résultats des mesures sur zircon. Les mesures Rb/Sr sur roche totale ne donnent cet âge qu'avec une erreur de 15 % à 25 %, par excès ou par défaut. Les mesures K/A et Rb/Sr sur minéraux potassiques donnent approximativement l'âge du métamorphisme laramide : 64 à 156 m.a. Un dyke basique (pauvre en Rb) a un âge apparent Rb/Sr, en roche totale, absurdement élevé : 31 milliards d'années, et présente des évidences de transport du Sr sur une distance de 5 m ⁽¹⁾. Le métamorphisme fin mésozoïque (laramide), est variable, nul à moyen (middle grade). Il n'y a pas d'évidence pétrographique de mobilisations, migrations, recristallisations importantes.

Dans le cas de roches non métamorphiques, on possède également quelquer données. Le zircon du granite de Granite Falls (Minnesota) est âgé de quelque 1850 m.a.(CATANZARO, 1963). Des mesures K/A et Rb/Sr sur micas, feldspaths, et roche totale, donnent des valeurs de 1.600 à 1.700 m.a.

⁽¹⁾ La présence dans une roche basique d'un strontium enrichi en 87 pourrait être considéré comme la preuve d'une origine crustale. L'interprétation donnée ici est toute différente.

(GOLDICH et HEDGE, 1962).

On a cité en fin du chapitre 5, le travail de WASSERBURG, WETHERILL, SILVER et FLAWN 1962, concernant le précambrien du Texas. Ces auteurs ont noté que les âges des zircons sont quelque 10 % plus élevés que les t Rb/Sr sur roche totale. Les biotites ont des âges apparents Rb/Sr et K/A encore plus faibles, bien qu'il n'y ait pas d'évidence de métamorphisme ultérieur. Une étude de ZARTMAN (1963), dans la même région, a pu montrer que ces pertes sont dues au moins en partie à l'altération superficielle, récente ou ancienne. Mais la divergence entre les indications fournies par les mesures sur zircon, d'une part, et les mesures Rb/Sr en roche totale ou sur minéraux frais, ainsi que K/A sur hornblende et biotite inaltérée, n'est pas expliquée. Les auteurs envisagent que les mesures sur zircon puissent donner des valeurs trop élevées. Les âges sur zircon sont légèrement discordants (comme d'ailleurs dans le cas de Granite Falls, cité plus haut).

Ces données sont encore peu nombreuses. Il existe par ailleurs des cas de concordance excellente entre les résultats Rb/Sr ou K/A et des mesures U/Pb complètes, y compris celles faites sur zircon, par exemple à Wilberforce, Ontario, où les mesures sont nombreuses (TILTON, WETHERILL, DAVIS et BASS, 1960). Les bonnes concordances entre résultats U/Pb et Rb/Sr sont à attendre si on utilise $\lambda Rb^{87} = 1,39.10^{-10} \text{ ans}^{-1}$, puisque cette valeur est déduite d'une comparaison de ce genre. Comme on l'a vu au chapitre précédent, il n'y a pas lieu de faire intervenir comme explication la possibilité d'une erreur sur λU^{235} . Par contre, t 207/206 peut être sensiblement trop élevé, dans le cas du zircon particulièrement, à la suite de pertes de radon, ou de la réincorporation de zircons anciens par assimilation, formation du granite par anatexie partielle etc. On pourrait aussi concevoir des migrations de Sr et de A provoquées par une action thermique, hydrothermale ou autre, que les observations n'ont pas pu mettre en évidence ; il s'agirait plus particulièrement des phases tardives d'un cycle dont le paroxysme serait daté par les mesures sur zircon de granites.

I - 6 - 2 L'échelle des temps géologiques

Etablissement d'une échelle des temps

On se réfère habituellement, pour les temps géologiques depuis la base du Cambrien, aux échelles absolues peu différentes de HOLMES 1960 et KULP 1961 (plusieurs publications entre 1959 et 1961). Elles sont basées très largement sur les mêmes données, qui ont fait également l'objet de discussions de la part de FAUL (1960) et CAHEN (1961), et qui concernent surtout des roches éruptives plus ou moins bien repérées dans l'échelle stratigraphique. Les "âges" obtenus sur des minéraux sédimentaires syngénétiques, comme la glauconie, sont en accord avec l'échelle, ou plus faibles, et n'apportent que peu d'indications, sauf pour le tertiaire.

Les échelles de KULP et HOLMES sont reproduites au tableau I - 6 - 2, de même que les modifications peu importantes qui ont été proposées et les confirmations qui ont été apportées dans la suite par plusieurs auteurs. Sauf pour le Cambrien et l'Ordovicien, où l'échelle est encore mal établie, les résultats nouveaux confirment la valeur des échelles de HOLMES 1960 et de KULP. Pourtant, c'est depuis 1960 qu'il a été mis en évidence des cas, encore mal expliqués, d'âges sur zircon plus élevés que les âges apparents K/A et Rb/Sr sur minéraux isolés et Rb/Sr sur roche totale. Ces observations ont porté sur des roches précambriennes. Qu'en est-il pour les roches plus jeunes, et quelle conclusion faut-il en tirer concernant l'échelle des temps géologiques ? Puisque nous nous proposons de faire des mesures sur des zircons "jeunes", il nous faut réexaminer cette question. Il n'est en effet pas évident que des "âges" obtenus sur zircons soient comparables à une échelle absolue basée surtout sur des résultats Rb/Sr et K/A.

Or, les résultats de mesures sur zircon n'interviennent guère dans l'établissement de l'échelle ; les âges apparents U/Pb sur zircon sont acceptés comme exacts lorsqu'ils confirment un résultat Rb/Sr ou K/A, et regardés comme inexacts dans le cas contraire. S'il s'agissait de roches précambriennes, un tel raisonnement serait considéré comme incorrect : deux âges apparents trop faibles peuvent coincider par hasard. Quand aux t 207/206 mesurés sur zircon, il n'en est tenu compte que dans un seul cas. Cependant, et pour plusieurs raisons, l'échelle HOLMES-KULP 1960 peut être considérée comme étant à peu près exacte.

- La plupart des données qui ont servi à l'établir concernent des roches non métamorphisées, de surface ou de faible profondeur. Pour les roches granitiques encadrées dans des limites stratigraphiques étroites, la mise en place, la cristallisation, le refroidissement, la remontée isostatique, la pénéplanation se sont opérés dans des délais fort brefs : peu importe lequel de ces événements est daté par le rapport Rb⁸⁷/Sr⁸⁷ ou K⁴⁰/A⁴⁰. Le cas des laves et tufs interstratifiés est encore plus simple.

Pourtant, pour les micas des granites carbonifères des Vosges, FAUL et JAGER (1963) admettent la possibilité d'une légère perte de Sr⁸⁷ et de A⁴⁰. Ces mêmes auteurs notent des discordances, excédant la marge d'erreur expérimentale, qui affectent les mesures d'âges Rb/Sr et K/A des granites

56.

TABLEAU I - 6 - 2. ECHELLE DES TEMPS GEOLOGIQUES (en m. a.)

	Kulp (1961)	Holmes (1960)	Divers auteurs (référence)	
Pléistocène			and 3 and (Everyden et al. 1964)	
Pliocène	12	11	10 (Evenden et al. 1961)	7 (en Italie)
Miocène	13	11	12 (Evenden et al, 1301)	E Tongiorgi et M Tongiorgi
Oligocène	25	25	23	E. Toligiorgi et M. Toligiorgi
Eocène	36	40	33 "	(1903)
	58	60	55	
Paléocène			Montien	
			62 "	
			Danien	
	63	70 + 2	67 "	
Crétacé			Maestrichtien	
Gretace	125	135 + 5		
Turnerious	155	130 + 0		
Julassique	191	180 . 5		
Televiewa	181	180 + 5		
Triasique	1000	005 5		
	(230)	225 + 5		
Permien				
	280	270 <u>+</u> 5	290 : Base Stéphanien sup.	
Houiller			(Bonhomme et al. 1961)	
nourret			325 : Viséen tout à fait sup.	330 (Faul et
Viséen	220		325 Viséen	Jäger 1963)
Tennedicien	320		(Vialette 1961)	
Tournaisien	345	350 <u>+</u> 10	(viaiette, 1901)	
Devonien	105	100 . 10		
	405	400 + 10		
Silurien s. s.	(425)	440 + 10	460(?) (Poole, Béland, Wanless 1963)	
Ordovicien				
sup.	500	500 ± 15	535(?) (idem)	
Cambrien mov. et inf	530			
	?	600 <u>+</u> 20	550 - 570 (Vinogradov et Tugarinov 1961)	

Précambrien

des Cornouailles et du Devon, autre point critique de l'échelle.

- Quelques âges U/Pb et Pb²⁰⁷/Pb²⁰⁶ concordants ont été obtenus sur des minéraux uranifères autres que le zircon. Ces données s'intègrent bien dans l'échelle. Mais elles sont très peu nombreuses ; en outre, à cause de l'imprécision sur t 207/206, il est difficile sinon impossible de distinguer entre concordance et discordance faible.

Cas du zircon

De quelle manière s'intègrent les quelques mesures sur zircon dans cet ensemble de données paraissant assez cohérent ? Comme elles sont peu nombreuses, on peut les passer toutes en revue. Dans ce qui suit, les t Rb/Sr sont calculés avec $\lambda \text{Rb}^{87} = 1,47.10^{-11} \text{ans}^{-1}$.

a) Roches éruptives de la région d'Oslo

Fin du Permien inférieur. FAUL et al.(1959). L'âge absolu de ces roches serait de 260 m.a., sur la base du très bon accord de t 206/238 d'un zircon et de t K/A d'une biotite. Mais t 207/206 du zircon est plus élevé: 400 m.a. ou 350, selon le plomb de correction choisi ; la mesure est imprécise et,pour cette raison, il n'en est pas tenu compte. Enfin t 208/232 est plus faible : 216 m.a., ce qui témoigne d'une perte de Pb²⁰⁸_{rad} au moins.

b) Granites des Vosges

Leur attribution stratigraphique a été revisée : ils seraient post-Viséen inférieur et probablement ante-Stéphanien, et non post-Tournaisien et ante-Viséen (FAUL et JAGER, 1963). Les t 207/206 des zircons sont imprécis. Les t 206/238 sont en bon accord avec les mesures K/A et Rb/Sr sur micas, ou plus faibles (plus élevé dans un cas).

c) Cendres volcaniques de l'Alabama et du Tennessee

Ordovicien moyen. FAUL, THOMAS (1959) ; CURTIS, EVERNDERN, dans FAUL (1960), ADAMS, OSMOND, EDWARDS, HENLE (1960), TILTON, dans FAUL (1960) et dans ADAMS et al.,(1960).

Les mesures Rb/Sr donnent des valeurs comprises entre 437 ± 50 m.a. et 466 ± 50 m.a., les mesures K/A des valeurs un peu plus faibles : 419 ± 5 m.a. Cinq mesures 206/238 sur zircon donnent des âges compris entre 438 et 453 m.a., en très bon accord avec les t Rb/Sr. Un seul t 207/206 est calculé : 550 ± 40 m.a. (TILTON). Mais ADAMS et al. publient leurs résultats expérimentaux bruts, ce qui permet Ie calcul des t 207/206 relatifs à quatre autres zircons : 546, 592, 634 et 696 m.a. ! L'âge absolu de l'Ordovicien moyen serait de 450 m.a. à 475 m.a. suivant HOLMES et KULP. d) Pegmatites et granites de Arbuckle Mountains, Oklahoma

Antérieurs au Cambrien supérieur (TILTON, WETHERILL et D.VIS, 1962). HOLMES et KULP ne disposaient que de deux résultats sur zircon, légèrement discordants, et de résultats Rb/Sr et K/A sur une biotite. L'article de TILTON, WETHERILL et DAVIS présente en outre des résultats Rb/Sr sur feldspath. C'est le seul cas où il ait été tenu compte des t 207/206, qui sont de 550 m.a., alors que tous les autres âges apparents sont compris entre 470 et 520 m.a., y compris les t 206/238 et t 208/232⁽¹⁾. HOLMES et KULP situent la limite Cambrien moyen-Cambrien supérieur à 530 m.a. Il est clair que si le raisonnement utilisé dans les cas des roches éruptives de la région d'Oslo et des cendres volcaniques de l'Alabama et du Tennessee avait été appliqué au cas présent, cette limite aurait été placéc à 480 ou 500 m.a. et non à 530.

On voit donc que le désaccord entre mesures sur zircon et mesures Rb/Sr et K/A se pose dans les mêmes termes pour les roches jeunes que pour les roches précambriennes ; t 207/206 du zircon est trop élevé dans certains cas (cendres volcaniques) mais pas dans tous les cas (granites des Vosges).

(1) Sauf t 208/232 d'un troisième zircon, qui est de 400 ± 40 m.a.

DEUXIEME PARTIE. MISES AU POINT EXPERIMENTALES

CHAPITRE 1. SEPARATION MECANIQUE DU ZIRCON ET MESURE DE L'ACTIVITE α

II - 1 - 1 Echantillonnage

On a veillé à prélever des échantillons aussi frais que possible et en carrière, de préférence, en ce qui concerne les roches des Alpes. Dans tous les cas, une partie de la roche a été conservée aux fins d'examen. Le poids de l'échantillon prélevé varie fort d'un cas à l'autre. En général 20 kg suffisent. Il a été nécessaire, cependant, de traiter 100 kg du granite de Baveno, variété rouge, pour obtenir moins de 1 gr de zircon. Dans les quelques cas favorables, par contre, on a pu obtenir 0,8 gr de zircon par kg de roche traité.

II - 1 - 2 Séparation du zircon

La roche est réduite au broyeur à mâchoires en fragments de l'ordre de 1 cm ou $\frac{1}{2}$ cm. Le produit de cette première opération est passé au broyeur à disques. L'écartement des disques est réglé de manière à donner un produit dont la majeure partie passerait au tamis de 50 mesh. Ce produit est passé à la table Wilfley, sans autre opération.

Dans quelque cas, on a tamisé à 50 mesh, et repassé au broyeur à disques le refus du tamis, plusieurs fois. Cette opération est longue et inutile dans la plupart des cas. SILVER et DEUTSCH (1963) ont pu montrer que les grains de zircon, dans leur grosse majorité, sont libérés lors du premier broyage.

Table à secousses

Un concentré des minéraux lourds, avec beaucoup d'impuretés légères, est obtenu sur une table Denver-Wilfley 13 - A. Pour 20 kg de roche traitée, on obtient environ 100 gr de concentré. Ce dernier est lavé à l'eau distillée et séché à l'acétone aussi rapidement que possible, faute de quoi le fer provenant de l'usure des disques s'oxyde et les grains du concentré se couvrent de rouille (ce qui est une source de contamination en plomb). Après séchage, le fer des broyeurs et la plus grande partie de la magnétite sont ôtés à l'aimant permanent.

Dans le cas où la roche n'a pas été tamisée, le concentré final ren-

ferme une proportion importante de grosses paillettes de mica, que l'on sépare en tamisant à 100 mesh. On s'assure dans chaque cas que seule une fraction négligeable du zircon se trouve dans le refus du tamis. Toutes les opérations de séparation sont suivies au binoculaire et au microscope.

Séparations aux liqueurs denses

Le concentré lourd, fraction passant 100 mesh, est traité au bromoforme dans des ampoules à décanter. La fraction lourde est lavée et séchée à l'acétone. On procède alors à deux séparations successives à l'iodure de méthylène.

Séparation magnétique

La fraction coulant dans l'iodure est passée au séparateur Frantz isodynamique à des ampèrages croissants ; on sépare de cette manière successivement : la magnétite, l'ilménite, l'épidote, le sphène. La fraction non magnétique à 1,4 Å (pente 20°, contre-pente 10°) est constituée de zircon, plus une proportion variable de sulfures (surtout pyrite). La fluorine est parfois présente. Dans un cas, on a pu opérer une séparation très propre du rutile, par passages répétés à 1,4 Å, avec une contrepente de 2°. Le concentré final de zircon est repassé dans tous les cas plusieurs fois à 1,4 Å.

Si l'apatite est présente en proportion non négligeable, il est nécessaire de procéder à une nouvelle séparation à l'iodure de méthylène.

Précautions prises pour éviter les contaminations

Toute tuyauterie en Plomb est évitée dans la salle de broyage et de séparation à la table à secousses. L'eau de ville alimentant la table est amenée dans des tuyaux de fer. On a vérifié l'absence de plomb dans la peinture utilisée pour les murs, et pour toutes les parties peintes de la table à secousses. La verrerie, les liqueurs denses et les appareils utilisés sont réservés à la séparation de minéraux de roches, à l'exclusion de minerais.

Incartage

Pour subdiviser le concentré en fractions représentatives, on a utilisé un petit incarteur en plexiglas. Les grains ont tendance à adhérer au plastique par attraction électrostatique. On les détache au moyen d'un pinceau. Les tiroirs sont recouverts d'une feuille de papier d'aluminium.

Une fraction est conservée comme témoin. Une autre est montée dans le baume sur une lame porte-objet réticulée.

Lavage à l'acide

Pour débarrasser le concentré des sulfures, on procède sur une fraction incartée, à un lavage d'une demi-heure à l'acide nitrique concentré et chaud (réactif purifié par distillation). L'acide est transvasé dans une bouteille propre de polyéthylène. Le zircon est rincé plusieurs fois à l'eau tridistillée, jusqu'à p H 5 et les eaux de rinçage sont réunies à l'acide.

Dans tous les cas où on l'a vérifié, le plomb commun était abondant dans la fraction soluble à l'acide. Il se peut que pour une part ce plomb soit introduit au cours des opérations de séparation : eau de ville, fer des broyeurs. Lorsque les sulfures sont abondants dans la fraction soluble à l'acide, on peut supposer qu'ilscontenaient une proportion importante du plomb commun. Le plomb de la fraction soluble comprend aussi un constituant radiogénique, en proportions très variables. Il peut provenir de l'apatite ou de l'une ou l'autre impureté uranifère et thorifère (cf SILVER et DEUTSCH, 1961, 1963). On a procédé dans un cas à un lavage à l'acide sulfurique (H6pkin et Williams "low in lead"), destiné à éliminer la fluorine.

II - 1 - 3 Mesure de l'activité α et examen du concentré

Mesure de l'activité α

Une mesure d'activité est nécessaire pour déterminer le poids de la prise, étant donné les grandes variations naturelles des teneurs en U et Th dans le zircon. Cette mesure ne doit pas être très précise ; il n'est pas nécessaire dans la plupart des cas de déterminer le rapport U/Th. Une mesure de l'activité α , en source épaisse, au moyen d'un scintillateur à écran de sulfure de zinc donne un résultat exprimable en équivalent U en équilibre, ou en équivalent Th en équilibre.

Une fraction non broyée du concentré est placée dans une coupelle de $\frac{1}{2}$ mm de profondeur creusée dans un disque d'aluminium. On veille à ce que le dépôt ait une surface aussi lisse que possible, qu'il occupe très exactement la surface de la coupelle, et que son épaisseur soit comprise entre 0,1 et 0,2 mm, autant que possible. Dans ces conditions, l'écart maximum entre deux mesures se rapportant au même concentré, pour 10.000 coups comptés, est de 10 %. L'épaisseur du dépôt est critique. On a pu vérifier que pour des sources de 0,5 , 1 et 2 mm de zircon, l'activité due aux isotopes du radon, diffusant dans la couche d'air comprise entre

la source et le détecteur, est importante et fausse les mesures par excès d'une façon considérable. Cet effet est beaucoup plus important lorsque le rapport Th/U de l'échantillon est élevé, probablement parce que le thoron Rn^{220} , avec sa période brève, se rééquilibre rapidement, et aussi parce que le radon (Rn^{222}) diffuse plus loin.

Dans les conditions de géométrie précisées plus haut, on peut déterminer le rendement au moyen de zircons étalons à teneurs en U et Th connues. On a utilisé deux échantillons riches en U et Th, et à rapports U/Th différents, qui ont été remis à Mme D.LEDENT par le Professeur SCHURMANN.

	U %	Th %
Singkep	0,33 ± 0,01	0,121 ± 0,002
Nigeria	0,28 ± 0,01	1,400 ± 0,002

(BOT et STEENSMA, dans SCHURMANN et al., 1957).

<u>Mesures d'activité des zircons étalons</u> (au moins 10.000 coups comptés dans chaque cas). Le support est vidé, nettoyé et le mouvement propre du compteur mesuré entre chaque comptage.

Singkep	89	coups nets/minute		
	94	"	movenne	90
	92	"	mog enne	10
	86	"		
Nigeria	186	II.		
	190		moyenne	193
	202	"		

Soit y le nombre de c/min. pour 1 ppm d'uranium et ses descendants (on admet que l'équilibre est réalisé).

De même soit y/x le nombre de c/min. pour 1 ppm de Th et ses descendants. A partir des chiffres plus haut, on peut déterminer

y = 41,5 et x = 2,7

Un nombre de ppm équivalent U (en équilibre avec ses descendants) peut se calculer en multipliant par 41,5 le nombre de c/min ; 1 ppm eq U = 1 ppm U ou 2,7 ppm Th. La valeur de x trouvée est très proche de la valeur théorique calculée par FINNEY et EVANS (1935) pour 0,5 cm d'air entre la surface de la source et le détecteur, ce qui correspond pratiquement aux conditions dans lesquelles nous avons travaillé.
Examen du concentré

La pureté du concentré final est estimée en examinant 500 grains répartis au hasard sur une préparation durable dans le baume d'un échantillon aussi représentatif que possible. Tous les grains présents dans un certain nombre de champs de 1 mm², repérés grâce au réticule du porte-objet, sont examinés. La même préparation sert à l'examen qualitatif des caractères de la population de zircon : forme, couleur, etc. Pour certains échantillons, les mesures d'activité et montages permanents ont été faits aussi bien sur les fractions lavées à l'acide que non lavées.

CHAPITRE 2. METHODE DE DILUTION ISOTOPIQUE : CHIMIE

La mise en ceuvre de la dilution au moyen d'isotope stable comprend les opérations suivantes (1).

- a) La détermination de la composition isotopique de l'élément à doser, lorsque celle-ci n'est pas connue. Il sera nécessaire de déterminer la composition isotopique du plomb du zircon, et, grâce à une correction appropriée, la composition isotopique de la fraction radiogénique de ce plomb. Cette mesure est par ailleurs indispensable pour la détermination de t 207/206, quelle que soit la manière dont on se propose de doser U et Pb. Tout ce qui concerne la spectrométrie de masse sera détaillé au chapitre 3.
- b) La détermination de la composition isotopique de l'étalon interne (spike).
- c) La préparation d'une solution à concentration connue de cet étalon.
- d) L'addition d'une quantité connue de spike à la solution totale de l'échantillon ; l'homogénéisation isotopique.
- e) La séparation de l'élément à doser, d'une manière non quantitative.
- f) La spectrométrie de masse du mélange.

II - 2 - 1 Préparation, calibrage, et vérifications des spikes

La composition chimique des produits fournis par les usines de séparation isotopique n'est souvent donnée qu'à titre indicatif. Il est dès lors difficile de préparer des solutions calibrées de ces spikes par gravimétrie. Le calibrage peut très bien se faire par dilution isotopique, à partir d'une solution standard du même élément, mais de composition isotopique normale. Cette solution de l'élément normal est préparée par les procédés gramimétriques habituels (solution "shelf").

La variation de la concentration par évaporation des solutions "shelf" et de "spikes", constitue un problème important (HAMILTON 1962). Il est préférable de conserver ces solutions dans des récipients de grand volume, remplis plus qu'à moitié, en pyrex (le verre ordinaire peut introduire des contaminations), et à bouchon rodé à l'émeri. Des vérifications fréquentes sofft nécessaires.

⁽¹⁾ Dans le cas d'un gaz noble comme l'Argon, l'extraction du gaz précède l'ajoute du spike.

A. PLOMB

Solution étalon de l'élément normal (shelf)

Préparée par pesée de plomb métal spec pure, elle contient 420 χ/ml dans HNO₃ environ 3 % (1 χ = 1.10⁻⁶gr). Elle est conservée dans un matras de pyrex de 250 ml, à bouchon rodé. On utilise pour chaque vérification 100 λ ou 50 λ (1 λ = 1.10⁻⁶l). De cette manière, la surface du liquide reste dans le col du matras. Comme celui-ci n'est ouvert qu'à intervalles de 6 mois environ, on peut considérer que l'évaporation est réduite au minimum.

Analyse isotopique du plomb "shelf"

204	206	207	208	
1,394 %	24,31 %	21,96 %	52,34 %	Poids atomique :
				207,28

Solution du "spike"

Préparation : On pèse approximativement 0,078 gr d'oxyde à 91 % de Pb environ. On dissout dans HNO₃ dilué (il s'agit du réactif purifié, préparé comme décrit plus loin). Un résidu insoluble est filtré. On amène à environ 350 ml dans un flacon en pyrex de 500 ml, à bouchon rodé. Une partie de cette solution est transvasée dans un flacon en pyrex de 50 ml, à bouchon rodé. Le grand flacon sert de réserve, et n'est ouvert que tous les quelques mois.

Analyse isotopique du plomb "spike"

		204	206	207	208
Mesure	Oak Ridge	<0,1 %	1,2 ± 0,1 %	2,8 ± 0,1 %	96,0±0,1%
Mesure	Bruxelles	0,0172 %	1,192 %	2,776 %	96,014 %

Calibrage et vérifications

A 1 ou 2 ml de la solution du spike on ajoute 50 ou 100 λ de la solution shelf. On évapore dans un bécher de quartz. Le résidu est repris plusieurs fois pour assurer un bon mélange, puis transféré sur le filament du spectromètre de masse. On peut calculer la concentration de la solution de spike par la formule I - 1 - 1, au moyen de chacun des rapports 204/208, 206/208, 207/208. L'accord plus ou moins bon entre les trois résultats obtenus dépend de la qualité des mesures au spectromètre. La valeur déduite du rapport 204/208 est moins précise que les deux autres, à cause de la faible abondance du 204, qui rend sa mesure difficile.

Calibrage en mai 1962

1)	1 ml de	spike + (100 ± 0,5) λ de solution (étalon (shelf)
	Rapport	isotopique utilisé Moles,	/ml de plomb
	a)	204/208	8,65.10 ⁻⁸
	ъ)	206/208	8,68.10 ⁻⁸
	c)	207/208	8,71.10 ⁻⁸
	Moyenne	de b) et c) : 8,69.10 ⁻⁸ moles/ml	
2)	2 ml de	spike + (99,5 ± 0,5) λ de solution	étalon
	a)	204/208	8,76.10 ⁻⁸
	b)	206/208	8,70.10-8
	c)	207/208	8,71.10-8
	Moyenne	de b) et c) : 8,705.10 ⁻⁸ moles/ml	×.
	Moyenne	de 1) et 2) : 8,70.10 ⁻⁸ moles/ml	
1èr	e vérific	cation en novembre 1962	
1 :	nl de spi	ike + (49,5 \pm 0,5) λ de solution ét	talon
	a)	204/208	8,72.10-8
	b)	206/208	8,78.10 ⁻⁸
	c)	207/208	8.76.10-8

Moyenne de b) et c) : 8,77.10⁻⁸moles/ml

Variation en 6 mois : env.8 º/..

2ème vérification en juillet 1963

1 ml de spike + $(51,5 \pm 0,5)$ de solution étalon

a) 204/208	8,97.10 ⁻⁸
ъ) 206/208	8,958.10
c) 207/208	8,953.10
	n .

Moyenne de b) et c) : 8,955.10⁻⁸moles/ml

Variation en 8 mois : env.21 °/.. Le flacon a été ouvert fréquemment durant cette période. Les calculs des concentrations en plomb dans les échantillons de zircon ont été faits un utilisant l'une des 3 valeurs reportées ici, ou une moyenne entre deux de ces valeurs, suivant le moment où l'addition du spike a été faite. La concentration de la solution du spike, à un moment quelconque, durant la période durant laquelle les mesures ont été faites, est connue à environ 1 % près.

B. URANIUM

Solution étalon de l'élément normal (shelf)

Une solution d'uranium en milieu nitrique, préparée plusieurs années auparavant a été recalibrée par gravimétrie (U₃0₈ à poids constant) Composition isotopique : 238/235 = 137,7 (ne varie pas dans la nature actuelle).

Solution du "spike"

Préparation : Le spike a été fourni sous forme U_3O_8 . On pèse 0,01674 gr, on dissout dans HNO₃ et on amène à 500 ml. Concentration de la solution : 12,05.10⁻⁸ moles/ml.

La solution est conservée comme la solution du spike de plomb.

Analyse isotopique (fournie avec l'échantillon et non vérifiée)

U 234	0,031 %
U 235	99,89 %
U 236	<100 ppm
U 238	0,075 %

Calibrage et vérifications par dilution isotopique. Note sur la discrimination de masse

Comme les chiffres reportés plus loin l'indiquent, il y a une différence de 1 % environ entre la valeur de la concentration obtenue par gravimétrie, et celle obtenue par dilution isotopique. L'ordre de grandeur et le

sens de cette différence sont attribuables à l'effet de discrimination de masse du multiplicateur d'électrons : le gain de ce dernier est fonction de la masse de la particule incidente. Il en résulte une erreur sur le rapport isotopique mesuré. Comment en tenir compte ?

On n'a pas adopté la même manière de procéder dans les cas respectifs de Pb et U.

- a) Dans le cas de Pb, il importe de déterminer la correction de masse, pour le calcul de t 207/206 exacts. On a donc déterminé l'importance de la correction à appliquer aux résultats bruts des analyses isotopiques de la manière indiquée au chapitre suivant (et en thèse annexe). Toutes les mesures isotopiques de plomb sont affectées de la correction. On remarquera que les chiffres indiqués en A) plus haut montrent un très bon accord entre le nombre de moles calculés respectivement par les trois rapports 204/208, 206/208 et 207/208. Ce ne serait pas le cas si la correction de masse n'était pas estimée correctement.
- b) Dans le cas de U, il n'est pas nécessaire d'appliquer de correction de masse. Celle-ci entraîne une erreur systématique, aussi bien sur le calibrage du spike par dilution isotopique, que sur la mesure de l' échantillon. Mais ces erreurs se compensent.

En effet, on peut admettre que toute mesure d'un rapport spike/U naturel est affectée, du fait de la discrimination de masse, d'une erreur d'un facteur k constant.

Soient S,W,X, respectivement le nombre de moles du spike, de U "shelf" (solution étalon de l'élément normal), et U présent dans l'échantillon. Les indices v et app se rapportent aux valeurs vraies, et aux valeurs approchées calculées à partir d'une mesure faussée par le facteur k constant.

 $S_v = n \cdot W_v$ $X_v = m \cdot S_v$ $S_{app} = k \cdot n \cdot W_v$

Si, dans le calcul de X, on utilise S_v, et si la mesure est affectée par la discrimination de masse, il vient :

$$X_{app} = \frac{1}{k} \cdot m \cdot S_v$$

On calcule une valeur incorrecte.

Mais si on utilise S , on calculera une valeur correcte pour X :

 $X = \frac{1}{k} \cdot m \cdot S_{app} = \frac{1}{k} \cdot m \cdot k \cdot n \cdot W_v = X_v$

On voit que les erreurs faites successivement lors du calibrage du spike et lors de la mesure de U dans l'échantillon se compensent. Ceci à la condition d'utiliser pour le calcul de X la calibration incorrecte du spike, obtenue par dilution isotopique. La vraie solution de référence est la solution "shelf", préparée par gravimétrie.

Ceci est vrai dans le cas de l'uranium, parce que deux conditions sont remplies.

- a) L'élément à doser a la composition isotopique de l'élément présent dans la solution shelf (ce n'est pas le cas du plomb).
- b) Le facteur de magnification de l'erreur est le même dans le cas de l'étalonnage du spike, et dans le cas de la mesure de U dans le zircon. Ce facteur est très proche de 1, si l'on dispose d'un bon"spike" de U^{235} ; on se trouve pratiquement dans le cas idéal où X = U^{238} pur et S = U^{235} pur. Il convient seulement d'éviter des rapports U^{238}/U^{235} très grands dans le mélange X + S ; en tel cas, le facteur de magnification serait sensiblement supérieur à 1 (Cf I - 1 - 1).

Calibrage quelques jours après la préparation (novembre 1962)

- 1) 1 ml de spike + (99,5 \pm 0,5) \times de solution étalon 12,11 . 10⁻⁸moles/ml
- 2) 1 ml de spike + (100 \pm 0,5) λ de solution étalon 12,26 . 10⁻⁸moles/ml

moyenne : 12,18 . 10⁻⁸moles Vérification en juillet 1963

1) 1 ml de spike + (49 ± 0,5) λ de solution étalon 12,3 . 10⁻⁸ moles/ml

2) 1 ml de spike + (100,8 ± 0,2) λ de solution étalon 12,47 . 10⁻⁸moles/ml

moyenne : 12,4 . 10⁻⁸moles/ml

Variation en 8 mois : env. 16 º/..

Comme pour le calcul des concentrations en plomb, on a utilisé soit la valeur de 12,18, soit celle de 12,4, soit la moyenne des deux. On peut esti-

mer à 1 % l'erreur sur les concentrations d'uranium dans les échantillons, résultant de l'incertitude sur la calibration du spike.

C.SPIKES C.I.T. (Pasadena)

Les premières mesures sur zircon ont été faites en utilisant les spikes du California Institute of Technology, dont une certaine quantité nous a été aimablement remise par l'intermédiaire de Mmes D.LEDENT et S.DEUTSCH. Ces solutions sont environ 20 fois plus concentrées que celles que nous avons préparées. Elles ont été conservées durant deux ans, dans des matras de 10 ml, à moitié remplis ou moins. On les a vérifiées avant la période d'utilisation, au moyen des solutions "shelf" faites à Bruxelles.

Spike de plomb

Composition isotopique : non vérifiée

Concentration :

Valeur du C.I.T. : la solution contient 9,70 . 10^{-8} moles/50 λ Vérification en mars 1962 (50,8 ± 0,5) λ de spike + (100 ± 0,5) λ de solution shelf

Rapport isotopique utilisé

COLEVO	10.5 C			
c)	207/208	10,22		10-0
b)	206/208	10,21	•	10-0
a)	204/208	10,05	•	10-8

Moyenne b) et c) : 10,21 . 10^{-8} moles/50,8 λ soit 10,05 . 10^{-8} moles/50 λ Variation en deux ans : env. 3,5 %

Moles/50,8

Spike d'uranium

Composition isotopique : non vérifiée Concentration :

Valeur du C.I.T. : la solution contient 9,529 . 10^{-8} moles/100 Vérification en mars 1962 (50,3 ± 0,5) λ de spike + (50,8 ± 0,5) λ de solution shelf 9,80 . 10^{-8} moles/100 λ Variation en deux ans : env. 2,6 %. II - 2 - 2 Mise en solution du minéral et séparation de Pb et U.

ho

Les procédés analytiques utilisés sont ceux de TILTON et al. (1955, 1957), modifiés et adaptés à nos conditions de travail. L'ensemble des opérations est résumé sous forme de tableau.

Tableau - Séparation de U et Pb

Echantillon Spikes de U et Pb évaporés incartage dans le creuset , - contained and prise pour analyse isotopique de U et Pb prise pour analyse isotopique du plomb "spikes" fusion au borax fusion au borax digestion dans HCl centrifugation éventuelle de la silice digestion dans HCl centrifugation éventuelle de la silice fraction utilisée pour fraction util.pour la sépar.du plomb addition de citrate amla sépar.de U comme indiqué dans monique Séparation du plomb la colonne de gauche précipit; des hydroà la dithizone en solution xydes par NHLOH chloroformique ; p H 9 passage du .plomb en précipité repris par HNO_z conc. phase aqueuse chlorhydrique àpH2 séparation à l'hexone (méthyl.. isobutylcétone)après addition de Al (NO₃) en solution³ saturée 2e séparation du plomb à la dithizone ; passage en phase aqueuse (eau pure) citrate, KCN évaporation à sec; repris par HNO3 dilué évaporation de la phase organique ;HNO3,HClO4 2e séparation à l'hexone ; Variante rélargant:NHLNOz; p H = 2 résidu transféré par passage en phase aqueuse(eau pure) HNO₃ sur le filament du ³spectromètre addition de HNOz; évaporation à sec résidu repris par une solution résidu transféré par HNOz sur le de NH4NOz à p H 4 filament du spectromètre Pb S précipité par H₂S, transféré sur le filament du spectromètre





B. Poids de la prise :

Ce poids est variable mais ne peut dépasser de beaucoup 1 gr, faute de quoi le temps de l'attaque est très long. On calcule le poids de zircon nécessaire en fonction de l'activité α et de l'âge probable. Il faut 10 γ de plomb "non spiké", au moins, pour l'analyse isotopique. Le spike de plomb (1 ml de solution contenant 18 γ) est ajouté autant que possible à un poids de zircon contenant 9 γ de plomb radiogénique (approximativement). La raison est que dans ces conditions le rápport 208/206 du mélange spike/échantillon est un peu plus de 2 et n'est pas altéré par toute addition éventuelle de plomb commun : dans ce dernier le rapport 208/206 est égal à 2,1 environ. Lorsque le rapport 208/206 du mélange est fort différent de 2, on peut déterminer correctement la concentration en plomb radiogénique par un calcul un peu plus long faisant intervenir la mesure du 207 (éventuellement du 204) (Cf I - 1 - 1). Ce calcul sera détaillé au chapitre suivant.

C. Fusion. Cause d'erreur par volatilisation du chlorure de plomb

Le poids de borax anhydre doit être égal à au moins 10 fois le poids de zircon. Le borax, avant l'attaque, est préchauffé durant au moins 2 h

TABLEAU II - 2 - 2C. ZIRCON PACOIMA CANYON R. 200 MESH.

Résultat des mesures faites au California Institute of Technology (L. T. Silver, C. R. Mc Kinney, S. Deutsch, J. Bolinger, 1963).

Pb rad. : (41,6 ±0,2) ppm (moyenne de 4 analyses)

se

U : (208, 2 ± 1) ppm (moyenne de 12 analyses avec déviation maximum de 1 %).

Résultats obtenus à Bruxelles

Pri‡ n°		Spikes *	Durée de la fusion	Température (°C)	Traitement du borax	ppm U	ppm Pb
1	Mecker	ap U,Pb : Pa	3 h 45		non préchauffé	-* *	41,5
2	Mecker	ap U.Pb : Pa	3 h			206.4	29.5
3	Four	ap U.Pb : Pa	24 h	~1020		209,8	42,5
4	Mecker	ap U: Pa, Pb:Br	3 h			(247) ***	(44, 2) ***
5	Four	av Pb : Br	15 h 30	1100		n. mes.	48.0
6	Four	av Pb : Br	24 h	1100		n. mes.	44.2
7	Four	av Pb : Br	8 h	1130		n. mes.	42,2
8	Four	av Pb : Br	69 h	10 50		n. mes.	44.0
9	Four	av Pb : Br	21 h	1100	préchauffé	n. mes.	42,0
10	Mecker	av Pb : Br	1 h 15			n. mes.	40,4
11	Mecker	av Pb : Br	37 min.			n. mes.	43,1
12	Mecker	av Pb : Br	45 min.			n, mes.	41,3
13	Four	av U, Pb : Br	24 h	1100		214.0	42,7

* av : ajoutés avant la fusion; ap : ajoutés après. U, Pb : Pa : spike d'uranium, de plomb, de Pasadena (C. I. T.); U, Pb : Br : spike d'Uranium, de plomb préparé à Bruxelles.

* * Mesure d'uranium ratée.

*** La silice n'a pas été chassée. Ces résultats sont incorrects car les spikes doivent être ajoutés à une solution claire.

sur bec mecker, pour éliminer les chlorures par volatilisation. Il a été constaté en effet, que la présence de chlorures dans le flux entraînait une perte de plomb par volatilisation du chlorure de plomb, durant la fusion (S.DEUTSCH et L.T.SILVER, comm.orale).

Bien que n'ayant pas fait de mesures sur la teneur en chlorure du borax, on a noté que des pertes importantes de plomb se produisaient fréquemment lorsque le flux n'est pas chauffé au préalable (ceci pour plusieurs lots de borax de marques différentes). Cet effet est moins important lorsque l'attaque est faite dans un four, plus importante lorsqu'elle est faite sur bec Mecker. Le préchauffage du borax (suggéré par M.PICCIOTTO) est une opération très simple susceptible d'éliminer au moins la majeure partie des chlorures volatils.

S'il y a perte durant l'attaque, on mesurera des concentrations en plomb trop faibles, dans le cas où l'étalon interne est ajouté après la fusion. Par contre, si le spike est ajouté au flux avant l'attaque, il sera perdu préférentiellement et on mesurera des concentrations trop élevées en plomb.

Le tableau II - 2 - 2 C résume tous les essais menés sur l'échantillon Pacoima Canyon, R 200 mesh, zircon de pegmatite qui nous a été aimablement communiqué du California Institute of Technology (Professeur L.T.SILVER), par l'intermédiaire de Mmes S.DEUTSCH et D.LEDENT (SILVER, Mc KINNEY, DEUTSCH, BOLINGER 1963).

Discussion des données du tableau II - 2 - 2 C.

Les résultats obtenus sur la prise n°4 montrent à quel point il importe d'ajouter les étalons internes à une solution claire. Il faut éliminer ces résultats.

Les mesures d'uranium sont exactes à mieux de 3 %. La moyenne des trois mesures est 210 ppm (C.I.T. : 208,2). La dispersion est plus grande que pour les mesures du C.I.T.

En ce qui concerne les mesures de plomb faites avec borax non préchauffé, on note les écarts signalés plus haut. Il y a quelques résultats corects; les pertes ont une allure erratique due sans doute à des variations non contrôlées dans les conditions expérimentales. Par contre, avec borax préchauffé, on observe un écart maximum de 3,6 % par rapport à la valeur du C.I.T. . La moyenne des 5 analyses de plomb considérées comme exécutées dans des conditions correctes (résultats soulignés) est de 41,9 ppm (C.I.T. : 41.6).

Il subsiste, tant pour les mesures de U que de Pb, une dispersion des résultats assez grande. La raison de ces écarts n'a pas été déterminée

avec certitude. On peut faire les hypothèses suivantes.

- 1 Le problème de l'incartage en fractions représentatives n'a pas été résolu parfaitement.
- 2 Il peut y avoir des pertes de spike, ajouté avant l'attaque sur le flux, lorsque l'on déshydrate ensuite ce dernier. Des projections peuvent se produire.
- 3 Si le chauffage est trop brusque au début, une partie de l'échantillon lui-même, posé sur le flux, peut être projetée sur le couvercle et y adhérer.

Dans tous les cas où les deux spikes de U et Pb sont ajoutés ensemble à la même prise, la reproductibilité des mesures des rapports U/Pb, et donc des âges apparents U/Pb, devrait être meilleure que celle des concentrations. Notons que pour l'attaque n°13, la mesure de Pb rad est de 2,6 % plus élevée que celle du C.I.T., et la mesure de U de 2,8 %. Sur ce zircon, on n'a pas fait de mesures d'uranium autres que celles tabulées. Dans la suite, on a cherché à éliminer les causes d'erreurs possibles 2) et 3) en opérant très soigneusement. Pour les mesures faites sur six zircons des Alpes, les mesures répétées sur prises distinctes concordent à mieux de 2 %, sauf dans un seul cas de mesures de plomb qui ne concordent qu'à 4 %.

D. Rendement des opérations de séparation du plomb

On a estimé le rendement des opérations de séparation du plomb par traçage au Pb 210 (Ra D), radioélément de 22 ans de demi-vie. La solution de départ contenait, entre le traceur radioactif, 22 γ de Pb et la quantité de réactifs (borax, citrate, HCl) utilisée pour une prise de 0,4 gr de zircon. Il s'agissait d'un essai à blanc (sans zircon).

% de l'activité tota introduite, présente dans la phase consid	le % t lérée p p	de l'activité otale introduite, résente dans la hase considérée
(9 ± 1)%		
(12,5 ± 1)%	5	
×0,3 %		
78,5 % -	résidu dans le bécher où phase organi	∽0,1% la que
total 100,3 %	a ete evapor	66
	surnageant (solution de NH ₄ NO ₃)	10 %
	+ sulfure not récupéré	n
	sulfure final centrifugé	1 68,4 %
	% de l'activité tota introduite, présente dans la phase consid $(9 \pm 1)\%$ $(12,5 \pm 1)\%$ 1- $~0,3 %78,5 %$ - total 100,3 \%	% de l'activité totale % introduite, présente t dans la phase considérée p (9 ± 1)% (12,5 ± 1)% (12,5 ± 1)% 78,5 % - résidu dans le bécher où phase organi a été évapor surnageant (solution de NH ₄ NO ₃) + sulfure non récupéré sulfure fina. centrifugé

total 78,5 %

Le rendement global est donc de 78 % ; de 68 % si les opérations sont poursuivies jusqu'à la précipitation du sulfure. Dans la pratique, nous avons parfois observé des rendements inférieurs. TILTON et al. (1955) signalent des rendements de 30 à 80 %.

II - 2 - 3 Précautions prises pour éviter les contaminations

A. Précautions diverses

La mesure de la composition isotopique du plomb peut se faire sur 10 γ . la présence de 10 % de plomb commun réduit d'une façon sensible la précision d'une mesure de t 207/206. Il faut donc réduire la contamination en plomb à moins de 1 γ .

Pour atteindre ce niveau il convient de purifier les réactifs (ou au moins de contrôler leur pureté) et prendre des précautions diverses.

Local : Les précautions prises pour maintenir le laboratoire en parfait état de propreté, adoptées et recommandées par d'autres auteurs confrontés avec le même problème, sont les suivantes :

- pression positive d'air filtré ; précipitation électrostatique des poussières,
- nettagages fréquents du local ; pallaissons en gélatine à l'entrée (CHOW et Mc KINNEY 1958),
- le local est précédé d'une antichambre et ne sert pas de lieu de passage (JNGER 1962),
- les matériaux utilisés pour les hottes, tables de travail, peinture des murs, etc, sont choisis pour leur absence de plomb et leur résistance aux vapeurs d'acide.

(TILTON et al., 1955, Mc KINNEY, 1958, JEGER, 1962, MARSHALL et HESS, 1960).

Le local où nous avons travaillé ne répondait pas à ces conditions, sauf en ce qui concerne le nettoyage et le choix des matériaux : peinture sans plomb, hottes et revêtement des tables en chlorure de polyvinyle et "Formica". On a pris la précaution supplémentaire de protéger tous les récipients utilisés en cours de manipulation, dans une boîte en plexiglas aux dimensions de la table de travail. Cette boîte n'est ouverte que le strict nécessaire.

<u>Vaisselle</u> : Le verre ordinaire est proscrit. La digestion du borax se fait dans un bécher de "Teflon" (ou"Gaflon"). L'agitateur destiné à décoler le borax hydraté est de platine ou de Teflon. Les ampoules à décanter, les béchers, éprouvettes, sont en verre de borosilicate (Pyrex). L'évaporation de la phase organique contenant le plomb se fait dans un bécher de Teflon ou de verre de silice. Tous les récipients sont couverts d'une feuille plastique semi adhésive (Parafilm, Marathon Corp.), sauf lors des transvasements et évaporations. La vaisselle est lavée par immersion complète dans un bain d'acide nitrique concentré et chaud et rincée à l'eau tridistillée. Les creusets sont lavés quelques minutes à l'eau régale chaude. Les béchers de Teflon non utilisés sont remplis d'une solution nitrique diluée additionnée de citrate (réactifs purifiés), et couverts.

<u>Evaporations</u> : Elles sont conduites dans une enceinte de Pyrex (ou de Teflon pour l'évaporation de HF), dans laquelle circule un courant d'azote filtré sur verre fritté.

CHOW et Mac KINNEY (1958) ont montré que cette précaution réduisait la contamination due aux poussières d'un facteur 2 ou 3. Le gain est d'un facteur 10 si l'air du laboratoire est purifié, et de 20 ou 30 si les deux précautions sont prises simultanément. D'après les données de ces auteurs, on peut s'attendre à une contamination de l'ordre de 0,3 γ pour une évaporation de 2 jours, dans les conditions où nous avons travaillé. Les évaporations longues sont donc à éviter. Pour cette raison, on a adopté un mode opératoire qui évite l'élimination de la silice. Cette opération fort longue n'est pas nécessaire si les "spikes" sont ajoutés avant la fusion.

TILTON et al. (1955) signalent des contaminations variant d'une manière erratique entre 1 et 10 γ de Pb, pour des évaporations en atmosphère non contrôlée.

B. Purification des réactifs :

- Eau : L'eau distillée de l'Université est distillée deux fois dans un appareil en silice et conservée dans une tourie de polyéthylène.
- Acide nitrique : L'acide nitrique Merck "vérifié à la dithizone" est redistillé dans un appareil constitué d'un ballon de pyrex, une colonne à reflux et un réfrigérant de silice.
- Acide chlorhydrique : Un mélange 6 M est distillé dans un appareil identique.
- Acide perchlorique : Non purifié. Hopkin et Williams "low in lead reagents".

Chloroforme : Distillé dans un appareil de Pyrex.

Acide fluorhydrique : Distillé. HF liquide contenu dans une bonbonne métallique est chauffé par une résistance électrique extérieure à la bonbonne.HF gazeux s'échappe par une tubulure de Teflon, pourvue d'un filtre en tournure de Teflon, et réfrigérée à l'eau glacée. Ammoniaque : On fait barboter NH4 dans l'eau tridistillée. Un filtre de verre fritté est interposé sur le passage du gaz. Cyanure de potassium : Une solution à 10 % est amenée à p H 9 par addition d'HCl. On sépare le plomb à la dithizone.

- Citrate ammonique : Une solution à 25 % est amenée à p H 9 par addition d'ammoniaque. On sépare le plomb à la dithizone.
- Nitrate d'ammonium : préparé à partir d'acide nitrique purifié et de gaz ammoniac.
- Dithizone : La dithizone, soluble en phase aqueuse basique, est extraite d'une solution chloroformique par plusieurs agitations successives avec une solution d'ammoniaque. Le plomb reste dans la phase organique. Les phases ammoniacales sont acidifiées paf HCl. La dithizone est extraite au chloroforme redistillé ; celui-ci est évaporé. La quantité de plomb extraite a été mesurée et trouvée peu importante. Aussi a-t-on utilisé de la dithizone non purifiée pour certaines analyses.
- Borax : Le borax a été purifié à la dithizone après dissolution, ou encore par recristallisation. Certains lots de borax du commerce, vérifiés, se sont avérés assez pauvres en plomb pour être utilisés sans purification.

C. Vérifications des réactifs

Les séparations du plomb aux fins de vérification nécessitent des manipulations, évaporations, ou mise en oeuvre d'autres réactifs. Aussi les valeurs trouvées ne représentent souvent que des maxima. Ces vérifications ont été faites par polarographie, ou par dilution au moyen d'isotopes stables, en utilisant un spike 206.

 Eau tridistillée : 10 litres sont évaporés dans un ballon de pyrex. Le résidu repris par HNO₃ est neutralisé par NH₄OH. On extrait à la dithizone après addition de citrate. On réextrait en phase aqueuse acide; cette dernière est évaporée. On chasse les matières organiques par HNO₃+HClO₄, et on reprend par l'électrolyte support. Le rendement de la séparation du plomb est estimé à 50 %.

≤0,1 y Pb/1.

2) HNO₃: Evaporé dans le verre de silice, après addition d'un spike 206. Le résidu est déposé sur le filament du spectrographe de masse.
a) Merck "vérifié à la dithizone" : 0,35 γ Pb/100 ml
b) Idem, purifié : 0,075γ Pb/100 ml

- 3) HClO₄ Hopkin et Williams "low in lead". On opère comme pour HNO₃ 0,95 $\gamma/100$ ml
- 4) HCl 6M, purifié. On opère comme pour HNO, sauf que l'évaporation est faite dans du pyrex
 0,15 γ/100 ml
- 5) HF.100 ml sont évaporés dans le platine. Le résidu sec est repris 3 fois successivement par quelques ml du mélange HNO₃ + HClO₄, puis polarographié
 - a) HF pur pour analyse UCB : 16 $\gamma/100$ ml
 - b) HF distillé $1,2 \gamma/100 \text{ ml}$
- 6) Ammoniaque : non vérifié
- 7) Cyanure. Le spike 206 est ajouté à 20 ml de la solution. Le plomb est isolé par 2 extractions à la dithizone. La douxième phase organique est évaporée, les matières organiques détruites et le résidu transféré sur le filament du spectromètre

 $\leq 0,095 \gamma/10$ ml de solution à 10 %

- 8) Citrate
 - a) On procède comme pour le cyanure, à partir de 100 ml de la solution à 25 %

0,05 $\gamma/10$ ml de solution à 25 %

Ce chiffre est assez élevé si l'on considère que l'on doit parfois utiliser 50 ml de cette solution pour maintenir en solution, à p H 9, l'hydroxyde de zirconium

 b) La solution purifiée a) est repurifiée à la dithizone, comme décrit plus haut

On retrouve : 0,05 γ/10 ml

Par ailleurs, on a vérifié par traçage au Pb 210 (Ra D), que la purification à la dithizone du citrate était efficace à près de 100%. La teneur en plomb de la solution de citrate est donc probablement inférieure à la valeur trouvée : on introduit du plomb au cours des manipulations.

9) Dithizone(UCB). Le plomb présent dans la phase chloroformique initiale (voir purification) est extrait en phase aqueuse acide. On évapore à sec et on reprend par HNO₃. Le plomb est isolé à la dithizone encore une fois, avant polarographie.

3,2 y/gr

On utilise seulement quelques mgr de dithizone pour une séparation du plomb, dans le cas du zircon. La purification n'est donc pas nécessaire.

10) Borax.

Le borax hydraté est dissout dans l'eau. On ajoute le spike 206. On sépare le plomb à la dithizone (comme pour le citrate).

a) Borax UCB non purifié (10 gr hydraté = env.5 gr anhydre)

		57280 T2-0		0,	008γ/gr hydraté	
		2 essais		0,	$06\gamma/gr$ hydraté	
b)	Borax	UCB	purifié	par	cristallisation	fractionnée
				0,	06y/gr hydraté	

2 essais 0,09y/gr hydraté

c) Borax purifié à la dithizone. On obtient des résultats analogues en plus élevés.

Comme pour le citrate, ces quantités apparaissent comme élevées, mais il s'agit de valeurs maxima, comme les essais sur zircon le montrent bien. Les opérations de purification du borax sont inutiles, et pourraient même avoir dans certains cas l'effet contraire à celui souhaité.

D. Essais à blanc et sur zircon

Les essais à blanc, avec les quantités de réactifs analogues à celles utilisées pour 0,5 gr de zircon ont donné de 0,8 à 2,5 γ de Pb commun. Le caractère erratique de cette contamination fait supposer qu'elle ne provient pas en ordre principal des réactifs.

Si l'on évite toute évaporation longue, et en particulier l'élimination de la silice, les résultats sont plus satisfaisants.

Pour le zircon Orthogneiss Flüela (lère attaque), on a 0,4 γ de plomb commun pour une prise de 0,27 gr de zircon. Cela représente, pour un zircon à teneur moyenne en plomb radiogénique, un rapport plomb commun/plomb total de 2 %.

Pour le zircon Romnesfjellet (attaque n°3), on a 0,6 γ de plomb commun, pour une prise de 0,7 gr, soit 5 % de plomb commun pour un zircon très pauvre en plomb radiogénique (18,8 ppm).

Ces résultats sont comparables à ceux obtenus dans des laboratoires mieux équipés. Occasionnellement, le niveau de contamination est plus élevé, ce qui nous a contraint à recommencer certaines mesures. Cet inconvénient résulte probablement du fait que nous ne travaillons pas en atmosphère contrôlée.

E. Contamination en uranium

Le problème de la contamination en uranium est beaucoup moins important que celui de la contamination en plomb. TILTON et al.(1957) ont mesufé des "blancs" de 0,01 γ . Une contamination 10 fois plus importante ne serait pas susceptible d'altérer nos mesures d'une manière sensible.

On n'a pas fait d'essais à blanc. Des mesures répétées sur des prises variables d'un même zircon n'ont montré aucun effet systématique, pour des quantités d'U allant jusqu'à 6 γ . On n'a pas fait d'essai avec des prises moins importantes : cela n'est jamais nécessaire pour des mesures sur zircon. En admettant que lors de l'essai effectué avec 6 γ , une contamination de 2 % ait pu passer inaperçue, le niveau de contamination maximum se situerait à 0,12 γ .

CHAPITRE 3. SPECTROMETRIE DE MASSE

II - 3 - 1 Description du spectromètre

Le spectromètre de masse a été construit au laboratoire (M.REINHARZ, R.DELWICHE et J.KATZ, 1962).

Ses caractéristiques sont :

- a) Simple focalisation en direction (premier ordre)
- b) Angle de champ 60°
- c) Rayon de courbure du séparateur magnétique 30 cm
- d) Source solide à simple filament (ionisation thermique de la substance déposée)
- e) Résolution expérimentale de 400
- f) Sensibilité de l'ordre du micro-gramme

Le collecteur d'ions utilisé pour les mesures de plomb et d'uraniun est un multiplicateur d'électrons à 17 étages (on peut adapter au spectromètre un collecteur type cage de Faraday). Il est relié à un électromètre à capacité vibrante (Cary). Le spectre de masse est enregistré graphiquement par un système à potentiomètre asservi (Honeywell).

II - 3 - 2 Spectrométrie du plomb

A. Nature du dépôt sur le filament

Le plomb a un potentiel d'ionisation élevé. Le composé déposé sur le filament du spectromètre doit donc être stable aux hautes températures. Nous avons essayé plusieurs modes de dépôt.

- <u>Sulfure</u>: PbS(précipité) + NH₄NO₃ (en solution) sont déposés sur un filament de tantale (ALDRICH,WETHERILL et al. 1956). Cette technique nous a donné de bons résultats, mais elle est plus compliquée et d'un emploi plus délicat que la technique à l'acide borique.
- 2) <u>Nitrate et acide borique</u> : Le plomb est évaporé à partir d'une solution nitrique, sur filament de tantale. On ajoute une goutte d'une solution saturée d'acide borique plus 1 % d'ammoniaque, et on chauffe progressivement jusqu'au rouge sombre (MARSHALL et HESS, 1960). Ce node de dépôt a été utilisé pour la plupart des mesures.
- 3) <u>Silicate de zirconium</u> : Cette technique a été décrite par AKISHIN, NIKITIN et PANCHENKOV (1957) (voir aussi ZYKOV et STUPNIKOVA, 1957). Elle permet d'atteindre une très grande sensibilité mais nécessite

l'emploi d'un filament de tungstène. Des essais au moyen de cette technique ont été menés à Nancy par DURAND (1962). Nos propres essais ont confirmé que l'émission était beaucoup plus intense qu'avec la technique à l'acide borique. Malheureusement, le filament de tungstène émet un spectre d'impuretés, qui empêche une bonne mesure du pic 204. Les essais menés avec filament de tantale ont été entièrement négatifs : on observe une instabilité considérable de l'émission.

B. Mesure de la composition isotopique du plomb du zircon (non spiké)

On enregistre environ 30 spectrogrammes, sans inversion du champ magnétique. L'intensité du courant ionique fluctue au cours du temps. La mesure se fait par interpolation entre deux pics de même masse, sauf pour le 204, où la mesure se fait au sommet du pic (ou parfois au sommet du 206) (fig. II - 3 - 2B). Le rapport 206/204 est souvent mesuré en fin de manipulation, au moment où l'intensité de l'émission est suffisante pour la mesure du 204, très peu abondant. L'isotope 204 est mesuré avec une précision moins bonne.

Estimation des erreurs :

a) Erreurs aléatoires

Elles sont calculées par :

$$G^{2} = \frac{\sum (\bar{R} - R_{i})^{2}}{n (n-1)}$$
 \bar{R} : moyenne
n : nombre de rapports mesurés

L'erreur que nous donnons est 2 5 . Il faut noter que les 30 mesures effectuées ne peuvent pas être considérées comme indépendantes, le même pic étant utilisé pour deux mesures.

Pour une bonne série de 30 mesures, on a sur le rapport 207/206 moins de 2°/., d'erreur, et sur 204/206, moins de 1 % d'erreur.

b) Erreurs systématiques

- Précision des shunts de l'électromètre : meilleure que 0,25 % (garantie par le fournisseur, et vérifiée). Il n'est pas nécessaire d'appliquer de correction.
- 2) Correction de masse. Il a été question incidemment, à propos du calibrage de l'étalon interne d'uranium, de cette correction importante. On l'a déterminée expérimentalement, pour le plomb, par comparaison de mesures faites sur un même échantillon (Galène Kiseba) respectivement avec le multiplicateur et le collecteur type cage de Faraday. Cette dernière

Fig. II-3-2B

S	pec	22	00	118	mm	2 0	e p	lom	b d	2 Z	irco	n

Grimsel I (sans spike)

208	207	206	204	Masses
11	300 mV	3V	30 mV	Shunts
*	+	-		

T





+ t ŧ Ŧ

Ŧ ŧ ł t

ŧ

t Ŧ Ŧ t i Ŧ Ŧ

- Low

Æ

mesure, faite en utilisant la technique au silicate de zirconium, n'est pas de très bonne qualité. On a utilisé comme élément de comparaison supplémentaire, la mesure du même échantillon faite à Berne (Be 31) (EBERHARDT et al. 1955), que l'on peut considérer comme étant très bonne.

Enfin, on a vérifié, que, en appliquant la correction de masse, déterminée de cette manière, on obtenait pour l'échantillon standard "shelf C.I.T.", des proportions isotopiques en très bon accord avec celles mesurées au California Institute of Technology, au Carnegie Institute of Washington, à l'U.S.Geological Survey. Plus de détails sur ces mesures seront donnés en thèse annexe.

On a observé une variation importante de la correction de masse au cours du temps, durant deux années d'utilisation du même multiplicateur d'électrons. De nulle, elle est passée à 7 °/.. par unité de masse, dans la région du plomb.

3)Incertitude sur le zéro. Ce problème se pose si des impuretés, organiques ou autres, émettent un spectre qui se superpose à celui du plomb, ou si la résolution est insuffisante. Ce dernier cas ne se présente pas, sauf accident (mauvais vide, mauvaise orientation des fentes délimitant le faisceau, etc.) : la mesure est alors éliminée.

La présence d'un spectre d'impuretés affecte sensiblement, par excès, la mesure de l'isotope le moins abondant, Pb²⁰⁴. Généralement, on observe des pics aux masses voisines. Chaque fois que l'on a utilisé un filament de tungstène, on s'est trouvé dans cette situation. Par contre, moyennant certaines précautions, on peut éviter cette cause d'erreur lorsque l'on utilise un filament de tantale.

Exemple de calcul de t 207/206

KAW 61. Granite du Grimsel. Attaque nº1.

Rapports isotopiques : mesurés

 $204/206 = 0,00264 \pm 0,00001 (4^{\circ}/_{\circ\circ})^{(1)}$ $207/206 = 0,09045 \pm 0,00015 (1,66^{\circ}/_{\circ\circ})^{\circ}$ $208/206 = 0,2373 \pm 0,00054$ corrigés(?°/...par unité de masso) 0,002604 0,09108 0,2406

(1) Il s'agit de l'erreur aléatoire. Il est difficile de tenir compte de la possibilité d'une erreur systématique, pouvant résulter par exemple de la présence d'un spectre résiduel d'impuretés.

Composition isotopique exprimée en % : 204 : 0,195₂ 206 : 74,95 207 : 6,826 208 : 18,03

Composition isotopique présumée du plomb commun présent (Galène du Grimsel, Be 109) (CAHEN et al.,1958) : 206/204 18,64 207/204 15,82 208/204 38,83

Correction du plomb commun

	204	206	207	208	
total	0,195,	74,95	6,826	18,03	
commun	0,1952	3,64	3,088	7,58	
radiogénique		71,31	3,738	10,45	Σ=85,50

Pb radiogénique/Pb total : 85,5 %

Pb 207 rad/Pb 206 rad = 0,052410

Ce rapport correspond à un "âge" t 207/206 de <u>313</u> m.a. (STIEFF et al. 1959).

Estimation de l'erreur expérimentale sur t 207/206

a) L'erreur sur le rapport 207/206, de 1,66 °/ $_{\circ\circ}$, entraîne sur le rapport 207 rad/206 rad, une erreur de

$$\frac{1,66 \ \circ/_{\circ\circ} \ x \ 6,826}{3,738} = 3,05 \ \circ/_{\circ\circ}$$

b) L'erreur sur le rapport 204/206 entraîne une incertitude sur 207_{commun} et sur 207_{rad}

$$\frac{4^{\circ}/_{\circ\circ} \times 3,088}{3,738} = 3,4^{\circ}/_{\circ\circ}$$

Total : 6,5 °/ ... Erreur sur t 207/206 (obtenue par lecture de la taible) : ± 15 m.a.

On remarquera que pour un échantillon radiogénique à 85 %, près de la moitié de l'isotope 207 est attribuable au plomb commun. Au contraire, 206 commun ne représente qu'une petite fraction de 206 total.



La composition isotopique du plomb commun naturel varie, comme on l'a vu, dans des limites assez grandes. Il importe de connaître cette composition isotopique, dans chaque cas, de la manière la plus exacte possible ; plus préciséement, c'est une bonne connaissance du rapport 207/204 qui est souhaitable.

Dans les chapitres qui suivent, le choix du plomb commun de correction sera discuté et justifié. Dans le cas présent, on a estimé que le rapport 207/204 du plomb de correction est connu à 0,1 près (ou $6^{\circ}/_{\circ\circ}$). Cela entraîne sur t 207/206 une erreur supplémentaire de ± 12 m.a.

On a donc en additionnant les erreurs et en arrondissant :

t 207/206 = 315 m.a. ± 25 m.a.

Il y a nécessairement une part d'arbitraire dans la façon dont les erreurs sont calculées. En particulier, l'incertitude sur le rapport 207/204 du plomb commun de correction ne peut être évaluée que d'une façon très subjective.

Si l'on ne renonce pas à calculer des t 207/206, dans les cas doublement défavorables d'échantillons jeunes, et non dépourvus de plomb commun, on est amené nécessairement à considérer le problème des variations dans la composition isotopique du plomb commun naturel.

Cette question sera traitée en thèse annexe car elle est trop complexe pour être présentée ici, même en très résumé.

L'exemple qui précède montre qu'une précision de l'ordre de 10 % ⁽¹⁾ sur t 207/206 peut être obtenue, pour un échantillon à 15 % de plomb commun et de t = env.300 m.a.

Composition isotopique du plomb commun introduit au cours des manipulations

On a admis, dans le cas présenté plus haut, que le plomb commun était présent dans l'échantillon lui-même. Dans d'autres cas, par contre, il est manifeste que le plomb commun est introduit au cours des manipulations. Il a été observé, surtout lors des premières mesures, des contaminations variables pour le même échantillon. Cela permet de préciser la composition du plomb introduit : en faisant une hypothèse correcte sur la composition de ce plomb, on retrouve pour la fraction radiogénique les mêmes rapports isotopiques, pour des contaminations d'importance variable. Ainsi on a pour le premier zircon qui a fait l'objet de mesures au laboratoire (Gunnestadbreen G.B.) :

(1) Non compte tenu de l'incertitude de 2 % sur λU^{235} , qui à elle seule introduit une incertitude de ± 60 m.a. sur t 207/206 = 315 m.a.

	204	206	207	208
Attaque 1	0,175 ₄ ±0,0025	100	8,46±0,028	18,33±0,047
Attaque 2	0,498±0,0013	100	13,21±0,015	30,32±0,032
Attaque 3	0,3246±0,0009	100	10,64±0,010	23,91±0,17

En faisant la correction avec un plomb commun "moderne" et "normal" dont les proportions isotopiques sont :

204 : 1 , 206 : 18,58 , 207 : 15,77 , 208 : 38,87 (CHOW et PATTERSON 1961) on obtient après soustraction de la fraction commune :

fraction	radiogénique	:	206 %	207 %	208 %	Pb rad/Pb tot
attaque	1		84,89	5,00	10,12	89,76 %
attaque	2		84,77	5,00	10,23	74,32 %
attaque	3		84,82	4,98	10,19	82,14 %

On a donc une bonne approximation de la composition isotopique du plomb commun "du laboratoire", provenant de sources diverses, et notamment des poussières de l'air.

C. Mesure de la concentration en plomb

On enregistre 20 spectrogrammes environ. Habituellement, le pic 204 n'est pas mesuré. Le plomb dont on mesure la composition isotopique est un mélange de trois constituants : l'étalon interne, le plomb radiogénique, le plomb commun.

La formule simple de la dilution isotopique, relative à <u>deux</u> constituants (étalon interne et échantillon), ne peut s'appliquer que dans deux cas particuliers :

 a) On considère que la composition isotopique de l'échantillon non spiké peut être utilisée pour le calcul. Les proportions relatives plomb commun/ plomb radiogénique sont supposées être les mêmes dans l'aliquote non spikée et dans l'aliquote spikée. En d'autres termes, on néglige la contri-

bution variable de plomb commun introduite par les réactifs. Cela ne peut se faire que si le niveau de contamination est très bas et très constant. b) Le rapport 208/206 est voisin de 2,1 , dans la mesure du plomb "spiké". Ce rapport est précisément celui du "plomb commun", à peu de chose près. Une proportion variable et inconnue de plomb commun dans le mélange spikeplomb radiogénique-plomb commun n'est donc pas susceptible de faire varier le rapport 208/206 de manière appréciable (cf II - 2 - 2 B). On peut dès lors utiliser le rapport 208/206 pour le calcul, sans se soucier de la présence d'un constituant "commun".

Cas général :

Lorsque les conditions a) ou b) ne sont pas remplies, on utilise un graphique triangulaire 206 - 207 - 208 qui permet la solution graphique du problème des trois constituants, sans l'introduction de formules trop compliquées.

L'isotope 204 n'est pas utilisé. Les proportions de 206, 207, 208 sont reportées à la somme 206 + 207 + 208 dans le spike, le plomb radiogénique (déterminé par la mesure "non spikée"), le plomb commun, le mélange. Les concentrations en plomb radiogénique et en plomb commun (si on le désire) se déduisent par une construction graphique très simple.

Vérification :

Le rapport plomb commun/plomb radiogénique; déterminé par le graphique, permet le calcul de la composition isotopique du mélange plomb commun + plomb radiogénique. Cette composition peut être ou non celle du plomb non spiké selon que l'on a introduit ou non une contamination au cours des manipulations.

En utilisant la composition isotopique calculée pour l'"échantillon" (râdiogénique + commun), on applique la formule I - 1 - 1, relative à deux constituants. Le calcul se fait en utilisant le rapport $208/206^{(1)}$. On peut également utiliser les rapports 207/206 ou 208/207, pour vérifier que l'on n'a pas fait de grosse erreur en lisant le graphique : si le rapport Pb commun/Pb radiogénique de l'échantillon est calculé correctement, on doit obtenir le même résultat pour la concentration en plomb, quelle que soit le rapport utilisé pour le calcul et seulement dans ce cas.

(1) Cela s'impose car l'échantillon est constitué surtout de 206, le spike surtout de 208. L'utilisation des rapports 207/206 ou 208/207 conduirait à des résultats plus imprécis et extrêmement sensibles à toute variation dans la proportion du plomb commun.

Exemple de calcul : Grimsel KAW 61, attaque nº2

Graphiquement : il y a 7,76.10⁻⁸moles de plomb radiogénique dans la prise le rapport Pb rad/Pbrad + Pb com est de 84 %.

Un mélange de 84 % de plomb radiogénique et de 16 % de plomb commun correspond à une composition isotopique (en % ') : 204 = 0,220, 206 = 74,06, 207 = 7,07, 208 = 18,64.

 $206/208 = \frac{0,1056.\ 10^{-8} \text{ moles } + \ 0,7406 \text{ x}}{8,507.\ 10^{-8} \text{ moles } + \ 0,1864 \text{ x}} = 0,6773$

 $x = 9,206. 10^{-8}$ moles de plomb total

dont 7,73 . 10⁻⁸ moles de plomb radiogénique

L'accord étant bon avec la valeur lue sur le graphique, il n'est pas nécessaire de faire de vérification en utilisant les rapports 207/206 ou 208/207. On note que la proportion de plomb commun est sensiblement la même que dans l'échantillon non spiké (prise 1, voir plus haut). On se trouve pratiquement dans le cas particulier a). Si on fait le calcul avec le plomb attaque 1 (85,5% radiogénique), on obtient 7,71.10⁻⁸ moles de Pb rad.

Répercussion des erreurs de spectrométrie sur la mesure de la concentration :

Si l'on suppose que la composition isotopique de l'échantillon est parfaitement connue, on peut calculer dans chaque cas le"facteur de magnification" qui doit être appliqué à l'erreur relative sur 206/208, pour obtenir l'erreur relative sur la concentration en plomb.

Dans un cas particulier (échantillon à quelque 20 % de plomb commun) Mme DEUTSCH a calculé ce facteur pour diverses valeurs de 208/206. Il est compris entre 1,15 et 1,35 pour des rapports 208/206 compris entre 20 et 1,5 dans le mélange spike-échantillon.

En pratique, le rapport 208/206 est aussi voisin de 2 que possible, et affecté d'une erreur expérimentale de l'ordre de 0,5 % : ce qui nous donne une imprécision sur la valeur obtenue de la concentration en plomb d'environ 0,65 %.

Il faut tenir compte du fait que la composition isotopique de l'échantillon n'est pas parfaitement connue. Dans le cas général, la mesure de l'isotope 207 est indispensable si l'on veut déterminer le rapport Pb commun/Pb radiogénique dans l'échantillon. L'erreur sur la mesure du 207 se répercute donc elle aussi, et d'une façon variable, sur la mesure de la concentration en plomb radiogénique, si l'on ne se place pas dans les cas particuliers a) et b).

On peut estimer que dans la grosse majorité des cas pratiques, l'incertitude sur la mesure de la concentration, introduite par les erreurs de spectrométrie, ne dépasse pas 1 %.

II - 3 - 3 Spectrométrie de l'uranium

L'uranium est déposé sur le filament de tantale par évaporation d'une solution nitrique concentrée. Les ions émis répondent à la formule UO₂⁺ (TILTON et al. 1955), On enregistre environ 20 spectrogrammes,

Calcul de la concentration

Il se fait suivant la formule I - 1 - 1.

Répercussion des erreurs de spectrométrie sur la mesure de la concentration

Comme on l'a vu plus haut, le facteur de magnification est proche de 1. L'erreur sur la détermination du rapport 238/235 dans le mélange est inférieur à 1 %, habituellement.

CHAPITRE 4. APPLICATION AU ZIRCON DE LA METHODE DU Ra D

II - 4 - 1 Introduction

On a vu en I - 4 - 1 quel était le principe, et l'intérêt particulier de la méthode du Ra D, proposée par HOUTERMANS en 1951. La détermination de l'activité du Pb²¹⁰ (Ra D) dans une quantité déterminée du plomb d'un minéral permet le calcul du rapport U/Pb de ce dernier. Une mesure d'âge complète peut être exécutée sur une partie quelconque du plomb du minéral pourvu qu'elle soit représentative de tout le plomb contenu.

La méthode n'est applicable qu'aux minéraux en équilibre. C'est là sa principale limitation. Il est admis que le zircon est ou devrait être en équilibre habituellement. Cette opinion pour plausible qu'elle soit n'est étayée que par un très petit nombre de mesures directes, parfois imprécises. La vérification préalable de ce point s'impose donc. La manière la plus simple de procéder est de comparer des résultats U/Pb obtenus sur un certain nombre de zircons, respectivement par une mesure de l'activité spécifique du plomb due au Ra D, et par un dosage chimique (dilution isotopique). Il importe aussi de développer une technique de mesure d'activité adéquate. Une brève revue des applications de la méthode à des minéraux divers permettra de mieux situer ces problèmes.

Revue des applications

La mesure directe du Ra D est difficile car son rayonnement β est trop mou. Le Ra E ou Bi²¹⁰ recroît rapidement à partir de Pb²¹⁰ (fig. I - 4 - 1) et s'équilibre au bout de 50 jours (soit dix périodes de Bi²¹⁰), avec le Ra D. On peut donc mesurer indirectement Ra D par Ra E en équilibre ou en équilibre partiel (avant 50 j). Le rayonnement β du Ra E est plus énergétique et sa mesure ne pose pas de problèmes particuliers. Le descendant du Ra E est le Po²¹⁰ ou Ra F, émetteur α de période égale à 138,3 j. Il faut un temps très long avant la rééquilibration complète de Ra F avec Ra D, mais on peut mesurer au bout d'un temps donné la quantité de Ra F en équilibre partiel.

Les premières vérifications de la méthode ont été faites sur des minéraux très riches en uranium, surtout des uraninites et des pechblendes, par WILGAIN (1952), BEGEMANN et al. (1953), KULP et al. (1953). BEGEMANN et al. mesurent le Ra E, tandis que WILGAIN, et KULP et al., le Ra F, par des techniques différentes. Il y a également des différences dans la façon de procéder à l'étalonnage. D'une manière générale, pour des uraninites du Katanga, parfois désignées comme "pechblendes", il semble que l'équilibre soit réalisé, bien que de petits écarts puissent être masqués par la marge d'incertitude expérimentale. KULP et al.(1955) signalent des écarts allant jusqu'à 10 % mais pouvant être d'origine expérimentale. ECKELMANN et KULP, 1956, 1957, ont montré que, en général, l'équilibre est réalisé entre Pb²¹⁰ et U²³⁸ dans l'uraninite, la pechblende, la samarskite. Mais les mêmes auteurs ont observé que les pertes de radon à température ordinaire ne sont pas toujours négligeables dans l'uraninite, sauf si elle est largement cristallisée, et dans la pechblende. Il y a là une possibilité de déséquilibre de quelques pour cent.

D.LEDENT, 1958, a procédé à un assez grand nombre de mesures comparatives en utilisant, pour la détermination de l'activité spécifique du plomb, la technique de BEGEMANN et al. Dans l'ensemble, la comparaison entre les mesures chimiques, respectivement, et d'activité spécifique, est bonne. Ces résultats ont été recalculés en utilisant les tables de STIEFF et al., 1959. et en tenant compte de nouvelles analyses isotopiques du plomb de certains échantillons (CAHEN et al., 1961). On observe que d'une manière générale, l'équilibre paraît réalisé dans des uraninites massives ou cristallisées. parfois légèrement altérées, dans une pechblende botryoïde, dans une uraninite à grain fin, dans une brannérite. Le seul cas où il y ait une divergence de 10 % est celui d'une pechblende encroûtant de la calcite. Il est donc permis d'utiliser la méthode du Ra D pour la détermination du rapport U/Pb, à condition de choisir les échantillons. Nous avons fait quelques mesures sur des uraninités de divers gisements du Katanga et de la Rhodésie (in CAHEN et al., 1961). D'autres applications de la méthode à des uraninites ont été faites par FERRARA, 1962, IPPOLITO et al. (1959), FERRARA, HIRT, JAGER et NIGGLI (1962). A bruxelles, Mme G.MONTEYNE-POULAERT a appliqué la méthode, outre à l'uraninite, à la microlite, la fergusonite, la cyrtolite, (MONTEYNE-POULAERT et al., 1962, a et b). L'application à certaines espèces minérales, sans vérification préalable de la validité de la méthode, est justifiée par le fait que dans les minéraux primaires peu altérés le déséquilibre radioactif est rarement observé.

Il convient aussi de citer le travail de GOJKOVIC et al.(1963) qui ont développé une technique de mesure directe de Pb²¹⁰ par spectrométrie γ , ce qui permet une vérification de la pureté radioactive du plomb, ainsi qu'une technique de mesure de Bi²¹⁰(Ra E) à l'aide d'un compteur à scintillation à liquide. LENZ et WENDT (1963) ont comparé des mesures U/Pb chimiques et par Ra D, sur une série de minéraux secondaires : métatorbernite, autunite, torbernite. Ils observent l'équilibre. Il ne faudrait pourtant

92,

pas généraliser ; des travaux nombreux (par ex. ROSHOLT 1959), établissent au contraire que le plus souvent, les minéraux de la zone d'oxydation ne sont pas enéquilibre.

Possibilité d'application au zircon⁽¹⁾

La mesure de G.MONTEYNE-POULAERT et al., 1962 b, concerne une cyrtolite. La teneur en U de cette variété de zircon est de l'ordre du pour cent, en sorte que la mesure du Ra D est possible au moyen d'un dispositif de comptage peu sensible. D'autres techniques doivent être développées pour le zircon ordinaire à teneur de U de quelque 1 °/ ... Un autre point à examiner est la possibilité de déséquilibre. Des mesures directes de la perte de radon par le zircon et d'autres minéraux ont été faites par GLETTI et KULP, 1955. Le zircon pourrait perdre jusqu'à 6 % du radon. Il faut faire une distinction, probablement, entre le zircon ordinaire et le zircon riche en U et Th (malacon, cyrtolite). Ces dernières variétés sont métamictes et peuvent contenir des inclusions de minéraux à haute teneur en U et Th. Ces inclusions minérales sont susceptibles d'altération. Par contre, le zircon de Ceylan de qualité gemme, à teneur normale en U et Th, a conservé quantitativement l'hélium produit par les désintégrations α, durant ses 550 m.a. d'existence (DAMON et KULP, 1957). Les atomes de radon ont une durée de vie moyenne de l'ordre de quelques jours seulement. On peut donc supposer que pour le zircon ordinaire au moins, les pertes de radon ne constituent pas habituellement une cause de déséquilibre. D'un autre côté, on a vu que les discordances d'âges U/Pb et Pb²⁰⁷/Pb²⁰⁶ ne paraissent dans aucun cas devoir s'expliquer par une perte de radon ou une autre forme de déséquilibre entre U²³⁸ et les membres intermédiaires de sa famille radioactive. Ce seraient les isotopes stables du plomb radiogénique : Pb²⁰⁶, Pb²⁰⁷, qui seraient perdus directement.

Tous les auteurs qui appliquent la méthode Pb/α admettent implicitement l'équilibre puisque au cas contraire la mesure de l'activité α totale ne pourrait pas servir à une détermination de U + Th. Mais pour que la méthode du Ra D soit applicable comme méthode exacte, susceptible de remplacer la dilution isotopique, il faudrait établir que l'équilibre est toujours réalisé à 2 ou 3 pour cent près, ce dont on n'est pas assuré. Les simplifications expérimentales qu'on pourrait attendre de la méthode sont les suivantes.

Une seule attaque suffit, et il n'est pas mécessaire de chasser la silice. On évite la séparation chimique et la spectrométrie de masse de

⁽¹⁾ Des mesures du Ra D dans le zircon ont été faites récemment au California Institute of Technology (SILVER, comm.verbale). Mais les résultats n'ont pas encore donné lieu à publication.

l'uranium, et on s'épargne une séparation de plomb sur deux. Le dosage du plomb sur une aliquote de la fraction extraite (une autre étant destinée aux mesures d'activité) peut être fait éventuellement par une autre méthode que la dilution isotopique. Rappelons les avantages de celle-ci.

- Il ne faut pas déterminer le rendement de la séparation du plomb
- Toute contamination en plomb commun introduite à un moment quelconque ne fausse pas la mesure

La méthode du Ra D offre également le premier de ces deux avantages. Quant au second, les risques d'une contamination survenant après toutes les opérations de séparation et de purification paraissent minimes. Il convient seulement de faire l'analyse isotopique indispensable du plomb sur une troisième aliquote réservée à cet effet, et non pas sur du plomb ayant fait l'objet d'autres opérations de séparation ou extrait d'une autre prise du minéral.

Cependant, pour les premières mesures de comparaison qui sont présentées ici, on n'a pas cherché à mettre au point le dosage du plomb par un autre procédé. On a appliqué la dilution isotopique qui offrait toutes les garanties d'exactitude exigées.

II - 4 - 2 Techniques utilisées

A. Séparation de plomb radioactivement pur

La séparation de plomb pur de tous les nombreux autres radioéléments présents, a été faite suivant l'un au l'autre des deux procédés suivants :

- a) Séparation à la dithizone (BOUISSIERES et FERRADINI, 1950).
 Le plomb est extrait à la dithizone en solution chloroformique, à p H 9 et en présence de citrate. On réextrait en phase aqueuse par HNO₃O,1 N. On amène à p H 9 par addition d'ammoniaque et répète les opérations.
 La deuxième phase aqueuse HNO₃ O,1 N peut être considérée comme une solution de plomb radioactivement pur.
- b) Séparation sur colonne d'échangeur d'ions (RAMA, KOIDE et GOLDBERG, 1961).
 On a combiné cette séparation avec la séparation à lá dithizone. La deuxième réextraction se fait dans HCl 1,5 M. Le plomb est fixé sur une colonne de résine Dowex 1 X 100-200 mesh, puis élué par l'eau pure.

B. Mesures d'activité

On a utilisé pour les mesures d'áctivité un compteur de Geiger à fenêtre mince Philips type 18.516 avec couronne d'anticoIncidence type 18.518. Lo bruit de fond est d'environ 5 c/min.

Les sources solides ont été préparées par évaporation sur une surface de 0,6 cm². La quantité de plomb déposée est de quelques γ . Les coupelles sont en acier inoxydable. Les β peu énergétiques de Ra D sont absorbés. On compte Ra E (Bi 210), émetteur β^- de E max = 1,17 MeV, et Ra F (Po²¹⁰), émetteur α . On peut soit interposer un absorbant pour couper l'activité de Ra F, soit déterminer le rendement du compteur pour Ra E et Ra F. Afin d'éviter une diminution de rendement, nous avons adopté la deuxième solution. Cette manière de procéder n'est justifiée que si le dépôt n'est pas absorbant pour les α du Ra F, moins pémétrants que les β du Ra E. Afin de rendre négligeable une erreur possible de ce fait, on a interposé un absorbant de mylar qui coupe une grande partie de l'activité α , et une partie plus faible de l'activité β . Cette solution de compromis permet de réduire à un niveau acceptable l'erreur introduite par un étalonnage imprécis pour les α du Ra F, tout en ayant un rendement global de l'ordre de 35 %.

Si l'on fait les mesures d'activité avant d'attendre la rééquilibration de Ra E, la quantité de Ra F présente est faible et peut être négligée. On a donc dans chaque cas la possibilité de compter Ra E seul en équilibre partiel (au bout de quelques jours), et Ra E en équilibre + Ra F en équilibre partiel (après 50 jours).

Sur une aliquote de la solution finale de plomb purifié, on dose le plomb par dilution isotopique : on ajoute l'étalon interne de Pb²⁰⁸ et on procède à l'analyse isotopique, après plusieurs évaporations à sec et reprises du dépôt par 1 ou 2 cc d'acide, afin d'assurer l'homogénéisation.

II - 4 - 3 Etalonnage

A. Choix d'un étalon

Il est indispensable de posséder un étalon en activité de Ra D. Certains auteurs utilisent un minéral d'uranium considéré comme étant en équilibre. Connaissant les teneurs en U et Pb d'un tel minéral, ou simplement le rapport U/Pb, on peut, par séparation de plomb radioactivement pur, préparer un étalon de Ra D dont on connaît l'activité : c'est l'activité de U²³⁸ correspondant à la quantité de plomb présente. Cette manière de procéder est très directe, et tout à fait justifiée si l'on est bien assuré au départ que l'équilibre est réalisé. On ne peut pas vérifier l'état d'équilibre entre U²³⁸ et Ra D dans l'étalon. Mais on peut par exemple vérifier l'absence de perte de radon, ou l'étát d'équilibre entre U²³⁸ et d'autres membres intermédiaires de la famille radioactive.

Une autre manière de procéder est de laisser décroître le dépôt actif à évolution rapide d'une ampoule calibrée de Rn²²² (radon) et de dissoudre
quantitativement le dépôt actif à évolution lente. De cette manière, on pett préparer une solution contenant un nombre d'atomes très bien connu de Ra D. Mais il faut faire intervenir la période dans le calcul de l'activité spécifique de cette solution (BEGEMANN et HOUTERMANS 1951). L'activité spécifique est la quantité qu'il importe de connaître. Pour toutes les mesures faites jusqu'à présent dans notre laboratoire, la calibration des compteurs fait faite avec la solution Vienne V, préparée comme indiquée plus haut, en 1951, le calcul de l'activité spécifique de cette solution étant fait avec la valeur de T $\frac{1}{2}$ Ra D = 22 ans. Mais les déterminations physiques récentes de cette période conduisent à des valeurs très divergentes, comprises entre 19,5 et 25 ans (voir ECKELMANN et al.,1960).

Il y a donc un doute sur l'exactitude de la valeur de 22 ans, recommandée par la Commission du Standard international de Radium en 1931. A ce propos, on peut faire quelques observations. Si la période du Ra D était fort différente de 22 ans, on comprendrait difficilement pourquoi les mesures comparatives faites par BEGEMANN et al., 1953, et LEDENT, 1958 révèlent toujours, au moins apparemment, un état d'équilibre entre Pb²¹⁰ et U²³⁸. S'il y avait déséguilibre, comment imaginer qu'il soit toujours le même dans des uraninites plus ou mois altérées ? Comme on le voit, la comparaison, avec un même dispositif de comptage, d'étalons en atomes de Pb²¹⁰ (dépôts actifs), et d'étalons en activité (minéraux d'uranium supposés en équilibre) peut servir à mieux préciser la période de Pb²¹⁰. ECKELMANN et al. (1960) ont procédé à une telle détermination "géologique" de la période du Pb²¹⁰. La comparaison porte sur le dépôt actif de plusieurs aliquotes de radon et sur 11 minéraux d'uranium : une uraninite, une samarskite, neuf pechblendes. La valeur obtenue est de 21,4 ± 0,5 ans. Les auteurs précisent que leur marge d'erreur ne comprend pas les incertitudes introduites éventuellement par une déviation par rapport à l'état d'équilibre dans certains des minéraux uranifères sélectionnés, et par une inexactitude du standard primaire de radium.

La solution Vienne V, au moment de nos mesures, était conservée dans notre laboratoire depuis plus de dix ans. Etant donné les risques d'évaporation au cours de ce laps de temps très long, il apparaissait souhaitable de préparer un nouvel étalon à partir d'une nouvelle ampoule de radon. L'activité du nouvel étalon a été calculée avec la valeur de T $\frac{1}{2}$ Pb²¹⁰ = 21,4 ans. On peut remarquer que cela revient, en fait, à se référer indirevtement aux onze minéraux uranifères de ECKELMANN et al., considérés commo étant en équilibre. La comparaison est même très indirecte, car on cumule les erreurs de calibration de deux standards de radium, celles des mesures d'activité de ECKELMANN et al., les nôtres, et celles pouvant être intervonues dans la préparation de notre solution. Cette préparation exige un cer-

96.

tain nombre d'opérations quantitătives. N'étaient même ces erreurs expérimentales, la calibration que l'on peut faire de cette manière n'a rien d' absolu, car ECKELMANN et al. admettent la possibilité d'un léger déséquilibre dans certains de leurs minéraux d'uranium. En fait, en l'absence d' une détermination physique très bonne de la période, on est amené, soit directement soit indirectement, à se référer à des standards géologiques c'est-à-dire à des minéraux uranifères supposés en équilibre. Un certain nombre de causes d'erreur sont éliminées si on procède à une comparaison directe. La prudence recommendait donc la préparation, à titre de contrôle, d'un étalon en activité, à partir d'un minéral uranifère soigneusement sélectionné. On a choisi un échantillon d'uraninite de Shinkolobwe dépourvu de traces d'altération. Par rapport au premier standard ou standard a) (ampoule de radon), ce standard b) revèle une différence en plus de 8 %. A première vue, l'écart est très élevé. Il pourrait être dû cependant à l'accumulation de petites erreurs expérimentales, comme indiqué plus haut. Ou bien encore, il y a eu une erreur assez importante lors de la préparation de notre standard a), qui exige un certain nombre d'opérations quantitatives. On imagine plus mal où l'erreur aurait pu s'introduire lors de la préparation du standard b). Enfin, il paraît difficilement concevable qu'un échantillon très frais d'uraninite cristallisée puisse contenir réellement 8 % de Pb²¹⁰ en excès par rapport à U²³⁸. On possède d'ailleurs un contrôle : ine mesure faite en 1958 par Mme LEDENT sur la même uraninite, comme il sera détaillé plus loin. Il apparaît donc que seul l'étalon b) doit être utilisé. On ne s'est servi de l'étalon a) que pour déterminer le rapport des rendements pour Ra E et Ra F, respectivement, ce quine demande pas une source calibrée, mais seulement que le rapport des activités respectives de Ra E et Ra F soit connu.

B. Préparation de l'étalon a) et étalonnage des compteurs

La solution de Ra D + E + F a été préparée, en collaboration avec Mmes D.LEDENT et G.MONTEYNE-POULAERT, à partir d'une ampoule de Rn²²² calibrée fournie par l'U.M.H.K. L'activité du Rn²²² à t = 0 était de 27,737 \pm 0,070 m C (3 G). Les débris de verre, après dissolution de 99 % du dépôt actif dans HNO₃, ont été attaqués superficiellement par HF. Après ce traitement, l'activité résiduelle des débris de verre correspondait à 1,3 °/.. environ de l'activité totale. On a tenu compte de cette correction. La solution a été chargée en Bi et en une quantité connue de plomb, spec pure, pesée sous forme métal.

Les sources étalons ont été préparées comme les échantillons, par évaporation de 1 cc, contenant environ 5 γ de Pb. Cette quantité de Pb est de l'ordre de celle présente dans les échantillons. Ces sources, à un

97.

moment donné, contiennent une quantité calculable de Ra E et de Ra F. Nous ne disposions pas de source calibrée de Ra F pur, de même géométrie. On a déterminé le rendement pour le Po²¹⁰ (Ra F), d'une manière indirecte, en se servant de sources de Po²¹⁰ pur non calibrées, et d'un scintillateur α . <u>Rendement du scintillateur pour les α du Po²¹⁰</u>

On s'est servi des sources de Ra D + E + F . Celles-ci, 450 jours après to, avaient une activité de 2227 dés/min de Ra F. Cette valeur est calculée avec $T_2^1 \text{ Pb}^{210} = 21,4$ ans.

Source	coups/min
a	738
ъ	734
с	730
d	740
е	728
moyenne	734 coups

Rendement :33,0 %

Rèndement pour les a du Po²¹⁰, du compteur de Geiger

On s'est servi de sources de Po 210 pur, non calibrées, pour déterminer le rapport des rendements respectifs des deux compteurs.

/min

Source	Nature de la source	Rapport des rendement: Geiger/scintillateur
1	Dépôt spontané sur Ni	0,357
2	"	0,356
3	" + 20γ de Pb inactif	0,342
4	Dépôt préparé par évaporation:Po+5γ de Pb i	.n. 0,343
5	" +20× "	0.329

L'absorption des α du Po 210 est presque nulle pour des dépôts de 20 γ de Pb préparés par évaporation sur 0,6 cm²; les sources 4 et 5 contiennent la même quantité de Po. On compte :

Sourde	Activité au Geiger	Activité au scintillateur
4	57,9 c/min	169,0 c/min
5	55,4 c/min	168,4 c/min
Le rendement avec $T_2^{\frac{1}{2}}$ Pb ²¹	t du compteur de Geiger pour le ¹⁰ = 21,4 ans),	sα du Po ²¹⁰ est donc de 11 % (

Source	1)Acti me	vité totale surée	2)Acti aux α cu	vité attribuable du Po 210 (cal- lée)*	3)Activ: aux β di	ité attribuable 1 Ra E=1)→2)
a	1057	c/min	251	c/min	806	c/min
b	1067	"	250		817	н
с	1052	n	248		804	n
d	1050	"	252	u .	798	"
e	1028	"	248	"	780	п

Rendement du compteur de Geiger pour les β du Bi²¹⁰(Ra E)

moyenne

801 c/min

* Nombre de c/min comptés au scintillateur multiplié par 0,34.

L'activité des sources 450 jours après to est de 2458 dés/min Ra D et 2458 dés/min Ra E (calculé avec T_2^1 Ra D = 21,4 ans).

Rendement pour le Ra E : $\frac{801 \times 100}{2458} = 32,6 \%$

Courbe d'étalonnage

Il est possible à partir des rendements pour Ra E et Ra F, d'établir une courbe d'étalonnage du compteur de Geiger (fig.II - 4 - 3 B). Le rendement reporté en ordonnée est le rapport en pour cent du nombre de coups comptés, au nombre de désintégrations durant le même intervalle de temps du Ra D présent à t = o (moment de la séparation).

C. Préparation de l'étalon b)

On a sélectionné l'échantillon RG 2237 du Musée Royal de l'Afrique Centrale à Tervuren, offert en 1945 par l'U.M.H.K. sous le n°39. Il s'agit d'une uraninite provenant de Shinkolobwe, cristallisée en cubes de 1 cm d'arrête environ, noire et dépourvue de produits d'altération. La densité est de 9,1, les âges apparents concordants (D.LEDENT,1958, in CAHEN et al. 1961). La densité élevée est un caractère lié à l'absence d'altération (ELLSWORTH⁽¹⁾,1930, VANDENDRIESSCHE⁽¹⁾,1936), ainsi que la concordance des âges (réf.citées et ALDRICH et WETHERILL 1958, RANKAMA,1963,p577,CAHEN et al.,1961). L'absence de pertes de radon est notable dans les uraninites

(1) Il a déjà été noté, dans ces travaux relativement anciens, que les âges chimiques U/Pb des uraninites fraîches sont corrects.



fraîches largement cristallisées (ECKELMANN et KULP, 1957;p 1132). L'échantillon RG 2237 a fait l'objet de mesures d'âges par Mme D.LEDENT,1958 (in CAHEN et al. 1961). L'uranium a été dosé par gravimétrie, avec contrôle des pertes possibles. Le plomb, tracé au Pb²¹⁰, a été dosé par polarographie. Le thorium, tracé à l'UX₄(Th²³⁴) a été dosé par colorimétrie.

> U : 79,03 ± 0,12 % Pb : 7,06 ± 0,7 % Th : 0,0134 ± 0,0003 %

Nous possédons plusieurs analyses isotopiques du plomb de cet échantillon, qui ne diffèrent entre elles que par la teneur dn Pb commun (joujours faible). Il peut donc en résulter une incertitude supplémentaire sur la teneur en Pb rad, incertitude inférieure à 1 %. Nous donnons ici les résultats de Toronto (env.1 % de Ph commun).

An.isotopique	Toronto	85	204 %	206	%	207 %	208 %
			0,02±0,01	93,68±0,	1'	5,82±0,1	0,51±0,01

Une mesure du Ra D a été faite également par Mme LEDENT en 1957. L'étalon utilisé est la solution Vienne V, le calcul de l'áctivité étant fait avec $T_2^1 \text{ Pb}^{210} = 22 \text{ ans.}$ On a recalculé ces données en utilisant la valeur de 21,4 ans, aux fins de comparaison avec nos propres mesures.

Mesure du Ra D sur l'échantillon R.G. 2237 (D.LEDENT) 1. Activité de U²³⁸ par mgr de Pb, dans le minéral :

136,6 dés./sec.

Cette donnée est calculée d'après les résultats de l'analyse chimique. 2. Activité mesurée de Pb²¹⁰ par mgr de Pb

a) Si The Ra D = 22 ans : 140,1 dés/sec ± 5 % (erreurs expérimentales)

b) Si T_2^1 Ra D = 21,4 ans : 143,3 dés/sec ± 5 %

Cette dernière valeur de 143,3 dés/sec est de 5 % en excès sur la valeur dd 136,6 dés/sec de U²³⁸. La divergence n'excède donc pas la marge d'erreur expérimentale.

Les détails expérimentaux concernant notre propre mesure sont présentés à la page suivante. Nous observons un excès de 8 % par rapport à l'activité de U²³⁸. On se réfère à une autre solution que Vienne V, le calcul de l'activité étant fait également avec $T_{\overline{2}}^{1}$ Ra D = 21,4 ans. Par rapport à la mesure de Mme LEDENT, l'écart est très petit, compte tenu du fait que les solutions standard ne sont pas les mêmes pour les deux mesures. Si l'on veut, on dispose d'une comparaison indirecte entre Vienne V et notre solution a), comparaison qui suggère, sans le prouver, qu'il n'y a pas de grosse erreur de préparation de cette dernière. Il paraît peu croyable que dans un échantillon d'uranimite très frais on puisse observer un excès réel d'activité de Pb²¹⁰. Par contre, il n'est pas exclu que la période de Pb²¹⁰ soit de quelque 5 à 8 % plus élevée que 21,4 ans.

Sans conclure sur ce dernier point, on peut admettre que l'uraninite RG 2237 constitue un étalon plus sûr qu'une solution contenant un nombre déterminé d'atomes de Ra D, mais dont l'activité spécifique dépend du choix arbitraire d'une valeur de $T_{\overline{2}}^{\frac{1}{2}}$ Ra D parmi celles, nombreuses et divergentes, qui ont été publiées.

On a séparé de RG 2237 du plomb et on l'a purifié à la dithizone, comme décrit plus haut. Trois sources A, B, C, ont été préparées par évaporation de 2 ml de la solution finale contenant le plomb. A 1 ml de cette même solution on a ajouté le traceur isotopique stable de Pb 208, pour la mesure au spectromètre de masse. La quantité de plomb présente dans les sources A, B, C, correspond à une activité de 171,2 dés/min de Ra D à t = 0, si Pb²¹⁰ est en équilibre avec U²³⁸. Cette valeur est calculée d'après l'analyse chimique de Mme D.LEDENT (et non sa mesure de Pb²¹⁰).

D. Comparaison des étalons a) et b)

On a compté les sources b) A, B, C, et calculé les activités en se servant de l'étalon a).



Source	T depuis la sép.	$(-\lambda_{\text{Bi}}^{210}t)$	c.nets	min.	dés/min (±2 ¢)
А	98 h	0,441	1665	63	183,7 ± 9,9
A	144 h 30 min	0,576	1700	50	$181,1 \pm 9,4$
A	164 h	0,623	1515	40	186,5 ± 10,3
Λ	187 h	0,673	4048	100	184,4 ± 6,2
В	188 h	0,673	2422	61	181,0 ± 8,0
С	189 h	0,673	2533	60	192,3 ± 8,1
A	261 h	0,789	4881	102	186,0 ± 5,6
в	263 h	0,789	2118	45	183,0 ± 8,4
С	263 h	0,789	1397	30	181,0 ± 10,1

Moyenne pondérée : 184,9 dés/min ± 2,7 dés/min

Mesure de Ra F seul en équilibre partiel (scintillateur a)

Source	Ra I	F/Ra D	à t =	- 0	coups nets par 1) calculé avec Ra D à t=0:171,	min 2 dés/min	2)mesurée (± 2 ď)
А		0,41			23,1		13,4 ± 0,6
В	(0,41			23,1		16,3 ± 0,6
с	c	0,41			23,1		16,0 ± 0,6

Il y a un gros écart entre les valeurs calculées et mesurées. Les raisons en sont discutées dans la suite.

Mesure de Ra E + F (Geiger)

Tableau II - 4 - 3 D hors texte

TABLEAU II - 4 - 3 D. SOURCES RG 2237 (étalon b) - MESURE DE Ra E + F (GEIGER).

T en j.	Rendement %		A				В				(2	
		C nets	Dés.	Min.	Dés, / min.	C. nets	Dés.	Min.	Dés./min.	C. nets	Dés,	Min.	Dés./min.
52	34,60	6.225	17.991	100	179,9								
58	34,80					7.969	22.899	130	176,1	7.147	20.537	117	175,5
64	35,05	4.403	12.562	67	187,5	4.897	13.971	75	186,3	4.082	11.646	65	179,2
71	35,35					8.240	23.310	130	179,3	7.740	21.895	121	181,0
72	35,35	7.499	21.214	117	181,3								
80	35,65	3.777	10.589	60	176,5	3.675	10.303	58	177,6	3.836	10.754	60	179,2
89	36,05	9.599	26.627	150	177.5	6.944	19.262	106	181,7				
90	36,05									6.695	18.571	103	180,3
93	36,20	10.474	28.934	165	175,4	10.170	28.094	158	177,8	11.755	32.472	187	173,6
Total			117.917	659	178,9		117.839	657	179,4		115.875	653	177.5

Conclusions

La mesure de Ra F seul au scintillateur est très inexacte par défaut. Il y a eu absorption des α , bien que la quantité de plomb déposéene soit que de 21 γ environ. Mais cette absorption peut être due à la présence de résidus de matière organique ou de sels dissouts dans la phase aqueuse finale. Il convient donc de faire une mesure de contrôle au scintillateur α , pour chaque échantillon, si l'on veut déduire l'activité de Ra D de mesures Ra E + F.

Ces mesures Ra E + F, dans le cas présent, doivent être considérées comme inexactes par défaut. Seule la mesure de Ra E seul en équilibre partiel, est correcte. Comme signalé plus haut, il y a une divergence de 8 % entre les activités calculées d'après les teneurs en U et Pb, et mesurées en se servant de l'étalon a). On a vu plus haut qu'il y a toutes les raisons de penser que c'est l'étalonnage a) qui est incorrect.

II - 4 - 4 Résultats expérimentaux

Pour nos mesures sur des échantillons de zircon, on a calculé les activités en se référant aux deux étalons a) et b). La référence à l'étalon a) est donnée par la figure II - 4 - 3 B qui exprime la variation du rendement en fonction du temps écoulé depuis la séparation du plomb. Le résultat doit être divisé par un facteur 1,08 si l'on veut se référer à l'étalon b). Les tableaux concernant le détail des mesures sont donnés en annexe, à la suite du chapitre. On a compté dans tous les cas un nombre suffisant de coups pour que 2 G soit inférieur à ou de l'ordre de 2 %. Les mesures d'activité proprement dites sont des mesures de Ra E + Ra F. On a fait une mesure de contrôle du Ra F seul, au scintillateur, sur tous les échantillons, et sur un échantillon seulement une mesure de Ra E seul en équilibre partiel. Un résultat sur six a dû être éliminé, comme on le verra dans la suite.

Echant.de zircon	I Activité de U ²³⁸ (1)	II Activité de Pb ²¹⁰ (étalon.a)	III Activité de Pb ²¹⁰ (étalon.b)	II/I	III/I
клw 43	41,6 dés/min	45,4 dés/min	42,0 dés/min	1,091	1,010
KAW 61	16,24 "	17,58 "	16,28 "	1,083	1,002
KAW 56	46,9 "	52,0 "	48,1 "	1,108	1,026
KAW 57	30,8 "	35,9 "	33,3 "	1,166	1,080
Pa 60/3	26,5 "	27,7 "	25,7 "	1,045	0,968
G.B. ⁽²⁾ A		69,2 "	64,0 "	1,062	0,983
В	65,1 "	70,0 "	64,8 "	1,075	0,996

(1) Correspondant à la quantité de plomb déposée

(2) 2 sources avec la même quantité de plomb

B. Mesures de contrôle de Ra F seul au scintillateur

On compare les nombres de coups/min mesurés à ceux calculés à partir des teneurs en U et Pb_{rad}, l'équilibre entre U²³⁸ et Pb²¹⁰ étant admis. L'étalonnage du scintillateur a été déterminé grâce aux étalons a), comme précisé plus haut. Dans ce cas-ci encore, l'étalonnage b) s'obtient en tenant compte d'un facteur correctif de 1,08.

104.

A. Mesures de Ra E + Ra F

Echantillon	$\begin{array}{l} \operatorname{Ra} F/\operatorname{Ra} D\\ a t = o \end{array}$	Coups nets par minute 1)calculé à partir de U ²³⁸ /Pbrad 2)mesurés				
		avec étal.a)	avec étal.b)		(±25)	
KAW 43	0,65	8,9	9,6		9,8 ± 0,4	
KAW 61	0,665	3,6	3,8		3,9 ± 0,17	
KAW 56	0,63	9,7	10,5		10,5 ± 0,2	
KAW 57	0,65	6,6	7,1		7,9 ± 0,23	
Pa 60/3	0,66	5,8	6,2		5,8 ± 0,21	
G.B. A	0,425	9,1	9,8	9,9	0.31 + 0.31	
В	н	"	"	9,0	9,04 1 0,04	

C. Mesures de contrôle de Ra E seul en équilibre partiel

Ces mesures ne concernent que l'échantillon G.B.

Source	Temps depuis la séparation	Ra E/Ra D à t = o	coups nets comptés	min	dés/min (± a)	2 G) b)
A	72 h	0,347	1189	121	86,9±6,4	80,5
В	74 h 15 min	0,357	721	80	79,7±9,5	73,8
A	191 h	0,680	1288	80	72,6±5,4	67,2
В	192 h 30 min	0,680	1271	80	71,7±5,4	66,4
A	263 h	0,792	1477	86	66,5±3,9	61,6
В	264 h 30 min	0,792	1641	90	70,6±4,0	65,4

D. Elimination des résultats affectés d'erreurs systématiques

Deux causes possibles d'erreurs systématiques doivent être envisagées.

a) Absorption pour les α du Ra F

Les mesures de vérification de Ra F seul montrent que ce cas ne se présente pas pour les six échantillons, sauf peut-être dans une mesure faible pour Pa 60/3 et G.B. Avec des dépôts préparés par évaporation, il paraît impossible d'utiliser des mesures de Ra E seul pour la détermination de Ra D. Tout effet d'absorption des α est trop réduit, cependant, pour affecter sensiblement les résultats des mesures de Ra E + Ra F. Le cas des sources préparées à partir du plomb de l'uraninite RG 2237 (étalon b) paraît donc accidentel.

b) Mauvaise séparation de Ra F à l'origine

Dans le cas de l'échantillon KAW 57, on observe un excès d'activité α (tableau B). En outre, les données détaillées concernant les mesures Ra E + Ra F (voir annexe) montrent une évolution décroissante de l'activité calculée, au cours du temps. C'est le seul échantillon pour lequel cette anomalie a été observée. Les deux constatations ne paraissent imputables qu'à une mauvaise séparation de Ra F à l'origine. On aurait eu avantage a exécuter la mesure de contrôle de Ra F seul plus tôt après la séparation du plomb : l'excès d'activité α , plus important, aurait pu être déterminé et une correction aurait, peut-être, été possible. Dans le cas présent, il convient d'éliminer les résultats des mesures de Ra E + Ra F, quitte à les refaire à un moment où l'excès d'activité α aura décru à un niveau insignifiant.

On notera le résultat trop élevé obtenu pour G.B., en comptage de Ra E seul, trois jours après la séparation du plomb. Il ne faudrait pas conclure à une séparation incomplète du Bi. Au bout du laps de temps considéré, il subsiste encore environ 1 % de Th B + C + C' + C", émetteurs α et β de la famille du Th²³², et ob ignore le rendement du compteur de Geiger pour ces nuclides, ainsi que la teneur en Th du zircon.

Pour la détermination du rapport Th/Pb, on peut développer une "méthode du Th B" analogue à la méthode du Ra D (von GUNTEN, 1955). Malheureusement, dans le zircon, les activités à mesurer sont très faibles en général.

II - 4 - 5 Conclusions

1) On a procédé, sur six échantillons de zircon, à une comparaison des résultats obtenus paf la dilution isotopique et par la méthode du Ra D. La mesure d'activité relative à un échantillon est affectée d'erreurs systématiques : la comparaison ne porte donc que suf cinq paires de résultats pouvant être considérés comme corrects.

Dans les cinq cas l'équilibre paraît réalisé entre U²³⁸ et Pb²¹⁰. L'écart maximum observé est inférieur à 4 %, ce qui est dans les marges d'erreurs expérimentales. On cumule en effet les erreurs d'une mesure d'activité, de deux mesures de plomb et d'une mesure d'uranium par dilution isotopique. Chacune de ces mesures est affectée d'une erreur pouvant atteindre 2 %. Les déviations observées paraissent donc entièrement attribuables à des causes expérimentales : il n'y a aucune évidence de déséquilibre dans les cinq zircons considérés, entre U²³⁸ et Pb²¹⁰. (On trouvera plus d'information concernant les échantillons eux-mêmes dans les chapitres qui suivent).

L'étalon est une uraninite largement cristallisée choisie pour son absence d'altération.

2) L'étalonnage au moyen d'une solution préparée par dissolution du dépôt actif d'une ampoule calibrée de Rn²²² conduit à des conclusions inacceptables si le calcul de l'activité spécifique de cette solution est fait en utilisant la valeur de $T_{\overline{2}}^{1} Pb^{210} = 21,4$ ans, proposée par ECKELMANN et al.,1960. A moins d'une erreur dans la préparation de cette solution, il faut conclure à une inexactitude sensible de la valeur proposée pour la période. En tous cas, aussi longtemps que l'on ne disposera pas d'une valeur considérée comme exacte à deux pour cent près, il n'y a pas avan‡age à procéder à l'étalonnage à partir d'une aliquote calibrée de radon.

3) Un dispositif de comptage simple : compteur de Geiger avec couronne d'anticoincidence, peut être utilisé pour la mesure indirecte de faibles activités de Pb²¹⁰. On peut mesurer soit Bi²¹⁰(Ra E) en équilibre partiel, soit Bi²¹⁰ + Po²¹⁰(Ra F) en équilibre partiel.

Les erreurs systématiques pouvant résulter d'une mauvaise purification du plomb, ou d'une absorption des α du Po²¹⁰ par le dépôt, peuvent être décelées aisément si on utilise un scintillateur α pour une ou deux mesures de contrôle.

4) Le fait que la méthode du Ra D paraît applicable en principe, au zircon, et sans mise en œuvre de technique de comptage très compliquée présente une possibilité sérieuse de simplification expérimentale, pour les mesures d'âge du zircon. En particulier, le temps d'utilisation du spectromètre de masse peut être réduit d'une manière approciable.

ANNEXE AU CHAPITRE 4

DETAIL DES RESULTATS EXPERIMENTAUX DES MESURES DU Ra D (Pb²¹⁰) CONCERNANT

SIX ECHANTILLONS DE ZIRCON

Mesures de Ra E + Ra F

KAW 43. Activité de U²³⁸ correspondant à la quantité de plomb déposée : 41,6 dés/min

Temps en	Rendem.	Coups nets	Dés.	Min	Dés/min		
jours dep. séparation	en % (étal.a))	comptés	(étal.a))		a)	ъ)	
67	35,15	3.451	9.818	215	45,67	42,29	
68	35,20	6.123	17.395	390	44,60	41,30	
82	35,75	3.218	9.001	202	44,56	41,26	
84	35,85	4.665	13.013	270	48,20	44,63	
94	36,20	3.322	9.177	197	46,58	43,13	
134	37,30	3.930	10.536	240	43,90	40,65	
162	38,00	7.483	19.692	446	44,15	40,88	
164	38,05	9.359	24.597	535	45,98	42,57	
total			113.229	2.495	45,38	42,02	

KAW 61. Activité de U²³⁸ correspondant à la quantité de plomb déposée : 16,24 dés/min

Temps en jours dep. séparation	Rendem. en % (étal.a))	Coups nets comptés	Dés. (étal.a))	Min	a)	Dés/min b)
72	35,35	6.119	17.310	942	18,38	17,02
99	36,40	1.819	4.997	296	16,88	15,63
101	36,45	2,046	5.804	307	18,91	17,51
105	36,55	7.312	20.005	1.134	17,64	16,33
106	36,60	8.894	24.301	1.400	17,36	16,07
111	36,70	5.757	15.686	915	17,14	15,87
115	36,80	6.158	16.734	950	17,61	16,31
144	37,55	5.629	14.991	890	16,84	15,59
147	37,60	6.007	15.976	885	18,05	16,71
168	38,10	6.209	16.297	908	17,95	16,62
170	38,15	6.413	16.810	947	17,75	16,43
182	38,40	6.206	16.161	915	17,66	16,35
184	38,45	6.383	16.601	915	18,14	16,80
185	38,45	6.087	15.831	956	16,56	15,33
187	38,50	6.216	16.145	927	17,42	16,13
total			233.649	13.287	17,58	16,28

KAW 56. Activité de U²³⁸ correspondant à la quantité de plomb déposée :

46,9 dés/min

Temps en jours dep. séparation	Rendem. en % (étal.a))	Coups nets comptés	Dés. (étal.a))	Min	a)	Dés/min b)
54	34,65	3.755	10.837	198	54,7	50,6
55	34,70	6.389	18.412	370	49,8	46,1
62	35,00	7.208	20.594	390	52,8	48,9
71	35,30	3.306	9.450	173	54,6	50,6
75	35,50	9.324	26.265	503	52,2	48,3
109	36,65	4.598	12.546	255	49,2	45,6
123	37,00	10.437	28.208	542	52,0	48,1
total			126.312	2.431	51,96	48,11

KAW 57. Activité de U²³⁸ correspondant à la quantité de plomb déposée : 30,8 dés/min

Temps en jours dep. séparation	Rendem. en % (étal.a))	Coups nets comptés	Dés. (étal.a))	Min	a)	ćs/min b)
64	35,05	3.030	8.645	228	37,92	35,11
69	35,25	6.917	19.623	540	36,34	33,65
75	35,50	7.019	19.772	523	37,80	35,00
77	35,55	6.820	19.184	532	36,06	33,39
89	36,00	4.730	13.139	370	35,51	32,88
112	36,75	5.097	13.869	386	35,93	33,27
148	37,65	14.676	38.980	1.113	35,02	32,43
151	37,70	2.615	6.936	210	33,03	30,58
153	37,75	6.911	18.307	500	36,61	33,90
158	37,90	3.029	7.992	231	34,60	32,04
total			166.477	4.633	35,93	33,27

Pa 60/3. Activité de U²³⁸ correspondant à la quantité de plomb déposée : 26,5 dés/min

113.

Temps en jours dep. séparation	Rendem. en % (étal.a))	Coups nets comptés	Dés. (étal.a)	Min)	a)	Dós/min b)
12	75.00					
63	35,00	1.072	3.063	122	25,11	23,25
64	35,05	1.188	3.389	116	29,22	27,05
74	35,45	2.727	7.693	272	28,28	26,18
75	35,50	1.423	4.008	146	27,45	25,42
77	35,55	3.510	9.873	337	29,30	27,13
78	35,60	3.995	11.222	447	25,11	23,25
81	35,70	5.589	15.655	532	29,43	27,25
87	35,95	1.295	3.602	115	31,32	29,00
91	36,10	4.782	13.247	480	27,60	25,55
114	36,80	1.550	4.212	155	27,17	25,16
120	36,93	9.290	25.156	897	28,04	25,96
121	36,95	8.819	23.867	873	27,34	25,31
136	37,40	2.793	7.468	262	28,50	26,39
155	37,80	2.495	6.601	254	25,99	24,06
163	38,00	9.826	25.858	907	28,51	26,40
165	38,05	9.517	25.012	914	27,37	25,34
total			189.926	6.829	27,71	25,66

G.B. ACTIVITE DE U²³⁸ CORRESPONDANT A LA QUANTITE DE PLOMB DEPOSEE : 65, 1 dés./min.

DEUX SOURCES A ET B AVEC LA MEME QUANTITE DE PLOMB.

T en j.	Rendement %	a)		A					В		
		Coups nets	Dés,	Min.	Dés./	min.	Coups nets	Dés,	Min.	Dés. /	min.
		comptés	(ét. a)		a)	b)	comptés	(ét. a)		a)	b)
57	34,80	2.057	5.911	81	72,98	67,57	1.919	5.514	72	76,58	70,91
59	34,85	5.618	16.121	234	68,89	63,79	5.312	12.242	212	71,90	66,57
77	35,55	3.131	8.807	133	66,22	61,31	2.711	7.626	110	69,33	64,19
79	35,65	6.207	17.411	2 50	69,64	64,48	5.690	15.961	227	70,31	65,10
81	37,50	2.964	8.303	127	65,38	60,54	5.594	15.669	232	67.54	62,54
88	36,00	5.610	15.583	225	69,26	64,13	3.759	10.442	150	69,61	64,45
93	36,20	6.844	18.906	280	67,52	62,52	4.083	11.279	168	67,14	62,16
95	36,25	7.003	19.319	270	71,55	66,25	6.518	17.981	2 5 3	71,07	65,80
100	36,45	6.452	17.706	252	70,26	65,05	6.569	18.027	256	70,42	65,20
102	36,50	7.627	20,896	304	68,74	63,65	5.864	16.066	230	69,85	64,67
106	36,60	3.196	8.732	130	67,17	62,19	8.166	23.311	320	69,72	64,62
108	36,65	5.885	16.057	226	71,05	65,79	4.318	11,782	168	70,13	64,93
total			173.752	2.512	69,17	64,04		167.900	2.398	70,02	64,83

114

TROISIEME PARTIE. APPLICATIONS GEOCHRONOLOGIQUES.

CHAPITRE 1. ETUDES GEOCHRONOLOGIQUES DANS LES ALPES CENTRALES :

INTRODUCTION

Les Alpes constituent une des régions du globe étudiées le plus en détail par les géologues et les pétrographes. Les études géochronologiques faites sur les matériaux de cette chaîne seront donc utilement confrontées avec toutes les indications fournies par d'autres moyens d'investigation. En outre, comme chaque nouvelle méthode est susceptible de nous apprendre du neuf, même dans les domaines déjà les plus étudiés, les mesures d'âge pourront fournir des éléments de réponses aux questions non encore résolues.

Les mesures sur zircon sont encore peu nombreuses dans les Alpes. Mis à part un certain nombre d'âges chimiques Pb/U +Th et Pb/ α , il faut citer les six mesures de .GRÜNENFELDER sur des échantillons du massif du St Gothard (GRÜNENFELDER, 1962, 1963).

Les méthodes Rb/Sr et K/A ont été appliquées à un plus grand nombre de roches. Une limitation à leur application est la mobilisation fréquente du Sr et de A, sous l'influence du métamorphisme alpin.

Les mesures de GRÜNENFELDER ont montré que l'on peut dater, par le zircon, une roche préalpine dans une région où le métamorphisme alpin est mésozonal.

On a souligné aussi, dans les chapitres d'introduction, l'intérêt qu'il y a à faire des mesures sur des échantillons de zircon jeunes, plus ou moins bien situés dans les échelles relatives et absolues des temps géologiques.

Le choix des problèmes étudiés a été fait par le professeur NIGGLI, de l'Université de Berne. Sur les mêmes échantillons ou sur des échantillons appartenant aux mêmes massifs, des mesures Rb/Sr et K/A ont été faites par JAGER et FAUL (1959), JAGER, GEISS et al. (1961), JAGER, 1962, WÜTHRICH 1963. On possède ainsi le maximum d'information géochronologique sur les mêmes roches. De même, les étudés géologiques et pétrographiques sont nombreuses et détaillées. Les massifs étudiés font partie des diverses unités des Alpes centrales, à l'exclusion de la zone pennique. On s'est limité à un cadre géographique comprenant les Alpes suisses et prolongement italien au Sud immédiat. Au tableau III - 1 sont présentés de manière schématique les caractères principaux des unités géologiques considérées. Ce tableau a été établi d'après les ouvrages généraux suivants :

Guide géologique de la Suisse (1934) J.CADISH et E.NIGGLI (1953) R.TRUMPY (1960) et divers articles.

La figure III - 1 présente la situation géographique d'ensemble.

			TABLEAU III - 1.		
Zone		Position dans le bâti alpin	Caractère de la déformation alpine	Zone du métamor- phisme alpin	Histoire préalpine
Helvétique		Les nappes s'enracinent au sein des massifs externes et au sud de ceux-ci. Ecoulement vers le N.	Nappes de décollement : couches sédimen- taires à partir du Trias à anhydrite. Sédimentaire antochtone et para-autoch- tone à la limite des massifs externes et au N-E du massif de l'Aar.	Epizonal, le plus souvent faible	Sédiments post-carbonifères
Massifs	Aar	Affleurent au sud de la	Cristallin autochtone. Déformation	épizonal	Granites hercyniens. Sédiments du Carbonifère supérieur dans des
extemes	Gothard	faveur d'une culmination		épizonal; au centre - sud : mésozonal	synclinaux hercyniens. Cristallin ante-carbonifère supérieur
7.000	nappes penniques inférieures	Plis couchés à allure cylindrique (Argand). Coeur gneissique et enveloppe de "schistes lustrés" (séd.) plus ou moins décollée. Déformation plastique (l)		mésozona1	Sédiments post-permiens Sédiments du carbonifère supérieur et du permien : localement
pennique	nappes penniques supérieures	ophiolithes	Allure en plis couchés suivant Argand. Actuellement contesté : écailles de socle cisaillées à la base. Le sédimen- taire forme des nappes de décollement	épizonal à mésozonal	Granites hercyniens probables Ante-carbonifère supérieur :
	racines des n.p.		Redressées à la verticale Intrusions alpines	mésozonal à catazonal	cristallin (en tout ou en partie)
Nappes austro-	infér.	Charriées au-dessus des nappes penniques. Déve- loppées seulement à	Ecailles de cristallin cisaillées à la base. Mylonitisations locales. Couverture sédimentaire en partie	épizonal	Sédiments post-permiens Permo-carbonifère local Granites hercyniens
alpines	supér.	l'est; à l'ouest, érodées ou n'ont jamais existées.	décollée et plissée indépendamment.	épizonal, le plus souvent faible	Cristallin hercynien ou ante-hercynien (précambrien ?)

TABLEAU III - 1 (suite)

Zone	Position dans le bâti alpin	Caractère de la déformation alpine	Zone du métamor- phisme alpin	Histoire préalpine
Alpes du sud ("Dinarides")	Au sud des racines des nappes penniques (et austro-alpines ?) (2) Analogue aux nappes austro-alpines supérieures mais en position "autoch- tone".	Cristallin autochtone faillé obliquement (failles inverses à pendage N) Glissement vers le sud, localement, de la couverture post-triasique,	épízonal, le plus souvent faible	Sédiments post-permiens Carbonifère supérieur et permien : [Conglomérats, volcanisme [Granites (Baveno) Cristallin

(1) Pour certains auteurs, anatexie, palingénèse à l'époque alpine dans les coeurs granito-gneissiques.

(2) La question des racines des nappes austro-alpine est controversée. Pour certains auteurs, ces nappes n'ayant pas l'allure de plis couchés, n'ont pas de racines : leur prolongement est l'ensemble Italo-Dinarique (Fallot, 1955).



Figure III-1 Carte tectonique sommaire des Alpes centrales (1:1000'000)

CHAPITRE 2. MASSIF DE L'AAR

III - 2 - 1 Introduction géologique (HUGI 1934, CADISCH et ENIGGLI 1953, T.HUGI 1956).

Le massif de l'Aar se présente comme un élément du soubassement ante-triasique, ayant subi un métamorphisme alpin épizonal et une déformation alpine de style cassant. Il est séparé du massif du St Gothard au sud par un synclinal à sédiments mésozoïques pincé, qui constitue une des zones de racines des nappes helvétiques.

Description

On peut y distinguer :

1) Des granites, se répartissant en deux zones :

- a) A la bordure nord du massif, la zone allongée Gastern-Lauterbrunner-Innertkirch.
- b) Au centre-sud, l'affleurement important du granite central de l'Aar,

discontinu, et présentant des digitations. Des variétés locales y ont été reconnues : la grano-syénite de Punteglias à l'est, la variété plus mélanocrate du Grimsel, au sud.

Le granite de Mittagfluh, leucocrate, serait une intrusion tardive particulière du magma du granite central. Il forme un petit affleurement en bordure nord de ce dernier.

Le petit massif du Tödi, bien qu'affleurant non loin du granite central, présenterait des analogies chimiques avec les granites de la zone Gastern-Innertkirch.

2) Des gneiss, des micaschistes, des phyllites.

Cet ensemble hétérogène comprend des orthogneiss et des migmatites : l'important affleurement du gneiss d'Erstfeld, au sud du granite d'Innertkirch et plus à l'est, et des affleurements plus petits, nombreux surtout dans la partie sud-ouest du massif.

Dans la zone du gneiss d'Erstfeld, il y aurait mélange de matériel ortho- et para-. Les roches d'origine sédimentaire sont le plus souvent à métamorphisme préalpin mésozonal ; elles sont traversées de roches éruptives diverses : péridotites, pyroxénites, diorites, gabbros, aplites, pegmatites.

Age des roches constituant le massif

Dans la région du Tödi, du Carbonifère peu métamorphique est bien daté par ses fossiles : Westphalien D (JONGMANS, 1950). Il repose en discordance sur le cristallin. En d'autres endroits, des sédiments peu métamorphiques sont attribués au Carbonifère, mais ne sont pas ou très médiocrement fossilifères : dans la Lötschental, au Val Russein (EUGSTER 1951).

La seule roche éruptive qui soit bien datée stratigraphiquement est le granite du Tödi : le Trias repose sur le granite altéré au Permien. Un porphyre granitique associé au granite et un peu plus tardif que celui-ci est intrusif dans le Westphalien D et le métamorphose : le granite est donc d'âge fin Carbonifère à début Permien (WIDMER, 1949).

Tous les granites du massif sont considérés comme probablement hercyniens. Les arguments avancés ne sont pas décisifs : relation du granite central avec des sédiments <u>présumés</u> carbonifères (EUGSTER,1951), analogie avec le granite du Tödi, et aussi le fait que le mésozoïque n'est pas traversé ni métamorphisé par le granite ou ses apophyses et filons associés.

Le granite central paraît s'être mis en place à un niveau peu profond ; lorsque les contacts primaires ont été conservés, ils sont parallèles aux structures des schistes, mais peuvent les recouper localement (HUTTENLOCHER 1947). Le métamorphisme mésozonal et la mise en place des orthogneiss dateraient d'une phase plus ancienne du cycle hercynien, ou d'un cycle plus ancien. De nombreuses venues pegmatitiques, aplitiques ou basiques, ainsi que la formation de migmatites seraient également "anciennes" (antérieures au granite central) (LEDERMANN, 1945). Les "orthogneiss" du massif de l' Aar ont parfois été considérés comme des roches originellement sédimentaires transformées par mobilisation et montées de solutions acides (HUTTEN-LOCHER, 1947).

Les granites du nord (Gastern-Innertkirch) seraient antérieurs au granite central, mais probablement hercyniens.

Dans d'autres massifs "externes" se présentant dans une situation géologique plus ou moins analogue on a reconnu l'existence de deux cycles préalpins, dont lc ,lus récent est le cycle hercynien. Dans le massif des Aiguilles-Rouges, l'existence de "deux phases hercyniennes" a été reconnue très tôt (LUGEON, 1911). La "phase hercynienne" la plus ancienne correspond au cycle ancien dont l'existence est admise actuellement. Notons que BELLIERE (1958) rattache au cycle préhercynien la mise en place du granite de Vallorcine. Dans le massif du St Gothard également, l'existence de deux cycles préalpins a été reconnue depuis longtemps (NIGGLI, 1934). Les mesures sur zircon de GRUNENFELDER (1962) ont confirmé ce fait : les granites du massif du St Gothard, y compris des gneiss granitiques, sont d'âge hercynien. Le cas douteux du granite de Rotondo (t 207/206 affecté d'une large erreur) semble résolu par la mesure Rb/Sr sur roche totale, faite par JAGER (1963) : il s'agit bien d'un granite hercynien. Un "Streifengneis" rattaché au cycle ancien est agé effectivement de quelque 500 m.a., d'après la mesure sur zircon de GRÜNENFELDER.

Directions structurales pré-alpines

Les directions hercyniennes et anti-hercyniennes, dans le massif de l'Aar, seraient plus ou moins parallèles aux directions alpines. KVALE (1957) a observé dans le granite central des directions structurales primaires parallèles aux directions alpines.

Il n'en va pas de même dans les massifs du Mont-Blanc et des Aiguilles Rouges, où les directions hercyniennes (et préhercyniennes, peut-être), sont presque N-S, obliques par rapport aux directions alpines N-E S-O.

Notons cependant que OULIANOFF (1944) a noté des directions N-S, plus ou moins oblitérées par la déformation alpine, dans le carbonifère de la région du Rhône, située entre les massifs du Mont Blanc et de l'Aar. De même, EUGSTER (1951), à l'extrémité opposée (est) du massif de l'Aar, observe localement des directions N-S dâns des terrains carbonifères présumés.

Métamorphisme alpin (E.NIGGLI, 1960)

Le massif dans son ensemble correspond à la zone de néoformation du stilpnomélane, sauf l'extrême N et N-O, où le métamorphisme est quasi nul, et à la limite S-E, où il y a également néoformation de chloritoïde. Le métamorphisme va donc croissant du N-O au S-E, à mesure qu'on se rapproche des zones internes de la chaine.

III - 2 - 2 <u>Résultats géochronologiques Rb/Sr et K/A publiés par d'autres</u> auteurs

Ces résultats sont présentés au tableau qui suit. Tous les t Rb/Sr et K/A cités dans ce qui suit sont calculés, sauf indication contraire, avec : Rb⁸⁷: $\lambda = 1,47.10^{-11}a^{-1}$

 $K^{40}: \lambda \beta = 4,72.10^{-10}a^{-1}, \lambda e = 0,585.10^{-10}a^{-1}$

	-	n	
ъ	~	0	
	-	~	•

Roche	Référence	Minéral	t Rb/Sr	t K/A	Réf. auteurs
					(1)
Granite central de l'Aar	A2	b		23	(1)
Granite central de l'Aar	3	b	18,5±2		(4)
Granite central de l'Aar (faciès de bordure)	4	rt	249±40		(4)
Granite de Mittagfluh	A3	b	73	75	(1)(2)
	A3b	b		78	(1)
Granite de Mittagfluh	14	rt	193±21		(3)
Granite de Mittagfluh	25	rt	256±22		(4)
Granite de Hittagfluh	2	ъ	54±3		(4)
Granite de Mittagfluh	2	m	102±8		(4)
Granite de Mittagfluh	2	ab	2.200±250		(4)
b = biotite rt = roche t	otale m	= microc	line ab =	albite	
Références : (1) JAGER et F	AUL (1959)				
(2) JÄGER, GEI	SS, E.NIGGI	I, STRECK	KEISEN, WENK	, WUTHRICH	I (1961)
(3) JAGER (196	2)				
(4) WÜTHRICH (1963)				

Les principales conclusions tirées par les auteurs de ces mesures peuvent être résumées comme suit :

1) La biotite du granite central a recristallisé au cours du métamorphisme alpin ou a subi une altération assez importante, à ce moment, pour perdre tout son argon et tout son strontium radiogénique. Cette conclusion est soutenue par l'examen pétrographique :

- Dans le granite central, la biotite, vert-olive, est déchiquetée.
- Dans le granite du Gastern et le gneiss d'Erstfeld, au N-O flu massif, la biotite est brun-rouge, peu ou pas déformée. Elle est localement décolorée, dans le gneiss d'Erstfeld. WÜTHRICH a obtenu, pour la bictite du granite du Gastern :271±11 m.a. (Rb/Sr) ; pour la biotite inaltérée du gneiss d'Erstfeld : 298±12 et 305±12 m.a. (Rb/Sr); pour la bictite décolorée d'un autre échantillon de ce gneiss : 170±27 m.a. (Rb/Sr).
- Dans le granite de Mittagfluh, JAGER, KEMPTER, E.NIGGLI, et WÜTHRICH

(1961) ont distingué trois variétés de biotite, dont les deux variétés brune et vert-olive ; en outre, il y a une variété jaune et du stilphomélane. On obtient des "âges mixtes".

Il y a un parallélisme net entre l'intensité du métamorphisme, qui va croissant vers le S-E, les caractères de la biotite, et les résultats des "mesures d'âges".

2) Le microcline de Mittagfluh a également perdu du Sr⁸⁷. L'albite a réincorporé du Sr⁸⁷ libéré par les phases riches en Rb. Un diagramme exprimant Sr⁸⁷rad/Rb⁸⁷ (# temps) en fonction de Sr⁸⁷/Sr⁸⁸ montre qu'il n'y a pas eu une homogénéisation complète du Sr au moment du métamopphisme (WÜTHRICH 1953).

3) L'échantillon 14 de Mittagfluh "roche totale" ne s'est pas comporté en système fermé. L'échantillon 2 est prélevé au centre du massif. La valeur de 250 m.a., obtenue sur l'échantillon 2 comme sur le n°4, faciès de bordure du granite de l'Aar, peut représenter l'âge des deux granites ou fixe seulement une limite "jeune" : il y a pu avoir perte de Sr⁸⁷, tout comme dans le n°14.

III - 2 - 3 Description des échantillons de roche et de zircon

A. Localisation et description des échantillons de roche

Mittagfluh KAW 19. Tschingelbrücke, 2 km au sud de Guttannen. Rive gauche à la hauteur du pont, coord. 666.025/166.000.

Ce granite leucocrate a, en gros, conservé sa structure et sa composition minéralogique originelle. Le microcline maclé, perthitique n'est pratiquement ni déformé ni altéré. Le quartz présente des extinctions roulantes et souvent une fine bordure granulée. Le plagioclase (albite) se présente en longs prismes maclés, souvent courbés, parfois tronçonnés. Il est finement saussuritisé et parfois granulé sur les bords comme le quartz. Le biotite est peu abondante. Elle se présente en feuillets froissés, de composition hétérogène, où l'on distingue de prime abord surtout de la biotite verdâtre et de la muscovite fine intercallée, et de la chlorite. Il y a aussi de l'épidote associée à la biotite. Dans les fissures qui traversent la roche oh observe un peu de séricite et de chlorite, ainsi qu'une phyllite brun-jaune non déterminée. La roche est pratiquement dépourvue de sphène, minerai, apatite, mais on observe du zircon souvent coloré et de l'orthite métamicte probable. Les observations de JÄGER? KEMPTER, NIGGLI et WÜTHRICH 1961, sur les phyllites de ce granite, ont été citées plus haut. La phyllate brun-jaune observée dans notre échantillon pourrait être du stilpnomélane.

Granite central de l'Aar KAW 43. Route du Grimsel, sous le Räterichsbodensee, coord. 667.950/160.650 (même affleurement que A2 et 3, plus haut).

Plus riche en biotite que la roche précédente, ce granite présente une texture orientée de caractère mylonitique. Le microcline maclé et perthitique est peu déformé ; localement on y observe des clivages ouverfs en coin remplis par du quartz à extinction roulante. Le quartz est en grande partie granulé. Il se présente en rubans lenticulaires qui isolent des zones relativement préservées par la déformation, surtout composées de feldspath. Ce sont parfois des grains ou fragments isolés de feldspath qui baignent dans la mésostase de quartz granulé. Le plagioclase (albiteoligoclase), zoné et maclé, paraît plus trapu que dans Mittagfluh et est souvent courbé et tronçonné. Il est assez abondant et très saussuritisé surtout dans les parties centrales plus calciques. La biotite se présente en aggrégats de petits cristaux. Elle est verdâtre avec de rares intercallations de biotite brune, ainsi que de chlorite et d'épidote. Dans les fissures qui se poursuivent dans la roche, à partir de ces nids de biotite, se logent l'épidote et localement la séricite. L'orthite automorphe et maclée, non altérée, parfois entourée d'une bordure d'épidote, est associée à la biotite, de même que l'apatite, le zircon, le sphène.

Grimsel KAW 61. Nollenstrasse, 20 m. à l'ouest de l'extrémité du barrage du Grimselsee, coord. 668.725/158.325.

Plus foncée que le granite central, cette roche a une texture franchement mylonitique, orientée. On peut y distinguer des zones discontinues amygdalaires, à feldspath (surtout plagioclase) et biotite, où la structure paraît relativement préservée, et des rubans lenticulaires de quartz.

Le plagioclase est tronçonné. Il s'agit d'une oligoclase maclée et zonée, très saussuritisée au centre. Une bordure albitique inaltérée se présente au contact du feldspath K. La biotite brun-olivâtre est faiblement chloritisée et se présente en nids et filets onduleux autour des yeux de feldspath. Elle est plus homogène d'aspect que dans les deux roches précédentes mais présente des aiguilles de sagenite. Au voisinage des zones riches en biotite, qui est toujours associée à l'épidote et au sphène, le plagioclase est saussuritisé à l'extrême. Des résidus d'ilménite sont parfois inclus dans le sphène. Ce dernier minéral est le plus souvent bien cristallisé, mais se présente plus rarement en amas mrrondis de leucoxène. On observe une orthite semblable à celle du granite central de l'Aar. Le feldspath K, peu abondant, ne paraît que peu déformé, et inégalement. Il englobe parfois, dans une plage d'extinction uniforme, des fragments tronçonnés, légèrement déplacés, d'un même individu de plagioclase. Ailleurs, il est tronçonné lui-même, les vides étant remplis par du quartz.

Le quartz, à extinction onduleuse ou très granulé, est mobile et s'insinue entre les fragments brisés de feldspath (surtout de plagioclase). La séricite se présente dans des fissures continues, notamment en bordure des zones de quartz.

On remarquera la gradation Mittagfluh-Aar-Grimsel, dans l'intensité croissante du métamorphisme et de la déformation. Il y a aussi une gradation dans les caractères primaires, surtout la nature plus ou moins leucocrate de la roche. Des caractères géochimiques, primaires également selon toute probabilité, présentent une variation qui va de pair avec la pétrochimie. Ainsi Mittagfluh est considéré comme une intrusion marginale tardive. Ses caractères sont ceux d'un granite leucocrate très différencié à rapport Rb/Sr élevé (ce qui a permis des mesures en roche totale), et aussi, localement, riche en Th et U (HÜGI, 1956). Y sont associés des aplites, quartzporphyres, silexites dont la radioactivité peut être très élevée. Des sources radioactives prennent naissance dans le granite (HIRSCHI, 1948).

B. Description des concentrés de zircon

L'examen des concentrés n'a porté que sur les caractères qualitàtifs : forme, couleur etc. Les proportions, dimensions des grains ainsi que le degré de fréquence de certains caractères ont été estimés d'une manière seulement semi-quantitative, par l'examen de quelques centaines de grains, parfois moins de cent, répartis au hasard dans la préparation. On n'est pas assuré d'avoir un témoin représentatif des zircons présents dans la roche et une étude réellement quantitative n'aurait de sens que dans cette condition⁽¹⁾.

(1) C'est l'opinion que nous a exprimée le professeur HOPPE qui a examiné certains de nos concentrés des Monts Sör Rondane. Un assez grand nombre de grains seraient brisés lors du broyage de la roche. <u>KAW 61. Grimsel</u>. Euèdres ⁽²⁾, euèdres brisés (peut-être pendant le broyage de la roche) ; rares grains subeuèdres et irréguliers. Association des faces {110} {100} {111} , avec {110} en général plus développée que {100} : très fréquent. Pas de terminaisons aiguës. Rapport longueur/ largeur élevé (L/1). Riches en inclusions : Limpides, incolores à mauve pâle. Pas de zonage à proprement parler. Faible proportion de grains troubles, opaques, blanc laiteux. A fort grossissement, on devine une structure en mosaïque. Ces grains troubles sont fort semblables à ceux décrits par GRÜNENFELDER et HAFNER (1962) et GRÜNENFELDER (1963) dans deux roches granitiques du massif du St Gothard.

Proportions approximatives : zircons troubles <1% zircons limpides contenant un zircon trouble en inclusion 4% zircons limpides 96%

<u>KAW 43. Granite Central</u>. Euèdres, euèdres brisés, formes irrégulières plus rares, subeuèdres rares. Association de {110} {100} (111) très caractéristique, avec {110} en général plus développée que {100} . Pas de terminaisons aigüës (les faces de pyramides aiguës sont pratiquemment absentes, en tous cas peu développées, tout comme dans la roche précédente). Modérément allongés. Nombreuses inclusions : de longs prismes aciculaires (apatite ?) sont caractéristiques. Mauve pâle ou incolores. Il y a des grains troubles comparables à ceux observés dans Grimsel et des grains bruns troubles à divers degrés, mais non opaques. Zonage rare.

Proportions approximatives

zircons	bruns tro	publes, e	t tr	oubles	apparaise	sant	opaques	4	%
zircons	limpides	contenan	t un	zircon	trouble	en	inclusion	7	%
zircons	limpides							89	%

(2) Euèdre : à angles dièdres nets et non émoussés. Subeuèdre : angles dièdres distincts mais émoussés. Subarrondi : il subsiste des vestiges de forme cristalline. Si la distinction entre zircon euèdres et arrondis est nette, il y a une part de subjectivité dans la définition des catégories intermédiaires.







Photo 1

Granite du Grimsel KAW 61 Zircon clair contenant un zircon métamicte recristallisé en inclusion. Ce dernier a la même forme cristalline que l'enveloppe.

Photo 2

Granite de Mittagfluh KAW 19 Zircon métamicte recristallisé. La structure en mosaïque est reconnaissable sur les bords.

Photo 3

Orthogneiss de Flüela KAW 56 Zircon subeuèdre à terminaison complexe. Par rapport aux photos 1 et 2, noter la différence de forme. <u>KAW 19. Mittagfluh</u>. Euèdres ; plus rarement brisés, subeuèdres, irréguliers. Forme généralement simple à terminaison obtuse (face {111¹}). Rapport L/l assez faible, inférieur à 2,5 dans la grosse majorité des cas, pour les euèdres non brisés. Dans les zircons limpides, inclusions abondantes analogues à celles observées dans KAW 43. Le zonage est exceptionnel.

Proportions approximatives

zircons	troubles,	, apparaissant opaques au microscope	35	%
zircons	troubles	brun foncé (rarement brun-violacé)	36	%
zircons	limpides	brun foncé ou brun-violacé	5	%
zircons	troubles	incolores	< 1	%
zircons	limpides	avec inclusion de zircon noir ou brun	< 1	%
zircons	limpides	incolores ou mauve pâle	24	%

La fraction qui a fait l'objet des mesures, et qui est décrite plus haut, est la fraction peu ou pas magnétique. Il y a en outre une très forte proportion de zircons magnétiques, qui n'ont pas pu être séparés d'autres constituants.

Les concentrés de zircon extraits des trois roches présentent des caractères communs : une forme cristalline très simple, avec un petit nombre de faces, des inclusions nombreuses, mais jamais (ou presque) de zonage. Ceci est en accord avec l'opinion généralement exprimée : les trois roches sont apparentées génétiquement, et, au moins en gros, de même âge.

Il semble que les zircons de Grimsel soient plus allongés que ceux du granite central, ces derniers étant eux-mêmes plus allongés que ceux de Mittagfluh. Mais il faudrait des données quantitatives pour étayer cette observation.

Une gradation très nette se manifeste dans la proportion des grains troubles et bruns.La couleur brune,qui s'accompagne d'une biréfringence faible, caractérise des individus altérés, probablement métămictes. Les grains troubles pourraient être métamictes recristallisés, par comparaison avec les zircons extrêmement semblables décrits par GRÜNENFELDER et HAFNER, (1962) et GRÜNENFELDER (1963) dans deux roches granitiques hercyniennes du massif du St Gothard (Rotondo, Acquacalda)⁽¹⁾. Les observations de ces auteurs ont porté également sur la structure, la teneur en eau, la teneur

⁽¹⁾ Les photos publiées par GRUNENFELDER (1963) et certains éléments de sa description :"...meist einfacher Flächenkombination von Prisma und Dipyramide", indiquent qu'une certaine proportion de grains troubles n'est pas le seul caractère commun entre les zircons de la granodiorite d'Acquacalda et ceux des trois granites de l'Aar que nous avons étudiés. Tout indique une grande similitude de caractères.
en Hf, alors que nous nous sommes bornés à examiner nos concentrés au microscope et à la loupe binoculaire. Mais il n'y a guère de doute à avoir quant à la nature métamicte de ces zircons, puisque les teneurs en U que nous avons mesurées sont d'autant plus fortes que la proportion de zircons bruns et troubles est élevée. C'est dans Mittagfluh, la plus leucocrate et la plus tardive des trois roches, que l'on observe la proportion la plus élevée des zircons bruns et troubles ce qui va de pair avec une teneur en U de près de 1 %, tout à fait normale pour du "malacon". GRÜNEN-FELDER (1963) a montré que dans Acquacalda, les zircons troubles ont perdu davantage de plomb que les zircons limpides. Ce n'est là qu'un cas conforme à la règle générale établie par SILVER (1963 a,b) dont il a déjà été fait mention plusieurs fois.

Dans Grimsel et Aar on observe une forte proportion des grains troubles en inclusion dans des grains limpides. Il faudrait donc se garder d'un schéma trop simple d'enrichissement progressif en U dans un magma résiduel, et teneurs plus élevées dans les zircons de cristallisation tardive (notion classique présenté par divers auteurs) bien que cela rendrait compte par ailleurs des variations des teneurs en U en relation avec les caractères pétrochimiques respectifs des trois roches. D'un autre côté, l'observation de zircons métamictes inclus dans des grains clairs indique que la haute teneur en U d'une partie des individus cristallins est un caractère primaire.

Présence éventuelle d'impuretés uranifères

<u>Mittagfluh</u> : la fraction magnétique à 1,4 A, non magnétique à 0,9 A (non utilisée pour les mesures) contient, outre le zircon, un minéral brun qui est peut-être de l'orthite métamicte. Le comptage α donne pour cette fraction 5,4 % eq U.

La fraction utilisée (non magn. à 1,4 A) a une activité α correspondent à 0,85 % eq U. Cela correspond à la quantité d'uranium effectivement mesurée (0,97 % U), si l'on tient compte du fait que le concentré contenait des impuretés non radioactives solubles à l'acide nitrique. Il subsiste dans le concentré utilisé pour les mesures environ 5 % de fluorine.

<u>Grimsel</u> : L'activité mesurée (1.200 ppm eq U) sur le concentré non lavé à l'acide correspond bien à la teneur en U mesurée sur le zircon après lavage. La principale impureté dissoute est la pyrite.

<u>Granite Central</u> : Une impureté radioactive était très probablement présente dans la fraction soluble à l'acide. Le concentré non lavé a une teneur en eq U de 6.400 ppm, le zircon après lavage, 2.000 ppm. La proportion de Pb²⁰⁸ rad paraît incompatible avec une forte teneur en Th dans le zircon⁽¹⁾. Le concentré contenait environ 1 % de grains opaqués, et 1 % de grains transparents, appartenant à des espèces minérales non identifiées.

En ce qui concerne l'interprétation des âges, la question est importante. Une impureté très radioactive, même présente en très faibles proportions, peut altérer d'une manière importante l'"age pattern" (SILVER et DEUTSCH 1963, SILVER 1963a). Des minéraux comme l'uranothorite ou l'uraninite ont des comportements très différents de celui du zircon.

GRUNENFELDER (1963), par des mesures à la microsonde, a pu déceler dans des zircons troubles de la granodiorite d'Acquacalda, la présence d'inclusions très riches en U. Dans le cas de nos trois concentrés, on n'est pas assuré que tout l'uranium est présent dans le réseau du zircon, puisque ces concentrés contiennent des grains troubles très analogues.

III - 2 - 4 Mesures sur zircon

A. Résultats analytiques

Ces résultats sont présentés aux tableaux III - 2 - 4a) et b)

B. Plomb commun de correction

a) Plomb présent dans les échantillons.

On possède l'analyse isotopique, faite à l'Institut de Physique de l'Université de Berne du plomb d'une galène de la région du Grimsel (Be 109, CAHEN et al.,1958). Nos propres mesures spectrométriques ne présentent pas de déviations systématiques par rapport à celles du laboratoire précité. Nous pouvons donc faire usage de ces dernières⁽²⁾.

- (1) Ce serait une autre explication possible de la différence observée.
- (2) L'explication de cette restriction est donnée en détail en thèse annexe. L'idéal consisterait à n'utiliser que des mesures sans erreurs systématiques. A défaut, il convient de n'utiliser que des mesures affectées des mêmes erreurs systématiques. Nous pensons d'ailleurs que les mesures de Berne sont très bonnes.

Roche	Référence	Attaque	204	206	207	208	Pb rad/Pb total en %	Notes
Granite du Grimsel	KAW 61	1	0,2604 + 0,0010	100	9,108 ± 0,015	24,06 <u>+</u> 0,055	85,5	(1) (4)
Granite Central	KAW 43	1 3	0,955 0,202 <u>+</u> 0,013	100 100	$ \begin{array}{r} 19,27 \\ 8,135 \pm \\ 0,030 \end{array} $	46,74 18,01	57,5 88,2	(2) (4) (3) (4)
		4	0,356 <u>+</u> 0,0034	100	10,529 <u>+</u> 0,025	27.54 ± 0.07	80,9	(1) (4)
		5	0,2017 <u>+</u> 0,0013	100	8,178 ± 0,013	18,18 ± 0,03	88,2	(3)
Granite du Mittagfluh	KAW 19	1	0,361 <u>+</u> 0,0065	100	$10, 44 \pm 0, 036$	21,88 ± 0,08	79,8	(4)
		2	0,281 <u>+</u> 0,0025	100	9,496 ± 0,027	20,92 <u>+</u> 0,015	84,0	(1) (4)

TABLEAU III - 2 - 4 a). ANALYSES ISOTOPIQUES DU PLOMB DES ZIRCONS (MASSIF DE L'AAR).

(1) Analyse isotopique utilisée pour le calcul de la concentration en Pb radiogénique et des âges 206/238 et 207/235. Pour le calcul de la concentration en Pb radiogénique on a utilisé un diagramme triangulaire 206-207-208.

(2) Echantillon contaminé accidentellement.

(3) Broyé, lavé à l'eau régale.

(4) Plomb de correction galène Grimsel Be 109 : 206/204 = 18, 64; 207/204 = 15, 82; 208/204 = 38, 83

TABLEAU III - 2 - 4 b). MESURES DE U ET Pb ET AGES RADIOMETRIQUES EN MILLIONS D'ANNEES (MASSIF DE L'AAR).

Roche	Référence	Attaque	U p. p. m.	Pb rad	t 206/238	t 207/235	t 207/206
				p. p. m.			
Granite du Grimsel	KAW 61	1					315 + 25
		2	1290	56,9	273 <u>+</u> 11	277 <u>+</u> 15	
Granite Central	KAW 43	1	2033 (1)				(230)
		2	2027 (1)				
		3					260 + 130
		4	12029				315 + 55
		5					285 + 25
		6	2026	75,7	232 <u>+</u> 8	239 <u>+</u> 13	-
Granite de Mittagfluh	KAW 19	1					235 + 90
		2	9760	149	97 + 4	108 + 6	
		3					350 + 45
		4	9650	155	104 <u>+</u> 4	115 <u>+</u> 6	

(1) Spike C. I. T.

Une mesure faite sur l'acide de lavage de KAW 61 (Grimsel) confirme le fait que la roche a inclu au moment de sa cristallisation un plomb peu différent de Be 109. L'impureté dissoute est la pyrite, dans le cas présent.

	204	206	207	208
I Acide de lavage KAW 61	1	19,25	15,86	39,18
II Galène Be 109 (Berne)	1	18,64	15,82	38,83
I - II (fraction radiogénique)	0	0.61	∽ 0.04	0.35

Il y a une différence sensible entre les deux analyses, mais elle ne porte que sur les rapports 206/204 et 208/204. Cette différence est attribuable à la présence dans I de 1,33 % environ de Pb radiogénique, dont la composition isotopique très approximative est de 60 % de 206, 4 % de 207, 35 % de 208. Ce constituant radiogénique n'était pas nécessairement contenu dans la pyrite ; il peut provenir de l'apatite, du sphène, ou d'une impureté radioactive quelconque présente en petites quantités.

b) Plomb introduit au cours des manipulations

La composition isotopique du plomb commun "du laboratoire" n'est pas très différente de Be 109 (voir II - 3 - 2).

La première mesure faite sur KAW 43 est fort contaminée.(L'attaque a été menée dans un petit four à creuset. Chaque fois que ce four a été utilisé, une contamination importante a été constatée). Pourtant, si la correction est faite avec Be 109, on obtient pour t 207/206 une approximation correcte. On ne peut pas espérer mieux pour un échantillon jeune à 42,5 % de plomb commun.

Pour les trois échantillons, on peut donc estimer que l'incertitude sur la composition isotopique du plomb commun est réduite au minimum. Sur le rapport 207/204, on l'a estimée à \pm 0,1 (soit 6 °/₀₀); ce chiffre est évidemment arbitraire.

III - 2 - 5 Discussion des résultats et conclusions

Dans le cas qui nous occupe, on pourrait presque prévoir les résultats des mesures sur zircon, tant on possède d'indications géologiques et géochronologiques au départ. L'âge hercynien considéré comme probable par les géologues est confirmé par les mesures Rb/Sr en roche totale. La relation entre le désordre structural du zircon et l'importance des pertes de plomb, notée dans des roches de même âge affleurant dans le massif voisin du St Gothard permet de prévoir que le zircon de Mittagfluh aura perdu une plus grande proportion de son plomb que celui du granite central, et ce dernier plus que le zircon du Grimsel. Il n'y a donc aucune espèce de doute, semble-t-il, concernant les deux points suivants.

1) Les trois granites sont hercyniens. C'est la conclusion à laquelle on arriverait si on appliquait les règles habituelles d'interprétation des âges du zircon (et des âges au plomb en général). La première de ces règles est que un âge pattern concordant fournit des indications correctes sur l'âge de la cristallisation du minéral (cas de Grimsel). La seconde est que, lorsque l'age pattern est discordant, t 207/206 fournit la meilleure indication (cas du granite Gentral et de Mittagfluh). Cela reste vrai même si t 207/206 est affecté d'une large incertitude expérimentale. 2) La proportion de plomb radiogénique perdu est d'autant plus importante que la proportion de zircons bruns et troubles (métamictes et métamictes recristallisés) est forte, et que la teneur en uranium est élevée. On peut noter l'importance plutôt exceptionnelle de cette perte dans Mittagfluh, qui va de pair avec le caractère particulier du concentré de zircon extrait de cette roche : 75 % de malacon.

A part ces confirmations de points déjà assez bien établis, que peut-on conclure de ces mesures ? On peut d'abord préciser un peu l'âge du granite du Grimsel. Aucune indication très précise ne peut être déduite de t 207/206, pour plusieurs raisons : large erreur expérimentale, incertitude sur λU^{235} (1), existence de t 207/206 occasionnellement plus élevés que l'âge réel, pour des causes mal connues,etc. Par contre t 206/238 est plus précis expérimentalement et λU^{238} est connu à quelques pour mille près. Dans presque tous les cas, en ce qui concerne le zircon, t 206/238 doit être considéré comme fournissant seulement une valeur minimum de l'âge.

(1) On a admis que cette incertitude était inférieure à 2 % (I - 5 - 5). Mais une incertitude de 1 % seulement, admissible, entraîne une erreur de 10 % sur t 207/206 = 300 m.a. Dans le cas présent, on n'a aucune preuve que le zircon de Grimsel n'a pas perdu lui aussi une partie de son plomb ; au contraire, la présence d'une faible proportion de zircons troubles est une indication de perte probable. Il est beaucoup plus difficile de fixer à l'âge une limite supérieure. Comme la teneur en U est sensiblement plus faible, et la proportion de zircons troubles deux fois plus réduite que dans le granite Central, on est amené à penser que la proportion de plomb radiogénique perdue est aussi sensiblement plus faible. Cela nous amène à fixer un âge de quelque 300 \pm 30 m.a., ce qui signifie en termes stratigraphiques : Houiller ou Viséen. Les valeurs de 250 m.a. obtenues sur Mittagfluh et sur un faciès marginal du granite Central sont donc très vraisemblablement un peu trop faibles.

Du point de vue de l'interprétation des âges apparents, des modalités des pertes de plomb, etc, il est également possible d'apporter quelques précisions. Nous possédons semble-t-il les premiers "âges discordants" certains pour des zircons aussi jeunes. Les autres résultats publiés dont nous avons connaissance sont des cas de concordance, réelle ou apparente, et de t 207/206 imprécis. Cela nous offre la possibilité de réexaminer la vraisemblance de l'hypothèse de RUSSEL et AHRENS (1957) concernant une perte préférentielle de Pb²⁰⁷.

Pour fixer les idées, considérons divers cas théoriques de perte de plomb. L'âge du minéral est de 300 m.a., la proportion de plomb perdue est de 50 %.

1) Perte épisodique sans fractionnement

1

Moment de la perte	t 206/238	t 207/235	t 207/206
O m.a.	152	161	300
30 m.a.	167	174	278

2) Perte épisodique avec fractionnement de 4 % en faveur du 207. On fait l'approximation suivante : 50 % du Pb²⁰⁶_{rad} est perdu, et 52 % du Pb²⁰⁷_{rad} RUSSEL et AHRENS invoquent des pertes avec fractionnement de 9 % ; CATANZARO et KULP, 1964, admettent la possibilité de fractionnements de 4 à 6 %.

loment de la perte	t 206/238	t 207/235	t 207/206
O m.a.	152	155	205
30 m.a.	167	168	198

Si l'on compare ces chiffres aux données du tableau III - 2 - 4 b), il apparaît clairement que des fractionnements aussi importants que ceux postulés par les auteurs cités n'ont pu se produire, en tout cas dans Mittagfluh. Tout au contraire, il ne paraît pas que t 207/206 soit plus faible que l'âge probable de 300 m.a.⁽¹⁾. A première vue, on est tenté de conclure à la perte récente, sans fractionnement. Une certaine prudence s'impose cependant car il s'agit d'un t 207/206 affecté d'une erreur de peut-être 10 % (au maximum 20 %) due à l'incertitude sur λU^{235} . Nous ne pensons pas que l'on puisse espérer distinguer, en pareil cas, entre perte récente ou ancienne, et, dans cette éventualité, épisodique ou continue. Il est très concevable aussi que les erreurs expérimentales présentées au tableau(III -2 - 4 b) aient été un peu sous-estimées dans le cas de certains t 207/206. Comme on l'a vu au chapitre traitant de la spectrométrie de masse, il y a une part d'arbitraire dans le calcul d'erreur, à cause de la correction du plomb commun. On pourrait fort bien imaginer aussi qu'une perte de radon ait pu accompagner la perte de plomb, mais elle n'a pas pu dépasser quelques pour cent ; en effet, au cas contraire, t 207/206 aurait été beaucoup trop élevé.

On notera que dans le cas présent c'est le facteur désordre structural qui conditionne l'importance des pertes de plomb, beaucoup plus que des différences dans l'intensité du métamorphisme : c'est le zircon de la roche la moins métamorphique qui a perdu le plus de plomb.

Il y a divers arguments en défaveur d'un enrichissement secondaire en uranium (ce qui constituerait théoriquement une autre explication des age. patterns observés). D'après les teneurs actuelles en U et Pb rad, on peut voir que si un tel enrichissement s'est produit il y a 70 m.a., ou plus récemment, il a affecté de préférence des zircons qui étaient déjà plus riche à ce moment là en plomb radiogénique. Il y a des arguments pétrochimiques et minéralogiques pour affirmer que les teneurs élevées en U de certains cristaux de zircon, ou même de parties de cristaux constituent un caractère primaire.

(1) C'est l'âge probable de Brimsel, comme on a vu plus haut, et si les deux granites ne sont pas exactement de même âge, il est admis que Mittagfluh est un peu plus jeune (pour des raisons géologiques).

CHAPITRE 3. GRANITE DE BAVENO - MONTE ORFANO (OU DU LAC MAJEUR)

III - 3 - 1 Introduction géologique

Le granite du Lac Majeur s'étend sur une douzaine de km, à l'ouest du lac. L'affleurement de Monte Orfano n'est séparé de l'affleurement principal Baveno que par les alluvions de la rivière Toce ; il «'agit d'un seul et même massif granitique.

Le granite est intrusif dans les "gneiss de la zone de Strona". L'intrusion est discordante et a des caractères post-tectoniques (SCHILLING 1957).

En ce qui concerne l'âge du granite et des gneiss, deux conceptions se sont opposées durant plusieurs décades : pour certains auteurs, notamment STAUB (1924) la région constitue les racines des nappes austro-alpines (y compris la zone d'Ivrée au N.). Métamomphisme et intrusion seraient d'âge alpin. Pour d'autres, cet ensemble fait partie des Dinarides ou Alpes du Sud, séparées par la ligne insubrique de la région des racines. Le granite de Baveno-Monte Orfano serait hercynien. Le détail de cette discussion est exposé par SCHILLING (1957).

Les mesures d'âges de FAUL et JXGER (tableau III - 3 - 2) ont montré que c'était la deuxième hypothèse qui était exacte. Les mesures sur zircon ne sont pas susceptibles d'apporter beaucoup d'éléments neufs dans la discussion géologique, mais seulement une confirmation. Elles fournissent l'occasion de comparer, pour un granite jeune, des résultats sur zircon, avec un ensemble d'âges Rb/Sr et K/A très concordant.

Le granite a été décrit par GALLITELLI (1937,1938) et par SCHILLING (1957). On y distingue deux variétés : rouge, à géodes ; blanc, plus pauvre en géodes. GALLITELLI distingue dans Baveno deux variétés de biotite, de la muscovite et de la ziunwaldite probable. Dans les géodes de la variété rouge, on rencontre des minéraux de terre rare, uranifères et thorifères. L'uraninite a été décrite parmi les accessoires de Baveno (DEUTSCH et PICCIOTTO 1956).

L'affleurement de Monte Orfano est constitué principalement de la variété blanche. A la différence de Baveno, on y observe de nombréuses enclaves foncées, de petite dimension ; la roche originelle serait un schiste biotitique (GALLITELLI, 1938). Sur le versant N-O du mont, se présente une masse lenticulaire chloritisée : le "granite vort de Mergozzo". Ce serait pour SCHILLING un faciès autométamorphique du granite de Monte Brfano. Mises à part quelques manifestations d'autométamorphisme, le granite de Baveno-Monte Orfano n'est pratiquement pas métamorphisé, ni mylonitisé. C'est une des raisons pour lesquelles certains auteurs l'ont considéré comme alpin. Mais dans les Alpes du Sud, le métamorphisme alpin est le plus souvent faible. Des mesures quantitatives sur les halos pléochroïques de la biotite indiquent un effacement partiel de ces derniers, à l'époque alpine (DEUTSCH, PICCIOTTO et E.NIGGLI 1958). On reviendra sur cette question au chapitre 6 ; disons seulement qu'une action métamorphique très faible est susceptible de provoquer cet effacement. CHESSEX (1962), par des mesures sur le dommage dû à la radioactivité dans le réseau du zircon (degré de métamictisation) met également en évidence une action alpine de restauration de la structure.

III - 3 - 2 Résultats géochronologiques publiés par d'autres auteurs

Mesures Rb/Sr et K/A (JÄGER et FAUL, 1959. JÄGER, GEISS, NIGGLI, STRECKEISEN, WENK, WUTHRICH, 1961).

Roche		Réi		Minéral	t K/A	t Rb/Sr $(\lambda_{Rb}^{87}=1,47.10^{-11}an^{-1})$
Gr.de	Baveno(var.bl.)	A	9	biotite	269	-
Gr.de	Monte-Orfano	A	8	biotite	268	274
		Α	⁸ s	feldspath	-	275

Diverses mesures sur zircon

Mesures "Plomb total" (BUCHS, CHESSEX, KRUMMENACHER et VUAGNAT 1962). Baveno, deux échantillons : 398 m.a., 463 m.a. Mesures "dommages dus à la radioactivité" (CHESSEX,1962). Baveno, trois échantillons : 76 ± 8, 73 ± 7, 96 ± 11

III - 3 - 3 Description des échantillons de roche et de zircon

A. Localisation et description des échantillons de roche

Pa 59/4 et Pa 60/2. Baveno, variété blanche. Deux échantillons prélevés au même affleurement ont été réunis. Carrière à 350 m à l'est de la chapelle de Madona della Scarpia, route de Baveno à Gravellona Toce.

Ce granite blanc à grain moyen n'est ni orienté, ni cataclasé. Le feldspath manque d'éclat, bien que l'on se soit efforcé de prélever un échantillon aussi frais que possible.

En lame mince, le feldspath K se présente en grandes plages perthitiques maclées Carlsbad. Il est à tendance poeciloblastique en bordure et y renferme de grandes inclusions des autres constituants de la roche. On observe souvent une couronne continue, simple ou double, de petits grains de plagioclase entre deux plages contiguës de feldspath K. Ce dernier est criblé d'une fine poussière brunâtre dans certaines zones altérées, cui se répartissent d'une manière floue et irrégulière. Le quartz est à tendance amoeboïde. Il est onduleux, avec une tendance à la granulation sur les bords. Il corrode le feldspath K. Le plagioclase (oligoclase), assez trapu, est maclé et zoné, saussuritisé surtout dans les parties centrales. Une bordure albitique inaltérée s'observe au contact du feldspath K. La fine poussière brunâtre qui crible ce dernier minéral est d'observation occasionnelle dans le plagioclase également et se distingue de la saussuritisation habituelle. La biotite peu abondante, est brun-rouge, parfois chloritisée. Il y a du minerai dans les clivages de la chlorite, L'épidote est pratiquement absente, mais on observe un carbonate. Le zircon est petit et associé à la biotite.

Pa 60/3. Monte Orfano. Carrière au bord de la route Pallanza-Gravellona Toce, du côté nord de celle-ci, à 2 km 950 de Gravellona Toce.

En affleurement, on observe une grande abondance d'enclaves de quelques cm, riches en biotite, ovalaires et assimilées à des degrés divers. On a veillé à prélever des blocs presque dépourvus de ces enclaves.

Ce granite est plus riche en biotite que Baveno blanc, mais à part cela, les deux roches sont très semblables. L'altération submicroscopique du feldspath est moins répandue. Le quartz est un peu moins onduleux. La biotite est brun-rouge, localement chloritisée. S'y associent en très faibles proportions le zircon, le minerai, l'apatite. Minerai et épidote accompagnent la chlorite. <u>Pa 59/3 et Pa 60/1. Baveno, variété rouge</u>. Grande carrière du Mont Camoscio. Aucune mesure n'a été faite sur le zircon de cette roche, dont on n'a récupéré que de faibles quantités. La roche se distingue des deux précédentes par la teinte rouge du feldspath K. Ce dernier est presque toujours sans éclat, et il est difficile de prélever un échantillon de roche qui paraisse frais.

En lame mince, on observe les particularités déjà notées dans les deux autres roches avec peu de différence. L'altération du feldspath K est ici plus développée encore que dans Baveno blanc, et a le même caractère. Ce feldspath renferme quelques plages d'albite, à grosses paillettes de séricite, en continuité avec l'albite de la perthite. Le quartz a des extinctions onduleuses, mais pas de granulation. La bordure externe des grains zonés d'oligoclase-albite présente parfois au contact du feldspath K un aspect myrmétitique ou est consituée de bourgeons très petits. La biotite est verdâtre, avec des résidus de biotite brune, et de la chlorite. Sont associés à ces minéraux, le zircon, l'orthite ? altérée, le minerai dans les clivages de la biotite verte, une phyllite brun-jaune non identifiée. La muscovite s'observe rarement.

B. Description des concentrés de zircon

<u>Pa 59/4 et Pa 60/2.Baveno blanc</u>. Euèdres, euèdres brisés ; plus rares : irréguliers, subeuèdres trapus, subarrondis. Forme simple analogue à celle observée dans le granite central de l'Aar : {111} , {100} et {110} ; {100} apparaît toutefois plus développée que {110} . Modérément allongés et très petits : la majorité des grains sont plus courts que 100 ^M. Limpides, incolores à mauves, avec quelques grains bruns. Le zonage est fréquent. Quelques grains à inclusion de zircon souvent plus métamicte, ou non zoné. Inclusions diverses, dont prismes aciculaires.

<u>Pa 60/3. Monte Orfano</u>. Euèdres, euèdres brisés ; irréguliers ; subeuèdres rares et arrondis pratiquement absents. Quelques grains présentent des excroissances. Plus grande variété dans les terminaisons que dans Baveno: parfois simples et obtuses avec {111}, mais aussi association à cette face d'une pyramide aigué. Plus allongés et plus grands que dans Baveno. Inclusions assez peu abondantes (peu de différence à cet égard avec Baveno). Rares inclusions de zircon métamicte souvent trouble. Limpides, incolores à mauves pâles. Zonage peu fréquent. Il y a des différences notables entre les deux populations de zircon, en dépit du fait qu'elles proviennent d'échantillons prélevés au sein du même massif granitique. Est-ce en relation avec le fait que Monte Orfano paraît avoir assimilé des roches encaissantes ? On n'y observe pas, en tous cas, une proportion anormale de zircons courts et arrondis, pouvant être détritiques.

Un examen rapide des zircons de Baveno rouge (Pa 60/1) révèle des caractères pratiquement identiques à ceux des zircons de Baveno blanc : forme simple avec {111}, faces de pyramide aiguë exceptionnelles, zonage fréquent. Dans l'ensemble, les grains ne paraissent pas aussi fins. Pour 100 kg de roche traitée, on a récupéré moins de 1 gr de zircon : c'est là un cas extrême de pauvreté en zircon dans un granite, à moins que les zircons les plus fins n'aient pas été récupérés.

Sauf dans Monte-Orfano, on retrouve certains caractères déjà cités : forme simple avec { 111 } , et teneurs en U assez élevées, ce qui est aussi un caractère des trois granites de l'Aar étudiés. Mais il n'y a pas de zircons troubles "métamictes recristallisés", et le zonage est fréquent. Enfin la finesse du zircon et sa rareté paraissent aussi être des caractères propres avec variétés rouges et blanches du granite de Baveno, et qui les distinguent des granites de l'Aar.

Impuretés uranifères et autres dans les concentrés

Le concentré final de Baveno blanc, avant lavage à l'acide, contenait encore 20 % d'impuretés : fluorine (10 %), apatite, minerai, minéral brun non identifié, quartz, sphène (peu abondant). Les opérations de séparatioh mécanique n'ent pas été poussées plus loin, de crainte de perdre une partie de la faible quantité de zircon récupérée, dans l'ignorance où l'on étáit de sa teneur en U. On a procédé, après lavage à l'acide nitrique, à un bain prolongé dans l'acide sulfurique (HOPKIN and WILLIAMS "Pb <0,005 ppm") ; pour dissoudre la fluorine. Comme le montrent les chiffres qui suivent, une impureté très radioactive a été dissoute par les acides nitrique et sulfurique. On n'est pas assuré qu'elle ait été éliminée quantitativement : de rares grains noirs s'observent encore dans le concentré final. Un tri sous le binoculaire a été opéré, mais on ne peut affirmer qu'il ait été suffisant. Les concentrés Baveno rouge et Monte-Orfano sont beaucoup plus pauvres en ce constituant très actif.

Echantillon	Activi

Activité α en eq ppm U Teneur en U du concen-(concentrés non lavés) tré (après lavage à l'acide)

 Baveno blanc Pa 59/4+Pa 60/2
 22.000 ppm(2,2%)
 2.720 ppm

 Baveno rouge
 Pa 60/1
 2.700 ppm
 n.d.

 Baveno rouge
 Pa 59/3
 1.900 ppm
 n.d.

 Monte Orfano
 Pa 60/3
 2.300 ppm
 1.765 ppm

Pa 59/3 est un échantillon du granite rouge altéré. Pa 60/1 est un peu plus frais.

La teneur en Pb²⁰⁸ rad du zircon Baveno blanc est trop faible pour que l'activité très élevée du concentré (exprimée en eq U) soit attribuable au Th présent dans le zircon. Des analyses isotopiques des acides de lavage confirment la présence de U et Th, ou en tous cas de leurs descendants radiogéniques, dans les minéraux dissouts aux acides (voir plus loin).

III - 3 - 4 Mesures sur zircon

Plomb commun de correction et plomb des acides de lavage (tableau III-3-4C)

Les analyses isotopiques révèlent, dans l'acide nitrique de lavage aussi bien que dans l'acide sulfurique, un mélange d'un constituant commun, et d'un constituant radiogénique. Si l'on fait une hypothèse plausible sur la composition isotopique du constituant commun, on doit trouver pour le rapport 207/206 de la "fraction radiogénique" obtenue par soustraction, une valeur conforme à l'âge jeune du granite (< 500 m.a.), c'est-à-dire proche de 0,05. C'est ce que l'on trouve en effet, à peu près, en soustrayant du total Be 109 (galène du Grimsel), dans les deux cas.

Par ailleurs, des analyses isotopiques de plombs communs de galènes cu de feldspaths, provenant des Alpes suisses et italiennes, ne montrent qu' une faible variation en ce qui concerne le rapport 207/204 : de 15,69 à 15,84 pour 13 galènes (EBERHARDT et al.,1955 ; CAHEN et al.,1958).

On a utilisé comme plomb de correction un plomb de composition : 1 18,6 - 15,8 - 38,9. On a admis que le rapport 207/204 était exact à \pm 0,1 près.

On ne peut faire que des hypothèses concernant les impuretés radioactives

		TABLEAU	III - 3 - 4. GRANIT	E DE BAVE	NO - MONTE O	RFANO - N	ESURES SUR ZI	RCON.			
A. Analyses isotopiq Roche	ues du plor Référence	nb des zire Attaq	ue 204		206	207	201	3	Pb rad/Pb total e	n % Notes	
Granite de Baveno (blanc)	Pa 59/4 Pa 60/2	+, ~ 1	0,2475	±	100	8,905 <u>+</u> 0,016	22,	05 <u>+</u> 36	86,0	(*	2)
		4	0,1032 0,0019	±	100	6.709 0.017	<u>+</u> 17,6 0,0	5 <u>+</u> 6	93,9	(1) (2)
Granite de Monte Orfano	Pa 60/3	1	0.0754 0.0011	±	100	6,518 0,011	± 10,8 0,0	4 <u>+</u> 20	95,2	(1) (2)
B. Mesures de U et F	b et âges r	adiométric	ques (en millio	ons d'ann	ées).						
Roche	Référence	Attaq	ue Uppm	Pl	b rad ppm		t 206/238	1	207/235	t 207/2	06
Granite de Baveno (blanc)	Pa 59/4 Pa 60/2	+ 1	2720		117		269 + 11	2	73 + 14	310 <u>+</u> :	3 5
		3 4								- 285 + 1	(5)
Granite de Monte	Pa 60/3	1								385 + 1	20
Orfano		2 3	1765		68.7 67,6 } 68.	t	253 <u>+</u> 9	2	66 <u>+</u> 11		
C. Analyses isotopiq	ues du plon	nb extrait	des acides de	lavage.							
Roche	Référence	Acide	Minéraux dissouts	204	206	207	208	Fract	ion radiogénique	(3)	Pb rad/Pb total en
Granite de Baveno blanc	Pa 59/4 + 60/2	nitrique	apatite, sulfures, minerai noir (?)	1	22,19	15,96	41, 55	55	207 %	208 % 42	7,9
	idem	sulfuri - que (4)	fluorine minerai	1,144	100	22,47	66,83	74,6	4,14	21,25	55,4
			noir	1	87,4	19,64	58,42				

96

(1) Analyse isotopique utilisée pour le calcul de la concentration en Pb radiogénique et des âges 206/238 et 207/235.

(2) Plomb de correction : 1 18,6 15,8 38,9

(3) En soustrayant du plomb total un plomb "commun" de composition 1 18,64 15,82 38,83 (Galène Grimsel, Be 109).

(4) Le concentré a été traité à l'acide sulfurique après traitement à l'acide nitrique.

(5) Cette mesure a été éliminée à cause de la mauvaise résolution.

contenues dans <u>Baveno</u>. De l'uraninite non thorifère a été signalée dans ce granite (DEUTSCH et PICCIOTTO, 1956). Ce minéral se dissout très rapidement dans l'acide nitrique. Or, on retrouve dans cet acide, outre le plomb d'uranium prévu (207 et 206) du plomb 208 provenant de la désintégration du thorium, et du plomb commun en abondance. Enfin, il y a également du plomb radiogénique dans la fraction soluble à l'acide sulfurique. D'après les comptages α effectués avant et après les traitements à l'acide, la fraction dissoute dans les deux acides a une teneur d'environ 10% eq U. Cette fraction étant largement constituée d'apatite, de sulfures, de fluorine, il faut conclure qu'il existe dans <u>Baveno</u> un ou plusieurs minéraux non identifiés très riches en U et Th , se présentant sous l' aspect de grains noirs ou bruns.

III - 3 - 5 Discussion des résultats et conclusions

Tout comme dans le cas des granites du massif de l'Aar, les conclusions sont limitées par deux faits : les t 206/238 ne représentent que des âges minima, et les t 207/206 (a priori la "meilleure valeur de l'âge") sont affectés d'une double imprécision : expérimentale, et due à l'incertitude sur λv^{235} .

Une première constatation : les erreurs expérimentales ne peuvent pas expliquer la différence entre les t 207/206 de Baveno, d'une part, et de Monte Orfano, de l'autre. Or il est clair que les deux roches ont le même âge. L'usage d'une autre valeur de λU^{235} amènerait à calculer deux valeurs plus faibles, ou deux valeurs plus élevées : elle ne changerait rien à la différence observée, qui est de quelque 100 m.a.

Il y a donc au moins un de ces deux âges apparents qui ne correspond pas à la date de misé en place du massif granitique. C'est probablement la valeur de 385 m.a. qui est inexacte, pour plusieurs raisons : a) Il est normal, prévisible, d'observer des valeurs de t 207/206 trop élevées pour un zircon extrait d'une roche riche en enclaves e‡naflogènes. Si ceci n'a pas été jusqu'à présent démontré par des mesures isotopiques, certains auteurs ont prévu pareille situation, et des résultats Pb/α l'ont confirmée (cf section I - 5 - 5).

b) Dans cette hypothèse, il y a bon accord entre les résultats Rb/Sr, K/A, et sur zircon : le granite est âgé de quelque 270 à 300 m.a. (si l'on utilise la valeur $\lambda = 1,39.10^{-11} \text{ an}^{-1}$ pour calculer les t Rb/Sr, ceux-ci sont de 290 m.a.). Le fait que pour Monte Orfano A 8 + A 80, t Rb/Sr du feldspath soit égal à t Rb/Sr de la biotite suggère que ni l'un, ni l'autre de ces minéraux n'a pardu de Sr⁸⁷ car en pareil cas, leur comportement est très différent. En somme, on peut dire que à elles seiles ces mesures Rb/Sr établissent un âge de 270 - 300 m.a. pour le granite. c) Aucune explication raisonnable ne paraît pouvoir justifier l'hypothèse inverse, qui voudrait que le granite ait quelque 400 m.a.

On peut donc conclure que l'âge apparent t 207/206 mesuré sur le …ircon de Monte Orfano est plus élevé que l'âge réel de mise en place du granite. La présence d'enclaves suggère la réincorporation de zircons anciens à partir des roches encaissantes. Mais cette explication est-elle évidente ? N'y a-t-il pas d'autres possibilités ?

L'hypothèse d'une perte de radon de 5 à 6 % par le zircon Monte Orfano rend compte à merveille des chiffres : les t 207/235 relatifs aux zircons des deux granites coïncident très bien à 270 m.a., valeur assez probable pour l'âge.

Au contraire, la théorie "réincorporation de zircons anciens" ne rend pas compte d'un t 206/238 sensiblement plus faible que l'âge réel, dans le cas de Monte Orfano. Si on exclut la perte de radon, l'âge pattern ne pourrait résulter que de la combinaison accidentelle de deux causes indépendantes : présence de zircons anciens et perte de plomb. Notre préférence va pourtant à l'hypothèse des "zircons réincorporés", pour plusieurs raisons :

- 1) Il n'y a aucune observation indépendante en faveur de la perte de radon.
- 2) Au contraire, la présence d'enclaves rend vraisemblable l'existence de zircons anciens.
- 3) Invoquer une perte de plomb dans le cas de Monte Orfano n'est pas introduire une hypothèse supplémentaire. C'est se placer dans la situation habituelle puisque les cas de pertes sont plus fréquents que les cas d'absence de perte (en ce qui concerne le zircon).

Pour lever toute incertitude, il serait souhaitable de multiplier le nombre de mesures, aussi bien sur des échantillons de granite sans enclaves que sur des granites avec enclaves.

Les mesures sur zircon confirment donc l'âge de 270 - 300 m.a., déjà établi par les résultats Rb/Sr et K/A. A la rigueur, on pourrait concevoir un âge un peu supérieur à 300 m.a., et des pertes sensibles de Pb, Sr, A mais cela n'est probable en aucune façon. L'âge stratigraphique est donc Carbonifère supérieur (Stéphanien ?) ou Permien inférieur.

Les âges "plomb total" déterminés par BUCHS et al. 1962, sur des zircons de Baveno sont trop élevés. Peut-être les échantillons qui ont fait l'objet de ces mesures étaient-ils riches en plomb commun.

CHAPITRE 4. GRANITE D'HABKERN

III - 4 - 1 Introduction géologique

Ce granite n'est connu que sous forme de blocs exotiques dans le Flysch ultra-helvétique d'Habkern et dans les moraines situéesplus au nord. Les blocs peuvent atteindre une très grande dimension : jusqu'à 13.000 m². Ils proviennent d'une falaise granitique, vraisemblablement, et plusieurs auteurs s'accordent pour admettre qu'ils n'ont pu être transportés loin de la côte (LUGEON, 1916, SODER, 1949, etc.). Cependant, d' après TRÜMPY (1960), notamment, les phénomènes de slumping sont importants dans le "Wildflysch". Le lieu où s'est opéré la sédimentation est situé plusieurs dizaines de km au sud de l'emplacement actuel. Il faut se référer à un cadre géographique antérieur aux phases majeures de la déformation alpine : "..quelque part sous les nappes penniques" pour LUGEON (1916). Le lieu exact est donc inconnu. La ressemblance du granite d'Habkern avec les granites verts et rouges des nappes austro-alpines inférieures a été notée (CADISCH et E.NIGGLI 1953). Le dépôt du Wildflysch ultra helvétique date de l'Eocène supérieur. Tout ce que la géologie nous apprend sur l'âge de ce granite est donc qu'il est ante-Eocène supérieur. La phase principale de charriage de l'ultra helvétique et de son glissement vers le nord se serait opérée peu de temps après le dépôt (TRUMPY).

Le granite d'Habkern ne présente pas de trace du métamorphisme alpin : ceci grâce à sa position tectonique élevée, et au fait que les bhocs sont enrobés dans une matrice à grain fin. Les mesures sur halos pléochroïques (PASTEELS 1960), confirment cette absence de métamorphisme (à la différence, donc, de Baveno), et ont permis de proposer pour ce granite un âge de l'ordre de 300 m.a., c'est-à-dire hercynien.

III - 4 - 2 Mesure Rb/Sr (JIGER, 1962)

Seule une mesure a été faite, sur la biotite extraite d'une partie de l'échantillon KAW 25 ; le reste de cet échantillon nous a été remis par Mlle E.JÄGER, pour la séparation du zircon.

t Rb/Sr de la biotite : 267 ± 11 m.a.

JNGER conclut que la roche pourrait être de même âge que les granites de Baveno.

III - 4 - 3 Description des échantillons de roche et de zircon

A. Localisation et description de l'échantillon de granite

L'échantillon KAW 25 provient de Forst, près de Thoune. Il s'agit des fragments d'un bloc miné deux ans avant l'échantillonage.

Le granite est d'aspect très frais, à grain moyen, à feldspath K rouge développé localement en phénoblastes. Il y a quelques enclaves efindlogènes à grain très fin, ainsi que des zones enrichies en biotite, qui pourraient témoigner de l'existence d'enclaves résorbées. La texture est massive.

La roche est constituée de feldspath K, quartz, plagioclase, biotite olivâtre, minerai, apatite, zircon. Le feldspath K non maclé, légèrement perthitique, est poeciloblastique, et corrode le plagioclase. Ce dernier est zoné : environ 30 % An au centre, à 10 - 15 % An à la périphérie, avec une bordure franchement albitique, localement myrmékitique au contact du feldspath K.

Une altération localisée se traduit par une intense chloritisation de la biotite. Cette chlorite a une couleur d'interférence anormale violacée (pennine ?) et parfois une structure fibro-radiée. Des plages voisines sont entièrement pseudomorphisée en un minéral submicroscopique associé à la séricite très fine, et peut-être d'autres constituants, tous très fins. D'autres plages sont pseudomorphisées en calcite. Toujours dans les zones altérées, les parties centrales du plagioclase sont très saussuritisées. Un minéral secondaire indéterminé, parfois fibro-radié, occupe les fissures élargies du feldspath K. Une légère cataclase s'observe par place : quartz et feldspath K onduleux, etc.

B. Description du zircon

KAW 25. Euèdres, euèdres brisés ; irréguliers : plus rares ; subeuèdres et arrondis pratiquement absents. Terminaisons souvent simples avec large développement de { 111 } . Mais parfois association de cette face avec une pyramide aiguë. Allongés et plus grands dans l'ensemble que dans Monte Orfano. Inclusions peu abondantes, de mêmœs types que dans Monte Orfano. Il y a des "noyaux" de zircon de propriétés différentes (plus riches en inclusions, ou plus métamictes, etc.). Limpides, mauves ou incolores. Zonage occasionnel.

Dans l'ensemble, on peut noter une certaine ressemblance avec les zir-

cons de Monte Orfano Pa 60/3. Mais on ignore quelle indication on pourrait tirer de cette similitude, puisque Monte Orfano lui-même présente des différences notables avec deux échantillons de Baveno.

III - 4 - 4 Mesures sur zircon

Résultats analytiques

Analyse isotopique du plomb du zircon

	204	206	20	07	208	Pb rad/ Pb total en %
Attaque 1	0,307±0,0030	100	9,784:	10,019	24,93±0,042	83,1
Pb commun d	le correction :	1	18,6	15,8	38,9 (comme et Mo	pour Baveno nte Orfano)
On a admis	une incertitude	e de ±	0,2 su	207/20	4 = 15,8	

Mesures de U et Pb et âges radiométriques (en m.a.)

	U ppm	Pb rad ppm	t 206/238	t 207/235	t 207/206
Attaque 1					310 ± 60
Attaque 2	1507	50,6	210 ± 8	218 ± 13	
Attaque 3	1502	50,6	211 ± 8	219 ± 13	

III - 4 - 5 Discussion des résultats et conclusions

La mesure confirme l'âge hercynien du granite, t 207/206, tout imprécis qu'il soit, étant voisin de 300 m.a. Le zircon a perdu une fraction importante de son plomb radiogénique. Cette perte paraît difficilement pouvoir être imputée au métamorphisme. A ce propos, on peut renvoyer à l'article récent de WASSERBURG (1963), déjà cité dans les chapitres introductifs : les pertes de plomb sont gouvernées par des facteurs nombreux, et le métamorphisme n'est qu'un de ceux-ci (lui-même complexe). La raison pour laquelle le zircon de Habkern a perdu autant ou davantage de plomb que le zircon du granite Central de l'Aar, par exemple, n'est pas connue. Constatons simplement le fait que t 206/238, dans le cas présent, est une valeur trop basse, ce qui est conforme avec ce qui est généralement admis : t 206/238, pour le zircon, ne fixe qu'une valeur minimum de l'âge.

La mesure sur zircon ne permet pas de préciser si l'âge du granite est réellement de 267 ± 11 m.a. Il n'y a pas de preuve que la biotite n'ait pas perdu une faible proportion de son Sr⁸⁷rad. La possibilité invoquée par JMGER, que le granite appartient au groupe d'âge de Baveno n'est donc pas contredite, mais pas davantage établie avec certitude.

Notons la présence d'enclaves dans le granite : t 207/206 pourrait éventuellement être un peu trop élevé. L'imprécision expérimentale ne permet aucune conclusion à ce sujet.

CHAPITRE 5. GNEISS DE LA SILVRETTA

III - 5 - 1 Introduction géologique

La nappe austro-alpine de la Silvretta (Grisons) est la plus élevée des Alpes suisses (STRECKEISEN 1928). On peut la considérer comme une large écaille de soubassement cristallin charriée vers le nord sur les éléments austro-alpins moyens et inférieurs, et penniques, avec une couverture sédimentaire mésozoïque en partie décollée. Les unités plus profondes affleurent au sud : il n'y a pas de continuité observable avec l'arrière-pays ni avec d'hypothétiques racines. Le cristallin est resté rigide durant la déformation alpine, mais il y a des cisaillements, mylonitisations locales. Pour WENK (1934), la nappe est subdivisée en plusieurs écailles par les zones de cisaillement alpines. Le métamorphisme alpin qui affecte les séries mésozoïques (y compris le Permo-Werfénien), est insignifiant.

Le cristallin se présente comme une alternance de paragneiss et d'amphibolites, traversés en discodance et injectés par le gneiss granitique de Flüela (STRECKEISEN, 1928). Pour l'auteur cité (1928), métamorphisme et intrusion seraient probablement d'âge hercynien. La gneissification du granite de Flüela se serait opérée tardivement , à grande profondeur.

Pour SPAENHAUER (1932), le métamorphisme des paragneiss et paraamphibolites est calédonien ou plus ancien. Les orthogneiss, intrusifs, sont d'âge hercynien précoce ou plus anciens : ils ne sont pas à paralléliser avec les granites hercyniens ou hercyniens tardifs des massifs varisques (Aar, Gothard), mais plutôt avec les orthogneiss de ces mêmes massifs.

BEARTH (1932) suggère qu'il n'y aurait pas de vrais orthogneiss dans la Silvretta, mais des migmatites. Des solutions aplito-pegmatitiques auraient notamment contribué à l'individualisation des yeux feldspathiques dans des gneiss d'origine sédimentaire. WENK (1934) note le passage progressif des orthogneiss aux paragneiss. Le contact se fait par l'intermédiaire d'une zone de migmatites (contact d'injection). Contrairement à l'opinion de STRECKEISEN (1928), la structure orientée des orthogneiss serait primaire. La tectonique préalpine est à axes redressés, l'intrusion des orthogneiss syn- et tardi - tectonique. La région située entre le lac Majeur et le lac de Lugeno (Alpes du Sud), présente beaucoup d'analogie avec la Silvretta. Plus tard, WENK et STRECKEISEN (1951), s'accordent pour admettre que intrusion, métamorphisme et tectonique interne pourraient être d'âge précambrien. Un âge hercynien n'est pas exclu, mais on ne peut paralléliser les orthogneiss qui ont largement assimilé les roches encaissantes, avec les granites paléozoïques tardifs de l'Aar et du Gothard, ou des nappes austro-alpines inférieures. La tectonique à axes redressés, replissée parfois par axes couchés, se retrouve dans la zone des Alpes du Sud (au Sud de la ligne insubrique). Elle se retrouve aussi, dans la zone des racines (au nord de la ligne insubrique), mais dans cette dernière région, et dans cette région seulement, ces structures sont d'âge alpin.

III - 5 - 2 Résultats géochronologiques Rb/Sr publiés par d'autres auteurs

Roche	Référence	Minéral t	Rb/Sr	Auteurs
Paragneiss	KAW 57	biotite	306±13	(1) (2)
(Radönt, Flüela)				
Orthogneiss	KAW 55	muscovite	293±12	(1) (2)
(Frauenkirch)		roche totale	356±21	(2)

(1) JÄGER, GEISS, E.NIGGLI, STRECKEISEN, WENK, WUHTRICH, 1961.(2) JÄGER, 1962.

JAGER, GEISS et al.(1961) interprêtent les premiers résultats obtenus sur mica, de la manière suivante : intrusion, tectonique et métamorphisme sont de même âge (Intrusionstektonik, WENK, 1953). Les mesures sur micas permettent de situer ces phénomènes à l'époque hercynienne.

Mais la mesure sur roche totale publiée par JÄGER en 1962 vient à l'encontre de cette interprétation. JÄGER pense que la structure gneissique pourrait être secondaire. L'âge de l'intrusion serait donnée par la mesure sur roche totale. Les résultats sur mica dateraient le métamorphisme hercynien subséquent.

145.

III - 5 - 3 Description des échantillons de roche et de zircon

A. Localisation et description des échantillons de roche

Orthogneiss de Flüela KAW 56. Col de Flüela. Blocs dans les moraines près du Mehlkasten, coord. 790.300/183.925.

La roche se présente comme un gneiss granitique assez riche en biotite, à texture gneissique plutôt fruste, les septas foncés étânt onduleux et discontinus. Ces septas contournent les "yeux" de feldspath qui atteignent 3,5 cm. Les phénoblastes ne sont que peu ou pas orientés : on les voit parfois se développer perpendiculairement à l'orientation générale.

En lame mince, on observe qu'ils sont constitués de feldspath K perthitique très clivé et à extinction onduleuse. Ils contiennent des résidus de plagioclase corrodé et de quartz. Le plagioclase inclus est finement saussuritisé et est en outre criblé de grosses tablettes de muscovite.

Dans la trame de la roche, le quartz à extinction onduleuse s'associe en lits discontinus constitués de languettes dentelées "en feuille de laurier". La plagioclase tend à former une mosaïque de petits grains trapus, équidimensionnels. Il paraît morcelé. C'est une oligoclase non zonée, généralement maclée, saussuritisée à des degrés divers. On y trouve localement des veinules de quartz, ce qui constitue une structure myrmékitique non typique. Le feldspath K de la trame est moins déformé que celui des phénoblastes, et présente parfois une structure interstielle. Il s'associe au plagioclase. La biotite et la muscovite s'associent en zone allongées discontinues. Les micas sont parfois légèrement courbés. Les lits micacés sont sinueux, ce que l'on observe bien macroscopiquement, comme indiqué plus haut. Des fissures onduleuses présentent une assez grande continuité et sont soulignées par un liséré de muscovite. Elles suivent l'orientation générale. Parmi les accessoires, on observe l'apatite, le zircon et un résidu squelettique de grenat ? , dans un feldspath non maclé et non cataclasé.

Le Flüela Granitgneis présente divers facies. A côté des gneiss biotitiques : gneiss oeillé riche en biotite, gneiss oeillé granitique, gneiss granitique grossier, STRECKEISEN (1928) distingue un gheiss aplito-pegmatitique sans biotite mais à muscovite. Ce dernier type constitue la plus grande partie du massif et les mesures de JAGER, GEISS et al., 1961, JAGER, 1962, se rapportent à un échantillon de cette variété.

146.

Paragneiss de Flüela KAW 57. Radönt, au S-O du col de Flüela. Bloc fraîchement éboulé environ 20 m sous le sentier du Schwarzhorn, coord.792.920/ 179.875. Ce type de roche est décrit par SPAENHAUER, 1932, p 46, WENK, 1934, p 204.

L'échantillon KAW 57, décrit par JAGER, GEISS et al., 1961, se présente comme un gneiss à grain fin se débitant en feuillets, brun violacé et riche en biotite.

La structure est granoblastique fine. Le quartz est généralement onduleux. Le plagioclase (andésine) est trapu et localement séricitisé. La biotite est hypidiomorphique et orientée, parfois légèrement déformée. Les accessoires sont l'apatite, l'orthite, le minerai, la chlorite (au dépens de la biotite), le zircon.

B. Description des concentrés de zircon.

KAW 56. Orthogneiss de Flüela : Euèdres et subeuèdres ; brisés, irréguliers. Forme caractéristique en amande ou en fuseau, due au grand développement d'une pyramide aigué, généralement associée à {lll} , cette dernière face étant peu développée. Les formes subeuèdres et irrégulières sont assez répandues : arrêtes émoussées, faces concaves, etc. Assez allongés. Pauvres en inclusions. Pratiquement pas de "noyaux" de zircon inclus dans un autre zircon. Limpides, incolores à violacé. Zonage rare. Photo 3, p. 124.

KAW 57. <u>Paragneiss de Flüela</u> : Subeuèdres; brisés, irréguliers. Les euèdres sont assez rares. Forte proportion de grains irréguliers subarrondis. Pour les euèdres et subeuèdres terminaisons simples ou complexes; grande variété dans la forme. Allongement modéré pour les subeuèdres ; les irréguliers et subarrondis souvent courts. Inclusions peu abondantes. Limpides, mauves ou incolores. Zonage rare.

La prépondérance des formes subeuèdres et subarrondies trapues suggère une origine détritique pour les zircons de KAW 57. On n'observe pratiquement pas, cependant, de grains complètement arrondis. Dans l'orthogneiss, on note la prépondérance des formes euèdres et subeuèdres. Les zircons sont allongés, avec une forme très caractéristique, différente de celle que nous avons observée dans d'autres roches granitiques des Alpes. Les terminaisons aiguës que l'on observe sur une très forte proportion des grains ne sont pas susceptibles d'être conservées au cours d'un transport quelque peu sévère. On s'attendrait aussi à une plus grande variété de forme et de couleur, pour une population de zircons détritiques. POLDERVAART (1950) signale que l'on peut trouver les deux types : courts, arrondis, ou allongés et euèdres, dans les zircons des migmatites et des granites autochtones et paraautochtones, et que le premier type (détritique), est fréquent (1956).

III - 5 - 4	Mesu	res sur ziro	on	Résultat	s analytig	ues
A. Analyses	isotopio	ques du plom	nb des z	ircons		
Référence	Attaque	204	206	207	208	Pb rad/ Pb tot %
KAW 56	l	0,0302 <u>+</u> 0,00035	100	6,150 <u>+</u> 0,011	4,373 <u>+</u> 0,009	98,0
KAW 57	l	0,0418 <u>+</u> 0,0005	100	8,993 <u>+</u> 0,015	13,395 <u>+</u> 0,018	97,5
Pb commun d	le correc	tion: 1	18,6	15,8	<u>+</u> 0,2	38,9 (cf.HABKERN)

B. Mesures de U et Pb rad et âges radiométriques (en m.a.)

Référence	Attaque	Uppm	Pbrad ppm	t206/238	t207/235	t207/206
KAW 56	ı					506 <u>+</u> 11
	2		77,8 277 2			_
	3	1277	76,6 5 77,2	407 <u>+</u> 13	421+15	
KAW 57	l					1315 <u>+</u> 10
	2	530	67,7	756 <u>+</u> 30	912 <u>+</u> 35	
	3	531	68,4	764+30	918+35	

III - 5 - 5 Discussion des résultats et conclusions

Le peu de résultats géochronologiques obtenus jusqu'à présent dans la nappe de la Silvretta ne permet pas de retracer clairement l'histoire préalpine de cette unité tectonique, mais établit bien que cette histoire est complexe; ce dernier point n'était pas établi par les études géologiques puisque les travaux récents faisaient état d'un seul épisode tectonique, magmatique et métamorphique.

Quelques conclusions sûres peuvent être tirées des premiers résultats : 1) Les zircons du paragneiss sont détritiques en totalité ou en partie. Ils proviennent de roches plus anciennes que 1300 m.a. (pour une part au moin;) Ils n'ont pas perdu tout leur plomb lors du ou des métamorphismes paléozoïques.

 2) Le gneiss granitique de Flüela n'est pas hercynien, mais paléozoïque plus ancien. Deux possibilités se présentent : celle d'un âge calédonien (environ 400 m.a.), et celle d'un âge cambrien (500 - 550 m.a.)
 3) Un épisode de métamorphisme s'est produit à l'époque hercyhienne. Ceci est établi par les mesures Rb/Sr sur micas. Le gneiss granitique de Flüela a donc été métamorphisé après sa première cristallisation.

Age du gneiss granitique de Flüela

a) Possibilité d'un âge hercynien.

Elle peut être écartée, même si l'on admettait que la roche, de caractère migmatique, contiendrait des zircons détritiques anciens et si on faisait la supposition improbable d'une perte de plomb radiogénique égale à zéro. Le cas du mélange de deux "systèmes U/Pb" peut s'étudier facilement au moyen du graphique Concordia (fig III 5 - 5). Une corde passant par les points 300 (âge du zircon de néoformation hercynienne) et KAW 56 (mélange) recoupe Concordia au point 750 environ: cela nous donnerait l'âge du zircon ancien. Le rapport des segments de la corde nous donne les proportions relatives des deux constituants, au cas où ils auraient la même teneur en U : le zircon ancien constituerait 30% du total. L'examen du concentré de zircon ne révèle pas une telle abondance de grains d'aspect détritique surtout si 1'on tient compte du fait que tout granite contient une certaine proportion de grains irréguliers. En outre, nous avons imaginé un "cas limite" peu vraisemblable. En effet, le système U/Pb correspondant à la fraction détritique a toutes les chances d'être représenté par un point situé sous la courbe Concordia, pour deux raisons.

- S'il s'agit d'un mélange de zircons d'âges différents.

- S'ils ont perdu du plomb, ce qui est prévisible puisqu'il s'agit de zircons inclus dans un granite ou une migmatite, dans une zone relativement profonde.

La possibilité d'un âge hercynien pour le gneiss granitique demeure, mais seulement si l'on admet que le point représentatif correspondant à la fraction détritique est situé sur la corde 300 - 750, et que cette fraction

149.



1 1

Figure III-5-5 Diagramme "Concordia, relatif aux zircons de la Silvretta représente plus de 30% du total. Quant au premier point, les zircons d'un paragneiss échantilloné à faible distance ne correspondent aucunement à un système U/Pb situé sur la corde 300-750. Le second point ne paraît pas vraisemblable non plus, comme vu plus haut.

b) Possibilité d'un âge calédonien.

Traçons la corde KAW 56 - KAW 57. L'intersection inférieure est à 390 - 400 m.a. Ce chiffre correspond à l'âge des granites calédoniens de Grande-Bretagne (KULP et al. 1960). C'est une valeur en assez bon accord avec l'âge mesuré en roche totale par la méthode Rb/Sr⁽¹⁾, sur le facies aplito-pegmatitique du gneiss, compte tenu des marges d'erreurs. Le segment 390 - KAW 56 représente 4% du segment KAW 56 - KAW 57. Comme le zircon du paragneiss est 2,5 fois plus pauvre en U que celui de l'orthogneiss, la proportion de zircon "réincorporé" serait de l'ordre de 10%, ce qui n'est pas invraisemblable.

c) Possibilité d'un âge cambrien

Si la roche est un vrai granite, gneissifié ultérieurement, on à structure gneissique primaire mais ayant subi l'effet d'un métamorphisme ultérieur, il n'y a aucune raison de faire intervenir d'éventuels zircons réincorporés. On pourrait aussi supposer que des zircons détritiques incorporés dans une migmatite ont pu perdre tout leur plomb au moment de cette incorporation. Donc l'interprétation habituelle, faisant état d'une porte de plomb, avec t 207/206 proche de l'âge exact, pourrait fort bien être la bonne. La roche serait donc datée à 510 - 550 m.a. (soit un peu plus que t 207/206), c'est-à-dire du Cambrien. SPAENHAUER (1932) considère que les orthogneiss de la Silvretta peuvent être mis en parallèle avec ceux des massifs varisques (Aar, Gothard, etc). Or, pour le zircon d'un "Streifengneis " du massif du Gothard, GRUNENFELDER (1962) a mesuré un âge voisin de ou un peu plus élevé que 500 m.a. Des granites de 510 -560 m.a. sont connus dans le Massif Central (VIALETTE, 1962) et la Normandie (GRAINDOR et WASSERBURG, 1962). En Bavière orientale, le zircon d'un gneiss granodioritique est âgé de quelque 450 m.a. (DAVIS et SCHREYER, 1962) (en fait, l'âge pourrait être plus élevé car il s'agit d'un résultat discordant avec t 207/206 = 460 ± 25 m.a.).

(1) Si le résultat de E. JÄGER (1962) était recalculé avec un Sr⁸⁷/Sr⁸⁶
 "crustal" de 0,72 par exemple, t Rb/Sr n'en serait que peu modifié, car (Sr⁸⁷ rad/Sr⁸⁷ total) présent est élevé (33,7%).

Dans cette hypothèse d'un âge cambrien, il faut admettre que la roche totale KAW 55 (gneiss aplito-pegmatitique) ne s'est pas comportée en système fermé durant le métamorphisme hercynien, pour le strontium et (ou) pour le rubidium. Le cas de Mittagfluh et d'autres signalés dans la littérature (voir I - 6 - 1) montrent qu'il n'y a là aucune impossibilité.

Age des roches ayant fourni les zircons détritiques du paragneiss

Cet âge peut être évalué approximativement, dans l'hypothèse où ces roches seraient toutes contemporaines ou à peu près; cette hypothèse n'est pas trop absurde puisque l'on peut fort bien concevoir que une seule chaine orogénique a fourni le matériel détritique. Mais il est probable que ce n'est là qu'une image simplifiée de la situation réelle. Dans cette hypothèse et si la perte ou/et la néoformation de zircon s'est opérée durant les phases d'intrusionet de métamorphisme paléozoïques (entre 300 et 500 m.a.), les roches dont proviennent les zircons détritiques ont un âge compris entre 1550 et 1900 m.a. (fig. III - 5 - 5). Cette conclusion reste valable pour une partie des zircons détritiques, si ces derniers sont originaires de roches d'âges différents. De toutes manières donc, une partie importante de ces zircons provient de roches fort anciennes par rapport aux évènements géologiques reconnus et datés dans les Alpes.

CHAPITRE 6. APPLICATION DES MESURES SUR HALOS PLEOCHROIQUES A L'ETUDE DU METAMORPHISME ALPIN.

III - 6 - 1 Introduction

Dans les chapitres qui précèdent, on a fait allusion brièvement aux mesures sur halos pléochroïques. Plutôt qu'une méthode de mesure d'âge, il faut considérer semblables mesures comme un moyen d'acquérir des informations complémentaires d'ordre semi-quantitatif. La méthode est originale : elle fut développée à Bruxelles par DEUTSCH, HIRSCHBERG et PICCIOTTO(1956). Les premiers essais de datations de roches des Alpes centrales, dans notre laboratoire, ont été faits par les mesures sur halos (DEUTSCH et PICCIOTTO; 1958, DEUTSCH, PICCIOTTO et NIGGLI, 1958, DEUTSCH, NIGGLI et PICCIOTTO, 1959).

Depuis lors, les résultats de méthodes plus précises : Rb/Sr, K/A, U/Pb, se sont accumilés: Rendent-ils caducs et dépourvus d'intérêt les premiers résultats obtenus sur halos ? Au contraire, ceux-ci sont-ils susceptibles d'apporter les informations complétant celles apportées par des méthòdes plus classiques et d'un emploi plus général ? Bien que cela nous écarte un peu de notre sujet, qui est le zircon, on a consacré un chapitre à une revue brève de l'état de la question. Ainsi on aura passé en revue toutes les informations géochronologiques qui ont été accumulées dans la région des Alpes considérée.

Un travail préliminaire de synthèse, sur la méthode des k alos en général et sur ses applications à l'étude du métamorphisme alpin, a été fait en 1961 par PICCIOTTO et DEUTSCH. Depuis lors, il y a suffisamment d'éléments neufs qui sont intervenus pour qu'un nouvel essai de synthèse, limité à l'application au métamorphisme, puisse être tenté. En particulier, un problème se pose à propos du point de référence : la méthode est en effet essentiellement comparative. Encore faut-il être sûr que la comparaison aît un sens. C'est surtout cet aspect de la question, qui limite fort malheureusement la portée de toute conclusion, que nous allons aborder.

III - 6 - 2 Principe et hypothèses de base de la méthode

A côté des mesures d'âges basées sur le rapport de deux nucléides, l'un radioactif, l'autre radiogénique, il en est d'autres également basées sur la radioactivité. Ce sont celles qui concernent les effets physiques des radiations ionisantes sur la matière. D'une manière générale, la connaissance théorique que nous avons de ces effets dans les solides est insuffisante pour que l'on puisse en développer des méthodes quantitatives de datation sans vérifications empiriques. A ce point de vue, les "méthodes physiques" diffèrent fort des "méthodes isotopiques" (ou "chimiques") lesquelles sont basées d'une manière non équivoque sur une loi connue, celle de la décroissance radioactive. Les méthodes chimiques sont plus satisfaisantes car fondées sur une base théorique mieux connue. Mais un intérêt des méthodes basées sur les effets physiques est qu'elles peuvent fournir des indications sur l'histoire thermique (ou dynamique) du matériel étudié. Celui-ci peut revenir à son état premier sous l'action d'une élévation de température, etc. L'effet physique est généralement conséquence d'un déplacement d'atomes ou d'électrons : métamictisation, thermoluminescence, colorations, "traces fossiles" sur le parcours des particules lourdes, etc.

Les ^halos pléochroïques sont un effet de coloration provoqué dans certains minéraux par les rayons \checkmark . Ces derniers ont dans les solides des trajectoires de l'ordre d'une dizaine à quelques dizaines de microns. Ils sont émis par U²³⁸, U²³⁵, Th²³² et certains membres des familles radioactives. On observera donc cet effet de coloration sous forme de halo ou d'auréole autour des minéraux uranifères et thorifères, y compris certains minéraux qui ne contiennent U et Th qu'à l'état de traces : zircon, orthite, sphène, apatite. Au premier stade du développement du halo, la coloration augmente plus ou moins linéairement avec la dose de radiation. Pour des irradiations plus intenses, le halo passe par un stade saturé où la coloration à son maximum reste constante, avant d'atteindre le stade inversé où se produit une décoloration. Il y a donc moyen en principe de développer une méthode de mesure d'âge, en comparant la coloration d'un halo au <u>premier stade</u> à l'activité spécifique \measuredangle/cm^2 .sec du minéral radioactif.

Les halos se développent dans divers minéraux. Il ne sera question ici que des halos formés dans la biotite, autour des zircons, apatites, etc., se présentant très fréquemment en inclusion.

Deux hypothèses de base doivent faire l'objet de vérifications empiriques :

- a) Il n'y a pas effacement spontané de la coloration au cours du temps. Ou, à la rigueur, l'effet d'effacement se fait suivant une loi déterminable et il est possible d'en tenir compte.
- b) Les inclusions radioactives constituent des systèmes fermés pour U, Th et les membres des familles radioactives. Ceci postule notamment l'équilibre radioactif.

La vérification de l'absence d'effacement spontané pour les halos de la biotite a été faite par DEUTSCH, HIRSCHBERG et PICCIOTTO, 1956. Certains écarts s'expliquent par des différences de sensibilité à l'irradiation des diverses biotites : il n'y a donc pas une loi générale pour toute biotite, qui relie l'intensité de la coloration à la dose 🗸 totale. Ce point a été confirmé par les expériences d'irradiation en laboratoire, au moyen de sources 🗸 très intenses (DEUTSCH, KIPFER et PICCIOTTO 1957, LONGINELLI 1961). Il est possible de tenir compte de ces différences de sensibilité. La comparaison des doses artificielles et naturelles nécessaires pour obtenir le même effet de coloration révèle un autre point important. Cette comparaison n'est pas strictement quantitative à cause des différences dans les conditions d'irradiation et de la différence d'énergie des particules \checkmark . Il a été observé cependant un écart systématique : le même effet de coloration dans les conditions naturelles, nécessite une dose de radiation cinq fois plus forte environ. Il y a là une exception notable à la loi de non effacement. PICCIOTTO et DEUTSCH, 1961, concluent à une disparition rapide, à l'échelle géologique, d'une partie importante des centres de couleurs. La partie qui subsiste peut seule être considérée comme stable. Les auteurs ne disposaient pas de roche granitique très jeune (<10 m.a.) bien datée. Leur conclusion concernant la disparition rapide de centres de couleurs instables est limitée de ce fait. Aucune vérification de ce point n'avait pu être faite pour des roches très jeunes. Actuellement, on peut apporter plusieurs précisions. La question est importante et traïtée plus en détail dans ce qui suit.

Il faut distinguer aussi entre effacement spontané et effacement provoqué par le métamorphisme. Les toutes premières applications à des roches des Alpes ont montré qu'un métamorphisme faible pouvait être cause d'un effacement total ou partiel. La méthode pourrait donc servir à dater le métamorphisme. C'est là le second point qu'il nous faudra examiner plus en détail.

Mais auparavant, on va rapidement préciser quelles sont les techniques utilisées et comment se déduit la mesure approximative d'un âge. Le problème de l'âge du métamorphisme alpin est complexe et il n'est pas inutile de donner quelques précisions sur ce que l'on en sait, avant toute discussion des résultats obtenus par les halos. On s'attardera donc un peu sur cette dernière question également.

III - 6 - 3 Techniques et mode de représentation des résultats

La mesure de l'activité spécifique de l'inclusion radioactive se fait grâce aux émulsions nucléaires.

Une technique photométrique de mesure de l'intensité du halo a été développée par DEUTSCH, HIRSCHBERG et PICCICTTO (1956). On se sert de lames minces ordinaires. Le paramètre choisi est la densité optique D.

$$D = -\int_{0}^{r} \log_{10} \frac{I_{h}}{I_{B}} dx$$





Halos de quelques roches des Alpes. Réseau d'isochrone d'après le granite de la Bresse (Vosges).

- x = distance à partir du bord de l'inclusion
- I_b = transmission optique dans le halo à la distance x
- I_B = transmission optique moyenne dans la biotite non irradiée (hors du halo)
- r = rayon effectif du halo (distance à laquelle $I_h = I_R$).

D est proportionnel à l'épaisseur de la biotite et a les dimensions d'une longueur. On la ramène à une épaisseur standard de 25 μ et on l'exprime en μ .

D est exprimé en fonction de d/cm².sec en coordonnée bilogarithmiques. Les points expérimentaux relatifs à une roche s'ordonnent suivant une droite dont la pente est fonction de la sensibilité de la biotite. Ces points présentent une large dispersion qui est due principalement à l'imprécision de la mesure de ×/cm².sec. : durant le temps d'exposition, seul un petit nombre de rayons & est émis. Le décalage des droites est fonction du rapport des âges, mais aussi du rapport des sensibilités des biotites. On a donc, pour une sensibilité donnée, une famille de droites parallèles isochrones (fig. III - 6 - 3). La méthode est essentiellement comparative : on compare l'échantillon à une biotite standard d'âge connu et de même sensibilité. A défaut, on peut tenir compte semi-quantitativement des différences de sensibilité. Une irradiation artificielle est indispensable pour préciser la sensibilité de la biotite. On ne peut, en fin de compte, attendre de la méthode dans son état actuel une précision meilleure que 30 à 40 %. Cela ne représente une faible incertitude absolue que pour les âges très jeunes. Pour une méthode de mesure d'âge, c'est très médiocre. Il faut donc rechercher d'autres possibilités d'application : migrations de U et déséquilibre radioactif dans les minéraux accessoires, étude du métamorphisme.

III - 6 - 4 Age du métamorphisme alpin, dans les Alpes centrales.

On sait maintenant qu'il y a eu plusieurs phases de métamorphisme. Les datations peuvent fournir soit des âges mixtes, soit seulement l'âge du dernier épisode de métamorphisme, soit une limite "jeune" à ce dernier épisode.

La possibilité d'un métamorphisme au stade géosynclinal a été contestée (E. NIGGLI, in CADISCH et NIGGLI, 1953, WENK, 1956, ELLENBERGER, 1952, 1958, TRUMPY, 1960). Le métamorphisme ou en tous cas les phases les plus importantes se serait déroulé après la fin de l'Eocène et avant la fin du Miocène (TRUMPY). En chiffres, cela signifie dans l'intervalle compris entre 35 m.a. et 18 m.a., à peu près. La limite "jeune" pourrait être plus récente encore, si l'on se réfère à l'âge absolu de la limite Miocène-Pliocène, telle qu'elle est définie en Italie (E. TONGIORGI et M. TONGIORGI, 1963).

A la bordure sud du massif du Saint-Gothard, dans les sédiments mésozoïques autochtones du massif et dans le cristallin prétriasique, des études structurales ont permis de distinguer plusieurs phases de cristallisation métamorphique, orientée ou non ('UNDERLICH et PLESSMANN, 1957, KVALE 1957, HAFNER 195 1958). Le métamorphisme est postérieur à la formation des nappes mais a accompagné et suivi le déplacement de celles-ci. Une linéation N-S est en relation avec une première phase de mouvements. Une linéation E-O est en rapport avec des mouvements plus tardifs.

R. STEIGER (1963) a tenté de compléter ces études structurales par des mesures K/A sur des hornblendes. On sait que ce minéral retient bien l'argon dans des conditions de métamorphisme même relativement sévères. Steiger distingue trois phases de métamorphisme alpin à la bordure sud du massif d^u St Gothard :

- 1) Déplacement dans la direction N-S en relation avec le déplacement vers le nord des nappes surincombrantes (linéation N-S de la hornblende).
- 2) Front de chaleur se développant à partir du sud. Hornblende non orientée.
- 3) Constriction E-O.

Les trois phases, datées par K/A sur des hornblendes appartenant aux trois générations distinctes, seraient respectivement âgées de :

- 1) 46-35 m.a.
- 2) 25-23 m.a. ?
- 3) env. 15 m.a.

Les conclusions sont avancées à titre provisoire, car il ne s'agit que de résultats préliminaires. Les t Rb/Sr de E. JAGER, dans la même région, sur biotite, sont de quelque 15-17 m.a., ce qui, suivant Steiger, pourrait correspondre à la constriction E-0.

Mais JAGER (1962) estime que ses mesures ne datent que la fin de la dernière phase importante du métamorphisme alpin dans la région, ou seulement un certain stade de la remontée isostatique qui a suivi. Les biotites ont des t Rb/Sr de 21 m.a. dans la zone des racines plus au sud. Il n'y a pas d'évidence de deux phases distinctes de métamorphisme à des dates si rapprochées. Mais le moment de l'érosion et de la remontée peut avoir été différent dans les deux zones, et plus précoce dans le sud. Certains arguments géologiques ne sont pas en contradiction avec cette manière de voir .
Ces données fragmentaires montrent que l'application des mesures géochronologiques à la datation de phases de métamorphisme récentes et rapprochées l'une de l'autre constitue un problème compliqué et que l'on est pas près d' avoir une vue claire et complète de la question. En tous cas la dernière phase importante du métamorphisme alpin dans la région considérée (culmination tessinoise) s'est déroulée il y a 15 m.a. ou davantage.

III - 6 - 5 <u>Applications de la méthode des halos. Problème du point de com-</u> paraison

La conclusion de PICCIOTTO et DEUTSCH (1961) est que l'âge apparent des halos des biotiles de cristallisation préalpine, hercynienne généralement, est fonction de l'intensité du métamorphisme alpin. Il y a un effacement plus ou moins complet de la coloration selon que le métamorphisme alpin est faible, épizonal, mésozonal. Depuis lors, quelques mesures ont été faites par E. LONGINELLI(CHESSEX, de MONTMOLIN, FERRARA, LONGINELLI, 1962 et FERRARA, HIRT, LEONARDI et LONGINELLI 1962) qui semblent montrer que cette conclusion n'a pas une portée générale. Le fait que les échantillons de LONGINELLI proviennent de points écartés de la région où tous les exemples précédents avaient été pris y est peut-être pour quelque chose. Au plus la région étudiée est vaste, au moins on est assuré que les phases de déformation et de métamorphisme ont été synchrones partout.

Mais il y a un autre point, plus important, qui impose un réexamen critique de toute la question. C'est celui, déjà abordé plus haut, de la disparition d'une partie des centres de couleur. Une attribution stratégraphique incorrecte avait fait admettre un âge de 20-30 m.a. pour la granodiorite de l'île d'Elbe. Les halos de la biotite de cette roche présentent un état de développement normal, pour une roche de cet âge. Mais des mesures récentes K/A et , Rb/Sr, confirmées par une mesure des dommages dus à la radioactivité, dans le réseau du zircon, établissent un âge de 7 \pm 1 m.a. (FERRARA, HIRT, MARINELLI et TONGIORGI, 1961, EBERHARDT et FERRARA, 1962, CHESSEX, 1962). Les halos présentent dans un état de coloration inhabituel, plus comparable à celui observé lors des expériences d'irradiation artificielle, que celui observé dans les roches anciennes, à dose \prec totale comparable.

Le cas de l'intrusion principale de l'île d'Elbe (Mte Capanne) n'est pas absolument isolé. On a toutes raisons de penser qu'il en va de même pour l'Elbe orientale (DEUTSCH et LONGINELLI, 1959, LONGINELLI, 1960). La disposition complète des centres de couleurs instables est donc un phénomène qui dure plus de 7 m.a.. Il y a une conséquence inattendue de cet état de chose, et bien propre à semer la confusion. Les mesures de DEUTSCH, PICCIOTTO, NIGGLI, PASTEELS, publiées avant 1961 se réfèrent directement ou indirectement à l'isochrone de l'Elbe, celle-ci fixant la date de 25 m.a.. Les données plus récentes de LONGINELLI, concernant également des roches des Alpes, se réfèrent à la même isochrone, mais fixant la date de 7 m.a.

La logique commande le choix d'une hypothèse unique, même si cela revient à introduire une approximation. Il y a deux possibilités à envisager.

- Les centres de couleurs instables présents dans les biotites de l'Elbe et d'autres roches de la Toscane sont également présents dans les halos "jeunes" des roches métamorphiques des Alpes.
- 2) Les centres de couleur instables, dans leur majeure partie, n'ont pas subsisté.

Nous allons nous tenir à l'hypothèse 2), en ne perdant pas de vue qu'elle demande confirmation. Elle ne nous permettra donc de fixer que des âges maximums : dans tous les cas l'âge des halos pourra être en réalité plus faible, mais non plus élevé. Il y a quelques arguments, non décisifs, pour préférer l'hypothèse 2). L'effacement des halos est manifeste; il s'est produit au cours du métamorphisme alpin ou après ce dernier, éventuellement.

- S'il s'est produit au cours du métamorphisme alpin, et si l'on se réfère à l'isochrome de l'Elbe = 7 m.a. (hypothèse 1), il vient par exemple que le métamorphisme alpin dans la partie sud du massif du St Gothard date d'il y a quelque 7 m.a., ce que d'autres arguments semblent exclure.
- S'il s'est produit après le métamorphisme alpin (par exemple il y a 7 m.a., au sud du St Gothard) on peut penser que les centres de couleur instables ont disparu en premier lieu.

Cela revient à admettre, en effet, que des phases tardives de déformation non accompagnées de métamorphisme à proprement parler, sont responsables d'un effacement. Ces phases tardives sont connues, mais se sont-elles produites il y a 7 m.a. ? Suivant TRUMPY (1960), les Alpes, réduites "to a hilly tract of country" (p. 898) au début du Pliocène, doivent leur relief actuel à la surrection pléistocène. Si l'on est disposé à admettre un effacement dans des conditions non métamorphiques, comment admettre le maintien des centres de couleurs instables ?

III - 6 - 6 Tableau des résultats et conclusions

Ceci nous permet de dresser un tableau comparatif de l'ensemble des résultats. On a arrondi aux 5 m.a. les t Rb/Sr et A/K hercyniens. On dispose en effet dans quelques cas de plusieurs résultats ne différant entre eux que de quelques m.a.. Ne figurent pas dans le tableau les résultats sur halos établis au moyen de moins de quatre points expérimentaux. On a tenu compte des différences de sensibilité à l'irradiation des diverses biotites.

Le degré d'effacement paraît bien être fonction de l'intensité du métamorphisme, à condition qu'on ne prenne en considération que les roches situées à peu près à la hauteur du massif du St Gothard, en négligeant le granite de Vallorcine, qui provient d'une région située beaucoup plus à l'ouest, et l'intrusion de Cima d'Asta, beaucoup plus orientale. Il paraît donc prématuré de conclure d'une façon nette en ce qui concerne cette relation possible entre effacement et intensité du métamorphisme.

Le caractère réservé des conclusions peut paraître décourageant. Il ne faut pas perdre de vue que le développement d'une méthode purement empirique nécessite un travail considérable et la vérification de nombreuses hypohtèses, qui s'avèrent parfois trop approximatives. Les méthodes isotopiques ont nécessité un travail aussi important. On ne peut pas s'attendre à ce que la méthode de halos, dans son état actuel, donne des informations facilement interprétables dans un cas aussi compliqué. Déjà les essais d'application des méthodes Rb/Sr et K/A à l'étude du métamorphisme alpin ont montré la difficulté d'interprétation des résultats.

La conclusion positive la plus nette, est que la méthode des halos est la plus sensible aux effets du métamorphisme de toutes les méthodes de datation, y compris celle du dommage structurel du zircon. Cela lui confère un intérêt très réel : elle pourra mettre en évidence une action métamorphique qui aurait échappé à toute autre investigation.

TABLEAU III - 6 - 6. RESULTATS OBTENUS SUR DES ROCHES DES ALPES CENTRALES, PAR LA METHODE DES HALOS.

Roches, groupées par zones	Caractère du métamorphisme alpin (1) (2)	$\lambda_{\rm Rb} \overset{\rm t \ Rb/Sr}{\underset{=1, 47, 10}{\overset{\rm sur \ biotite}{\overset{\rm a-l}{\underset{a-1}{\overset{\rm a-l}{\overset{\rm a-l}}{\overset{\rm a-l}{\overset{\rm a-l}}{\overset{\rm a-l}{\overset{\rm a-l}}{\overset{\rm a-l}{\overset{\rm a-l}}{\overset{\rm a-l}}{\overset{\rm a-l}}{\overset{\rm a-l}}}{\overset{s}}{\overset{s}}{\overset{s}}{\overset{s}}}}}}}}}}}}}}$		t K/A sur biotite (en m.a.)	Domm. structu- rel du zircon (en m.a.)	Halos, âges ma- ximums approxi- matifs * (en m. a.)	Age de la pre- mière cristalli- sation ignée ou métamorphique*
Zone helvétique							
Granite d'Habkem	nul	265	(5)	-		300 (9)	hercynien
Massifs, parties externes							
Gneiss d'Erstfeld) Granite du Gastern) Granite de Vallorcine : Aig. Rouges	épizonal faible; pas de néoformation épizonal faible;stilpnomélane épizonal faible.	300 270 285	(3) (3) (4)	- - 225 (4)	- 127 + 10 (4)	50 (9) 50 (9) 15 (4)	hercynien ? hercynien ? hercynien ?
Massifs, parties internes							
Granite de Medel, Goth. Central Paragneiss du Lago Taneda)	épizonal; chloritoïde)	22 + 6	(5)	-	-	25 (10))	hercynien (pré) hercynien
Paragneiss du Lago Scuro) Goth. Schiste du Lago Stabiello) Sud. Schiste de Alpedi Lago)) mésozonal; disthène))))	. a. (5)	-	-) 25 (10))	(pré) hercynien (pré) hercynien alpin
Alpes du Sud							
Granite de Baveno - Mte Orfano Granite de Cima d'Asta	épizonal faible épizonal faible	275 275	(6) (7)	270 (6)	96 + 11 (8)	70 (11) 25 (7)	hercynien hercynien ?

* Pour Habkem, le maintien éventuel de centres de couleur instables n'est pas à envisager.

** L'âge hercynien est considéré comme hypothétique, en l'absence de preuves géologiques, et de mesure d'âge sur un matériel autre que la biotite.
 Références : (1) Cadisch et E. Niggli, 1953. (2) E. Niggli, 1960, 1961. (3) Wüthrich, 1963. (4) Chessex, de Montmolin et al. 1962. (5) Jäger, 1962. (6) Jäger et Faul, 1959.
 (7) Ferrara, Hirt, Leonardi, Longinelli, 1962. (8) Chessex, 1962. (9) Pasteels, 1960. (10) Deutsch, E. Niggli et Picciotto, 1959. (11) Deutsch et E. Niggli, 1958.

CHAPITRE 7. ETUDE GEOCHRONOLOGIQUE DES MONTS SOR-RONDANE, TERRE DE LA REINE MAUD (ANTARCTIQUE).

III - 7 - 1 Introduction géologique

A l'inverse des Alpes, la Terre de la Reine Maud constitue une région où les travaux géologiques n'en sont encore qu'au stade des reconnaissances. L'application des méthodes de mesure d'âge ne se justifie pas moins dans de telles régions : dans tous les cas où l'on n'a pas de repère stratigraphique, les études géochronologiques sont parmis les premières qu'il convient de faire ⁽¹⁾. Mais on doit s'attendre à ce que des points obscurs demeurent.

On a vu dans le cas des roches des Alpes, que les résultats des "mesures d'âge" étaient interprétables en fonction de la géologie, y compris pétrographie et minéralogie. Dans le cas des Monts Sör-Rondane, on possède assez d'informations géologiques et pétrographiques pour pouvoir considérer les résultats géochronologiques dans la même optique. Mais il y a inévitablement des lacunes, aussi bien dans l'observation que dans l'échantillonnage. On pourra s'aider aussi pour l'interprêtation de quelques règles empiriques déduites de l'étude d'autres cas, et qui paraissent être de portée générale : perte d'argon et de strontium par les micas, au cours du métamorphisme, ou sous l'influence d'autres facteurs, perte de plomb par le zircon, régie surtout par l'importance du désordre structural, etc. Mais l'application de ces seules règles ne peut remplacer une confrontation soigneuse avec les données géologiques.

Les roches qui ont servi à nos mesures ont été récoltées par E. PICCIOTTO et J. GIOT, au cours de la première Expédition Antarctique Belge de 1958, sauf l'échantillon G.B. (Gunnestadbreen.) qui a été remis au Professeur PICCIOTTO par F. BASTIN (expédition de 1959). La géologie et la pétrographie des Monts SCr-Rondane ont fait l'objet d'études au cours des Expéditions Antarctiques Belges et sur du matériel ramené par ces expéditions (PICCIOTTO, 1960, PICCIOTTO et al, 1960, J. NICHOT, 1962, 1963, 1964, VAN AUTENPECER et al., 1963). Les résultats géochronologiques que nous allons passer en revue ont fait l'objet de plusieurs publications (DEUTSCH, PICCIOTTO et REINHAR**Z**, 1961, PASTEELS et DEUTSCH, 1963, PICCIOTTO, DEUTSCH et PASTEELS, 1963, 1964. Nous nous attacherons ici plus en détail aux résultats obtenus sur zircon et à leur interprétation.

(1) Une recommandation a été faite dans ce sens par le groupe de travail sur la géologie du Special Committee on Antarctic Research (SCAR), lors de la V^e réunion de ce dernier, à Wellington (1961).

Grands traits de la géologie de l'Antarctide orientale

On peut distinguer deux régions géologiques et géographiques au sein du continent antactique. L'Antarctide occidentale constitue le prolongement de la chaine andine. L'Antarctide orientale, beaucoup plus étendue, est une plate-forme stable offrant beaucoup de ressemblance avec les autres continents de l'hémisphère sud (ADIE, 1962). Une puissante série subhori zontale de terrains continentaux, d'âge permo-triasique, occupe un vaste bassin allongé. C'est la Beacon Serie. Les terrains qu'elle surmonte sont métamorphiques et désignés sous le terme imprécis de Basement Complex, d'âge précambrien ou supposé tel. Une activité volcanique importante, d'âge jurassique, est localisée en bordure du bassin continental de la Beacon Serie (Ferrar Dolerites, et du Karroo (Afr. du Sod) etc.). Ces dolérites sont subcontemporaines de celles de la Tasmanie (Mc .DOUGALL 1963, 1961). Localement, des sédiments paléozoïques inférieurs ou moyens, peu métamorphiques, ont été observés. Ils comprennent le Cambrien inférieur dans certaines régions.

Ils reposent en discordance sur les roches du "Basement Complex". Ce complexe lui-même ne constitue pas une unité : son histoire fut longue, et sans doutes différente d'une région à l'autre. Les mesures d'âges radiométriques (PICCIOTTO et COPPEZ 1963) établissent l'importance de l'activité métamorphique et magm atique aux environs de 500 m.a.. Il y a des régions où se présentent des évidences géochronologiques d'orogénèses superposées. Malheureusement, ces données, bien qu'assez nombreuses, sont médiocres en qualité : pour la plupart elles ont été obtenues par K/A sur roche totale, sur des matériaux très divers. On est donc loin encore d'avoir une vue claire de la succession des orogènes dans le temps et de leur disposition dans l'espace. L'âge de la phase principale du dernier cycle orogénique ne peut pas être fixé non plus, mais au moins ses dernières manifestations datent du Cambrien et de l'Ordovicien inférieur. Les auteurs notent aussi (ADIE, 1962, J. MICHOT, 1963) l'importance des phénomènes de rétromorphose, qui s'observent presque partout. Cela peut résulter, dans certains cas, de la superposition de deux cycles tectoniques ou davantage. Dans d'autres régions, des observations plus ou moins analogues pourraient ne témoigner que de l'existence de plusieurs phases liées à un même cycle.

La Terre de la Reine Maud

Dans la partie occidentale de la Terre de la Reine Maud, on voit reposer sur le socle cristallophyllien un ensemble subhorizontal de roches légèrement métamorphisées surmontées par des roches volcaniques, qui représente vraisemblablement les Beacon Series (ROOTS, 1953, ADIE, 1962). Mais dans la région

plus orientale des Monts Sör-Rondane, seules les roches du socle affleurent, traversées par des massifs intrusifs. Dans un large secteur 0° - 70° E, qui englobe, outre la Terre de la Reine Maud, les Terres Enderby et de Kemp, et Mawson, à l'Est, toutes les mesures géochronologiques ont donné des résultats de l'ordre de 500 m.a.. Il y a une exception cependant : une syénite néphilinique jurassique, et donc contemporaine des Ferrar Dolerites (RAVICH et KRYLOV, et DEUTSCH, cités par PICCIOTTO et al. 1964). J. MICHOT (1963) note que de l'Ouest à l'Est de la Terre de la Reine Maud, et des régions orientales voisines, citées plus haut, il y a une gradation dans le métamorphisme régional affectant les roches du socle : les faciès sont de plus en plus profonds, d'Ouest en Est. Dans toute cette région également, il y a des évidences d'un second métamorphisme de type rétrograde. Les âges de 500 m.a., en principe, pourraient ne se rapporter qu'au second cycle (J. MICHOT, 1963). Mais il pourrait n'y avoir qu'un cycle unique fin Précambrien à Cambro-Ordovicien comprenant deux phases de métamorphisme. Le problème se posait en ces termes, aussi lontemps qu'on ne disposait pas de résultats Rb/Sr sur roche totale, et sur zircon par la méthode au plomb.

Les Monts Sör-Rondane

Le résumé qui suit est extrait de PICCIOTTO et al., 1964, pp. 7-8.

" Les Monts Sör-Rondane font partie de la grande chaîne côtière qui affleure "d'une façon discontinue entre 15° et 40° Est le long de la Terre de la Reine "Maud. Les Sör-Rondane s'étendent d'Est en Ouest, sur 250 km de long entre les "longitudes 22° à 28° Est à la latitude approximative de 72° Sud, à environ "200 km au Sud de la Base Roi Baudouin. Cependant, quelques nunataks annon-"cent déjà la chaîne vers 71°30' Sud. Les points culminants dépassent 3000 m "d'altitude et se dressent souvent à plus de 1500 m au-dessus du niveau de la "glace.

" Au point de vue géologique, la chaîne des Sör-Rondane est entièrement con-"stituée de roches cristallines dans lesquelles on peut distinguer un comple-"xe gneissique et un complexe éruptif.

" "

Le complexe gneissique

"

" Ce complexe est constitué de gneiss de texture et de composition très va-"riées. On y trouve des intercalations de roches basiques ainsi que des bancs "de calcaire très pur ou accompagné de gneiss à solicates de calcium. Dans la "partie Ouest des Sör-Rondane, T. VAN AUTENBOER a signalé des intercalations "de bancs de quartzite et de schiste graphiteux. " Le complexe gneissique a subi une migmatitisation intense qui se manifeste "par des faciès variés :

"- gneiss migmatitiques injectés,

"- massifs de granites anatexitiques à contours diffus,

"- injection de matériel granitique sous forme d'un réseau dense et désor" donné de filons et de dykes aplitiques ou pegmatitiques (diadysites),
"- individualisation du matériel granitique sous forme de petits massifs (50
" à 200 m) à contacts nets, de granite fin à structure nébulitique.

" Ce complexe gneissique représente une série sédimentaire qui a été soumise "à un métamorphisme régional. Le faciès minéralogique est celui de la cata-"zone supérieure, suivi d'une légère rétromorphose dans la mésozone (MICHOT, "1963).

"

" Le complexe éruptif

11

...

" Ce complexe est composé de roches ignées formant des masses homogènes aux "caractères typiquement intrusifs. Ces roches sont essentiellement représen-"tées par des granites et des diorites et accessoirement par des syénites et "des monzonites. Le faciès bathymétrique de mise en place de ces roches, for-"mant les nunataks Nord de la chaîne, est celui de la mésozone profonde "(MICHOT, 1962). Ces massifs intrusifs sont racoupés occasionnellement par des "filons de divers types : aplites, granites et pegmatites, roches basiques. "D'après les relations de terrain, le complexe éruptif est nettement posté-"rieur au complexe gnéissique.

" La succession relative des évènements peut être résumée comme suit :

"1) dépôt d'un vaste complexe sédimentaire dans des conditions géosynclinales,
"2) plissement, métamorphisme et migmatitisation de ce complexe sédimentaire
" dans la catazone supérieure, accompagnés ou précédés d'intrusions gab" broïques,

"3) intrusions de massifs de granite, de diorite et de syénite,

"4) filons recoupant les massifs intrusifs.

" Cette succession est purement relative et des intervalles de temps très "différents peuvent séparer ces divers stades"."

On notera que les repères stratigraphiques font complètement défaut.

III - 7 - 2 Résultats géochronologiques Rb/Sr et K/A

Mesures Rb/Sr : DEUTSCH et al, 1961, PASTEELS et DEUTSCH, 1962, PICCIOFTO et al, 1963, 1964.

Mesures K/A : communiquées par M.G. RAVICH et A. Ya. KRYLOV, cités dans PICCIOTTO et al, 1963, 1964.

Les résultats sont présentés au tableau III - 7 - 2. Jusque et y compris S_{20a} , les échantillons proviennent du complexe éruptif (nunat: ko de la région nord). A partir de K_{16} , ils proviennent du complexe métamorphique et migmatitique. L'origine "en place" de G.B. est inconnue; l'échantillon a été récolté sur le glacier. Les coordonnées des lieux de provenance des échantillons sont données dans PICCIOTTO et al., 1963, 1964.

Les t Rb/Sr reportés ici ont été calculés avec λ Rb⁸⁷ = 1,39 . 10⁻¹¹ a⁻¹. On ne les a pas recalculés avec la valeur de $\lambda = 1,47$. 10⁻¹¹ a⁻¹, <u>utilisée</u> <u>pour les t Rb/Sr cités dans les chapitres qui précèdent</u>. Ce calcul pourrait être fait rapidement par une soustraction de 6 % des valeurs du tableau III - 7 - 2. Pour les t K/A, on a utilisé : $\lambda_e = 5,85$. 10⁻¹¹ a⁻¹ et $\lambda_B = 4,80$. 10⁻¹⁰ a⁻¹ (cf. I - 2 - 1).

t K/A sur roches totales

Pour toutes les roches contenant une fraction importante de feldspath potassique, les t K/A sont inférieures à l'âge de la cristallisation ou du refroidissement : le feldspath perthitique perd une fraction variable souvent importante de son argon radiogénique à faible température. Par contre, t K/A obtenu sur S₁₂, gabbrodiorite, pourrait représenter une approximation correcte de l'âge du refroidissement, voire de la cristallisation, puisque la très grosse partie de K est contenue dans la biotite et la hornblende.

t Rb/Sr

Pour les biotites, les t Rb/Sr sont compris entre 457 ± 15 et 517 ± 15 m.a. Les différences observées d'un échantillon à l'autre dépassent sensiblement la variation attribuable aux seules erreurs expérimentales. Mais ces différences démeurent faibles et ne correspondent pas aux différences d'âge relatives que l'on peut déduire des observations de terrain. Rien que cette dernière constatation permet de penser que ces t Rb/Sr ne fixent pas, pour les roches intrusives, l'âge de la mise en place, ni pour les roches métamorphiques plus anciennes, l'âge du métamorphisme.

Roche, localité (1)	Référence (2)	Minéral (3)	t Rb/Sr	t K/A
Granite, Romnoesfjellet	R 1	В	476 + 15	
	R1a	В	485 + 15	
		RT	-	350
Pegmatite, Romnoesfjellet	91 R	В	465 + 15	
Gabbrodiorite, Smähausane 1180	S 12	В	460 + 15	
		RT	-	500
	S 18	В	460 + 15	
Granite, en filon dans diorite,	S 17	В	501 + 15	
Smähausane		В	488 + 15	
Xénolithe de gneiss dans diorite.	S 9 a	FB	476 + 15	
Nordtoppen 1100	\$ 9 b	В	481 + 15	
"	S 96	В	495 + 15	
Granite, en filon dans diorite,	S 20 a	В	463 + 15	
Nordtoppen 950		RT	-	380
Granite de type intrusif,	GB	В	474 + 15	
Gunnestadbreen		B + H	472 + 15	
		F	480 + 160	
		RT	-	350
Gneiss, Austkampane	K 16	В	492 + 15	
		М	499 + 15	
			519 + 15	
Gneiss migmatitique, Strandrudfjellet	Т 7	В	457 + 15	
Granite à grain fin, anatexitique ?,	Т4	В	483 + 15	
Strandrudfjellet		F	460 + 90	
		RT	500 + 50	
Granite à grain fin, anatexitique ?,	A 3	В	497 + 15	
Bautaen			506 + 15	
		F	475	
			478 + 60	
		RT	593 + 60	
Pegmatite, Gunnar Isachsenfjellet	G 13	В	493 + 15	
Gneiss migmatitique, Gunnar	G 6	В	517 + 15	
Isachsenfjellet		RT	-	440
Gneiss, Trillingane	Tr 7	В	473 ± 15	
Pegmatite, Trillingane	Tr 12	В	476 + 15	
Syénite, Lunkeryggen	21 C	В	488 + 15	
Gneiss granitique, Fabiola	Y D 218	В	486 + 15	

TABLEAU III - 7 - 2. RESULTATS Rb/Sr et K/A, MONTS SOR-RONDANE.

 Les noms géographiques se rapportent à la carte des Sör - Rondane publiée par le Norsk Polarinstitutt (1957). Voir fig. III - 7 - 2.

(2) Les échantillons à partir desquels des zircons ont été séparés sont soulignés.

(3) B = biotite, M = muscovite, F = feldspath, RT = roche totale, H = hornblende,

Les résultats relatifs aux muscovites et feldspaths sont peu nombreux, imprécis pour les feldspaths. Ils sont en accord (dans les limites d'erreur) avec les t Rb/Sr des biotites séparées des mêmes roches.

Deux mesures Rb/Sr ont été effectuées en roche totale, sur des échantillons de granite fin, formant de petits massifs à contact net dans les gneiss $(A_3 \text{ et } T_4)$. Ce type de roche résulterait de la mobilisation de matériel granitique lors de la migmatitisation des gneiss et serait contemporain de la phase majeure de la migmatitisation et de la déformation tectonique. Si l'on admet que les deux échantillons se sont comportés en système fermé pour Rb et Sr, l'âge de la différenciation de ces granites peut être situé à 550 \pm 50 m.a.

Dès lors, les t Rb/Sr de 480 ± 20 m.a. mesurés sur biotite pourraient correspondre à quelque phase tardive du cycle. Cette phase peut être responsable de pertes totales ou seulement partielles de Sr, selon les cas. Elle est contemporaine ou plus récente que la mise en place du complexe intrusif, puisque ce dernier est lui-même tardif. Il n'y a pas d'évidence de l'existence de plus d'un cycle métamorphique et magmatique.

III - 7 - 3 Description des échantillons de roche et de zircon

R, a Granite de Romnesfjell

Grand bloc provenant de la paroi ouest du nunatale Romnoesfjellet. 71°27'S, 25°57'E. Le massif, de caractère intrusif, renferme des enclaves de gneiss et de silicates de Ca, peu nombreuses, mais de grande dimension, comme l'atteste la photo 1 dePICCIOTTO et al, 1960.

La roche est décrite par J. MICHOT, 1962, 1964. Il s'agit d'un granite porphyroïde rouge, grossièrement grenu, constitué essentiellement de feldspath K (orthose), plagioclase (29 % An au centre, 22 % An en bordure), quartz, biotite, amphibole (hornblende verte). "Dans la phase finale de la consolidation du massif, elle a été soumise à une blastèse potassique, entraînant une légère biotitisation, liée probablement à une action de type autométamorphique" (J. MICHOT, 1964, p. 16).

S₂₀a Granite en filon dans la gabbrodiorite des Smahausane .

Sommet du nunatale Nordtoppen 950 . 71°26'S, 25°20'E.

Décrit par J. MICHOT, 1963, p. B 97, 1964, p. 104, p. 18 : "Filons de caractère granitique de 1 à 3 d'épaisseur (...), formés d'une roche leucocrate, d'aspect homogène, finement à moyennement grenue. De structure xénomorphique, engrenée, et de texture massive, elle est composée de grains trapus de plagioclase zoné (oligoclase), parfois maclés Carlsbad - Albite et légèrement saussuritisés, de plages de quartz de structure locale peecilitique - interstitielle et de feldspath K (microclinc),associés à la biotite, au sphène, au minéral opaque,"

Sob Xénolithe dans la gabbrodiorite des Småhausane.

Paroi sud du nunatake Nordtoppen 1100. 71°27'S, 25°17'E.

L'échantillon (cornéite)⁽¹⁾ a été prélevé dans une bande claire d'un xénolithe de gneiss rubanné, de 2 à 3 m. de large, à contacts nets avec la gabbrodiorite.

Une description non publiée nous a été aimablement communiquée par J. MICHOT. Nous la résumons ici. La roche, à structure granoblastique, est composée de plagioclase à 45 % An, pyroxène, amphibole, biotite, minéral opaque, sphène, quartz, microcline. Comme l'indiquent la présence et la structure du microcline, elle a subi un métasomatisme potassique au cours de son évolution. Certaines observations permettent de supposer qu'il s'agit d'une cornéite pyroxénique ayant subi une légère rétromorphose minéralcgique : présence d'un résidu de pyroxène au centre des grains d'amphibole, à structure en passoire, et à biotite associée.

Il existe dans le complexe gneissique des roches présentant des analogies avec S_{9b}.

G.B. Granite.

Près du Romnoesfjellet. Il s'agit d'un bloc erratique pouvant provenir du glacier Gunnestadbreen. 72°S, 24°E.

Ce granite blanc à minéraux foncés grouppés en petits aggrégats est légèrement orienté. Il est constitué de microcline perthitique, de quartz, d'oligoclase, de biotite, de hornblende, orthite, minerai, apatite, zircon. Le quartz est onduleux.

Le plagioclase (env. 25 % An) n'est que légèrement zoné, altéré localement, un peu déformé. La biotite brun-olivâtre présente des associations symplectiques avec le quartz. L'orthite est localement abondante et toujours associée aux minéraux foncés. Elle est radioactive et métamicte : couleur et biréfringence variables, halos dans la biotite avoisinante.

(1) Dans le sens proposé par J. MICHOT (1960), c-à-d synonime du terme de langue anglaise "granofels", introduit par R. GOLDSMITH: "roche métamorphique grenue, à structure granoblastique et à texture peu ou pas orientée".

Description des concentrés de zircon

- R_{1a}. Euèdres à subeuèdres ou brisés. Terminaisons généralement complexes (avec combinaison de plusieurs faces cristallines). Modérément allongés, clairs et limpides, sauf une très faible proportion de zircons foncés, parfois sous forme d'inclusions dans un zircon clair (rare). Les zircons colorés sont troubles. Il y a peu d'inclusions et le zonage est exceptionnel.
- S_{20a}. On peut distinguer deux variétés de zircons dans cette roche. Il n'y a peu ou pas d'individus ménageant la transition entre ces deux variétés.

a) zircons colorés : environ 10 % au moins des zircons forment un groupe très homogène d'individus petits, euèdres ou subeuèdres, de forme prismatique régulière et assez allongée. Ils sont bruns violacés et plus ou moins troubles. Leur biréfringence est faible. Ce zircon sombre sert souvent de noyau à un zircon clair, mais cette zone claire périphérique n'est que peu développée, sauf exception.

b) zircons clairs : les zircons clairs et limpides sont, dans la majorité des cas, plus grands ou beaucoup plus grands que les zircons colorés. Ils sont euèdres avec des terminaisons simples et obtuses. Ils présentent une grande variété de taille et de proportions. Les inclusions sont nombreuses. Leur biréfringence est normale. On n'a pas observé de cristaux zonés.

- S_{9b}. Euèdres; plus rarement subeuèdres; irréguliers et brisés. La forme arrondie est exceptionnelle. Ils présentent une grande variété dans les . terminaisons. Les zircons non brisés et ayant leur forme propre sont en général modérément allongés. Clairs et limpides pour la plupart, ou violacés. Les zircons colorés, à l'inverse des zircons clairs, sont souvent zonés et fissurés. Quelques individus troubles paraissent noirs lorsqu'ils sont observés par transparence. Les inclusions sont peu abondantes. Dans les zircons colorés, on distingue parfois un "noyau" et une "enveloppe", d'indices de réfraction différents, sans qu'il y ait de différence marquée de couleur ou de biréfringence. Les caractères de cette population de zircons ne sont pas ceux que l'on attribue généralement aux zircons détritiques (trapus, arrondis).
- G.B. Euèdres à subeuèdres, brisés, irréguliers. Pour les euèdres : grande variété dans les terminaisons. Leur forme est nettement allongée : le rapport longueur/largeur dépasse 3 dans la majorité des cas. Ces zircons sont clairs et limpides sauf une très faible proportion qui est colorée et souvent trouble. Ils présentent des inclusions de type divers. Les inclusions





Photo 4

Granite en filon S 20 a Zircons colorés et zonés, petits, et zircons clairs, plus grands en général.

Photo 5

Granite G B Zircon montrant le passage progressif entre le coeur coloré et zoné, et l'enveloppe claire.

Photo 6

Xénolithe de gneiss S 9 b Zircon à croissance contrariée par la présence d'un grain arrondi de quartz.

Planche II

25µ

de zircon coloré dans un zircon clair sont d'observation plus fréquente que dans le cas de R_{1a}. L'enveloppe de zircon clair est souvent fissurée. Le zircon coloré est le plus souvent trouble et paraît presque noir quand il est observé par transparence. Mais il est parfois limpide, brun, et on peut observer en pareil cas que la biréfringence est faible ou nulle. Un zonage s'observe parfois quand le noyau est limpide, faisant transition entre le "coeur" coloré et métamicte et l'enveloppe claire.

Les descriptions qui précèdent sont celles publiées dans PICCIOTTO, DEUTSCH et PASTEELS, 1964. Le professeur G. HOPPE, spécialiste des minéraux accessoires, a examiné les zircons des trois granites R_{1a}, S_{20a}, G.B., et nous a communiqué le manuscrit d'une note qu'il a rédigé à leur sujet (HOPPE, 1964). Il y a, outre la confirmation de nos propres observations, au moins un point notable qui avait échappé à notre attention. Avant d'y revenir, nous allons brièvement passer en revue ce qui paraît pouvoir être conclu de ce que nous avons observé.

On note la fréquence, surtout dans G.B. (granite légèrement orienté), et moins dans R_{1a} (granite porphyroblatique) et S_{20a} (granite en filon), des zircons colorés ou zonés en inclusion dans un zircon clair. Le problème qui se pose est le suivant : faut-il considérer ceci comme une preuve de la présence de zircons réincorporés et en tenir compte dans l'interprétation des mesures d'âges ? Plusieurs arguments nous amènent à penser qu'il pourrait s'agir de deux temps dans la cristallisation du zircon, durant la cristallisation granitique elle-même, plutôt que de zircons anciens "métamorphiques" et "détritiques" réincorporés par un processus ou l'autre.

- La même observation a été faite dans les granites du Grimsel et Central de l'Aar. Dans ces deux cas l'hypothèse "zircons anciens" n'a pas même été envisagée. En effet, que faudrait-il penser alors des zircons troubles ou colorés, de même type, qui dominent dans Mittagfluh ? Leur teneur en U très élevée, leur forme, ne paraissent explicable que par une cristallisation dans le granite lui-même (la teneur en U élevée étant due au caractère tardif et très leucocrate de celui-ci).

- Dens G.B., il y a parfois un zonage (alternance de zones d'indices de réfraction différents) qui paraît ménager la transition entre le coeur métamicte et l'enveloppe claire.

- Les zircons du xénolithe de gneiss S_{9b} n'ont pas le caractère trouble ou zoné des noyaux présumément métamorphiques ou détritiques (ces zircons n'ont pas été examinés par G. HOPPE). Les caractères attribués aux zircons détritiques sont : courts, arrondis (mais non pas nécessairement métamictes ou zonés). Les zircons de S_{9b} ne présentent pas davantage ces caractères là. Y a-t-il eu recristallisation, et, dans l'affirmative, s'est-elle opérée à la faveur du métamorphisme général ou du métamorphisme de contact ?

Pour A. POLDERVAART (1950), le début de la recristallisation du zircon dans les conditions du métamorphisme général ne se fait que dans les granulites (zone de la sillimanite). GASTIL (1961) a fait l'observation suivante : à quelques pieds du contact d'une adamellite, de nouvelles faces cristallines commencent à faire leur apparition dans les zircons des gneiss. A quelques pouces seulement, les grains présentant de nouvelles faces prédominent.

On demeure dans l'incertitude.

Dans le granite en filon S_{20a}, on distingue deux groupes de caractères très différents. Les petits zircons colorés forment un groupe trop homogène, à notre avis, pour pouvoir provenir de roches d'origine sédimentaires assimilées. Il y aurait eu deux temps de cristallisation pour le zircon de cette roche.

HOPPE fait l'observation suivante. Il y a dans les zircons de S_{20a} (granite en filon) et R_{1a} (granite porphyroblastique) des inclusions fluides et des formes caractéristiques d'une croissance contrariée par la présence de solides préexistants (Wachstumsbehinderungen) tandis que les zircons troubles ou zonés inclus sont rares. Ce sont là des caractères observés par HOPPE dans les zircons des roches volcaniques. Par contre, des zircons de Gunnestadbreen (granite légèrement orienté non porphyroblastique) sont caractéristiques d'une roche plutonique : pas d'inclusions fluides ni de croissance contrariée, et richesse en grains colorés "anciens" inclus dans un zircon clair (39 % des zircons clairs en présentent, d'après HOPPE). HOPPE conclut à la présence d'une phase gazeuse lors de la cristallisation du zircon de S₂₀₀ et R₁₀.

J. MICHOT (1962) conclut de son examen pétrographique de R_{1a} et des autres roches du complexe intrusif, à un autométamorphisme en mésozone profonde : blastèse potassique, avec développement local du feldspath K, formation de myrmékites et de biotite symplectique à structure souvent dactylitique. Les fluides résiduels auraient joué un rôle essentiel dans ces transformations. Par contre G.B., granite à microcline sans plénoblastes ne présente pas ou guère de ces manifestations d'autométamorphisme et se distingue très nettement à cet égard de la plupart des roches du complexe intrusif des nunatak#s. J. MICHOT nous a signalé que par certains caractères cette roche rappelle des roches éruptives plus basiques gneissifiées affleurant dans le complexe métamorphique (d'où la roche provient vraisemblablement). Il ne faut donc pas con-

clure à des conditions subvolcaniques de faible pression pour la cristallisation des zircons R_{1a} et S_{20a}, mais peut-être cette cristallisation s'est-elle poursuivie durant la phase autométamorphique tardive. Le granite G.B., qui pourrait être syn- ou tarditectonique, se distingue par ses caractères pétrographiques et par les caractères de ses zircons.

Dans la conception de HOPPE, les zircons troubles inclus dans les zircons clairs proviendraient dans le cas de G.B., indubitablement d'une roche préexistante. Par contre, dans R_{1a}, il pourrait s'agir seulement d'une contamination du magma (Veruneinigung der magmatische Schmelze).

Un réexamen des zircons de S_{9b} (xénolithe) révèle l'abondance des formes irrégulières avec d'incontestables "croissances contrariées". Par contre, les inclusions fluides sont exceptionnelles. Cela suggère (sans certitude) une recristallisation métamorphique qui ne se serait pas produite en présence d'une phase gazeuse.

III - 7 - 4 Mesures sur zircon

Résultats analytiques

Tableau III - 7 - 4 A. Ages radiométriques en m.a.^X Zircons des Monts Sör - Rondane

et n° d'échantillon	t 206/238	t 207/235	t 207/206	
Romnoesfjellet. R _{1a}	514 <u>+</u> 20	518 <u>+</u> 20	540 <u>+</u> 10	
Nordtoppen 950 S _{20a}	510 <u>+</u> 20	508 <u>+</u> 20	500 <u>+</u> 30	
Nordtoppen 1100 S9b	555 <u>+</u> 20	555 ± 55	550 ± 150	
Gunnestadbreen G.B.	512 <u>+</u> 20	524 <u>+</u> 20	575 <u>+</u> 10	

x On a utilisé pour le calcul des t 206/238 et t 207/235 la moyenne des valeurs obtenues pour les concentrations en U et Pb rad

Plomb commun de correction

Pour G.B., le premier échantillon de zircon analysé au laboratoire, la contamination est variable d'une mesure à l'autre. La composition isotopique du plomb commun introduit au cours des manipulations a pu être déterminée d'une manière satisfaisante (voir II - 3 - 2).

Pour R_{1a} et S_{9b}, la contamination en plomb ne dépasse pas ce qui est attribuable aux seuls réactifs et manipulations, et on a utilisé pour la correction le même plomb que pour G.B.

Par contre, pour S_{20a}, la majeure partie du plomb présent pourrait provenir de l'échantillon lui-même, puisque les deux analyses isotopiques révèlent à

TABLEAU III - 7 - 4 B. RESULTATS ANALYTIQUES - ZIRCONS DES MONTS SOR - RONDANE.

N° d'échantillon	U	Pb rad	Pb rad Composition isotopique du Pb total				
	p. p. m.	p. p. m.	204/206 x 100	207/206 x 100	208/206 x 100	Pb rad/Pb total x 100	
Rla	221	18,6	0,079 <u>+</u> 0,0005	6,96 <u>+</u> 0,006	16,59 <u>+</u> 0,03	95,2	
	225 221	19,0					
S20 a	211	18,9	0.476 <u>+</u> 0.0026	12.68 ± 0,020	37,42 <u>+</u> 0,06	76,6	
	205	18,3	0,398 <u>+</u> 0,0020	11,48 <u>+</u> 0,020	34,77 ± 0,06	79,9	
S9b	643	58	0,098 + 0,025(*)	7,29 <u>+</u> 0,032	15,64 <u>+</u> 0,09	93,9	
GB	919	77,6	0,498 <u>+</u> 0,0013	13,21 ± 0,015	30.32 ± 0.032	74,3	
	909	75,7	$0,325 \pm 0,0009$	10,64 + 0,010	23,91 + 0,017	82,1	
		75,9	$0,175 \pm 0,0025$	8,46 <u>+</u> 0,028	$18,33 \pm 0,047$	89,8	

(*) La marge d'erreur tient compte de la possibilité d'une erreur systématique car le pic 204 est très petit (faible intensité de l'émission).

peu de chose près la même proportion, importante, de plomb commun. Selon que l'on utilise pour la correction un "plomb commun" ou un autre, on trouve des valeurs légèrement différentes pour t 207/206.

- a) Avec le plomb "moderne" 1 18,58 15,77 38,87 : les deux mesures donnent respectivement 475 ± 23 m.a. et 495 ± 27 m.a.
- b) Avec un plomb d' "âge conventionnel" de 500 m.a. à rapport 207/204 plus bas (soit 1 18,1 15,6 38,0) : 499 m.a., 524 m.a. respectivement.

La moyenne de ces valeurs, arrondie aux 5 m.a., est de 500 m.a. L'erreur a été estimée à quelque <u>+</u> 30 m.a., de manière assez arbitraire.

Détails expérimentaux.

Les échantillons R_{1a}, S_{20a}, G.B. ont servi à nos essais de mise au point, de même que Pacoima Canyon R 200 mesh (cf. II - 2 - 2). Seules les mesures de plomb effectuées dans des conditions correctes (borax préchauffé), sont reportées au tableau III - 7 - 4 B.

On a signalé en II - 3 - 2 la variation constatée de la correction de masse au cours du temps. Ce phénomène est passé inaperçu pendant un certain temps. Les résultats des analyses isotopiques de plomb, reportées ici, représentent les mesures brutes, sans correction. Il est possible qu'une correction de masse de quelque pour mille doive être appliquée, mais on ignore sa valeur exacte. Les t 207/206 corrects pourraient être un peu plus élevés que ceux reportés ici, spécialement pour S_{20a}, riche en Pb commun.

III - 7 - 5 Discussion des résultats et conclusions

Le tableau chronologique résumé qui suit ne doit pas être considéré comme une synthèse définitive. Si l'âge du complexe éruptif est bien établi, il n'en est pas de même de celui du métamorphisme catazonal contemporain du plissement et de la migmatitisation. Il est très probable cependant que les roches étudiées appartiennent toutes à <u>un même cycle</u>. Ces conclusions sont, dans l'essentiel, celles publiées par PICCIOTTO, DEUTSCH et PASTEELS 1963, 1964. Tableau III - 7 - 5. Monts Sör-Rondane. Chronologie géologique.

Evènement géologique Age

a) Plissement, métamorphisme en catazone. . env. 600 m.a. ou entre 600 supérieure, migmatitisation. et 550 m.a. (à peu près limite Précambrien - Cam-

brien).

- b) Rétromorphose mésozonale env. 530 m.a. ?
- 2) Complexe intrusif
 - a) Intrusion des granites en massif du type Romnoesfjellet
 - b) Filons granitiques du type Nordtoppen 950
 - c) Autométamorphisme en mésozone supérieure des granites, diorites, syénites du complexe intrusif
- 3) Remontée dans l'épizone

entre 510 et 460 m.a. (du Cambrien supérieur à l'Ordovicien moyen).

530 + 20 m.a.

(Cambrien)

1) Age du plissement et du métamorphisme catazonal.

Le granite G.B. étant légèrement orienté et protoclasé, serait antérieur aux ultimes manifestations du plissement. Malheureusement, cette roche n'a pas été observée en place et l'allure du contact n'est pas connue. G. HOPPE admet que la présence de zircons "anciens" en inclusion peut expliquer la discordance d'âge.

En effet, si l'on considère l'ensemble des résultats obtenus sur les trois granites, on observe que t 207/206 est d'autant plus élevé que la proportion de zircons réincorporés (ou présumés tels) est importante. Si cette explication était exacte, les trois granites seraient de même âge : 510 m.a. Dans sa note, G. HOPPE (1964) émet quelques réserves. En effet, cette hypothèse postule l'absence de perte de plomb , contrairement à une règle très générale. Quel argument a-t-on dans le cas présent pour affirmer que des pertes de plomb n'ont pu se produire ? ⁽¹⁾ On a vu aussi que

(1) On notera que G.B., des quatre échantillons de zircon, est le plus riche en uranium. les zircons colorés et inclus dans les zircons clairs ne doivent pas être considérés nécessairement comme d'origine "étrangère au granite" et "ancienne". Ils pourraient être de cristallisation précoce. L'explication "perte de plomb" nous ferait conclure à un âge voisin de 600 m.a. pour le granite G.B. (c-à-d., un peu plus que t 207/206). Ce serait aussi, approximativement, l'âge du plissement. Mais la possibilité d'un t 207/206 un peu "trop vieux" demeure. Outre la présence éventuelle de zircons anciens, on pourrait concevoir à la rigueur une légère perte de radon, voire une inexactitude (faible) de la valeur de λ U²³⁵ utilisée. Un t 207/206 de 500 ou 600 m.a. est très sensible à ces effets. C'est pourquoi on ne pourrait affirmer que l'âge réel du métamorphisme catazonal et du plissement ne soit pas plutôt de quelque 550 m.a., comme le suggèrent (sans le prouver), les mesures Rb/Sr sur roche totale des échantillons de granites fins anatexitiques A3 et T4. On ne peut tirer aucune précision supplémentaire de la mesure faite sur le zircon S_{9b} (xénolithe) à cause de l'importance de l'erreur sur t 207/206. En outre, on ne sait à quel évènement rattacher la cristallisation ou la recristallisation du zircon de cette roche.

2) Age du complexe éruptif.

Pour deux raisons : incertitude sur la correction de masse, présence d'une proportion assez importante de plomb commun de composition isotopique mal connue, l'erreur sur t 207/206 de S_{20a} pourrait avoir été sousestimée, et la valeur de 500 m.a. être un peu trop basse. On ne peut donc affirmer qu'il y ait une différence d'âge sensible entre les deux granites R_{1a} et S_{20a} . Dans les deux cas, la discordance étant faible ou nulle, on peut avec assez bien de certitude fixer à 530 ± 20 m.a. l'âge des zircons de ces deux roches (ce qui ne veut pas dire que ces dernières soient rigoureusement de même âge).

Rappellons que R_{1a} est un granite en massif, S_{20a} un granite en filon recouppant une diorite intrusive. Aussi bien les granites en massif du Romnoesfjell que les gabbros et diorites de Nordtoppen sont affectés d'un autométamorphisme de caractère mésozonal. On a quelque raison de penser qu'une partie du zircon de R_{1a} et S_{20a} a cristallisé lors de cet "acte final à caractère autométamorphique" comme le désigne J. MICHOT (1962, p. B 97). Des deux résultats obtenus sur zircon, compte tenu des observations pétrographiques, on peut conclure que les trois phénomènes : mise en place du granite Romnoesfjellet, mise en place des granites filonniens analogues à S_{20a} , et rétromorphose, sont presque contemporains et âgés de quelque 530 \pm 20 m.a.

3) "Rajeunissement" des biotites.

Les t Rb/Sr des biotites sont compris entre 517 ± 15 et 457 ± 15 m.a. On imagine mal que les valeurs les plus élevées puissent être sensiblement supérieures à la date de la rétromorphose mésozonale. Même les roches qui ne présentent pas de manifestations de rétromorphose (1) devaient se trouver à cette époque (520 - 530 m.a.) dans les conditions de température et de pressions qui sont celles de la mésozone profonde. Il est admis que dans ces conditions la biotite perd la majeure partie ou tout son Sr⁸⁷rad.Les valeurs moins élevées témoignent de pertes dans des conditions plus superficielles, sous l'action de facteurs thermiques (diffusion) ou des circulations de solutions aqueuses (échange ionique). A 460 m.a. la remontée isostatique était vraisemblablement terminée. On peut noter que les facteurs, encore mal précisés, qui ont agi sur la biotite ne l'ont pas fait d'une manière uniforme, même pour des roches provenant de la même localité (Smahausane, par exemple). Il n'est pas exclu que d'autres types d'altération, par exemple superficielle (cf. ZARTMAN, 1963) n'aient pu être cause de pertes de Sr⁸⁷. Dans ce cas la remontée isostatique aurait pu se terminer plus tôt. Des mesures K/A sur biotite seraient souhaitables pour confirmer ce point.

(1) "L'étude microscopique permet, en outre, de déceler dans de nombreux échantillons, l'existence d'une légère rétromorphose qui s'est développée dans la mésozone". (J. MICHOT, 1963, p. B 169). Cette phrase se rapporte aux roches du complexe métamorphique.

QUATRIEME PARTIE. CONCLUSIONS GENERALES

IV - 1 - 1 Techniques et méthodologie

Dilution au moyen d'isotopes stables.

On a contribué, avec l'aide et sous la direction de Mmes S. DEUTSCH et D. LEDENT, à mettre au point la technique de dilution isotopique dans notre laboratoire. C'est en effet la seule qui, jusqu'à présent, offre la possibilité de faire des mesures précises sur le zircon ordinaire par la méthode du plomb complète. Les principales difficultés de mise au point que nous avons rencontrées sont celles inhérentes au problème abordé, qui exige le dosage précis de quelques microgrammes de plomb. Ces difficultés ont dû être résolues dans chaque laboratoire qui s'est spécialisé dans les mesures d'âges sur zircon. Nous pouvions donc au départ nous inspirer de l'expérience acquise ailleurs. Par contre, nous nous trouvions dans une situation particulière et très défavorable, en ce qui concerne le laboratoire de chimie : pas de dépoussièrage de l'air, mauvaise disposition des locaux. Nous avons pu montrer que, moyennant certaines modifications de la technique, on pouvait obtenir d'aussi bons résultats dans un local complètement dépourvu d'aménagements spéciaux. Grâce à un excellent spectographe de masse et par un contrôle soigneux des erreurs systématiques, il a été possible de calculer des t 207/206 de l'ordre de 300 m.a. à 10 % près. Cela nous a permis d'appliquer la méthode à des échantillons de zircon "jeunes". Ce domaine a été, jusqu'ici, à peine abordé.

Méthode du RA D (ou Pb²¹⁰/Pb)

Dans le but de rechercher une simplification expérimentale, tout en conservant une bonne précision, on a vérifié que la méthode du Ra D était applicable au zircon. C'est du moins ce que l'on a établi dans cinq cas, et sans exceptions.

L'application de cette méthode serait d'un intérêt limité s'il était fait appel à des techniques compliquées. Il s'est avéré possible de faire les mesures de faibles activités de Pb²¹⁰ avec toute la précision souhaitable en utilisant un appareillage simple. Une réelle simplification expérimentale de la méthode du Pb appliquée au zircon est donc possible. Cela permettra peutêtre une généralisation plus grande de son utilisation dans l'avenir.

IV - 1 - 2 Conclusions intéressant la géologie et la géochronologie.

L'application d'un moyen d'étude encore relativement neuf à des cas géologiques concrets peut se faire suivant deux optiques différentes.

- a) Si l'on cherche à préciser les possibilités de la méthode, on l'appliquera d'abord à des cas géologiques clairs et bien étudiés. On pourra vérifier les hypothèses de base et, si elles sont mauvaises, la confrontation des résultats avec un contexte géologique particulièrement clair permettra de proposer d'autres hypothèses qui seront fondées sur autre chose que de simples supputations. Ainsi on sera en mesure à l'avenir d'interpréter correctement des résultats portant sur des problèmes géologiques plus mal connus.
- b) On peut appliquer la méthode dans le but de rechercher des informations purement géologiques qui font défaut. Ceci suppose que la méthode géochronologique soit suffisament éprouvée.

En fait, on se trouve souvent dans une situation intermédiaire où ni la situation géologique n'est parfaitement claire, ni l'interprétation des résultats géochronologiques parfaitement univoque. Il est donc toujours souhaitable de s'attaquer à un problème géologique qui soit au moins bien circonscrit, et de ne négliger aucune source d'information d'ordre pétrographique, minéralogique, géochimique, etc.

Cas des granites hercyniens des Alpes.

Nous avons abordé l'étude d'une série de granites hercyniens des Alpes parce que cela nous permettait de réexaminer quelques notions courantes concernant l'interprétation des âges au plomb du zircon, sous un angle critique, en confrontant les résultats obtenus avec des données assez sûres au départ. Accessoirement, cela nous a permis aussi de préciser les possibilités et les limites des mesures sur zircon en pareil cas, et apporter confirmation à quelques conclusions géologiques importantes.

Dans le cas des granites de l'Aar, bien étudiés géologiquement, géochimiquement et pétrographiquement, il subsistait une incertitude concernant l'âge. Cette incertitude a été levée pratiquement par les résultats géochronologiques Rb/Sr de JÄGER et de WUTHRICH.

Les résultats sur zircon apportent d'abord une confirmation de cet âge hercynien et aident à préciser un peu la valeur de l'âge absolu : plus élevé que 250 m.a. et sans doutes voisin de 300.

En ce qui concerne l'interprétation des âges au plomb du zircon, on peut confirmer un certain nombre de notions déjà formulées par d'autres auteurs; certaines sont classiques, d'autant méritent confirmation. 1) Les "age patterns" du zircon traduisent le plus souvent des pertes de plomb.

On peut et on doit en tenir compte dans leur interprétation.

- 2) Par contre, il n'y a pas d'évidence de pertes de radon.
- 3) L'importance du métamorphisme n'est pas nécessairement en relation directe avec l'importance des pertes de plomb. C'est en effet la relation inverse qui est observée dans le massif de l'Aar.
- 4) Par contre, il y a une relation directe très nette entre l'importance des pertes de plomb et le désordre structural du zircon, qui se manifeste par l'altération de certains caractères optiques, et, dans des zircons de même âge, affecte les grains les plus riches en uranium (et probablement aussi en thorium).

Enfin, il y a une "notion courante" qui se voit infirmée. Certains auteurs admettent que la perte préférentielle de Pb²⁰⁷ pourrait constituer un phénomène général susceptible d'expliquer les discordances d'âges, dans le cas du zircon. Cette hypothèse demeurait dans le domaine du possible seulement et paraissait demander, plus que d'autres, confirmation. Assez clairement cette explication est exclue dans le cas présent. Les échantillons "jeunes" peuvent fournir à cet égard des indications que ne peuvent pas fournir les échantillons précambriens.

Dans le cas de granite de Baveno - Monte Orfano, on se trouvait au départ dans un contexte géologique particulièrement clair, compte tenu des résultats géochronologiques Rb/Sr et K/A de JNGER et FAUL, qui établissent un âge de 270 - 290 m.a. sans ambiguité. Les mesures sur zircon n'apportent à cet égard qu'une simple confirmation.

Mais nous pensons avoir mis en évidence un cas où l'interprêtation habituelle de la discordance d'âge conduirait à une conclusion erronée. C'est celui du granite de Monte Orfano, riche en enclaves chadlogènes, et susceptible d'avoir assimilé des roches encaissantes. L' "age pattern" est le même que celui observé dans le cas de perte de plomb. Mais, à la différence de cette situation habituelle, t 207/206 n'est pas voisin de l'âge réel, mais significativement plus élevé. Ce dernier point est attesté par le fait que l'âge est bien déterminé par les mesures Rb/Sr et K/A, et que la mesure faite sur le zircon du granite normal, sans enclave (Baveno) donne le résultat attendu confirmant sans surprises les autres résultats géochronologiques. Un t 207/206 trop élevé peut être expliqué par la présence de zircons réincorporés à partir des roches encaissantes assimilées. Pour Monte-Orfano, c'est bien cette explication que paraît devoir être invoquée. Jusqu'à présent cette possibilité d'âges trop élevés n'avait été avancée qu'à titre d'hypothèse. Les seules confirmations obtenues par la méthode Pb/d n'ont pas retenu l'attention qu'elles méritaient, peut-être à cause des possibilités d'inexactitude inhérente à cette méthode. Dens un article récent où la possibilité de t 207/206 un peu trop élevés est envisagée et où plusieurs explications possibles sont passées en revue, il n'est pas fait mention de la réincorporation de zircons anciens (G.J. WASSERBURG et al., 1962). Or, cette possibilité doit être considérée comme très réelle, et il faudrait envisager si elle ne peut se présenter dans d'autres cas géologiques : celui des projections volcaniques, par exemple, voire de certaines rhyolites. Nous pensons notamment aux cendres ordoviciennes du Tennessee et de l'Alabama (ADAMS et al., 1960) qui paraissent présenter un autre cas peu contestable de t 207/206 trop élevés, qui n'a pas fort attiré l'attention.

En définitive, l' "age pattern" du zircon, s'il est très généralement du type t 206/238 < t 207/206, ne doit pas toujours être considéré comme traduisant une perte de plomb. Il y a des cas, probablement assez rares, et que des arguments géologiques peuvent aider à reconnaître, de zircons réincorporés à partir de roches plus anciennes.

Dans le cas du granite d'Habkern, la mesure sur zircon confirme l'âge hercynien, établi d'une manière incertaine par une mesure Rb/Sr sur biotite. Il s'agit d'un cas habituel de perte de plomb, sans que l'on ait d'indication en faveur d'une perte préférentielle de Pb²⁰⁷. Il n'y a pas d'évidence non plus que le métamorphisme ait pu jouer un rôle quelconque dans la perte de plomb, puisque la roche n'est pas métamorphisée. On retrouve donc la plupart des conclusions déjà formulées à propos des granites du massif de l'Aar.

Cas des gneiss de la Silvretta.

Les études géologiques faites dans la Silvretta ont été très poussées, et complétées durant ces dernières années par quelques résultats géochronologiques Rb/Sr. Pourtant, on est loin de se trouver dans un contexte géologique aussi clair que ceux envisagés plus haut. On se trouve dans la situation où les informations géologiques faisant défaut doivent être obtenues de mesures d'âge nouvelles et plus nombreuses. Il y a un désaccord entre les conclusions déduites de certaines observations géologiques et les indications fournies par les résultats Rb/Sr. Ces derniers attestent l'existence d'une phase de métamorphisme hercynien ultérieur à la mise en place des orthogneiss alors qu'il éteit admis que métamorphisme et intrusion étaient synchrones. Mais des opinions divergentes ont été émises sur divers points : ainsi, les orthogneiss ont parfois été considérés comme des migmatites. Le fait que l'intrusion a pu précéder le métamorphisme a été admis et même soutenu par au moins un géologue ayant étudié la région (SPAENHAUER, 1932). Le nombre de mesures sur zircon est trop réduit (deux) pour que l'on puisse espérer des conclusions définitives sur tous les points encore discutés. Il est confirmé que la mise en place des orthogneiss (ou éventuellement la formation des migmatites), est antérieure au métamorphisme hercynien et est à rattacher à une phase calédonienne (400 m.a.) ou cambrienne (510 - 550 m.a.). Au moins une mesure supplémentaire serait nécessaire pour trancher entre ces deux possibilités. Les zircons d'un paragneiss, détritiques, proviennent de roches très anciennes (plus de 1300 m.a.). Le plomb radiogénique n'a pas été complètement expulsé de ces zircons, au cours de la ou des phases de métamorphisme paléozoïques. Des mesures d'âge plus nombreuses seraient indispensables pour une compréhension plus complète de l'histoire géologique complexe de la Silvretta.

Monts Sör-Rondane (Terre de la Reine Maud, Antarctique).

Nous nous trouvons ici dans un cas où la géologie est encore mal connue. Cette situation est celle des boucliers précambriens ou supposés tels, sauf quelques rares exceptions. C'est dans ces domaines que les mesures d'âge ont rendu jusqu'ici les plus grands services, en dépit des difficultés d'interpritation qui sesont présentées parfois dans des cas complexes.

Dans les Monts Sör -Rondane, seul des travaux de reconnaissance ont pu être menés jusqu'à présent. Il n'y a aucune possibilité autre que celle offerte par les mesures d'âges basées sur la radioactivité, d'effectuer des corrélations entre les roches de cette région et celles d'autres ensembles. En très bref, au sein de gneiss migmatitiques d'âge inconnu, affleurent des roches intrusives d'âge inconnu. Il n'y a aucune formation sédimentaire qui ne soit profondément métamorphisée, dans la région considérée.

Les premières mesures faites sur des biotites de roches diverses par la méthode Rb/Sr (S. DEUTSCH et al., 1961), indiquent uniformément un "âge" voisin de 480 m.a., soit début Ordovicien. Compte tenu de ce que l'on sait du comportement de la biotite, cette valeur pourrait ne correspondre quâ l'âge d'une phase ultime de métamorphisme, ou même une phase de surrection post-tectonique. Deux mesures Rb/Sr en roche totale sur des granites probablement anatectiques permettent de situer la date probable de la phase principale du métamorphisme à quelque 550 ± 50 m.a., soit au Cambrien.

Les mesures sur zircon confirment que la plupart de ou toutes les manifestations magmatiques et métamorphiques reconnues dans la région appartiennent à un seul cycle. S'il existait des roches appartenant à un cycle plus ancien, on devrait pouvoir les distinguer géologiquement et pétrographiquement, et par de nouvelles mesures d'âge. Le métamorphisme catazonal contemporain de la phase principale de la déformation se serait déroulé il y a quelque 550 m.a., peut-être 600 m.a. Les granites post-tectoniques et la rétromorphose mésozonale se situent à 530 <u>+</u> 20 m.a. Les t Rb/Sr des biotites ne datent qu'une phase ultime, peutêtre la remontée post-orogénique.

On voit que dans le cas de régions à histoire géologique pas trop compliquée, l'interprétation des résultats géochronologiques ne pose pas de grands problèmes, même si les observations géologiques sont encore peu nombreuses. Les conclusions que l'on peut en tirer, notamment en ce qui concerne les corrélations à l'échelle continentale ou mondiale, sont très sûres.

Intérêt des mesures sur zircon. Distinction entre âge de la roche et âge du zircon.

L'intérêt particulier des mesures sur zircon est illustrée par plusieurs des cas que nous avons étudiés

- Dans le cas des granites de l'Aar, il a été très bien montré par UHTRICH, et confirmé par nos mesures, que les "âges" Rb/Sr peuvent être inexacts par défaut :, s'il y a eu métamorphisme subséquent à la mise en place de la roche. En outre, les roches jeunes à rapport Rb/Sr très élevé pouvant convenir aux mesures sont rares.
- Il y a donc un doute sur la validité des résultats Rb/Sr, dans certains cas au moins. Ainsi dans la Silvretta, des mesures plus nombreuses sur zircon nous apparaissent aussi souhaitables ou plus,que de plus nombreuses mesures Rb/Sr.

- Dens les Monts Sör-Rondane, le rapport Rb/Sr défavorable des feldspaths et roches totales et la rareté de la muscovite n'ont permis l'application généralisée de la méthode Rb/Sr qu'à des biotites. Les résultats obtenus de cette manière sont d'une portée limitée. Les quelques résultats obtenus sur roche totale et feldspath sont expérimentalement imprécis. Il n'y a guère de raison de penser qu'un échantillonnage plus complet apporterait remède à cette situation. L'absence de muscovite est évidemment en relation avec le caractère catazonal du métamorphisme. Peut-être, les rapports Rb/Sr peu élevés que l'on observe, sont-ils également en relation avec la bathymétrie (feldspaths K très perthitiques, etc.).

Par contre, de nouvelles mesures sur zircon permettraient de fixer dans une limite plus étroite l'âge des intrusions post-tectoniques, en réduisant la part d'incertitude inhérente à l'interprétation d'âges légèrement discordants. Un travail analogue pourrait être fait sur des roches syntectoniques si 'il y en a. Au stade actuel de la question, c'est un complément d'information géologique et de nouveaux échantillons qui sont demandés.

L'éventualité de la présence de zircons anciens "réincorporés" pose cependant un problème assez sérieux, dans le cas du granite de Gunnestadbreen comme dans celui de l'orthogneiss de la Silvretta. Le cas du granite de Baveno - Monte Orfano est relativement clair. Mais il s'agit d'un granite circonscrit, post-tectonique et de faible profondeur assez vraisemblablement. Les cas des granites mis en places dans des zones plus profondes et syncinématiques sont plus difficiles à étudier à ce point de vue : dans les deux cas on peut s'attendre à des pertes de Sr et de A, soit sous l'influence de phases tardives de rétromorphose, soit lors de la remontée post-orogénique. Mais si les t Rb/Sr et K/A sont susceptibles d'être trop faibles, l' "âge du zircon" pourrait être trop élevé, dans tous les cas où des zircons incorporés seraient présent. Aussi la datation d'une migmatite ou d'un granite formé "in situ" en zone profonde présente de réelles difficultés, en principe. Nous n'avons pas ou guère eu l'occasion d'aborder l'étude de ces problèmes qui sont d'une grande ampleur. Il y aurait intérêt à chercher à définir par des études géochronologiques et pétrographiques menées conjointement, dans quel cas exactement on peut s'attendre à la présence dans une ro che de zircons réincorporés, et quels sont les incidences de ce fait sur l'interprétation des mesures d'âge, comme sur le plan pétrogénétique.

BIBLIOGRAPHIE

ADAMS, J.A.S., OSMOND, J.K., EDWARDS, G. et HENLE, W. (1960) : Absolute dating of the Middle Ordovician. Nature, 188, 636-638. ADAMS, J.A.S. et ROGERS, J.J.W. (1961) : Bentonites as absolute time - stratigraphic calibration points. In : Geochronology of rock systems, Ann. N.Y. Acad. Sc., 91, 390-396. ADIE, R.J. (1962) : Geology pf Antarctica. In : Antarctic Research, Maury Memorial Symposium, Geophys. Mon. 7, NAS-NRC, 1037, 26-39. AHRENS, L. (1949) : Measuring geologic time by the strontium method. Bull. Geol. Soc. A ... , 60, 217-266. AHRENS, L. (1953) : The use of ionisation potentials pt 2. Anion affinity and geochemistry. Geochim. et Cosmochim. Acta, 3, 1-29. AHRENS, L.H. (1955) : Implications of the Rhodesian age pattern. Geochim. et Cosmochim. Acta, 8, 1-15. AKISHIN, P.A., NIKITIN, O.T. et PANCHENKOV G.M. (1957) : A new effective ionic emitter for the isotopic analysis of lead, Geochemistry, 5, 500-505. ALDRICH, L.T. (1960) : Age patterns in metamorphic rocks. (résumé). Symp. on radioactive ages or rocks systems. XII Gen. Ass. Int. Un. Geodesy and Geophys., Helsinki. ALDRICH, L.T., DAVIS, G.L., TILTON, G.R. et WETHERILL, G.W. (1956) : Radioactive ages of minerals from the Brown Derby Mine and the guartz creek granite near Gunnison, Colorado, Journ. Geophys. Res., 61, 213-232. ALDRICH, L.T., et WETHERILL, G.W. (1958) : Geochronology by radioactive decay. Ann. Rev. Nucl. Science, 8, 257-298. ALDRICH, L.T., WETHERILL, G.W., TILTON, G.R. et DAVIS, G.L. (1956): Half-life of Rb⁸⁷. Phys. Rev., <u>103</u>, 1045-1047. ALLSOP, H.L. (1961) : Rb-Sr age measurements on total rocks and separated mineral fractions from the Old Granite of the Central Transvaal. Journ. Geophys. Res., 60,1499-1500. AMIRKHANOV, K.I., BRANDT, S.B. et BARTNISKII, G.N. (1961) : Radiogenic argon in minerals and its migration. In : Geochronology of rock systems. Ann. N.Y. Acad. Sc., 91, 235-275. BRADSGAARD, H., LIPSON, J. et FOLINSBEE, R.E. (1961) : The leakage of radiogenic argon from sanidine. Geochim. et Cosmochim. Acta, 25, 147-157.

BEARTH, P. (1932) : Geologie und Petrographie der Keschgruppe Bull. Suisse. Min. Pétr, 12, 256-279. BEGEMANN, F., V. BUTTLAR, H., HOUTERMANS, F.G., ISAAC, N. et PICCIOTTO, E. (1953) : Application de la méthode du RaD à la mesure de l'âge "chimique" d'un minerai d'Uranium. Geochim. et Cosmochim. Acta, 4, 21-35. BEGEMANN, F. et HOUTERMANS, F.G. (1951) : Herstellung einer Ra D-E-F standard Lösung - Sitz Ostereich. Ak. Wiss. Math. Naturwiss. Kl., Ab. II a, Bd 161, Heft 7-8, 245-249. BELLIERE, J. (1958) : Contribution à l'étude pétrogénétique des schistes cristallins du massif des Aiguilles-Rouges (Haute-Savoie). Mém. Soc. Géol. de Belgique, 81, M1-M209. BONHOMME, M., PHILIBERT, J., ROQUES, M. et VIALETTE, Y (1961) : Ages absolus dans le Viséen et dans le Stéphanien du Massif Central français. C.R. Acad. Sciences, Paris, 252, 3084-3086. BOUISSIERES, G. et FERRADINI, C. (1950) : Emploi de la dithizone pour séparer et purifier le Ra D, le Ra E et le Po. An. Chem. Acta, 4, 610-614. BUCHS, A., CHESSEX, R., _RULLEN.CHER, D., et VUAGNAT, M. (1962) : Ages "plomb total" déterminés par fluorescence X sur les zircons de quelques roches des Alpes. Bull. suisse Min. Pétr., 42, 295-305. V. BUTTLAR, H. et HOUTERMANS, F.G. (1951) : Photographische messung des U - und Th - Gahaltes nach Auflageothole Geochim. et Cosmochim. acta, 2, 43-61. CADISCH, J. et NIGGLI, E. (1953) : Geologie der Schweizer Alpen, Wepf et Co, Bâle. CAHEN, L. (1961) : L'échelle des temps géologiques. In : Summer Course on Nuclear Geology Varenna 1950, 402-429. CAHEN, L., DELHAL, J., LEDENT, D. et REINHARZ, M. (1963) : L'âge des migmatites de Boma et de l'Orogénèse Ouest-Congolienne. Indications préliminaires sur l'âge des formations Mayumbiennes et antérieures. Ann. Soc. Géol. de Belgique, 86, B 229-269. CAHEN, L., EBERHARDT, P., GEISS, J., HOUTERMANS, E.G., JEDWAB, J. et SIGNER, P. (1958) : On a correlation between the common lead model age and the traceelement content of galenas. Geochim. et Cosmochim. Acta, 14, 134-149. CAHEN, L., PASTEELS, P., LEDENT, D., BOURGUILLOT, R., VAN WAMBEKE, L., EBERHARDT, P. (1961) : Recherches sur l'âge absolu des minéralisations uranifères du Katanga et de Rhodésie du Nord. Ann. Mus. R. Afrique Centrale, Sér. in 8°; Sc. Géol., 41, 1-53. CATANZARO, E.J. (1963) : Zircon ages in Southwestern Minnesota. Journ. Geophys. Res. 68, 2045-2048.

CATANZARO, E.J., et KULP, J.L. (1964) : Di scordant zircons from the Little Belt (Montana), Beartooth (Montana) and Santa Catalina (Arizona) mountains. Geochim. et Cosmochim. Acta, 28, 87-124. CERRAI, E., et GAZZARINI, F. (1950) : Spettrofotometria del torio, col thoron, in presenza di zirconio. Energia Nucleare, 7, 358-360. CHERDYNTSEV, V.V. (1956) traduit par Walter NICHIFORUM (1961) : Abundance of chemical elements. The University of Chicago Press. CHESSEX, R. (1952) : Détermination d'âge de quelques roches des Alpes du Sud et des Apennins par la méthode des "dommages dus à la radioactivité". Bull. Suisse. Min. Pétr., 42, 653-655. CHESSEX, R., de MONTMOLLIN, F., FERRARA, G., LONGINELLI, A. (1962): Measurements of the age of the Vallorcine granite (Switzerland). Nature, 193, 1279. CHOW, T.J. et Mc KINNEY, C.R. (1958) : Mass spectrometric determination of lead in manganese nodules. Anal. Chem., 30, 1499-1503. CHOV, T.J. et PATTERSON, C.C. (1962) : The occurence and significance of lead isotopes in pelagic sediments. Geochim. et Cosmochim. Acta, 25, 263-308. CLAUS, G. (1935) : Schwerenmineralien aus kristallinen Gesteinen des Gebietes zwischen Passau und Cham. N. Jhb. Miner. 71/A, 1-58. CLIFFORD, T.N., NICOLAYSEN, L.O. et BURGER, A.J. (1962) : Petrology and age of the pre-Otavi basement granites at Franzfontein, Northern South-West Africa. Journ. Petrology, 3, 244-279. COMPSTON, W., et JEFFERY, P.M. (1959) : Anomalous "common strontium" in granite, Nature, 184, 1792-1794. COMPSTON, N., et JEFFERY, P.M. (1961) : Metamorphic chronology by the rubidium - strontium method. In " Geochronology of rock systems", Ann. N.Y. Acad. Sc., 91, 185-191. COMPSTON, W., JEFFERY, P.M. et RILEY, G.H. (1960) : Age of emplacement of granites. Nature, 186, 702-706. CURTIS, G.H., LIPSON, J., et EVERNDEN, J.F. (1956) : Potassium-argon dating of Plio - Pleistocene intrusive rocks. Nature, <u>178</u>, 1350. DAMON, P.E. et KULP, J.L. (1957) : Determination of radiogenic helium in zircon by stable isotope dilution technique. Trans. Am. Geophys. Union, 38, 945-953. DAMON, P.E. et KULP, J.L. (1958) : Excess helium and argon in beryl and other minerals.

Am. Miner., 43, 433-459.

DARNLEY, M.G., SMITH, G.H., CHANDLER, T.R.D., DANCE, D.F., et PREECE, E.R. (1960) : Age of uraninites from two British localities. Min. Mag., 32, 654-658. DAVIS, G.L., et SCHREYER, M. (1962) : Altersbestimmungen an Gesteinen dos ostbayerischen Grundgebirges und ihre geologische Deutüng. Geol. Rundschau, 52, 146-159. DAVIS, G.L., TILTON, G.R., et WETHERILL, G.W. (1962) : Mineral ages from the Appalachian Province in North Caroline and Tennessee. Journ. Geophys. Res., 67, 1987-1996. DERRIKS, J.J. et OOSTERBOSCH, R. (1958) : The Swambo and Kalongwe deposits compared to Shinbolobwe. Contribution to the study of Katanga uranium. Proc. 2nd. U.N. intern. conf. on the peaceful uses of at. en., Genève, 2, 663-595. DEUSER, W.G. ot HERZOG, L.F., 1962 : Rubidium-Strontium age determination of muscovites and biotites from pegmatites of the Blue Ridge and Piemont. Journ. Geophys. Res., 67, 1997-2004. DEUTSCH, S., HIRSCHBERG, D., et PICCIOTTO, E. (1956) : Etude quantitative des halos pléochroïques. Application à l'estimation de l'âge des roches granitiques. Bull. Soc. belge de géol., de Paléontol. et d'Hydrol., 65, 267-281. DEUTSCH, S., KIPFER, P., et PICCIOTTO, E. (1957) : Bleochroic haloes and the artificial coloration of biotites by α - particles. Nuovo Cimento, 5, 795-810. DEUTSCH, S. et LONGINELLI, A. (1959) : Ages des halos pléochroïques de quelques granites tertiaires de la Toscane. Experientia, 15, 8. DEUTSCH, S., NIGGLI, E., ot PICCIOTTO, E. (1959) : Etude préliminaire des halos pléochroïques de quelques roches métamorphiques et éruptives du St-Gothard. Experientia, 15, 214. DEUTSCH, S. et PICCIOTTO, E. (1956) : Présence d'uraninite dans les minéraux accessoires du granite de Baveno. Experientia, 19, 353. DEUTSCH, S. et PICCIOTTO, E. (1958) : Etude des halos pléochroîques dans le granite de Medel (Massif du St-Gothard). Experientia, 14, 128. DEUTSCH, S., PICCIOTTO, E., et NIGGLI, E. (1958) : Age des halos pléochroïques des granites de Baveno et Monte Orfano. Experientia, 14, 128. DEUTSCH, S., PICCICTTO, E., E., et REINHARZ, M. (1961) : Age measurements on Antarctic rocks (Queen Maud Land). Nature, 191, 1286-1287. DURAND, G. (1962) : Méthode permettant de mesurer directement au spectromètre de masse les rapports isotopiques du plomb contenu dans les traces de pechblende sans traitement chimique préalable. C.R. Acad. Sciences. Paris, 254, 1032-1034.

EBERHARDT, P. et FERRARA, G. (1962) : Confirmation of the absolute age of the granodiorite outcrop in Elba island with potassium/argon measurements. Nature, 196, 665-666. EBERHARDT, P., GEISS, J. et HOUTERMANS, F.G. (1955) : Isotopen Verhältnisse von "gewöhnlichem" Blei und ihre Deutung. Z. Physik, 141, 91-102. ECKELMANN, W.R., BROECKER, W.S., et KULP, J.L. (1950) : Half-life of Pb²¹⁰. Phys. Rev., 118, 598-701. ECKELMANN, W.R. et KULP, J.L. (1956) : Uranium - lead method of age determination. Fart I : Lake Athabasca problom. Bull. Geol. Soc. Am., 67, 35-54. ECKELMANN, W.R. et KULP, J.L. (1957) : Uranium- lead method of age determination. Part II : North American localities. Bull. Geol. Soc. Am., 68, 1117-1140. ELLENBERGER, F. (1952) : Sur l'âge du métamorphisme dans le Van i.... Soc. Géol. de France, C.R. somm., 15, 318-321. ELLENBERGER, F. (1958) : Etude géologique du pays de V loise. Mém. Carte géol. de France, 561 pp. ELLSWORTH, H.V. (1930) : Four stages in the alteration of the Villeneuve uraninite. Am. Minor. 15, 455-460. ERICKSON, G.P. ot KULP, J.L. (1961) : Potassium - argon dates on basaltic rocks. In : Geochronology of rock systems, Ann. N.Y. Acad. Sc., 91, 321-323. EUGSTER, H.P. (1951) : Petrographische Untersuchungen im Gebiete der Val Russein (Aarmassiv - Ostende). Bull. Suisse. Min. Pétr., 31, 1-131. EVERNDEN, J.F., CURTIS, G.H., OBRADOVICH, J., et KISTLER, R.(1951): On the evaluation of glauconite and illite for dating sedimentary rocks by the potassium - argon method. Geochim. et Cosmochim. Acta, 23, 78-99. EVERNDEN, J.F., CURTIS, G.H., SAVAGE, D.E. et JAMES, G.T. (1964): Potassium - argon dates and the Cenozoïc Mammalian chronology of North America. Am. Journ. Sc., 252, 145-198. FAIRBAIRN, H.W., HURLEY, P.M. et PINSON, W.H. (1961) : The relation of discrodant Rb-Sr mineral and whole rock ages in an igneous rock to its time of crystallization and to the time of sbsequent Sr⁸⁷/Sr⁸⁶ metamorphism. Geochim. et Cosmochim. Acta, 23, 135-144. FALLOT, P. (1955) : Les dilemmes tectoniques des Alpes orientales. Géol. de Belgique, 77, 14-170. Ann. Soc.

FAUL, H. (1960) : Geologic time scale. Bull. Geol. Soc. Am., 71, 637-644. FAUL, H., ELMORE, P.L.D. ot BRANNOCK, W.W. (1959) : Age of the Fen carbonatite (Norway) and its relation to the intrusives of the Oslo region. Geochim. et Cosmochim. Acta, 17, 153-156. FAUL, H., et JAGER, E. (1963) : Ages of some granitic rocks in the Vosges, the Schwarzwald, and the Massif Central. Journ. Geophys. Res. 68, 5293-3500. FAUL, H., et THOMAS, H.H. (1959) : Argon ages of the great ash bed from the Ordovician of Alabama and of the bentonite marker in the Chattanooga shab from Tennessee (résumé). Bull. geol. Soc. Am. 70, 1600 FAURE, G. et HURLEY, P.M. (1953) : The isotopic composition of strontium in oceanic and continental basalts : application to the origin of igneous rocks. Journ. Petrology, 4, 31-50. FAURE, G., HURLEY, P.M. et FAIRBAIRN, H.W. (1963) : An estimate of the isotopic composition of strontium in rocks of the Precambrian shield of North America. Journ. Geophys. Res. 68, 2323-2329. FERRARA, G. (1952) : Primi resultati e considerazione sulla datazione assoluta delle rocce intrusive del massico dell'Adamello. Atti. Soc. Tosc. Sc. Nat., A/2, 11 pp. FERRARA, G., HIRT, B., JAGER, E. ot NIGGLI, E. (1962) : Rb-Sr and U - Pb age determination on the pegmatite of I Mondei (Val Antra, Ossola, Italian Alpes) and some gneisses from the neighborhood. Eclogae gool. Helv., 55, 443-450. FERRARA, G., HIRT, B., LEONARDI, P., et LONGINELLI, A. (1962) : Datazione assoluta di alcune rocce del massico intrusivo di Cima d'Asta. Atti. Soc. Tosc. Sc. Nat., A/2, 15 pp. FERRARA, G., HIRT, B., MARINELLI, G., et TONGIORGI, E. (1961) : Primi resultati sulla determinazione con il metodo del rubidio stronzio dell' età di alcuni minerali dell' Isola d'Elba, Bol. Soc. Geol. Ital., 80; 1-6. FERRARA, G., IPPOLITO, F., STAUFFER, H., et TONGIORGI, E. (1959) : Determinazione con metodi del piombo dell' età di un filone pegmatitico presso Delianuova (Aspromonte, Calabria). Bol. Soc. Geol. Ital., 78, 9 pp. FINNEY, G.D., et EV.NS, R.D. (1935) : The radioactivity of solids determined by alpha-ray counting. Phys. Rev., 48, 503-511. The specific alpha - activities and half-lives of $U^{2,34}$, and $U^{2,35}$, and $U^{2,36}$. Phys. Rev., 88, 642-652.

FLYNN, K.F., et GLENDENIN, L.E. (1959) : Half-life and beta spectrum of Rb⁸⁷. Phys. Rev., 116, 744. FRONDEL, C. (1953) : Hydroxyl substitution in thorite and zircon. Am. Miner., 38, 1007-1018. FRONDEL, C. et COLLETTE, R.L. (1957) : Hydrothermal synthesis of zircon, thorite and huttonite. Am. Miner., <u>42</u>, 759-765. GALLITELLI, P. (1937) : Ricerce petrografiche sul granito di Baveno. Atti. Soc. Tosc. Sc. Nat., 46, 150-226. GALLITELLI, P. (1938) : Ricerce petrografiche sul Montorfano (Lago Maggiore). Atti. e Mem. R. Acad. Sci. Lett. ed Arti Modena, ser. 5, 3, 3-93. GAST. P.W. (1960) : Limitations on the composition of the upper mantle. Journ. Geophys. Res., 65, 1287-1297. GASTIL, G. (1961) : Effect of contact metamorphism on the lead content of detrital zircon at Owlshead Peak, California (résumé). Geol. Soc. Am. Ann. Meeting. GASTIL, R.G., et DE LISLE, M. (1962) : Variations in the lead - alpha ratio of zircons under varying grades of contact metamorphism (résumé). Geol. Soc. Am. Ann. Meeting. GERASIMOVSKII, V.I. et LEBEDEV, V.I. (1958) : Proportions of strontium and calcium in rocks of the Lovozero massif. Geochemistry, 6, 699-705. GERLING, E.K., MOROZOVA, I.M. et KURKATOV, V.V. (1961) : The retentivity of ground micas. In : Geochronology of rock systems. Ann. N.Y. Acad. Sc. 91, 324-340. GILETTI, B.J. et KULP, J.L. (1955) : Radon leakage from radioactive minerals. Am. Minor., 40, 481-496. GLENDENIN, L.E. (1961) : Present status of the decay constants. In : Geochronology of rocks systems. Ann. N.Y. Acad. Sc., 91, 166-180. GOJKOVIE, S., DELEON, G. ot CERVENJAK, Z. (1963) : Dating of some pitchblende and uraninite from Yugoslav localities by the Pb²⁰⁶/Pb²¹⁰ method. In : Radioactive Dating, Proc. Symp. Athen 1962, Int. Atomic. En. Ag. Vienne, 105-112. GOLDICH, S.S. ot HEDGE, G.E. (1962) : Dating of the Precambrian of the Minnesota River Valley, Minnesota. (résumé). Journ. Geophys. Res., 67, 3561-3562.
GOTTFRIED, D., JAFFE, H.W. et SENFTLE, F.E. (1959) : Evaluation of the lead - alpha (Larsen) method for determining ages of igneous rocks. Geol. Survey Bull., 1097-A. GRAINDOR, M.J. et WASSERBURG, G.J. (1962) : Déterminations d'âges absolus dans le nord du Massif Armoricain, C.R. Acad. Sciences, Paris, 254, 3875-3877. GREEN, J. (1959) : Geochemical table of the elements for 1959. Bull. Geol. Soc. Am., 70, 1127-1184. GRUNENFELDER, M. (1952) : Mineralalter von Gesteinen aus dem Gotthardmassiv. Bull. suisse Min. Pétr., 42, 6-7. GRUNENFELDER, M. (1963): Heterogenität akzessorischer Zirkone und die petrogenetische Deutung ihrer Uran/Blei - Zerfallsalter.I. Der Zirkon des Granodioritgneises von Acquacalda (Lukmanierpass). Bull. suisse Min. Petr., 43, 235-257. GRUNENFELDER, M. et HAFNER, S. (1962) : Uber das Alter und die Entstehung des Rotondogranits. Bull. suisse Min. Pétr., 42, 169-207. GUIDE GEOLOGIQUE DE LA SUISSE publié par la Société Géologique Suisse (1934) : Wepf et Co., Bâle. von GUNTEN, H.R. (1955) : Bestimmung von Th/U Verhältnisse durch Aktivitätsvergleich radioaktiven Blei Isotopen. Thèse de l'Univ. de Berne. HAFNER, S. (1958) : Petrographie des südwestlichen Gotthardmassivs (Zwischen St. Gotthardpass und Nufenenpass). Bull. Suisse.Min. Pétr., 38, 254-362. HAMILTON, E. (1962) : Storage of standart solutions in polyethylene bottles. Nature, 193, 200. HAMELTON, E.I. et DEANS, T. (1963) : Isotopic composition of strontium in some African carbonatites and limestones and in strontium minerals. Nature, 198, 776-777. HAMILTON, E.I., DODSON, M.H. et SNELLING, N.J. (1952) : The application of physical and chemical methods to geochronology. Intern. Journ. of Appl. Rad. and Isotopes, 13, 587-610. HART, S.R. (1963) : The petrology and isotopic mineral age relations of a contact zone in the Front Range, Colorado. M.I.T. Age studies nº 42. HART, S.R. et DODD, R.T., Jr (1962) : Excess radiogenic argon in pyroxenes. Journ. Geophys. Res., 67, 2998-2999. HEDGE, C.E. et WALTHALL, F.G. (1963) : Radiogenic strontium-87 as an index of geologic processes. Science, 140, 1214-1217.

HEINRICH, E.W. (1958) : Mineralogy and geology of radioactive raw materials. Mac Graw-Hill. HIGAZY, B.A., (1954) : Trace elements of volcanic ultrabasic potassic rocks of Southwestern Uganda and adjoining part of the Belgian Congo. Bull. Geol. Soc. Am., 65, 39-70. HINTERBERGER, H. (1960) : Die Rubidium - Strontium - Methode. Geol. Rundsch. 49, 197-224. HIRSCHI, H. (1948) : Radioaktivität und ihre Erscheinungen am Mittagfluhgranit, eine randliche Intrusion im Aaremassiv bei Guttannen. Bull. Suisse Min. et Pétr., 28, 509-517. HOLLAND, H.D. et GOTTFRIED, D. (1955) : The effect of muclear radiation on the structure of zircon. Acta Cryst., 8, 291-300. HOLMES, A. (1960) : A revised geological time-scale. Trans. Edinburgh Geol. Soc., 17, 183-216. HOPPE, G. (1959) : Über die Verwendbarkeit der akzessorischen Zirkone zu Altersbestimmungen. Neues Jb. Miner., 93, 45-66. HOPPE, G. (1964) : Morphologische Untersuchungen als Beiträge zu Zirkonaltersbestimmungen. II Zirkone der Antarkti s (à paraître) HOUTERMANS, F.G. (1951) : Über ein neues Verfahren zur Durchführung chemischer Altersbestimmungen nach der Blei - Methode. Sitz. Heidelberger Ak. Wiss. Mathem. Naturwiss., Kl. 2 Abh., 123-136. HUGI, E. (1934) : Das Aarmassiv. In : Guide Géologique de la Suisse, fasc. II., Wepf et Co, Bâle. HUGI, Th. (1956) : Vergleichende petrologische und geochemische Unterauchungen an Graniten des Aarmassivs. Mat. Carte géol. Suisse, N.S. 94. HURLEY, P.M. et FAIRBAIRN, H.W. (1953) : Radiation damage in zircon : a possible age method. Bull. Geol. Soc. Am., <u>64</u>, 559-673. HURLEY, P.M. HUGHES, H., FAURE, G., FAIRBAIRN, H.W., et PINSON, W. H. (1962) : Radiogenic Strontium-87 model of continent formation. Journ. Geophys. Res., 67, 5315-5334. HURLEY, P.M., HUGHES, H., PINSON, W.H. Jr., et FAIRBAIRN, H.W. (1952): Radiogenic Argon and Strontium diffusion parameters in biotito at low temperature obtained from Alpine fault uplift in New Zealand. Geochim. et Cosmochim. Acta, 26, 67-80.

HUTTENLOCHER, H.F. (1947) : Uber Verschiedenheiten im Verlaufe magmatischer und metamorpher Prozesse crlautert an Beispielen aus dem Aarmassiv. Mitt. Naturforsch. Ges. Bern., N.F. 4, 85-116. INGHRAM, M.G. (1954) : Stable isotopo dilutions as an analytical tool. Ann. Rev. Nucl. Sc., 4, 81-92. JAGER, E. (1962) : Rb-Sr age determinations on micas and total rocks from the Alps. Journ. Geophys. Res., 67, 5293-5306. JAGER, E. (1963) : Rb-Sr age determinations on micas and total rocks from the Alps. Nuclear Geophysics. Proc. Conf. 1962, Woods Hole, Mass., NAS -NRC, 1075, 106-112. JAGER, E. et FAUL, H. (1959) : Age measurements on some granites and gneisses from the Alps. Bull. Geol. Soc. Am., 70, 1553-1557. JAGER, E., GEISS, J., NIGGLI, E., STRECKEISEN, A., WENK, E. et WUTHRICH, H. (1961) : Rb-Sr Alter an Gesteinsglimmern der Schweizer Alpen.Bull. Suisse Min. Pétr., 41, 255-272. JAGER, E., KEMPTER, E., NIGGLI, E., et WUTHRICH, H.M. (1961) : Biotit - Varietäten und Stilpnomelan im Alpin metamorph überprägten Mittagfluh - Granit (Aarmassiv) Bull. Suisse Min. Pétr., 41, 117-126. JONGHANS, W.J. (1950) : Mitteilungen zur Karbonflora der Schweiz. Eclogae Geol. Helv., 43, 95-104. KOSTYLEVA, E.E. (1946) : On the metamictic desintegration of the zircon group of minerals (trad. distribuée par le U.S. Geol. Survey). Article original paru dans Voprosy Mineralogii Geokhimii Petrografii, Akademii Nauk SSSR, Moscou, pp. 27-35. KRUMMENACHER, D. (1961) : Déterminations d'âges isotopiques faites sur quelques roches de l'Himalaya du Népal par la méthode potassium - argon. Bull. suisse Min. Pétr., 41, 273-284. KRUMMENACHER, D. et EVERNDEN, J.F. (1960) : Déterminations d'âge isotopique faites sur quelques roches des Alpes par la méthode potassium - argon. Bull. suisse Min. Pétr., 40, 267-277. KULP, J.L. (1961) : Geologic time scale. Science, 133, 1105-1114. KULP, J.L., Bate, G.L. et GILETTI, B.J. (1955) : New age determinations by the lead method. Proc. Geol. Ass. Canada, 7, 15-24. KULP; J.L., BROECKER, W.S. et ECKELMANN, W.R. (1953) : Age determinations of uranium minerals by Pb²¹⁰ method method. Nucleonics, 11, 19-21.

KULP, J.L. et ENGELS, J. (1965) : Discordances in K-Ar and Rb-Sr isotopic ages. In : Radioactive Dating, Proc. Symp. Athen 1952, Int. Atomic En. Ag. Vionne, 219-235. KULP, J.L., LONG, L.E., GIFFIN, C.E., MILLS, A.A., LAMBERT, St.J., GILETTI, B.J. et WEBSTER, R.K. (1960) : Potassium - argon and rubidium - strontium ages of some granites from Britain and Eire. Nature, 185, 495-497. KUOVO, O. (1958) : Radioactive ages of some Finnish Precambrian minerals. Bull. Comm. Geol. Finland, 182. KVALE, A. (1957) : Gefügestudien im Gotthardmassiv und den angrenzenden Gebieten Bull. Suisse. Min. Pétr., 37, 398-434. LANPHERE, M.A., WASSERBURG, G.J., ALBEE, A.L. et TILTON, G.R. (1963): Redistribution of Strontium and Rubidium isotopes during metamorphism, World Beater Complex, Panamint Range, California. Isotopic and Cosmic Chemistry, North Holland Press. LARSEN, E.S., KEEVIL, N.B. et HARRISON C. (1952) : A method for determining the age of igneous rocks using the accessory minerals. Bull. Geol. Soc. Am., 63, 1045-1062. LARSEN, E.S., Jr., WARING, C.L. et J. BERMAN (1953) : Zoned zircon from Oklahoma. Am. Miner., <u>38</u>, 1118-1125. LEAKEY, L.S.B., EVERNDEN, J.F. et CURTIS, G.H. (1961) : Age of Bed I, Olduvai Gorge, Tanganyika. Nature, <u>191</u>, 478. LEDENT, D. (1958) : Détermination de l'âge absolu de minéraux africains par la méthode au plomb. Thèse, Université Libre de Bruxelles. LEDERMANN, H. (1945) : Petrographische Untersuchungen in der nördlichen Schieferhülle des zentralen Aarogranites im oberen Lötschental (westliches Aarmassiv) Bull. suisse Min. Pétr., 25, 383-530. LENZ, H. et WENDT, I. (1963) : Age determination on secondary uranium - minerals in North Bavaria. In : Radioactive Dating, Proc. Symp. Athen 1962, Int. Atomic En. Ag. Vienne, 279-288. LONGINELLI, A. (1960) : Age of the pleochroic halos of the quartz - monzonite of eastern Elba, Experientia, 16, 439-440. LONGINELLI, A. (1961) : Artificial coloration of biotites by Po²¹⁰ alpha particles. In : Summer Course on Nuclear Geology. Varenna 1960, 311-321. LUGEON, M. (1911) : Sur quelques conséquences de l'hypothèse du dualisme des plissements paléozoïques dans les Alpes occidentales. C.R. Acad. Sc., Paris, 13 nov.

193. LUGEON, M. (1916) : Sur l'origine des blocs exotiques du Flysch préalpin. Eclogae Geol. Helv., 14, 217-222. Mc DOUGALL, I, (1961) : Determination of the age of a basic igneous intrusion by the potassium - argon method. Nature, 190, 1184-1186, Mc DOUGALL, I. (1963) : Potassium - argon age measurements on dolorites from Antarctica and South Africa. Journ. Geophys. Res., 68, 1535-1545. MARSHALL, R.R., et HESS, D.C. (1960) : Determination of very small quantities of lead. Anal. Chem., 32, 960-966. MICHOT, J. (1960) : Acceptation généralisée du terme cornéite. Ann. Soc. Géol. de Belgique, 83, 87-89. MICHOT, Jr., J. (1962) : Etude pétrologique des échantillons prélevés dans les Monts Sör-Rondane (Antarctique). Expédition Antarctique Belge 1957-1958. I. Les roches à caractère intrusif. Ann. Soc. Géol. de Belgique, 85, B 87-99. MICHOT, Jr., J. (1963) : Etude pétrologique des échantillons prélevés dans les Monts Sör-Rondane (Antarctique). Expédition Antarctique Belge 1957-1958. II. Le complexe métamorphique. Ann. Soc. Géol. de Belgique, 85, B 151-174. MICHOT, Jr., J. (1964) : Etude pétrographique des échantillons prélevés dans les Monts Sör-Rondane. Expédition Antarctique Belge 1957-1958, Rapports Scientifiques, Vol II, 152 pp. MONTEYNE - POULAERT, G., DELWICHE, R. et CAHEN, L. (1962) : Ages de minéralisation pegmatitiques et filoniennes du Rwanda et du Burundi. Bull. Soc. belge de Géol., de Pal. et d'Hydrol., 71, 210-222. MONTEYNE - POULAERT, G., DELWICHE, R., SAFIANNIKOFF, A. et CAHEN, L. (1962) : Ages de minéralisations pegmatitiques et filonniennes du Kivu méridional (Congo oriental). Indications préliminaires sur les âges des phases pegmatitiques successives. Bull. Soc. belge de Géol., de Pal. et d'Hydrol., 71, 272-294. MUMPTON, F.A. et ROY, R. (1961) : Hydrothermal stability studies of the zircon - thorite group. Geochim, et Cosmochim. Acta, 21, 217-238. MURINA, G.A. et SPRINTSSON, V.D. (1961) : Retention of radiogenic argon in glauconites. Geochemistry, 5, 489-494. NICOL/YSEN, L.O. (1957) : Solid diffusion in radioactive mineral and the measurement of absolute geologic age. Geochim, et Cosmochim. Acta, 11, 41-59. NICOLAYSEN, L.O., de VILLIERS, J.W.L., BURGER, A.J., STRELOW, F.W.E. (1958) : New measurements relating to the absolute age of the Transvaal System and of the Busveld Igneous Complex. Trans. Geol. Soc. South Africa, 61, 137-163.

NIGGLI, E. (1960) : Mineral - Zonen der Alpinen Metamorphose in den Schweizer Alpen. Congr. Géol. Intern. Copenhage, 21e Sess., Norden, part 13, 132-138. NIGGLI, E. (1961) : Bemerkungen zur tertiären regionalen Metamorphose in den Schweizer Alpen. N. Jb Miner. Abh., 96, 234-235. NIGGLI, F. (1934) : Das Gotthard massiv. In : Guide géologique de la Suisse, fasc. II, Wepf et Co, Bâle. OULIANOFF, N. (1944) : Les anciens Massifs du Mont Blanc et de l'Aar et l'orogenèse alpine. Eclogae Geol. Helv., 37, 31-35. PABST, A. (1952) : The metamict state. Am. Miner., 37, 137-157. PASTEELS, P. (1960) : L'âge des halos pléochroïques du granite d'Habkern et de quelques roches du Massif de l'Aar. Bull. suisse Min. Pétr., 40, 261-266. PASTEELS, P. et DEUTSCH, S. (1963) : Age measurements of Antarctic rocks (Quean Maud Land). Nature, 199, 996-997. PECORA, W.T. (1956) : Carbonatites : a review. Bull. Geol. Soc. Am., <u>67</u>, 1537-1556. PELLAS, P. (1954) : Sur la formation de l'état métamicte dans le zircon. Bull. Soc. Minér. Crist., 77, 447-460. PICCIOTTO, E. (1960) : Geological reconnaissance of the Sör-Rondane Mountains (Quean Maud Land). Nature, 186, 740. PICCIOTTO, E. et COPPEZ, A. (1963) : Bibliographie des mesures d'âges absolus en Antarctique. Ann. Soc. Géol. de Belgique, 85, B 263-308. PICCIOTTO, E.E., et DEUTSCH, S. (1961) : Pleochroïc haloes. In : Summer Course on Nuclear Geology Varenna 1960. 263-310. PICCIOTTO, E., DEUTSCH, S. et PASTEELS, P. (1963) : Isotopic ages from the Sör-Rondane Moutains, Queen Maud Land, Antarctica. SCAR Symposium on Antarctic Geology, Cape Town, 16-21 sept. PICCIOTTO, E.E., DEUTSCH, S., et PASTEELS, P. (1964) : Mesures d'âges par les méthodes isotopiques de minéraux et de roches des Monts Sör-Rondane, Expédition Antarctique Belge 1957-1958, Rapports scientifiques. Vol. VII, part III, 35 pp.

PICCIOTTO, E., MICHOT, J., MICHOT, P. (1960) : Reconnaissance géologique et pétrographique des Monts Sör-Rondane (Terre de la Reine Maud). Bull. Soc. belge de Géol., de Paléontol. et d'Hydrol., 69, 211-223. PINSON, .H., Jr. (1961) Some points on the geological time scale from Nova Scotia and New England. In : Guochronology of rock systems, ina. N.Y. cad. Sc., <u>\$1</u>, 372-377. FOLDERV AAT, (. (1950) Statistical studies of zircon as a criterion in granitization. Nature, 165, 574-575. , POLDERVAART, K. (1956) : Zircon in rocks. 2. Igneous rocks. Am. J. of Sciences. 254, 521-554. POLDERVAART, A. et ECKELMANN, F.D. (1955) : Growth phenomenon in zircon of autochtonous granites. Bull. Geol. Soc. Am., 66, 947-948. POOLE, W.H., BELAND, J. et WANLESS, R.K. (1963) : Minimum age of Middle Ordovician rocks in Southern Québec. Bull. Geol. Soc. Am., 74, 1063-1066. POWELL, J.L. (1962) : The petrogenesis of alkaline rocks. Dept. Geol. and Geophys., M.I.T., Ann. Rep. December 1, 1962, 125-126. Excepts from Ph. D. thesis, M.I.T. POWELL, J.L., HURLEY, P.M. et FAIRBAIRN, H.W. (1962) : Isotopic composition of strontium in carbonatites. Nature, 196, 1085-1086. RAMA, Minoru KOIDE, et GOLDBERG, E.D. (1961) : Lead - 210 in natural waters. Science, 134, 98-99. RANKAMA, K. (1963) : Progress in isotope geology. Intersciences. John Wiley, N.Y., London. REINHARZ, M., DELWICHE, R. et KATZ, J. (1962) : Spectromètre de masse du Laboratoire de Géologie et Géochimie Nucléaires. Presses Universitaires de Bruxelles. ROOTS, E.F. (1953) : Preliminary note on the geology of western Dronning Maud Land. Norsk Geologisk Tidsskrift, 32, 17-33. ROSHOLT, N., Jr. (1959) : Natural radioactive desequilibrium of U series. U.S. Geol. Survey. Bull. 1084-A. RUSSEL, R.D. et AHRENS, L.H. (1957) : Additional regularities among discordant lead - uranium ages, Geochim. et Cosmochim., Acta, 11, 213-218. SARDAROV, S.S. (1957) : Retention of radiogenic argon in microcline. Geochemistry, 3, 233-237.

SCHAEFFER, O.A., STOENNER, R.W., BASSET, W.A. (1961) : Dating of Tertiary volcanic rocks by the Potassium - Argon method. In : Geochronology of rock systems. Ann. N.Y. Acad. Sc. 91, 317-320. SCHILLING, J. (1957) : Petrographisch - geologische Untersuchungen in der unteren Val d'Ossola, Ein Beitrag zur Kenntnis der Ivreazone. Bull. suisse. Min., Pétr., 37, 435-544. SCHURMANN, H.H.E., BCT, A.C.W., STEENSMA, J.J.S., SURINGA, R., EBERHARDT, P., GEISS, J., von GUNTEN, H.R., HOUTERMANS, F.C. et SIGNER, P. (1956) : Second preliminary note on age determinations of magmatic rocks by means of radio - activity. Geologie en Mijnbouw, 10 NS, 312-330. SIGRIST, F. (1947) : Beiträge zur Kenntnis der Petrographie und der Alpinen Zerrkluft lagerstätten des Östlichen Aarmassivs. Bull. Suisse Min. Pétr., 27, 39-182. SILVER, L.T. (1963a) : The relation between radioactivity and discordance in zircons. Nuclear Geophysics, Proc. Conf. 1962, Woods Hole, Mass., NAS-NRC. 1075, 34-42. SILVER, L.T. (1963b) : The use of cogenetic uranium - lead isotope systems in zircons in geochronology. In : Radioactive Dating, Proc. Symp. Athen 1962, Int. Atomic En. Ag. Vienne, 279-287. SILVER, L.T. et DEUTSCH, S. (1961) : Uranium - lead method on zircons. In : Geochronology of rock systems. Ann. N.Y. Acad. Sc., 91, 166-180. SILVER, L.T. et DEUTSCH, S. (1962) : Uranium - lead isotopic variations in zircons : a case study. Journ. Geol., 71, 721-758. SILVER, L.T., et Mc KINNEY, G.R. (1962) : U - Pb isotopic age studies of a Precambrian granite, Marble Mountains, Calif. (résumé) ; Bull. geol. Soc. Am., Cordilleran Section Meeting. SILVER, L.T., Mc KINNEY, G.R., DEUTSCH, S. et BOLINGER J. (1963) : Precambrian age determinations in the western San Gabriel Moutains, California: Journ. Geol., 71, 196-214. SODER, P.A. : Geologische Untersuchung der Schrattenfluh und des südlich anschliessenden Teiles der Habkern - Mulde (Kt.Luzern). Eclogae Geol. Helv., 42, 35-109. SOLODOV, N.A. (1959) : Geochemistry of rare - earth granite pegmatites. Geochemistry 7, 778-792. SPAENHAUER, F. (1932) : Geologie und Petrographie der Vadret - Sursura - Gruppe. Bull. suisse Min. Pétr., <u>12</u>, 27 - 146.

STARIK, I.E. (1956) : The role of secondary processes in age determination by radiometric methods. Geochemistry, 5, 444-457. STAUB, R. (1924) : Der Bau der Alpen. Beitr. Geol. Karte Schweiz, N.F., Lief. 52, 272 pp. STEIGER, R.H. (1963) : Use of K-Ar ages of hornblende for dating phases of Alpine orogeny (résumé). Geol. Soc. Am. Ann. Meeting. STERN, T.W. et ROSE, H.J. (1961) : New results from lead - alpha age measurements. Am. Miner., 46, 506-612. STIEFF, L.R. et STERN, T.W. (1961) : Graphic and algebraic solutions of the discordant lead - uranium age problem. Geochim. et Cosmochim. Acta, 22, 176-199. STIEFF, L.R., STERN, T.W., Seiki COHIRO et SENFTLE, F.E. (1959) : Tables for the calculation of lead isotopic ages. Geol. Survey prof. paper 334-A STRECKEISEN, A. (1928) : Geologie und Petrographie der Flüelagruppe. Bull. suisse Min. Pétr., 8, 87-239. TAUSON, L.V. (1958) : Effect of mineral structures on the isomorphous replacements in the silicates of effusive rocks. Geochemistry, 8, 817-925. TILTON, G.R. (1956) : The interpretation of lead - age discrepancies by acid - washing experiments. Trans. Am. Geophys. Union, 37, 224-230. TILTON, G.R. (1950) : Volume diffusion as a mechanism for discordant lead ages. Journ. Geophys. Res., 67, 2933-2945. TILTON, G.R., ALDRICH, L.T. et INGHRAM, M.G. (1954) : Mass spectrometric determination of thorium. Anal. Chem., 26, 894-898. TILTON, G.R. et DAVIS, G.L. (1959) : Geochronology. In Researchs in Geochemistry, ed. par P. Abelson. J. Wiley, N.Y. TILTON, G.R., DAVIS, G.L., WETHERILL, G.W., and ALDRICH, L.T., (1957): Isotopic ages of zircon from granites and pegmatites. Trans. Am. Geophys. Union, <u>38</u>, 360-371. TILTON, G.R., PATTERSON, C., BROWN, H., INGHRAM, M., HAYDEN R., HESS, D. et LARSEN, E., Jr. (1955) : Isotopic composition and distribution of lead, uranium and thorium in a Precambrian granite. Bull. Geol. Soc. Am., 66, 1131-1148.

TILTON, G.R., WETHERILL, G.W., et DAVIS, G.L. (1962) : Mineral ages from the Wichita and Arbuckle Moutains, Oklahoma, and the St Francis Moutains, Missouri. Journ. Geophys. Res., 67, 4011-4019. TILTON, G.R., WETHERILL, G.W., DAVIS, G.L. et BASS, M.N. (1960) : 1000- million - year - old minerals from the eastern United States and Canada. Journ. Geophys. Res., 65, 4173-4179. TILTON, G.R., WETHERILL, G.W., DAVIS, G.L. et HOPSON, C.A. (1958) : Ages of minerals from the Baltimore Gneiss near Baltimore, Maryland. Bull. Geol. Soc. Am., 69, 1469-1474. TONGIORGI, E. et TONGIORGI, M. (1963) : Age of the Miocene - Pliocene limit in Italy. Nature, 201, 365-367. TRUMPY, R. (1960) : Paleotectonic evolution of the central and western Alps. Bull. Geol. Soc. Am., 71, 843-908. TUREKIAN, K.K. et WEDEPOHL, K.H. (1961) : Distribution of the elements in some major units of the earth's crust. Bull. Geol. Soc. Am., 72, 175-192. URBACH, W., ACKERMANN, W. EWALD, H. et LUDWIG, R. (1962) : Das Isotopenverhältnis 87 Sr/86 Sr von Strontium - Proben aus Kalkgesteinen. Z. Naturforschg, 17a, 273-275. VAINSHTEIN, E.E., GINZBURG, A.I. et SHEWALEEV SKII, I.D. (1959) : The Hf/Zr ratio in zircons from granite pegmatites. Geochemistry, 2, 151-157. VAN AUTENBOER, T., MICHOT, Jr, J., et PICCIOTTO, E. (1963) : Outline of the geology and the petrology of the Sør - Rondane Moutains, Dronning Maud Land. SCAR Symposium on Antarctic Geology, Cape Town, 16-21 Sept. VANDENDRIESSCHE, A. (1936) : La pechblende du nouveau gîte uranifère de Kalongwe. Ann. Service des Mines du C.S.K., t VI, 70-80. VIALETTE, Y. (1961) : Age absolu du granite de Gien-sur Cure (Nièvre), dans le Massif Central français. C.R. Acad. Sciences, Paris, 252, 4018-4019. VIALETTE, Y. (1962) : Contribution à l'étude géochronologique par la méthode du strontium des principaux massifs de granites et de migmatites du Massif Central Français. Ann. Fac. Sc. Univ. de Clermont, Géol. Minér., 6. VINOGRADOV, A.P. (1962) : Average contents of chemical elements in the principal types of igneous rocks of the earth's crust. Geochemistry, 7, 641-664. VINOGRADOV, A.P., et TUGARINOV, A.I. (1961) : Geochronology of the Precambrian. Geochemistry 9, 787-800.

WASSERBURG, G.J. (1963) : Diffusion processes in Lead - Uranium systems. Journ. Geophys. Res., 68, 4823-4846. WASSERBURG, G.J. et HAYDEN, R.J. (1955) : A40/K40 dating. Geochim. et Cosmochim. Acta, 7, 51-60. WASSERBURG, G.J., HAYDEN, R.J. et JENSEN, K.J. (1956) : $A^{40} - K^{40}$ dating of igneous rocks and sediments. Geochim. et Cosmochim. Acta, 10, 153-165. WASSERBURG, G.J., WETHERILL, G.W., SILVER, L.T., et FLAWN, P.T. (1962): A study of the ages of the Precambrian of Texas. Journ. Geophys. Res., 67, 4021-4047. WENK, E. (1934) : Beiträge zur Petrographie und Geologie des Silvrettakristallins. Bull. suisse Min. Petr., 14, 196-278. WENK, E., et al. (1953) : Eläuterungen zum Geol. Atlas der Schweiz. Blatt 424, Zernez. WENK, E. (1956) : Die lepontinische Gneissregion und die junge Granite der Valle della Mera. Eclogae Geol. Helv., 49, 251-265. WENK, E. et STRECKEISEN, A. (1951) : Bericht über die geologish-petrographische Exkursion ins östliche Graubünden. Bull. suisse Min. Pétr., 31, 330-342. WETHERILL, G.W. (1956) : Discordant uranium - lead ages.I. Trans. Am. Geophys. Union, 37, 320-326. WETHERILL, G.W. (1963) : Discortint uranium - lead ages 2. Discordant ages resulting from diffusion of lead and uranium. Journ. Geophys. Res., 68, 2957-2966. WETHERILL, G.W., KUOVO, O., TILTON, G.R. et GAST, P.W. (1962) : Age measurements on rocks form the Finnish Precambrian. Journ. Geol. 70, 74-88. WIDMER, H. (1949) : Zur Geologie der Tödigruppe. Thèse Université de Zürich. Wetzikon und Rüti, Zürich 97 pp. WILGAIN, S. (1952) : Microdosage du RaD (Pb²¹⁰) par la méthode photographique. Mémoire de Licence non publié. Université Libre de Bruxelles. WUNDERLICH, H.G. et PLESSMANN, W. (1957) : Tektonik und Metamorphose der Bündner Schiefer in der Umgebung des Gotthardmassivs. Nachr. Akad. Wiss. Göttingen. Math. Phys. Chem. Abt. IIa/1. WUTHROCH, H. (1963) : Rb - Sr - Altersbestimmungen an Gesteinen aus dem Aarmassiv. Eclogae Geol. Helv., 56, 103-112.

ZAKARIODZE, G.S., (1961) : Behavior of Lithium and Rubidium in contact metamorphism. Geochemistry <u>7</u>, 622-637.

ZARTMAN, R.E. (1963) : Comparison of Rb-Sr ages on biotites from Llano, Texas. Nuclear Geophysics. Proc. Conf. 1962. Woods Hole, Mass., NAS - NRC 1075, 43-51.

ZHIROV, K.K. (1952) : On the transition of zircon into metamict state. (trad. Walter Nichiponik, Div. Geol. Sc. California Inst. of Technology) Article original paru dans Doklady Akad. Nauk SSSR, 85, 889-891.

ZHIROV, K.K., ZYKOV, S.I. et STUPNIKOVA, N.L. (1957) : On the durability of bounds of different lead isotopes in the structure of allanite. Geochemistry 2, 177-185.

ZHIROVA, V.V., ZYKOV, S.I., et T**U**GARINOV, A.I. (1961) : Age of zircons from the oldest formations of the Kola peninsula. Geochemistry <u>12</u>, 1161-1172.

ZYKOV, S.I. et STUPNIKOVA, N.I., (1957) : Isotopic analysis of lead not requiring any preliminary chemical preparation of the mineral. Geochemistry, <u>5</u>, 506-510.

ZYKOV, C.I., ZHIROV, K.K., ZHIROVA V.V., et IVANOV, I.B.; (1957) : Détermination de l'âge de xénotimes et uraninites de veines pegmatitiques de l'Ile Wedin (en russe; trad. D. Ledent). Travaux de la IVe sess. de la Comm. pour la dét. d'âges absolus des formations géologiques, Acad. Sc. URSS, 249-257.

THESE ANNEXE

La composition isotopique du plomb des galènes de nombreux gisements d'Europe occidentale est très semblable. Les erreurs systématiques de mesure tendent à masquer ce fait et peuvent conduire à des erreurs d'interprétation.



TABLE DES MATIERES

1	Introduction	203
	1 - 1 Variations de la composition isotopique du plomb dans	
	la nature.	204
	1 - 2 Modèles permettant le calcul d'un âge.	205
2	Erreurs expérimentales	207
	2 - 1 Brève revue de la question.	207
	2 - 2 Comparaison Bruxelles - Berne.	208
	2 - 3 Comparaison Bruxelles - CIT - CIW - US Geol. Survey.	209
	2 - 4 Vérifications ultérieures.	210
	2 - 5 Comparaison avec Bonn - Göttingen et Oxford	210
3	Composition isotopique des plombs de l'Eifel, du Limbourg,	et
	de la Province Meuse - Vesdre.	213
4	Remarques concernant les analyses isotopiques de plombs	215
	hercyniens et paléozoïques en général, d'Europe occidentale	•
5	Correction du plomb commun.	216
Bib	liographio.	218

1. Introduction.

Les déterminations d'âges U/Pb et Th/Pb illustrent un aspect de la géochimie isotopique du plomb. Dans le cas des minéraux jeunes (moins de 500 m.a.) une grande précision expérimentale est requise. Nous nous proposons de montrer que dans le cas des mesures des plombs naturels communs de moins de 500 m.a., des problèmes expérimentaux analogues se posent. Le genre de conclusion auxquelles on peut aboutir par l'étude des plombs communs est souvent différent. Mais la technique utilisée (spectromètrie de masse) est la même que pour les plombs radiogéniques, en sorte que les deux questions sont liées. Elles le sont pour d'autres raisons : d'une part, tout minéral d'uranium ou de thorium est susceptible de contenir du plomb commun, à côté du plomb radiogénique provenant de la désintégration de U ou de Th, et d'autre part, il y a dans le plomb commun terrestre une évolution dans le temps par addition de composants radiogéniques.

Je tiens à remercier R. DELWICHE et C. LAY, dont la compétence m'a permis de ne pas être arrêté par les problèmes techniques. A C. LAY et A. GIULIANI sont dues une partie des mesures de vérification et autres présentées ici. J'ai pu profiter d'utiles indications fournies par le professeur J. GEISS, de l'Université de Berne. M.F. BREYER m'a remis des échantillons de galène qu'il a étudié sous d'autres rapports, dans son travail de thèse (Université de Liège).

A Monsieur le Professeur E. PICCIOTTO, pour l'intérêt qu'il a apporté à ce travail, je tiens à adresser mes remerciements les plus vifs.

1 - 1 <u>Variations de la composition isotopique du plomb dans</u> <u>la nature</u>.

Ces variations sont extrêmement importantes, et ne peuvent s'expliquer que par le mécanisme déjà signalé plus haut : addition continue au cours du temps de Pb²⁰⁶, Pb²⁰⁷, Pb²⁰⁸ provenant de la désintégration de U²³⁸, U²³⁵, Th²³² respectivement.

Ceci est vrai à l'échelle de la Terre ou de l'écorce terrestre. Si un échantillon de plomb est retiré du circuit géochimique en étant incorporé à un minéral de rapports U/Pb, Th/Pb = 0, l'addition cesse. Une galène représente un échantillon de plomb terrestre ancien, en quelque sorte "fossile". On a pu voir qu'il y a une relation très nette entre l'âge des dépôts et la composition isotopique du plomb. Quelques exemples choisis au hasard, peuvent aider à préciser l'ordre de grandeurs de ces variations.

Tableau 1 - 1

Provenance	R	óf.	Age appro mati	e oxi- Lf	206/204	207/204	208/204
Grimsel, Alpes	Be.	109	300	m.a.	18,64	15,82	38,83
Petite Mobale, S.Kivu	т.	621	900	m.a.	17,78	15,85	37,53
Uitloop 291, Afr. Sud	L.	152	2100	m.a.	14,97	15,07	34,71
Midlands Farm, Rhod.S.	т.	593	3000	m.a.	13,62	14,95	33,67

Sauf pour Grimsel, données extraites de HOLMES et CAHEN 1957 (Be : Berne, T: Toronto, L : Lamont). Pour Grimsel : EBERHARDT et al., 1958.

Le plomb contenu dans un minéral uranifère ou thorifère ne participe pas à cette règle et présentera une composition isotopique complètement différente. Les plombs radiogéniques peuvent migrer hors des minéraux où ils sont accumulés sans être repris nécessairement dans le circuit géochimique. Particulièrement dans les gisements d'uranium, mais parfois ailleurs, on observe des plombs anormaux dits, de type "J", anormalement enrichis en plomb radiogénique. On a signalé des galènes constituées pratiquement de plomb radiogénique pur, ce qui ne doit pas étonner. Les plombs anormaux de type "B" sont des plombs remobilisés à partir de dépôts préexistants, dans des conditions telles que l'apport radiogénique entre le moment de la première et celui de la seconde déposition est nul ou anormalement faible (HOUTERMANS). Pour **plus** de détails, consulter l'ouvrage de R.D. RUSSEL et R.M. FARQUHAR, 1960.

1 - 2 Modèles permettant le calcul d'un âge (dit "model age" ou "âge conventionnel")

Certaines météorites ferreuses contiennent un plomb d'une composition isotopique jamais observée dans les matériaux terrestres (PATTERSON, 1956).

206/204	207/204	208/204
9,50	10,36	29,49

Ces rapports seront désignés dans la suite respectivement α_{ω} , β_{ω} , χ_{ω} .La composition isotopique d'un plomb quelconque, sauf indication contraire, sera exprimée par : 1 $\Rightarrow \beta \chi$.

Ces mêmes météorites ne continnnent pas d'uranium ni de thorium. L'âge des météorites peut être fixé à 4.500 m.a., à la fois par des mesures Pb^{207}/Pb^{206} , sur la fraction "radiogénique" du plomb des météorites pierreuses contenant U, que par des mesures Rb/Sr. On admet généralement qu'il y a 4.500 m.a., date de la formation de la Terre, le Pb terrestre présentait la même composition isotopique que celui des météorites ferreuses en question.Ce serait le plomb "originel", formé par nucléosynthèse. Soit un plomb 1 d β y formé par addition de constituants radiogéniques entre w (= 4.500 m.a.) et t (âge conventionnel)

(4)

$d - dw = M(e^{\lambda w} - e^{\lambda t})$	(1)
B-Bw=ME(en en)	(2)
X - Xw = N / (e ² w - 1°)) (3)
1 ! =	

$$\frac{\beta - \beta w}{d - d w} = \varepsilon \frac{e^{2} - e}{e^{\lambda w} - e^{\lambda t}}$$



 $\mathcal{N} = \frac{\left[Th^{232} \right]_{\text{actuel}}}{\left[V^{238} \right]_{\text{actuel}}}$

exprime le rapport U/Pb du milieu où le plomb a évolué

exprime le rapport Th/U

 $\mathcal{E} = \frac{\left[\begin{array}{c} U^{235} \right]}{\left[\begin{array}{c} U^{235} \right]} \text{ actual}} = \frac{1}{137.7}$ $\lambda, \lambda', \lambda'' = \text{constantes de désintégration, respectivement de U^{238},$ $U^{235}, \text{ Th}^{232}.$ Dans ces formules, M et K sont des constantes. Un "model age" ne peut être calculé que si les seules variations dus rapports U/Pb et Th/U dans le milieu considéré (écorce, globe, manteau) ne se font que par décroissance radioactive. Deux hypothèses peuvent être faites :

a) M et X ont des valeurs fixes et identiques pour tous les plombs naturels de certaines catégories de gisements, qui sont supposés avoir la même origine. L'une quelconque des relations (1) à (4) peut servir au calcul de t. On appliquera celles qui donnent la meilleure précision. Si l'on obtient pour un échantillon plusieurs valeurs de t par trop discordantes, c'est la preuve que le modèle ne s'applique pas (plomb anormal).
b) On ne fixe pas de valeur à M ni à X. Seule la formule (4) peut servir au calcul de l'âge. Le modèle de GERLING, HOLMES, HOUTERHANS, est basé sur cette hypothèse.

Si t est calculé à partir de (4), on peut calculer \mathcal{M} et \mathcal{M} en introduisant t dans (1) et (3). Il a été constaté que pour les plombs normaux, il y a fort peu de variation de \mathcal{M} et de \mathcal{M} . En fait, à tous les plombs auxquels le modèle b) est applicable; le modèle a) l'est également (ou presque). Il n'y a donc pas d'opposition entre ces deux hypothèses, et la plus grande généralité de b) est un peu illusoire (cf. HOUTERLANS et EBERHARDT, 1961).

Il y a davantage de contestations en ce qui concerne les valeurs des autres constantes introduites dans les formules. Evidemment, fixer W à 4.500 m.a. introduit une hypothèse. Les valeurs de dur, Bur, Jur présentées plus haut résultent d'une seule (la première) analyse de PATTERSON. D'autres analyses, analogues mais un peu différentes, ont été publiées depuis pour d'autres météorites ferreuses. Rappelons aussi que λ U²³⁵ n'est déterminé expérimmantalement qu'à 2% près. Même si l'on admet que toutes les hypothèses introduites par le modèle a) ou b) sont rigoureusement correctes, on n'est pas assuré pour autant de pouvoir calculer des "âges conventionnels" exacts à 100 m.a. ou 150 m.a. près. La meilleure confirmation de la validité des modèles et de l'exactitude des constantes, est que pour des gisements de plomb dont l'âge est connu indépendamment on trouve des valeurs de t convenables. C'est en effet ce que l'on observe très généralement. Une résorve doit être faite pour les plombs "jeunes". Déterminer à 100 ou 150 m.a. près, l'âge d'une galène que l'on sait être post paléozoïque, par exdmple, n'est que de peu d'utilité. Or cette incertitude peut être introduite soit par :

- a) par l'introduction de constantes inexactes dans la formule, comme on l'a vu plus haut (RICHARDS, 1963, p 225 : pour des échantillons paléozoïques..."the sensitivity of the model age to uncertainties in the constants is almost catastrophic"),
- b) par le fait que le modèle n'est exact qu'approximativement,
- c) par suite d'erreurs expérimentales.

Quant au point b), l'hypothèse d'un \mathcal{M} constant sur une longue durée de temps ne semble valable que si le plomb est extrait du manteau du globe, ou s'il provient d'un matériau crustal de composition moyenne, par exemple de toute une série géosynclinale, de roches d'une telle série homogénéisées par un processus de granitisation, etc. C'est là un point qui fait appel à des considérations géologiques théoriques.

Notons par exemple que les "âges conventionnels" du plomb des sédiments océaniques actuels varient dans une marge fort étendue: O (si on définit ainsi t = O) \pm 200 m.a. (\pm 100 m.a. pour le plus grand nombre d'échantillons) (T.J. CHOW et C. PATTERSON, 1962) Mais c'est le point c) que nous voudrions développer en détail.

2. Erreurs expérimentales

2 - 1 Brève revue de la question

Les erreurs indiquées par les auteurs sont presque toujours les erreurs aléatoires. Elles sont faibles en général et permettent le calcul d'âges conventionnels à \pm 50 m.a.

Les erreurs systématiques peuvent être trois fois plus importantes. Des essais de calibration interlaboratoire sur des échantillons standards sont exécutés depuis de nombreuses années. On trouvera ici en très résumé ce que l'on sait des résultats de ces essais pour quelques laboratoires ayant fait des mesures sur des échantillons de galène d'Europe occidentale.

<u>Berne</u> : Les comparaisons faites avec différents laboratoires américains et avec Toronto sont bonnes (J. GEISS, communication personnelle). Les données publiées par RUSSEL et FARQUHAR 1960 montrent qu'entre Berne et Toronto, il peut y avoir une différence allant jusqu'à 1% pour la mesure du 204, mais que pour les rapports où le 204 n'intervient pas, l'accord est meilleur. La divergence parfois observée pour la mesure du 204 ne se fait pas systématiquement dans le même sens. Bonn et Göttingen : Le pic 204 est plus grand d'environ 1%, par rapport à Berne et Toronto, d'une manière systématique. Cette indication nous vient de J. GEISS, auteur des anciennes mesures de Göttingen sur le spectrémètre transféré plus tard à Bonn, et auteur aussi des mesures faites à Berne. Les mesures faites à Berne sont considérées par J. GEISS comme plus proches des valeurs absolues.

<u>Oxford</u> : Les essais d'intercalibration de MOORBATH, 1962, montrent qu'il y a en général bon accord avec les mesures effectuées dans d'autres laboratoires. Mais cela ne concerne pas la mesure du 204, où des divergences dépassant le pour cent sont observées dans <u>certains cas</u>, et avec certains laboratoires, particulièrement avec Lamont zt Toronto. Dans le cas d'une série de mesures contenant des échantillons de Grande-Bretagne, la divergence systématique entre Oxford et Toronto, pour la mesure du pic 204, est comprise entre 3 et 5%. Par contre, il y a accord excellent avec Bonn (on peut ajouter avec Göttingen). Oxford mesure systématiquement un pic 204 plus élevé que Toronto.

On voit que les plus grandes différences concernent la mesure du pic 204, qui est le plus petit et le plus difficile à mesurer.

On a constaté, comme on le verra par la suite, qu'une autre cause d'erreur peut être introduite par une mauvaise estimation de la discrimination de masse du multiplicateur d'électrons (p.m.). Ceci rejoint d'ailleurs des observations faites par d'autres auteurs. Pour pouvoir aisément faire la distinction entre les deux effets, on peut ordonner les rapports isotopiques de la manière suivante., avec l'isotope le plus lourd au numérateur, et en premier lieu les rapports où intervient le 204.

4	unités	de masse	:	Pb208/Pb204	=	X
3	unités	de masse	:	Рь207/Рь204	=	B
2	unités	de masse	:	Рь206/Рь204 Рь208/Рь206	=	d
1	unité d	e masse	:	Рь208/Рь207 Рь207/Рь206		

2 - 2 Comparaison Bruxelles - Berne

TABLEAU 2 - 2. COMPARAISONS BRUXELLES - BERNE.

Echantillon : Galène de Kiseba près de Lubudi, Sud Katanga, réf. Be 31, Eberhardt, Geiss, Houtermans 1955.

u. d. m.	Rapports	Berne (Be 31)	Bxl 20/3/61 p. m. 2500 V	Bxl 10/10/61 coll, normal	Bxl 26/8/63 p. m. 2500 V	S (Bx1/Be)	(1 <u>)</u> u. d. m.	Bxl 27/8/63 p. m. 2000 V	6 (Bx1/Be)
4	208/204	38, 51	38,54	-	37,10	- 37*/**	- 9°/°°	36,14	- 62°/**
3	207/204	15,83	15,82	-	15,42	- 26*/**	- 9*/**	15,08	- 47*/**
2	206/204 208/206	18,35 2,099	18,34 2,101	2,088	17,99 2,063	- 20°/°° - 17°/°°	} - 9°/°°	17.70 2,042	- 35*/** - 28*/**
1	208/207 207/206	2,433 0,8625	2,436 0,8626	2,415 0,8646	2,406	- 11°/** - 6°/**	} - 8,5°/°°	2,397	- 16°/°° - 12°/°°

(1) δ (Bx1/Be) = (Bx1/Be - 1) x 1.000

TABLEAU 2 - 3. COMPARAISONS BRUXELLES - C. I. T., C. I. W., U. S. GEOL SURVEY (DELEVAUX 1963).

Echantillon : solution C.I.T. shelf.

u.d.m	•	Rapports U. S. Geol. Survey Delevaux, 1963	C. I. T. Chow et Mc Kinney, 1958	C. I. W. Doe, 1962	Bxl 16/8/63 et 23/8/63 p. m. 2500 V	Moyenne C. I. T. C. I. W., Geol Survey	$\delta\left(\frac{Bx1}{moy}\right)$	<u>δ</u> , u. d. m.
4	208/204	36,60	36,43	36,34	35,50	36,46	- 26°/**	- 6,5°/**
3	207/204	15,61	15,50	15,49	15,20	15,53	- 21°/**	- 7, -*/**
2	206/204 208/206	16,76 2,185	16,64 2,189	<u>6</u> 1.62 2,187	16,46 2,157	16,67 2,187	$\left. \begin{array}{c} - 13^{\circ/\circ\circ} \\ - 14^{\circ/\circ\circ} \end{array} \right\}$	- 6,75°/**
1	208/207 207/206	2,345 0,9314	2,351 0,9321	2,347 0,9318	2,336 0,9234	2,347 0,9318	$\left. \begin{array}{c} - 5^{\circ}/^{\circ\circ} \\ - 9^{\circ}/^{\circ\circ} \end{array} \right\}$	- 7*/**

L'examen des données du tableau 2 - 2 montre que : a) L'accord entre la mesure de Berne et celle de Bruxelles effectuée le 20/3/1961 est excellent en tous points.

b) La mesure faite le 10/10 en collecteur normal fut trop mauvaise pour que le 204 ait pu être enregistré à une sensibilité suffisante. L'accord avec la mesure de Berne est bon. Si on se servait de cette mesure unique faite sans p.m. pour déterminer la correction de masse devant être appliquée aux autres mesures, cette correction serait de 2,5% mais devrait se faire dans le sens contraire à celui prévu par la théorie, pour la mesure du 20/3/61. On peut donc dire qu'aucune correction de masse ne doit être appliquée à cette dernière mesure (en accord avec le résultat de Berne). c) Par contre une correction de masse très importante doit être appliquée aux mesures de 1963. La variation de la correction avec la tension appliquée au p.m. montre bien qu'il s'agit d'un effet dû à ce dernier. La tension de 2500 V est celle utilisée pour toutes les mesures (sauf essais de vérification).

d) Le même p.m. a été utilisé depuis 1961 jusqu'en 1953. Nous ne savons pas si la discrimination de masse s'est accrue d'une manière progressive ou brusque. REINHARZ, DELWICHE et KATZ (1962) ont constaté sur notre spectromètre un effet quelque peu analogue, et brusque, pour Rb.

Pour cet élément la situation est compliquée du fait du fractionnement à la source. D'une part, le p.m. a été mis sous air à certaines occasions, ce qui peut être la cause d'une détérioration brusque, et d'autre part la première dynode subit un bombardement d'ions lors de chaque mesure. Des vérifications nous ont permis d'établir que pour toute la série de mesures concernant les échantillons des Alpes, ainsi que pour une série de mesure_s sur galène dont il sera question dans la suite, la correction à appliquer est constante et bien établie. Par contre, il y a un doute pour les mesures des échantillons antarctiques faites quelques mois auparavant (en 1962).

2 - 3 Comparaison Bruxelles - CIT - CIW - US Geol. Survey

Les résultats de mesures sur l'échantillon C.I.T. shelf Pb, obtenus respectivement au California Institute of Technology, Carnegie Institue of Washington, U.S. Geological Survey sont comparés dans un article de M. DELEVAUX. L'accord est excellent. On peut donc supposer que ces trois laboratoires ont réussi à élimi-

ner les causes majeures d'erreurs systématiques. Comme nous n'avons pas de raison de préférer une mesure plutôt qu'une autre, nous avons comparé nos propres résultats à une moyenne des trois. Il faut bien préciser, que les mesures faites dans les trois laboratoires précités sont des résultats éventuellement corrigés pour des effets systématiques tels que correction de masse etc. Notre propre mesure est une mesure "brute" qui, pourvu que l'on applique la correction de masse convenable, est en accord excellent avec les trois autres. La valeur précise de cette correction par unité de masse, au mois d'août 1963 pour une tension appliquée au p.m. n°l, de 2500 V. est de :

9°/oo d'après la comparaison avec Berne 6,5°/oo à 7°/oo d'après la comparaison avec la moyenne CIT, CIW, Geol. Survey.

6°/oo d'après la mesure en collecteur normal dù 10/10/61 (tableau 2 - 2).

La correction de masse effectivement appliquée à nos mesures a été fixée à 7°/oo par u de m₇ pour cette période d'utilisation, à 2500 V, du p.m. n° 1. Il parâît difficile de déterminer cette correction à mieux de 2°/oo près par unité de masse.

2 - 4 Vérifications ultérieures.

a) On a changé le p.m. La tension appliquée au p.m. n°2, a été selon les cas de 2000 V, 1700 V, 1500 V.

On observe :

- Une correction de masse de environ 7º/oo par u.de m. à 1700 V et 1500 V.
- Lorsque l'émission ionique est peu intense, la mesure du pic 204 est inexacte par excès. Ceci est dû à un spectre d'impuretés qui se superpose à celui du plomb, et que l'on observe en certaines occasions. Quelques essais ont été nécessaires pour préciser dans quelles conditions cet effet pouvait être considéré comme nul.

b) Un blindage magnétique a été placé par R. DELMICHE autour du p.m. La correction de masse a été abaissée à 3,5% par u. de m. (Cf. ALDRICH et al., 1956).

2 - 5 Comparaison Bonn - Göttingen et Oxford.

Les essais d'intercalibration que nous avons menés avec Berne, C.I.W., C.I.T., U.S. Geol. Survey l'ont été surtout dans

TABLEAU 2 - 5. COMPARAISON BRUXELLES-OXFORD.

		ECHANTILLON A			ECHANTILLON B			
u.d.m.	Rapports	1	2	§ (Ox. /Bx1.)	3	4		
		Oxford (Pockley)	Bruxelles (janvier '64)		Bruxelles (Lay) 1962	Bruxelles (janvier '64)		
4	208/204	38,18 + 0,17	38,80	- 16*/**	39,18	38,86		
3	207/204	15,53 + 0,07	15,77	- 15*/**	15,93	15,83		
2	206/204 208/206	18,29 + 0,08 2,087	18,41 2,108	- 7°/** - 10°/**	18,53 2,115	18,37 2,115		
1	208/207 207/206	2,458 0,8491	2,460 0,8566	- 1*/** - 9*/**	2,460 0,8597	2,464 0,8585		
Age conventionnel (1)		230 m.a.	440 m.a.		540 m.a.	540 m.a.		

(1) Calculé comme dans ce qui suit d'après les tables de Pockley 1961.

le but de préciser et de corriger nos erreurs systématiques. Ce but étant atteint (avec cette réserve que nos mesures du pic 204 sont suspectes d'être un peu trop élevées durant la période novembre 1963 à janvier 1964), nous pouvons procéder à d'autres comparaisons, dans le but cette fois-ci de préciser la composition isotopique exacte, du plomb de certains gisements, quand il paraît y avoir contestation. On a déjà cité la grosse divergence entre Toronto et Oxford. Pour des gisements belges ou de régions très voisines, le problème se pose-t-il dans les mêmes termes ? Avant d'aborder ce point, deux échantillons de galène de Huelgoat (Bretagne), gisement situé près d'un granite hercynien (DEUTSCH et CHAURIS 1960) vont nous permettre une première comparaison Bruxelles - Oxford (tableau 2 - 5).

On dispose de mesures faites sur deux échantillons de galène provenant de ce gisement. R.P.C. POCKLEY (1961) est l'auteur de la mesure d'Oxford, et nous a autorisé à la présenter ici. Vers la même époque, C. LAY, travaillant à Bruxelles, a fait l'analyse isotopique d'un autre échantillon, remis par le B.R.G.M. Les deux résultats étaient sensiblement différents. Dès lors, le problème se posait : faut-il considérer cette différence comme réelle ou traduisait-elle des divergences systématiques interlaboratoires? Il nous est apparu qu'aussi longtemps que cette question n'était pas résolue on serait dans l'impossibilité de tirer des indications réellement utiles de ce genre de mesure, au moins en ce qui concerne les échantillons jeunes où une faible erreur expérimentale entraîne une large erreur sur l'âge conventionnel.

On s'est aperçu tout d'abord que deux corrections devaient être appliquées à la mesure de C. LAY. Une correction de masse de 7°/oo (voir plus haut), et une correction sur le 204 évaluée à 1°/of. Le sommet du pic 204 paraît avoir été lu "trop bas" sur l'enregistrement. Ce sommet de pic présente des irrégularités dues à la fluctuation statique dans l'émission, contrairement aux pics correspondant aux autres masses, pour lesquels le courant ionique est beaucoup plus intense. C'est donc une mesure affectée de ces deux corrections que nous avons fait figurer au tableau 2 - 5, colonne 3, d'accord avec C. LAY. La différence avec la mesure de POCKLEY (colonne 1), si elle n'est plus la môme, est encore importante.

Les deux échantillons d'Oxford et du B.R.G.M., que l'on a désigné par A et B, ont fait l'objet de nouvelles mesures à Bruxelles, en janvier 1964. Par rapport au résultat de C. LAY 1962, il s'agit de mesures faites avec un autre p.m., et la correction de masse appliquée est différente : 3,5°/oo. En outre, à la même époque, on a constaté la présence d'impuretés faussant par excès la mesure du pic 204. Dans le cas des mesures reportées ici, on a observé une variation des rapports 206/204, 207/204, 208/204 mesurés en fonction de l'intensité de l'émission ionique du plomb, phénomène traduisant la présence d'un pic 204 parasite.

Si nous considérons les trois mesures faites à Bruxelles, nous constatons que :

 a) Les deux mesures faites sur l'échantillon B (B.R.G.H.) sont identiques, sauf une faible différence dans la mesure du pic 204, que rend compte l'explication donnée plus haut. La mesure de C. LAY, 1962, doit être considérée comme plus exacte.

b) Les deux échantillons A) et B) ont à très peu de chose près la même composition isotopique (colonnes 2 et 4).

Il faut donc conclure qu'il y a une différence expérimentale systématique entre les mesures faites à Bruxelles et Oxford respectivement, ce que la comparaison des colonnes 1 et 2 montre clairement. Cette différence ne porte pas seulement sur la mesure du 204 mais est plus ou moins proportionnelle au nombre d'unités de masse. Il est à remarquer aussi que la mesure faite à Bruxelles de l'échantillon A (colonne 2) est probablement en erreur par excès de quelques 0,5 à 1% en ce qui concerne le pic 204. Les écarts observés entre nos mesures et celles d'Oxford, sont beaucoup moins importants que ceux constatés entre Oxford et Toronto. Cependant, elles ne sont pas sans conséquences : il suffit pour s'en convaincre de considérer les âges conventionnels qui figurent au bas du tableau. L'âge du granite de Huelgoat est de quelque 320 m.a. (DEUTSCH et CHAURIS 1960). Il serait fort inexact de dire que la meilleure analyse isotopique est celle qui donne la valeur de l'âge conventionnel le plus plausible. D'autres auteurs admettent pour les constantes d'autres valeurs qui conduisent au calcul d'âges conventionnels très différents et généralement plus jeunes, par rapport aux tables de POCKLEY utilisées dans le cas présent. Ainsi les analyses isotopiques figurant aux colonnes 2, 3, 4 correspondraient à un âge compris entre 200 et 0 m.a., d'après les tables de RUSSEL - FARQUHAR - CUMMING (RUSSEL et FARQUHAR 1960, p. 50), de O m.a. pour B.R. DOE (1962, p. 2901) etc.

Comme on l'a vu plus haut, compte tenu de la faible variation de \mathcal{M} et de \mathcal{K} , les équations permettant le calcul d'âges suivant le modèle de l'un ou l'autre auteur sont fondamentalement les mêmes (HOUTERMANS et EBERHARDT, , 1961, p. 387). Les difficultés commencent quand il s'agit de <u>préciser</u> les paramètres W, \mathcal{A}_o , \mathcal{B}_o , $\gamma_o^{(1)}$, éventuellement \mathcal{M} et \mathcal{M} .

Composition isotopique des plombs de l'Eifel, du Limbourg, 3. et de la province Meuse - Vesdre.

Les résultats publiés concernant la composition isotopique de divers échantillons de plomb de galènes de l'Eifel (Manbach), de la région d'Aix-la-Chapelle, et du Limbourg hollandais font état d'un fait surpremant. Si il y a une très grande analogie de composition isotopique entre échantillons de Maubach, d'une part, et des environs d'Aix-la-Chapelle, de l'autre, il n'en va plus du tout de même pour les 29 galènes du Limbourg hollandais (voir fig. 3). Nous pensons qu'il ne faut pas chercher de cause géologique pour rendre compte de ceci, qui ne serait probablement rien d'autre qu'un nouveau cas de divergence systématique interlaboratoire.

Considérons d'abord le tableau 3 A, qui concerne des mesures faites sur différents échantillons du gisement de Maubach (galène diséminée dans le Trias). Notre échantillon n'est ni celui de Bonn, ni d'Oxford, ou de Göttingen. Il nous a été remis par Mr F. BREYER, de même que plusieurs autres échantillons dont il sera question dans la suite.

Dans sa thèse, F. BREYER fait mention de nos analyses isotopiques; mais il s'agit des mesures brutes, non affectées de la correction de masse dont on a pu établir la valeur, d'une manière plus précise, les mois qui suivirent.

Les deux mesures de Göttingen, la mesure de Bonn et celle d'Oxford sont toutes quatre en très bon accord. Seule la mesure faite à Bruxelles donne un résultat différent. La différence porte surtout sur le pic 204. Ce genre d'écant ne paraît pas attribuable

(1) Il y a de petites différences dans la formulation, suivant un auteur ou l'autre. Dans certains cas A_o , β_o , χ_o , figurent explicitement au lieu de W . La formule (4) permet le calcul de 'W en substituant $t = 0, A = A_0, \beta = \beta_0$.

TABLEAU 3 A. GISEMENT DE MAUBACH.

u.d.m.	Rapports	Bruxelles	Oxford Moorbath 1962	€ (Ox/Bx1)	Bonn Ehrenberg et Mürtz 1958	S (Bo/Bx1)	Göttingen a) Geiss 1954	S (Ga/Bxl)	Göttingen b) Geiss 1954	б (Gb/Bx1)
4	208/204	39,05	37,96	- 28*/**	37,97	- 28°/**	38,14	- 23*/**	38.25	- 21°/**
3	207/204	15,88	15,44	- 28*/**	15,46	- 26°/°°	15,51	- 23*/**	15.51	- 23*/**
2 (206/204	18,65	18,22	- 23*/**	18,21	- 24°/**	18,20	- 24°/**	18,25	- 21°/**
- 1	208/206	2,094	2,083	- 5*/**	2,085	- 4°/**	2,096	+ 1°/°°	2,096	+ 1*/**
1	208/207	2,459	2,459	- 0°/**	2,456	- 1°/**	2,460	0°/**	2,466	+ 3°/**
. 1	207/206	0,852	0,847	- 6°/**	0,849	- 3*/**	0,852	0 */**	0,850	- 2*/**
Age convent (tables de Po	tionnel ockley 1961)	400 m.a.	170 m.a.		210 m.a.		280 m.a.		240 m.a.	

TABLEAU 3 B. GISEMENTS LIMBOURG - AIX-LA-CHAPELLE - SCHMALGRAF.

u.d.m.	Rapports	Limbourg néerlandais (29 éch.) Priem et al. 1962	Aachener Bezirl Ehrenberg et H	k (2 éch.) Horlitz 1954	Schmalgraf (1 éch., 2 mesures)	
		Amsterdam	Bon	n	Bruxelles	
4	208/204	de 38,88 à 39,45	37,78	37,80	39,20	39.03
3	207/204	de 15,81 à 16,13	15,44	15,44	15,94	15,88
0	206/204	de 18,60 à 18,99	18,14	18,14	18,65	18,60
-	208/206	de 2,072 à 2,100	2,083	2,084	2,102	2,098
1	208/207	de 2,434 à 2,471	2,447	2,448	2,458	2.457
1	207/206	de 0,846 à 0,854	0,851	0,851	0,855	0,854
Age conver (tables de F	ntionnel Pockley 1961)	de 300 à 460 m.a.	235 m.a.	235 m.a.	470 m.a.	440 m.a.



.

Figure 3

Galènes de la région Meuse - Vesdre - Eifel ayant fait l'objet de mesures isotopiques

> Localisées dans un niveau du Givétien

+ Autres gisements

×

à des causes naturelles. On peut concevoir des additions de plomb d'Uranium (206 avec un peu de 207), de plomb de Thorium (208 seul), mais pas de Pb²⁰⁴ seul. On a donc toute raison de penser que le plomb de ce gisement est un réalité assez homogène du point de vue isotopique. J. GEISS, auteur des deux mesures de Göttingen a) et b) est d'avis (comm. écrite) que les mesures faites à Göttingen peuvent être inexactes par excès de quelque 1%, en ce qui concerne le 204. La mesure de Bonn présente probablement le même défaut, puisque faite sur le même spectromètre. Nous devons donc conclure qu'il en va de même, en ce qui concerne la mesure d'Cxford. On a vu d'ailleurs dans ce qui précède que nos propres mesures ont été durant certaines périodes affectées d'une erreur semblable. On pourrait concevoir que notre propre mesure de Maubach soit aussi légèrement inccorecte, le pic 204 mesuré étant trop faible. A moins qu'une cause d'erreur possible nous ait totalement échappée, il ne nous paraît pas que nous ayons pu faire une erreur systématique de ce genre, qui dépasserait 1%. On ne peut chercher à tirer d'indications plus précises de cette comparaison, puisque portant sur des échantillons différents (même s'ils sont probablement fort peu différents).

Si nous comparons les données du tableau 3 B avec celles du tableau 3 A, nous observons que la composition isotopique d'une galène de Schmalgraf (Echantillon F. BREYER), mesurée à Bruxelles est presque identique à celle du plomb de Maubach, mesurée à Bruxelles également et à la même époque. De même, les deux mesures de plomb de "Aachener Bezirk" faites à Bonn, ne révèlent que peu de différence par rapport à la mesure de l'échantillon de Maubach, faite dans le même laboratoire. Les plombs de la région d'Aix-la-Chapelle et de la région voisine Schmalgraf - Moresnet ont une composition isotopique très proche de celle du plomb de Haubach. La forte différence observée dans ce cas-ci également, entre les mesures de Bonn et de Bruxelles, est d'origine expérimentale selon toute probabilité.

PRIEM, BOELRIJK et BOERBOOH, à Amsterdam, ont étudié la variation (naturelle 1) dans la composition isotopique du plomb des gisements du Limbourg méridional néerlandais. Les mesures faites sur le même instrument concernent 29 échantillons.

La variation naturelle est loin d'être négligeable, binn que s'opérant dans certaines limites. A première vue, les mesures de

TABLEAU 3 C. GALENE DE VEDRIN ET GALENES DISSEMINEES DANS UN NIVEAU DU GIVETIEN.

u.d.m.	Rapports	Rapports Vedrin		Givétien			
			Barse D	Barse E	Hout si ploû		
4	208/204	38,74	38,67	38,78	39,11		
3	207/204	15,73	15,78	15,81	15,84		
2	206/204 208/206	18,48 2,096	18,38 2,103	18,38 2,110	18,61 2,102		
1	208/207 207/206	2,463 0,851	2,451 0,858	2,453 0,860	2,470 0,851		
Age conventionnel		345m.a.	475 m.a.	510 m. a.	380 m.a.		

(tables de Pockley, 1961).

Bruxelles sont comparables à celles d'Amsterdam, mais nous n'avons pas de comparaison directe.

Pour conclure, on voit qu'il y a tout lieu de penser qu'il y a une très grande analogie dans la composition isotopique du plomb du gisement filonien Limbourg - Moresnet (Schmalgraf) - Aix-La-Chapelle, d'une part, et Maubach, de l'autre. Un examen non critique des données publiées tendrait à faire penser le contraire.

Le tableau 3 C rassemble les résultats concernant d'autres échantillons qui nous ont été remis par lr F. BREYER.

Le gisement de Vedrin appartient à la province filonienne Meuse - Vesdre, tout comme Schmalgraf, mais se trouve géographiquement assez loin de cette dernière localité. Les trois autres échantillons proviennent de galènes disséminées dans un niveau calcaire givétien et sontconsidérés par F. BREYER comme pouvant être syngénétiques. Le plomb de Hout si ploû ne se distingue en rien d'un plomb filonien de la province Meuse - Vesdre, par exemple Schmalgraf. Par contre, Barse (deux affleurements) paraît un peu différent. On ne peut, pour l'instant, rien conclure en ce qui concerne la possibilité d'une origine syngénétique.

4. <u>Remarques concernant les analyses isotopiques de plombs</u> hercyniens et paléozoïques en général, d'Europe occidentale.

Si nous poursuivons notre analyse en consultant les données publiées, concernant un plus grand nombre de gisements, on constate la généralité des divergnœs interlaboratoire notées dans ce qui précède. Comme nous ne possédons pas encore de résultats concernant tous ces gisements, il nous faudra discuter les données d'autres laboratoires : Oxford, Berne, Toronto, etc.

Si l'on compare entre elles, par exemple, des mesures faites à Oxford sur des galènes de gisements hercyniens ou calédoniens, remobilisés ou non, on constate une grande similitude. Ainsi le résultat de PCCKLEY (tableau 2 - 5) concernant la galène de Huelgoat n'est que peu différent de celui obtenu par MOCRBATH, sur la galène de Maubach (tableau 3 A).

On retrouve également des rapports \checkmark , (³, γ , très proches de 18,2, 15,5, 38,0 pour de très nombreuses galènes (mesures d'Oxford) de Cornouailles, Devon, Northern Pennines et North-east England, Somerset, Lake Bistrict, North Wales etc (LCORBATH 1962). Par contre les mesures de Berne donneront systématiquement des α , β , χ , plus élevés, sensiblement de 18,6 15,8 38,9, que l'échantillon provienne de Suisse, d'Allemagne ou du Cumberland (EBERHARDT, GEISS et HOUTERLANS 1955). Il en est de même des mesures de Toronto (citées par MOORBATH, 1962) comme on l'a déjà signalé plus haut.

Ceci montre une plus grande homogénéité réelle dans la composition isotopique des gisements d'Europe occidentale, qu'on ne pourrait croire de prime abord.

C'est là une conclusion déjà émise en 1961 par CANNON et al., : "Lead in ore deposits, enclosed predominantly in rocks of Paleozoïc age, around the perimeter of the North Atlantic from North Carolina to Newfound land to Spain is almost invariant in composition" (p.15). Mais les données discutées par ces auteurs ne concernaient qu'un beaucoup plus petit nombre de résultats que ceux dont on dispose à l'heure actuelle, surtout en ce qui concerne l'Europe et particulièrement la Grande-Bretagne et les Pays-Bas. En outre, leur discussion ne porte, de propos délibéré et à cause de la difficulté de la mesure du pic 204, que sur les proportions relatives de 206, 207 et 208. Leur conclusion demeure très probablement valable, si on la généralise à un plus grand nombre de résultats et à l'isotope 204 également.

D'un autre côté, les conséquences de l'inexactitude des mesures, en ce qui concerne le calcul d'un âge conventionnel, nous paraissaient devoir être mises en lumière.

5. Correction de plomb commun

Dans notre thèse, nous avons exposé les raisons pour lesquelles la correction avec un plomb de composition isotopique 1 18,6 15,8 38,9 nous paraissait justifiée dans chaque cas particulier de zircon jeune (hercynien). On a vu aussi que l'utilisation d'un plomb de rapport 207/204 sensiblement plus faible (par exemple 15,5) entraînerait le calcul d'un t 207rad/ 206rad beaucoup plus élevé, dans chaque cas où le plomb commun est assez abondant. Nous avons maintenant une justification plus générale de cette façon de faire. Il n'est pas justifié de faire la correction avec un plomb commun jeune dont β vaudrait 15,5, parce que notre spectromètre de masse ne mesurera sans doute jmmais un β de 15,5 sur un plomb commun jeune. Nos quelques résultats concernant des galènes belges et allemandes sont dans la marge de variation des mesures de Berne, pour des échantillons probablement paléozoïques d'Europe, quelle que soit leur provenance. Ceci ne doit pas étonner : nos calibrations ont été faites, dans une large mesure, par rapport aux résultats de Berne, que nous pensons être parmi les plus exacts.

Si nous n'avons pas éliminé nos erreurx systématiques, cependant, il vaut mieux utiliser une mesure de plomb commun affectée de la même erreur systématique que la mesure du plomb commun dans le mélange Pbcom.+ Pbrad., que de faire un calcul de la correction du plomb commun à partir de deux mesures affectées respectivement d'erreurs systématiques différentes. ALDRICH, L.T., DAVIS, G.L., TILTON, G.R. et WETHERILL, G.W. (1955) : Radioactive ages of minerals from the Brown Derby Mine and the Quartz Creek granite near Gunnison, Colorado. Journ. Geophys. Res., <u>61</u>, 213-232. BREYER, F. (1962) : Thèse, Université de Liège. CAHEN, L., EBERHARDT, P., GEISS, J., HOUTERMANS, F.G., JEDWAB, J. et SIGNER, P. (1958) : On a correlation between the common lead model age and the trace element content of galenas. Geochim. et Cosmochim. Acta, 14, 134-149. CAHEN, L. et JEDWAB, J. (1958) : Beziehungen zwischen dem Modelhalter des Bleis, dem Gehalt an Spurenelementen des Bleiglanzes und der geologischen Geschichte einiger Bleierzlaggerstätten Westdenschlands. Z. der Deutschen Geol. Ges. 110, 474-490. CANNON, R.S., Jr., FIERCE, A.P. ANTWEILER, J.C. et BUCK, K.L. (1951) The data of lead isotope geology related to problems of ore genesis. Econ, Geology, 56, 1-38. CHOW, T.J. et Mc KINNEY, G.R. (1958) : Mass spectrometric determination of lead in manganese nodules. Anal. Chem., 30, 1499-1503. CHOW, T.J. et PATTERSON, C.C. (1952) : The occurence and significance of lead isotopes in pelagic sediments. Goechim. et Cosmochim. Acta, 26, 263-308. DELEVAUX, M.H. (1963) : Lead reference sample for isotopic abundance ratios. Art. 42 in U.S. Geol. survey. Prof. paper 475-B, pp. B 160-B161. DEUTSCH, S. et CHAURIS, L. (1960) : Mesure de l'âge absolu du granite de Huelgoat (Finistère) C.R. Acad. Sciences, Paris, 250, 1298-1300. DOE, B.R. (1962) : Relationships of lead isotopes among granites, pegmatites, and sulfide ores near Balmat, New-York. Journ. Geophys. Res. 67, 2895-2906. EBERHARDT, P., GEISS, J. et HOUTERMANS, F.G. (1955) : Isotopenverhältnisse von "gewöhnlichem" Blei und ihre Deutung. Z. Physik, 141, 91-102. EHRENBERG, H.Fr. et HORLITZ, G. (1954) : Weitere Isotopen - Analysen an Bleierzen. Z. Naturforschg. 9 a, 951-954. EHRENBERG, H. R., et MURTZ, H.J. (1958) : Isotopen Zusammen setzung einiger Bleiglanze. Z. Naturforschg, 13 a, 854-855. GEISS, J. (1954) : Isotopen analysen an "gewöhnlichem Blei" Z. Naturforschg., 9 a, 218-227.

HOLMES, A. et CAHEN, L. (1957) : Géochronologie africaine 1956. Acad. roy. Sc. colon., cl. Sc. nat. et médic., in - 8°, NS, 5/1, 170 pp. HOUTERMANS, F.G. et EBERHARDT, A. (1961) : Common lead and common occurences of such elements which have a radiogenic isotope. In : Summer course on Nuclear Geology Varenna 1960, 371-401. MOORBATH, S (1962) : Lead isotope abundance studies on mineral occurences in the British Isles and their geological significance. Philos. Trans. Roy. Soc. London, Ser. A. Mathem. Phys. Sc., 254, 295-360. PATTERSON, C.C. (1956) : Age of meteorites and the earth. Geochim. et Cosmochim. Acta, 10, 230-237. POCKLEY, R.P.C. (1961) : Lead isotopes and agd studies of uranium and lead minerals from the British Isles and France, Unpublished doctoral thesis, University of Oxford. POCKLEY, R.P.C. (1961) : Longer Lead model age table V, polycopié. Dept. of Geol. and Miner., Oxford University. PRIEM, H.N.A., BOELRIJK, N.A.I.M. et BOERBOOM, A.J.H. (1962) : Lead isotope studies of the lead - zinc deposits of southern Limburg, The Netherlands. Geologie en Mijnbouw, <u>41</u>, 430-437. REINHARZ, M., DELWICHE, R. et KATZ, J. (1962) : Spectromètre de masse du Laboratoire de Géologie et Géochimie Nucléaires. Presses Universitaires de Bruxelles. RICHARDS, J.R. (1963) : Isotopic composition of Australian leads III. Northwestern Queensland and the Northern Territory. - A reconnaissance. Geochim. et Cosmochim. Acta, 27, 217-240.

RUSSEL, R.D. et FARQUHAR, R.M. (1960) : Lead isotopes in geology. Interscience Publishers, N.Y., London.
